



ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
и
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ
ФИЗИКИ



НАУКА

— 1727 —

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

ОСНОВАН В МАРТЕ 1873 ГОДА

ТОМ 165, ВЫПУСК 2

ВЫХОДИТ 12 РАЗ В ГОД

ФЕВРАЛЬ 2024

МОСКВА

РАН

ЖУРНАЛ ИЗДАЕТСЯ ПОД РУКОВОДСТВОМ ОТДЕЛЕНИЯ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК РАН

СОДЕРЖАНИЕ

АТОМЫ, МОЛЕКУЛЫ, ОПТИКА

Резонансная оптическая накачка изомера ^{229}Th с энергией 8 эВ	Карпешин Ф. Ф., Тржасковская М. Б.	145
Энергия, импульс и угловой момент электромагнитного поля в среде с нелокальностью оптического отклика при вырожденном по частоте нелинейном взаимодействии волн	Рыжиков П. С., Макаров В. А.	152
Сильное возбуждение электронной подсистемы золота ультракоротким лазерным импульсом и процессы релаксации около температуры плавления	Иногамов Н. А., Хохлов В. А., Ромашевский С. А., Петров Ю. В., Овчинников М. А., Ашитков С. И.	165
Non-sequential double ionization of the alkaline earth atoms with a near-single cycle laser pulse in a linearly polarized laser field	Delibašić Marković H., Petrović V., Petrović I.	191
Стабилизация генерации фемтосекундных импульсов в лазере с пассивной синхронизацией мод на кристалле $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Cr}^{4+}$ за счет спектральной разгрузки резонатора в боковые компоненты Келли	Иванов А. А., Ланин А. А., Воронин А. А., Жариков Е. В., Федотов А. Б.	196

ЯДРА, ЧАСТИЦЫ, ПОЛЯ, ГРАВИТАЦИЯ И АСТРОФИЗИКА

Нарушение симметрии при рассеянии нейтронов	Лукашевич В. В.	207
---	-----------------	-----

ТВЕРДЫЕ ТЕЛА И ЖИДКОСТИ

К теории гомогенного зарождения некогерентных включений в твердых растворах	Вещунов М. С.	214
---	---------------	-----

© Российская академия наук, 2024

© Редакция журнала ЖЭТФ (составитель), 2024

Квантовая динамика ян-теллеровских комплексов $\text{Cr}^{2+}\text{F}_8^-$ в кристалле $\text{CdF}_2 : \text{Cr}$	
..... Сарычев М. Н., Офицерова Н. Ю., Жевстовских И. В., Егранов А. В., Суриков В. Т., Аверкиев Н. С., Гудков В. В.	226

ПОРЯДОК, БЕСПОРЯДОК И ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ В КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕДАХ

Распределение фаз в одномерной локализации и фазовые переходы в одномодовых волноводах	
..... Суслов И. М.	233
Магнитоэлектрическое возбуждение резонансных переходов в электронной спиновой системе примесных ионов ^{167}Er в ортосиликате иттрия (Y_2SiO_5)	
..... Тарасов В. Ф., Соловаров Н. К., Суханов А. А., Заварцев Ю. Д.	250
Коллапс малой петли магнитного гистерезиса гранулярного высокотемпературного сверхпроводника $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	
..... Балаев Д. А., Семёнов С. В., Гохфельд Д. М., Петров М. И.	258

ЭЛЕКТРОННЫЕ СВОЙСТВА ТВЕРДЫХ ТЕЛ

Сильное отрицательное магнитосопротивление и прыжковый транспорт в графенизированных нематических аэрогелях	
..... Цебро В. И., Николаев Е. Г., Кутузов М. С., Садаков А. В., Соболевский О. А.	266

СТАТИСТИЧЕСКАЯ И НЕЛИНЕЙНАЯ ФИЗИКА, ФИЗИКА «МЯГКОЙ» МАТЕРИИ

Экранированное и ван-дер-Ваальсовское взаимодействие в пылевой плазме и электролитах	
..... Филиппов А. В.	276
Неустойчивость Кельвина – Гельмгольца в нелинейной оптике	
..... Рубан В. П.	294

РЕЗОНАНСНАЯ ОПТИЧЕСКАЯ НАКАЧКА ИЗОМЕРА ^{229m}Th С ЭНЕРГИЕЙ 8 эВ

Ф. Ф. Карпешин ^{a*}, М. Б. Тржасковская ^b

^a Всероссийский научно-исследовательский институт метрологии им. Д. И. Менделеева
190005, Санкт-Петербург, Россия

^b Петербургский институт ядерной физики им. Б. П. Константинова
Национального исследовательского центра «Курчатовский институт»
188300, Гатчина, Ленинградская обл., Россия

Поступила в редакцию 13 августа 2023 г.,
после переработки 12 октября 2023 г.
Принята к публикации 24 октября 2023 г.

Наиболее вероятным кандидатом на роль ядерно-оптического стандарта является изомер ядерного изотопа ^{229m}Th с энергией 8.338 эВ. Обсуждается возможность уточнения его энергии путем резонансной оптической накачки через электронный мостик. Решающее значение имеет надлежащее использование естественной ширины атомных линий, которые на порядки величины превышают естественную ширину ядерной изомерной линии. Последние исследования показали, что уширение за счет внутренней конверсии в нейтральных атомах тория приводит к выигрышу во времени сканирования на девять порядков величины, облегчая поиск электрон-ядерного резонанса до практически реального уровня. Предлагаемый в настоящей статье метод резонансной конверсии применим в ионизованных атомах тория. Он обладает потенциалом, позволяющим повысить эффективность эксперимента на порядки величины. Реализация этого метода требует одновременного возбуждения ядра и электронной оболочки в конечном состоянии. Показана причинная связь между этим принципом и решением ториевой загадки.

DOI: 10.31857/S0044451024020019

1. ВВЕДЕНИЕ

Хорошие перспективы создания стандарта частоты и часов следующего поколения обещает использование спектральных линий, отвечающих переходам ядерных изомеров. Ядра, будучи расположены в центре электронной оболочки, слабее по сравнению с атомными или молекулярными системами подвержены воздействиям внешних помех и внутрикристаллических полей. Эти линии узкие и устойчивые. Проблема в том, что в большинстве ядер переходы имеют энергии десятки кэВ. Такими переходами проблематично манипулировать с помощью лазеров. Имеется уникальный нуклид ^{229}Th , возбужденное состояние которого $3/2^+[631]$ обладает энергией $\omega_n = 8.338(24)$ эВ (см. [1]), что больше, чем у основного состояния $5/2^+[633]$.

Основное препятствие для конструирования стандарта частоты состоит в том, чтобы уменьшить неопределенность в значении энергии изомерного перехода вплоть до естественной ширины ядерной линии, которая лежит на уровне 10^{-19} эВ. Возможный путь решения данной задачи дается методом резонансного фотовозбуждения изомера (оптической накачки). С этой целью можно было бы использовать перестраиваемый лазер непрерывного действия с длиной волны вблизи резонанса $\lambda \approx 150$ нм. Проблема в том, что естественная ширина линии собственно изомерного перехода слишком узкая для сканирования: $\Gamma_n = 0.667 \cdot 10^{-19}$ эВ (10^{-5} Гц), которое потребовало бы слишком много времени.

В этой связи повторимся, что наиболее эффективный, если не единственный путь ускорения сканирования лежит через использование резонансных свойств электронной оболочки. И дело не только в усилении воздействия внешнего поля на ядро в случае резонанса. Еще более важным свойством в применении к сканированию является уширение резо-

* E-mail: fkarpeshin@gmail.com

нансной линии на много порядков по отношению к ширинам атомного и ядерного переходов. Взаимодействие ядра с электронной оболочкой осуществляется посредством внутренней конверсии (ВК), в подпороговой области переходящей в дискретную или резонансную конверсию (РК). Концепция РК была сформулирована еще в работе [2] применительно к девозбуждению осколков деления в мюонных атомах. В работе [3] впервые был предложен способ усиления ядерного перехода с помощью лазера, использующий РК, на примере изомера ^{235}U с энергией 76 эВ. В статье отмечалась общность РК с электронными мостиками (ЭМ), рассмотренными Крутовым [4]. Крутов рассматривал случай, когда ЭМ образуется в континууме. ЭМ особенно эффективны в случае больших КВК (коэффициентов ВК). Например, согласно расчетам [5], ЭМ увеличивают вероятность радиационного распада изомера ядра ^{235}U с энергией 76 эВ на пять порядков величины. В работе [6] наблюдался ЭМ в распаде изомерного уровня ^{93}Nb с энергией 30.7 эВ. В свою очередь, оба предсказания РК были наблюдаемы экспериментально в работах [7] в мюонных атомах и в ионах ^{125}Te [8]. После работы [9] и других широкое распространение получил термин обратного ЭМ для обозначения механизмов фотовозбуждения изомера ^{229}Th при посредстве электронной оболочки. В дальнейших деталях концепция обратных ЭМ была рассмотрена недавно в работах [10, 11]. Следует еще отметить важный вклад в построение теории РК работы [12], в которой была продемонстрирована решающая роль смешивания электронных конфигураций среднего поля атома. В работе [13] было показано усиление резонансных свойств оболочки по мере удаления из нее электронов вплоть до водородоподобных ионов, в которых может наблюдаться РК в отсутствие затухания, создаваемого иначе другими электронами. В работе [14] была проанализирована совокупность процессов РК с точки зрения их эффективности для оптической накачки изомера ^{229}Th , в качестве энергии которого в то время было принято значение 3.5 эВ.

С учетом современного значения энергии изомера доминирующим каналом его распада в нейтральных атомах становится ВК с КВК

$$\alpha(M1) = 0.987 \cdot 10^9.$$

Наблюденное время жизни изомера в нейтральных атомах оказалось 10 мкс [15]. Учет ВК приводит к увеличению естественной ширины изомерной линии

до величины

$$\Gamma_a = 0.7 \cdot 10^{-10} \text{ эВ (10 кГц)}.$$

На практике применение метода сканирования встречает большие трудности. Лазеры в вакуумно-фиолетовом диапазоне с длиной волны около 150 нм практически отсутствуют. Для преодоления этой проблемы в физико-техническом институте РТВ (Брауншвейг) использовался метод двухфотонного поглощения [16]. Уникальный лазер использовался для накачки изомера в университете Калифорнии Лос-Анджелес (UCLA) в группе профессора Э. Хадсона. Несколько лет безуспешных попыток, однако, побуждают к поиску новых путей. Наиболее перспективным представляется в настоящее время проект [17], основанный на использовании канала ВК в нейтральных изомерных атомах. Аналогичные разработки ведутся в Петербургском институте ядерной физики (ПИЯФ) Национального исследовательского центра «Курчатовский институт» [18]. Рассмотрим этот проект более детально, чтобы, отталкиваясь от него как образца современного состояния эксперимента, наметить пути дальнейшего повышения эффективности исследования.

2. ОЦЕНКА НЕОБХОДИМОГО ВРЕМЕНИ СКАНИРОВАНИЯ ПО МЕХАНИЗМУ ВК В НЕЙТРАЛЬНЫХ АТОМАХ ^{229}Th

Для резонансного возбуждения некоторой системы естественно использовать световой пучок со спектральной шириной, приблизительно равной ширине резонанса. Тогда оценку сечения фотовозбуждения уровня с энергией ω ¹⁾ можно провести по формуле [14]

$$\sigma_\gamma(0 \rightarrow \omega) = \Gamma_\gamma(\omega \rightarrow 0) \frac{2I_\omega + 1}{2I_0 + 1} \left(\frac{\pi}{\omega}\right)^2 S_\omega, \quad (1)$$

где S_ω — спектральная плотность пучка, I_0 , I_ω — спины системы в исходном и возбужденном состояниях соответственно, $\Gamma_\gamma(\omega \rightarrow 0)$ — радиационная ширина обратного перехода. Положив $S_\omega \approx 1/\Gamma_\omega$, где Γ_ω — полная ширина состояния ω , и считая $\Gamma_\gamma(\omega \rightarrow 0) \approx \Gamma_\omega$, получим для оценок универсальную формулу

$$\sigma_\gamma(0 \rightarrow \omega) = \frac{2I_\omega + 1}{2I_0 + 1} \left(\frac{\pi}{\omega}\right)^2, \quad (2)$$

применимую в равной мере как к ядерным, так и атомным системам. Данная общность чрезвычайно важна при рассмотрении явлений электронно-ядерного резонанса.

¹⁾ Мы используем релятивистскую систему единиц $\hbar = c = m_e = 1$.

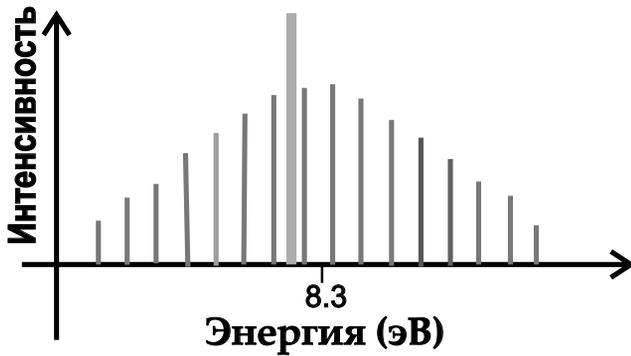


Рис. 1. Частотная гребенка, предлагаемая для определения энергии изомера [15]. Она состоит из $1.2 \cdot 10^5$ гребенчатых мод (зубцов) с переменной частотой, с центром в районе 8.3 эВ. Ширина каждой моды 490 Гц, мощность — 10 нВт в центральной области гребенки. Положение ядерной линии условно показано широким вертикальным отрезком. В процессе сканирования частоты зубцов гребенки проводится поиск резонанса

В проекте [17] предлагается использовать седьмую гармонику опорного луча волоконного лазера с длиной волны 1070 нм. На пути полученного таким образом непрерывно генерируемого луча мощностью 1.2 мВт помещается вращающаяся заслонка с отверстиями, которая производит его циклическое открывание-прерывание на равные промежутки времени 100 мкс. В результате фурье-спектр преобразованного луча обретает вид частотной гребенки, расположенной возле целевой энергии и состоящей из $1.2 \cdot 10^5$ эквидистантных зубьев. Мишень представляет собой тонкий круг диаметром 0.3 мм. На его поверхность путем напыления или иным способом наносится $1.6 \cdot 10^{13}$ атомов ^{229}Th . Полученный таким образом световой пучок в виде частотной гребенки фокусируется на эту мишень. Факт резонансного поглощения устанавливается путем регистрации конверсионных электронов, возникающих при девозбуждении изомера. Аппаратура для регистрации конверсионных электронов разрабатывается на основе детекторов, ранее использованных авторами для обнаружения распада изомера [15] и первого прямого измерения его энергии [19].

Мощность излучения в каждом зубе гребенки 10 нВт, полуширина 490 Гц ($2 \cdot 10^{-12}$ эВ), расстояние между зубьями 77 МГц ($3 \cdot 10^{-8}$ эВ). Из формулы (2) следует, что если частота облучения попадает в резонанс с ядерным переходом, то за время каждой экспозиции 100 мкс в изомерное состояние перейдут приблизительно 60 атомов. Частота сканирования меняется каждую секунду. Шаг изменения частоты равен ширине искомой линии, т. е. 10^{-10} эВ. Тогда для сканирования интервала между зубцами гре-

бенки потребуется 5000 шагов, что займет 5000 секунд. Для более точного определения энергии изомера надо изменить интервал между зубцами. Поэтому для уточнения энергии изомера потребуется провести еще несколько циклов сканирования.

3. РЕЗОНАНСНАЯ НАКАЧКА ИЗОМЕРА ЧЕРЕЗ ЭЛЕКТРОННУЮ ОБОЛОЧКУ

Мы так подробно остановились на описании проекта с Th I, чтобы дать наилучшее представление об уровне развития современного эксперимента, его проблемах и задачах. Основная цель настоящей работы — еще раз обратить внимание на то, что можно значительно сократить время эксперимента, если воспользоваться резонансными свойствами электронной оболочки для усиления воздействия внешнего поля на ядро. Разобранный выше пример уже использует усиление изомерного перехода каналом ВК на 9 порядков величины. Однако этот механизм можно отнести к факторам кинематического усиления, пассивно использующего уширение спектральной линии изомера вследствие ВК. Резонанс же с электронной оболочкой как таковой не эксплуатируется. Но уже в однократных ионах энергия отрыва электрона становится больше энергии изомера, что выключает канал ВК. В то же время большинство проектов предполагают использование именно ионов ^{229}Th .

Подходящий для ионов механизм динамического уширения был представлен в работе [14]. Рассмотрим его применение на примере однократных ионов ^{229}Th .

В начальном состоянии атома и ядро, и валентный электрон пребывают в основном состоянии. Конфигурация оболочки — $7s6d^2$ с угловым моментом $j = 3/2$ [20]. В виртуальном процессе дискретной конверсии 7s-электрон передает ядру необходимую для образования изомера энергию ω_n . В спектральном разложении функции Грина (рис. 2) можно в первом приближении ограничиться тем же 7s-состоянием, поскольку 8s- и другие уровни расположены гораздо дальше по энергии. Варшавский эффект состоит в том, что открывает возможность смешивания посредством РК основного и изомерного ядерных состояний, несмотря на то, что у них разные спины, с сохранением полного углового момента атома F [21]. Это приводит к ускорению распада изомера в сотни раз в случае водородоподобных ионов ^{229m}Th . Если в диаграмме на рис. 2 рассмотреть водородоподобные ионы вместо однократных, то были бы возможны в начальном состоянии пол-

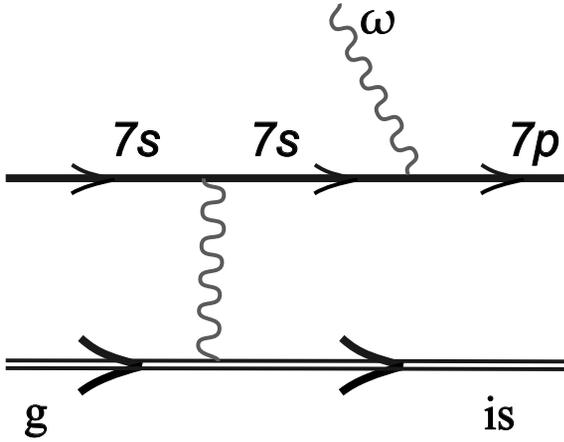


Рис. 2. Фейнмановский график резонансной оптической накачки изомера, основанный на принципе осцилляции основного и изомерного состояний

ные моменты $F = 2$ и 3 , причем уровень с $F = 2$ был бы основным. Аналогично, изомер мог бы образовать с электроном состояния с $F = 1$ и 2 . Виртуальный переход в изомерное состояние возможен с $F = 2$, с начальным же состоянием с $F = 3$ процесс типа показанного на рис. 2 был бы невозможным. Правила отбора ВК автоматически учитывают эти комбинации в формулах для расчета дискретных КВК $\alpha_d(M1)$. В рассматриваемом случае однократных ионов благодаря еще большему моменту электронной оболочки, $j = 3/2$, тем более возможен целый ряд комбинаций для полного момента F как в начальном, так и в конечном состояниях. Все они по-прежнему учитываются правилами отбора для $\alpha_d(M1; 7s-7s)$.

Баланс энергии восстанавливается поглощением внешнего фотона с частотой (и энергией) ω . Absorbировав энергию фотона, электрон переходит в конечное $7p$ -состояние. Частота пучка определяется из условия сохранения энергии:

$$\omega = \omega_n + \epsilon_{7p}, \quad (3)$$

где ϵ_{7p} — энергия $7p$ -уровня. На этой частоте амплитуда проходит через резонанс шириной $\Gamma_a = \Gamma_{7p}$, равной ширине $7p$ -уровня. Поэтому для целей сканирования целесообразно использовать пучок с резонансной частотой ω и со спектральной шириной, равной ширине резонанса Γ_a . Условно назовем этот метод первым и сравним с другим методом, в котором используется пучок с таким же потоком, но с частотой ω_n и со спектральной шириной, равной полуширине изомерной линии Γ_n , и который можно использовать для накачки голого ядра. Для отношения средних сечений таких двух процессов — фактора ускорения R , в работе [14] была получена формула

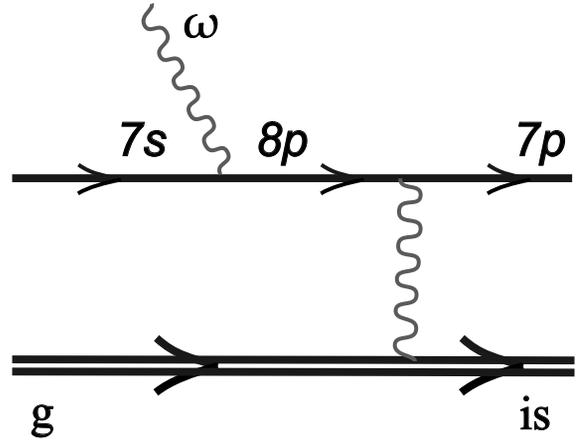


Рис. 3. Фейнмановский график резонансной оптической накачки изомера по прямому механизму

$$R = \frac{\alpha_d(M1; 7s-7s)\Gamma_\gamma^{(a)}(\omega; 7s-7p)}{2\pi\omega_n^2}. \quad (4)$$

Здесь $\alpha_d(M1; 7s-7s)$ — размерный аналог КВК для $M1$ -перехода с энергией ω_n , $\Gamma_\gamma^{(a)}(\omega; 7s-7p)$ — радиационная ширина перехода $7s-7p$ с частотой ω (вне массовой поверхности). С обычной шириной она связана соотношением детального баланса

$$\Gamma_\gamma^{(a)}(\omega; 1-2) = \frac{2j_2 + 1}{2j_1 + 1} \Gamma_\gamma^{(a)}(\omega; 2-1), \quad (5)$$

где числами $1-2$ и $2-1$ обозначено направление процесса в общем случае, а $2j_i + 1$ — статистический вес i -го состояния. Подчеркнем, что фактор ускорения (4) достигается на более широком пучке, но с тем же потоком фотонов. Однако энергия резонанса, согласно (4), будет несколько выше. Соответственно, выше будет и мощность пучка — пропорционально отношению ω/ω_n .

Диаграмма на рис. 2 интерферирует с диаграммой на рис. 3а из работы [14], в которой порядок взаимодействия $7s$ -электрона с ядром и пучком заменен на противоположный, а промежуточное состояние $7s$ заменено на $8p$. Полученная таким образом фейнмановская диаграмма приведена на рис. 3. В качественном отношении она несет тот же физический смысл [22]. Лазерный фотон с частотой ω поглощается $7s$ -электроном, который переходит в виртуальное состояние. Вблизи резонанса основной вклад вносит $8p$ -электрон. Он передает часть полученной энергии ядру, переводя его в изомерное состояние. Электрон же остается в возбужденном состоянии $7p$ с энергией ϵ_{7p} . Условие резонанса по-прежнему дается формулой (3). Фактор ускорения можно рассчитать по формуле [14], аналогичной (4):

$$R = \frac{\alpha_d(M1; 8p-7p)\Gamma_\gamma^{(a)}(\omega; 7s-8p)}{2\pi(\omega - \epsilon_{8p})^2}. \quad (6)$$

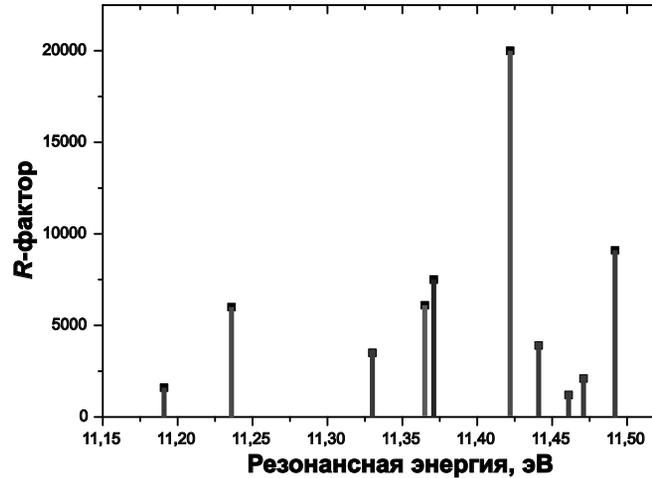


Рис. 4. Картина резонансов с учетом фрагментирования $7p$ -уровней согласно [20], R -фактор приведен в относительных единицах интенсивности

Подводя итог этому разделу, резюмируем, что выигрыш в сечении можно использовать для сокращения времени сканирования по первой методике в R раз. Спектральное уширение пучка также позволяет сократить время сканирования в Γ_a/Γ_n раз по сравнению со второй схемой.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

На момент публикации работы [14] другое значение энергии изомера считалось наиболее вероятным: 3.5 эВ. Поэтому расчеты проводились с этим значением. Настоящие расчеты выполнены в рамках метода Дирака–Фока с помощью комплекса компьютерных программ RAINE для расчета атомных структур [23]. В результате были получены следующие значения:

$$\alpha_d(\omega_n; 7s-7s) = 1.95 \cdot 10^{10} \text{ эВ},$$

КВК для $M1$ -перехода с энергией $\omega_n = 8.338$ эВ в Th I равен $\alpha(M1) = 0.987 \cdot 10^9$. Если положить время жизни в нейтральных атомах 10 мкс [15], то отсюда следует собственная ширина изомера

$$\Gamma_n = 0.667 \cdot 10^{-19} \text{ эВ}.$$

В рамках метода резонансное сечение состоит из двух компонент, соответствующих конечным уровням $7p_{1/2}$ и $7p_{3/2}$, причем интенсивность второй компоненты вдвое выше первой. Для энергии уровня $7p_{3/2}$ получено значение 3.52 эВ, следовательно, $\omega = 11.86$ эВ. Энергия уровня $7p_{1/2}$ получилась 2.49 эВ, соответственно $\omega = 10.83$ эВ для этого уровня. Далее, радиационная ширина атомного перехода

$$\Gamma_\gamma^{(a)}(\omega; 7s-7p) = 3.30 \cdot 10^{-6} \text{ эВ},$$

что на тринадцать порядков больше естественной ширины изомерной линии Γ_n . Подставляя указанные значения в формулу (4), найдем величину фактора ускорения $R = 147$.

Вклад от диаграммы на рис. 3 в работе [14] был в 20 раз меньше. Он становится относительно еще меньшим с современным значением энергии изомера. Поэтому можно ограничиться рассмотрением диаграммы на рис. 2.

Межэлектронное взаимодействие приводит к фрагментации атомных уровней и силы переходов между ними. Считая, что сечение процесса пропорционально интенсивности соответствующей линии перехода из основного состояния $7s$ в возбужденное $7p$ в соответствии с формулой (4), можно оценить относительную интенсивность соответствующих компонент в сечении резонансного фотовозбуждения. С этой целью используем экспериментальные относительные интенсивности атомных линий спектра поглощения Th II, приведенные в [20]. Согласно [20], выделяется малофрагментированная компонента, соответствующая переходу из основного состояния на уровень $7s7p6d$ с $j = 5/2$ и энергией 3.08398 эВ. Полученные таким путем относительные оценки для наиболее сильных линий представлены на рис. 4. Как можно видеть, помимо основной компоненты с энергией 11.422 эВ, имеются интенсивные спутники с энергиями 11.371, 11.365, 11.236 эВ и другие. Их можно использовать как реперы, детектирование которых поможет надежно идентифицировать энергии этих компонент в эксперименте и соответственно определить энергию изомера согласно (3) с точностью, соответствующей лазерным методам измерения.

5. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Отметим особенности резонансного возбуждения ядра согласно рис. 2, 3 по сравнению с поглощением фотона голым ядром.

1. Сечение по резонансному механизму, согласно расчету, оказалось усиленным приблизительно в $R \approx 150$ раз. В этом проявляются динамические свойства электронной оболочки как резонатора.

2. Наиважнейшее для целей настоящей работы различие состоит в ширине резонанса. Если для голого ядра эта ширина задается собственной полушириной (в отсутствие ВК) изомерного уровня ядра Γ_n , то по механизму, представленному на рис. 2, 3, она равна сумме всех ширин — электронной и ядерной. Обычно, как в данном случае, доминирует сумма ширин промежуточного $8p$ - и конечного $7p$ -состояний возбужденного атома. Обозначим ее по-прежнему Γ_a . Имеет место соотношение $\Gamma_a \gg \Gamma_n$, поэтому сканирование по механизму, приведенному на рис. 2, требует в Γ_a/Γ_n раз меньше времени.

3. Для эффективной реализации этого механизма крайне важно, чтобы конечный атомный уровень, в данном случае $7p$, не был основным, а имел бы типичную атомную ширину. Если бы вместо $7p$ -уровня атом возвращался в основное $7s$ -состояние, то резонанс имел бы ядерную ширину Γ_n ввиду отсутствия атомных ширин как следствие закона сохранения энергии. Фактор усиления $R = 150$ мог бы сохраниться в случае монохроматического лазерного пучка фотонов с частотой $\omega = \omega_n$ и спектральной шириной $\Gamma_\omega \approx \Gamma_n$, но важнейшее преимущество оптической накачки изомера лучом со спектральной шириной типичной атомной линии было бы утеряно.

В частности, это относится к двухфотонной схеме возбуждения изомера, предложенной в работе [24], в которой энергия двух последовательно поглощенных электронной оболочкой фотонов целиком передается ядру. При этом электронная оболочка возвращается в основное состояние. Ввиду того, что сказано выше, эта схема представляется нежизнеспособной в настоящее время: оболочка должна оставаться в возбужденном состоянии. Другие недостатки работы [24] рассмотрены в статьях [25, 26]. В свое время они привели к возникновению парадокса, названного ториевой загадкой. Аргументы, приведенные выше, подводят итог в ее решении.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мы на пороге рождения новых лазерно-ядерных технологий. Они будут основаны на резонансном взаимодействии пучков света с ядрами: резонансном поглощении и рассеянии, упругом и неупругом, нелинейных эффектах, таких как генерация высших гармоник и других. Чтобы осуществить эти манипуляции с голыми ядрами, необходимо использовать узкие в спектроскопическом смысле почти монохроматические пучки со спектральной шириной в пределах ширины ядерной линии. Развитие таких технологий требует знания энергий ядерных переходов и изомеров. Именно такие световые лучи лягут в основу будущих ядерно-оптических часов.

В то же время можно использовать электронную оболочку как эффективный резонатор, усиливающий воздействие света на ядро. Инструментом для конструирования подобного резонатора является внутренняя и резонансная конверсия. Приведенные выше примеры еще раз демонстрируют, как эффективно можно использовать резонанс для оптической накачки изомерного состояния ^{229m}Th . Резонанс можно использовать в двух измерениях: по степени усиления и для ослабления требований к степени монохроматичности светового пучка. В приведенном выше примере с оптической накачкой Th I удастся получить выигрыш в девять порядков величины в уширении линии за счет ВК. В ионах Th II можно осуществить резонанс, который даст эффективный выигрыш как по силе взаимодействия — в 150 раз, так и по уширению резонансной линии на два-три порядка величины по сравнению с ВК в нейтральных атомах.

Благодарности. Один из авторов (ФФК) хотел бы выразить признательность Л. фон дер Вензе, Л. Ф. Витушкину и П. Тирольфу за плодотворные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

1. S. Kraemer, J. Moens, M. Athanasakis-Kaklamanakis et al. *Observation of the Radiative Decay of the ^{229}Th Nuclear Clock Isomer*, Nature **617**, 706 (2023); <https://doi.org/10.1038/s41586-023-05894-z>.
2. Д. Ф. Зарецкий, Ф. Ф. Карпешин. *Мезорентгеновское излучение осколков мгновенного деления*, ЯФ **29**, 306 (1979) [Sov. J. Nucl. Phys. **29**, 151 (1979)].
3. Б. А. Зон, Ф. Ф. Карпешин. *Ускорение распада ядра ^{235}U за счет резонансной внутренней*

- ней конверсии, стимулированной лазерным излучением, ЖЭТФ **97**, 401 (1990) [B. A. Zon and F. F. Karpeshin, *Acceleration of the Decay of ^{235m}U by Laser-Induced Resonant Internal Conversion*, Sov. Phys. JETP **70**, 224 (1990)].
4. V. A. Krutov, Ann. Phys. (Leipzig) **21**, 291 (1968); В. А. Крутов, Письма в ЖЭТФ **52**, 1176 (1990) [JETP Lett. **52**, 584 (1990)].
 5. Д. П. Гречухин, А. А. Солдатов, ЯФ **23**, 273 (1976).
 6. D. Kekez et al., Phys. Rev. Lett. **55**, 1366 (1985).
 7. C. Rösel, F. F. Karpeshin, P. David et al. *Experimental Evidence for Muonic X-rays from Fission Fragments*, Z. Phys. A **345**, 425 (1993).
 8. F. F. Karpeshin, M. R. Harston, F. Attallah, J. F. Chemin, J. N. Scheurer, I. M. Band, and M. B. Trzhaskovskaya. *Subthreshold Internal Conversion to Bound States in Highly-Ionized ^{125}Te Ions*, Phys. Rev. C **53** 1640 (1996).
 9. E. V. Tkalya, JETP Lett. **55**, 216 (1992); Nucl. Phys. A **539**, 209 (1992).
 10. P. V. Borisjuk, N. N. Kolachevsky, A. V. Taichenachev, E. V. Tkalya, I. Yu. Tolstikhina, and V. I. Yudin. *Excitation of the Low-Energy ^{229m}Th Isomer in the Electron Bridge Process via the Vortinuum*, Phys. Rev. C **100**, 044306 (2019).
 11. A. Ya. Dzublik. *Quasiclassical Theory of ^{229m}Th Excitation by Laser Pulses via Electron Bridges*, Phys. Rev. C **106**, 064608 (2022).
 12. Ф. Ф. Карпешин, И. М. Банд, М. Б. Тржасковская. *Подпороговая конверсия в $^{125}\text{Te}^{45+}$* , ЖЭТФ **116**, 1565 (1999) [F. F. Karpeshin, I. M. Band, and M. B. Trzhaskovskaya. *Subthreshold Conversion in $^{125}\text{Te}^{45+}$* , JETP **89**, 845 (1999)].
 13. Ф. Ф. Карпешин, М. Б. Тржасковская, Ю. П. Гангский. *Резонансная внутренняя конверсия в водородоподобных ионах*, ЖЭТФ **126**, 323 (2004). [F. F. Karpeshin, M. B. Trzhaskovskaya and Yu. P. Gangrsky. *BIC in H-like ions*. JETP, **99**, 286 (2004)].
 14. F. F. Karpeshin, I. M. Band, and M. B. Trzhaskovskaya. *3.5-eV isomer of ^{229m}Th : how it can be produced*, Nucl. Phys. A **654**, 579 (1999).
 15. L. Von der Wense, B. Seiferle, M. Laatiaoui et al. *Direct detection of the ^{229}Th nuclear clock transition* Nature **47**, 533 (2016).
 16. E. Peik, M. Okhapkin. *Nuclear clocks based on resonant excitation of γ -transitions*, C. R. Physique **16**, 516 (2015).
 17. L. von der Wense and Z. Chuankun. *Concepts for direct frequency-comb spectroscopy of ^{229m}Th and an internal-conversion-based solid-state nuclear clock*, Eur. Phys. J. Ser. D **74**, 146 (2020).
 18. Л. Ф. Витушкин, Ю. И. Гусев, Ф. Ф. Карпешин, Ю. А. Новиков, О. А. Орлов, и др. *Два механизма возбуждения ядра тория ^{229}Th лазером как пролог к созданию ядерно-оптических часов*, Законод. и Прикл. Метрология. № 3, 9 (2022).
 19. B. Seiferle et al. *Energy of the ^{229}Th nuclear clock transition*, Nature **573**, 243 (2019).
 20. A. Kramida and Yu. Ralchenko, J. Reader and NIST ASD Team (2022), NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.10), <https://physics.nist.gov/asd>. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD; DOI: <https://doi.org/10.18434/T4W30F>.
 21. F. F. Karpeshin, S. Wycech, I. M. Band, M. B. Trzhaskovskaya, M. Pfützner, and J. Zylicz. *Rates of transitions between the hyperfine-splitting components of the ground-state and the 3.5 эВ isomer in $^{229}\text{Th}^{89+}$* , Phys. Rev. C **57**, 3085 (1998).
 22. F. F. Karpeshin and L. F. Vitushkin. *On the problems of creating a nuclear-optical frequency standard based on ^{229}Th* , <https://doi.org/10.48550/arXiv.2307.08711>
 23. I. M. Band and M. B. Trzhaskovskaya. *Internal Conversion Coefficients for Low-Energy Nuclear Transitions*, At. Data Nucl. Data Tables **55**, 43 (1993).
 24. S. G. Porsev et al. *Excitation of the Isomeric ^{229m}Th Nuclear State via an Electronic Bridge Process in $^{229}\text{Th}^+$* , Phys. Rev. Lett. **105**, 182501 (2010).
 25. F. F. Karpeshin and M. B. Trzhaskovskaya. *Impact of the ionization of the atomic shell on the lifetime of the ^{229m}Th isomer*, Nucl. Phys. A **969**, 173 (2018).
 26. F. F. Karpeshin and M. B. Trzhaskovskaya. *A proposed solution for the lifetime puzzle of the $^{229m}\text{Th}^+$ isomer*, Nucl. Phys. A **1010**, 122173 (2021).

ЭНЕРГИЯ, ИМПУЛЬС И УГЛОВОЙ МОМЕНТ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО ПОЛЯ В СРЕДЕ С НЕЛОКАЛЬНОСТЬЮ ОПТИЧЕСКОГО ОТКЛИКА ПРИ ВЫРОЖДЕННОМ ПО ЧАСТОТЕ НЕЛИНЕЙНОМ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ ВОЛН

*П. С. Рыжиков**, *В. А. Макаров*

*Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, физический факультет
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 10 сентября 2023 г.,
после переработки 14 октября 2023 г.
Принята к публикации 17 октября 2023 г.

Из системы уравнений Максвелла в среде с нелокальностью нелинейного оптического отклика n -го порядка получены выражения для добавок к плотности энергии, плотности потока энергии, плотности импульса, плотности потока импульса, компонентам плотности углового момента и компонентам тензора плотности потока углового момента электромагнитного поля в случае, когда число взаимодействующих в ней волн с различными частотами меньше или равно n (вырожденные по частоте процессы). Показано, что имеющиеся при этом соотношения внутренней симметрии между компонентами тензоров локальной и нелокальной нелинейной оптической восприимчивости среды не позволяют получить правильные формулы для вышеупомянутых фундаментальных характеристик электромагнитного поля как частный случай ранее известных выражений для этих величин, появление которых обусловлено нелинейным взаимодействием $n + 1$ волн с принципиально различными частотами, если некоторые из них в этих формулах просто положить равными друг другу. В качестве примера обсуждаются обусловленные нелокальным нелинейным оптическим откликом объема среды полученные добавки в случаях самофокусировки света, генерации второй и третьей гармоник.

DOI: 10.31857/S0044451024020020

1. ВВЕДЕНИЕ

Энергия, импульс и угловой момент (момент импульса) электромагнитного поля являются его важнейшими характеристиками, анализ которых представляет значительный интерес как с точки зрения теории электромагнетизма, так и для практических приложений. Являясь фундаментальными физическими величинами, они подчиняются законам сохранения, которые записываются в виде балансных уравнений, связывающих плотности этих величин и плотности их потоков [1–5]. Их вид зависит от пространственной симметрии среды, в которой существует электромагнитное поле. В поглощающих, неоднородных и анизотропных средах [1, 3, 6–8] эти уравнения являются неоднородными. Другие важ-

ные свойства среды, такие как частотная и пространственная дисперсия оптического отклика и его нелинейная зависимость от напряженности внешнего электрического поля, не приводят к возникновению неоднородности в законах сохранения, но могут принципиально изменять формулы для плотностей энергии, импульса и углового момента, а также для плотностей их потоков. При этом можно отметить определенную тенденцию: учет частотной дисперсии оптического отклика приводит, как правило, к изменению выражений только для плотности энергии, плотности импульса и плотности углового момента света в среде, не приводя к существенным изменениям в выражениях для соответствующих им плотности потоков энергии, плотности потока импульса и плотности потока момента импульса, тогда как пространственная дисперсия оптического отклика среды наоборот требует внесения изменений в определения плотностей потоков энергии, импульса и углового момента, оставляя неизменны-

* E-mail: ryzhikov.ps14@physics.msu.ru

ми соответствующие им плотности самих этих величин [1, 2, 9–11]. В свою очередь, нелинейность оптического отклика влияет на все упомянутые величины, поскольку они в том или ином виде зависят от поляризации среды [12–14].

Помимо фундаментальных аспектов электродинамики, изучение влияния оптического отклика среды на энергию, импульс и угловой момент распространяющегося излучения представляет большой интерес для практических применений. Так, плотность потока энергии определяет интенсивность излучения, являющуюся основной характеристикой, используемой при детектировании света [15]. Импульс и момент импульса определяют величину механического воздействия света на среду [1, 16]. Помимо этого, угловой момент света также имеет большой практический потенциал в задачах передачи информации, управления и манипуляции микрочастицами и при исследовании строения вещества [17–26].

Формулы для энергии, импульса и углового момента лазерного излучения, распространяющегося в средах, обладающих нелокальным нелинейным оптическим откликом, представляют особый интерес в связи с исследованием особенностей взаимодействия в них эллиптически поляризованных волн. В работе [27] были получены аналитические выражения для плотности энергии, плотности потока энергии, плотности импульса и плотности потока импульса света в случае, когда среди частот $n + 1$ эллиптически поляризованных взаимодействующих волн в среде, демонстрирующей нелокальный нелинейный оптический отклик n -го порядка, нет равных друг другу. Для таких волн в вышеупомянутых средах были также получены выражения для компоненты углового момента и компонент тензора плотности потока углового момента электромагнитного поля [28]. В то же время многие наиболее распространенные процессы нелинейной оптики, такие, например, как генерация второй и третьей гармоник, самовоздействие, спектроскопическая схема когерентного антистоксова рассеяния света (КАРС), являются вырожденными по частоте, т. е. среди частот взаимодействующих в нелинейной среде волн есть равные друг другу. Первоначальное мнение о том, что наличие вырождения частот упрощает формулы для плотности энергии, плотности потока энергии, плотности импульса, плотности потока импульса, компоненты углового момента и компонент тензора плотности потока углового момента и они все легко получаются как частный случай равенства отдельных частот в ранее полученных выражениях

работ [27, 28], оказалось ошибочным. Случай вырождения одной или нескольких частот оказывается на самом деле более общим и требует более сложных преобразований для вывода формул для вышеупомянутых характеристик электромагнитного поля, чем предельная ситуация, когда коэффициент вырождения каждой из частот взаимодействующих волн равен единице. В частности это связано с тем, что при вырождении частот тензоры, описывающие локальный и нелокальный нелинейный оптический отклик среды, обладают большей симметрией, чем в невырожденном случае [29, 30]. Целью данной работы является нахождение аналитических выражений для добавок к плотности энергии, плотности потока энергии, плотности импульса, плотности потока импульса, компонентам плотности углового момента и компонентам тензора плотности потока углового момента, обусловленных локальным и нелокальным нелинейным оптическим откликом n -го порядка объема однородной непоглощающей среды в случае, когда число взаимодействующих в ней волн с различными частотами меньше или равно n . Последнее эквивалентно тому, что среди формально взаимодействующих в среде с нелинейностью n -го порядка $n + 1$ волн есть волны с одинаковыми частотами.

2. ПОЛЯРИЗАЦИЯ СРЕДЫ ПРИ ВЫРОЖДЕННОМ ПО ЧАСТОТЕ НЕЛИНЕЙНОМ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ ВОЛН В СРЕДЕ С НЕЛОКАЛЬНОСТЬЮ ОПТИЧЕСКОГО ОТКЛИКА

Пусть в среде, проявляющей нелинейность n -го порядка, из $n + 1$ частот участвующих во взаимодействии волн первые $m - 1$ частот различны, следующие $n - m + 1$ равны ω_m , а последняя

$$\omega_{n+1} = \sum_{l=1}^{m-1} \omega_l + (n - m + 1)\omega_m.$$

Напряженность создаваемого ими электрического поля равна

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= \sum_{l=1}^m \tilde{\mathbf{E}}^{(l)}(\mathbf{r}, t, \omega_l) \exp(-i\omega_l t) + \\ &+ \tilde{\mathbf{E}}^{(n+1)}(\mathbf{r}, t, \omega_{n+1}) \exp(-i\omega_{n+1} t) + \text{с.с.} = \\ &= \sum_{l=1}^m \mathbf{E}^{(l)} + \mathbf{E}^{(n+1)} + \text{с.с.}, \quad (1) \end{aligned}$$

где $\tilde{\mathbf{E}}^{(l)}(\mathbf{r}, t, \omega_l)$ — комплексная амплитуда волны с частотой ω_l . Индукция магнитного поля $\mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$

(которую мы будем считать равной напряженности магнитного поля $\mathbf{H}(\mathbf{r}, t)$) и индукция электрического поля $\mathbf{D}(\mathbf{r}, t)$ аналогично (2) выражаются через комплексные амплитуды $\tilde{\mathbf{B}}^{(l)}(\mathbf{r}, t, \omega_l)$ и $\tilde{\mathbf{D}}^{(l)}(\mathbf{r}, t, \omega_l)$:

$$\begin{aligned} \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) &= \sum_{l=1}^m \tilde{\mathbf{B}}^{(l)}(\mathbf{r}, t, \omega_l) \exp(-i\omega_l t) + \\ &+ \tilde{\mathbf{B}}^{(n+1)}(\mathbf{r}, t, \omega_{n+1}) \exp(-i\omega_{n+1} t) + \text{c.c.} = \\ &= \sum_{l=1}^m \mathbf{B}^{(l)} + \mathbf{B}^{(n+1)} + \text{c.c.}, \quad (2) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathbf{D}(\mathbf{r}, t) &= \sum_{l=1}^m \tilde{\mathbf{D}}^{(l)}(\mathbf{r}, t, \omega_l) \exp(-i\omega_l t) + \\ &+ \tilde{\mathbf{D}}^{(n+1)}(\mathbf{r}, t, \omega_{n+1}) \exp(-i\omega_{n+1} t) + \text{c.c.} = \\ &= \sum_{l=1}^m \mathbf{D}^{(l)} + \mathbf{D}^{(n+1)} + \text{c.c.} \quad (3) \end{aligned}$$

В среде, демонстрирующей оптическую нелинейность n -го порядка,

$$\mathbf{D} = \mathbf{D}_L + \mathbf{P},$$

где

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}^{loc} + \mathbf{P}^{nloc}.$$

Здесь \mathbf{D}_L — линейно зависящая от \mathbf{E} часть вектора электрической индукции. Локальную \mathbf{P}^{loc} и нелокальную \mathbf{P}^{nloc} части нелинейной поляризации среды также запишем в виде, аналогичном \mathbf{E} :

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{loc, nloc}(\mathbf{r}, t) &= \sum_{l=1}^m \tilde{\mathbf{P}}^{loc, nloc}(\mathbf{r}, t, \omega_l) \exp(-i\omega_l t) + \\ &+ \tilde{\mathbf{P}}^{loc, nloc}(\mathbf{r}, t, \omega_{n+1}) \exp(-i\omega_{n+1} t) + \text{c.c.} = \\ &= \sum_{l=1}^m \mathbf{P}^{loc, nloc}(\omega_l) + \mathbf{P}^{loc, nloc}(\omega_{n+1}) + \text{c.c.} \quad (4) \end{aligned}$$

Материальные уравнения для $\mathbf{P}^{loc, nloc}(\omega_l)$, где $l = 1, 2, \dots, m, n+1$, в среде, проявляющей нелинейность n -го порядка, могут быть записаны в виде [30–32]

$$\begin{aligned} P_i^{loc}(\omega_l) &= \\ &= \chi_{ii_{n+1}i_1^{l-1}i_{l+1}^n}^{(n)}(\omega_l; \omega_{n+1}, -\bar{\omega}_1^{l-1}, -\bar{\omega}_{l+1}^{m-1}, -\tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m))}) \times \\ &\quad \times E_{i_{n+1}}^{(n+1)} \prod_{\substack{p=1 \\ p \neq l}}^{m-1} E_{i_p}^{(p)*} \prod_{p=m}^n E_{i_p}^{(m)*}, \quad (5) \end{aligned}$$

если $l = 1, 2, \dots, m-1$,

$$\begin{aligned} P_i^{loc}(\omega_m) &= \\ &= \chi_{ii_{n+1}i_1^{m-1}i_{m+1}^n}^{(n)}(\omega_m; \omega_{n+1}, -\bar{\omega}_1^{m-1}, -\tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m)-1)}) \times \\ &\quad \times E_{i_{n+1}}^{(n+1)} \prod_{p=1}^{m-1} E_{i_p}^{(p)*} \prod_{p=m+1}^n E_{i_p}^{(m)*}, \quad (6) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} P_i^{nloc}(\omega_{n+1}) &= \chi_{ii_1^n}^{(n)}(\omega_{n+1}; \bar{\omega}_1^{m-1}, \tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m))}) \times \\ &\quad \times \prod_{p=1}^{m-1} E_{i_p}^{(p)} \prod_{p=m}^n E_{i_p}^{(m)}, \quad (7) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} P_i^{nloc}(\omega_l) &= \Gamma_{ii_{n+1}k}(\omega_l; \omega_{n+1}) \partial_k E_{i_{n+1}}^{(n+1)} + \\ &+ \sum_{\substack{s=1 \\ s \neq l}}^{m-1} \Gamma_{ii_s k}(\omega_l; -\omega_s) \partial_k E_{i_s}^{(s)*} + \\ &+ \Gamma_{ii_n k}(\omega_l; -\omega_m) \partial_k E_{i_n}^{(m)*}, \quad (8) \end{aligned}$$

если $l = 1, 2, \dots, m-1$,

$$\begin{aligned} P_i^{nloc}(\omega_m) &= \Gamma_{ii_{n+1}k}(\omega_m; \omega_{n+1}) \partial_k E_{i_{n+1}}^{(n+1)} + \\ &+ \sum_{s=1}^{m-1} \Gamma_{ii_s k}(\omega_m; -\omega_s) \partial_k E_{i_s}^{(s)*} \quad (9) \end{aligned}$$

и

$$\begin{aligned} P_i^{nloc}(\omega_{n+1}) &= \sum_{s=1}^{m-1} \Gamma_{ii_s k}(\omega_{n+1}; \omega_s) \partial_k E_{i_s}^{(s)} + \\ &+ \Gamma_{ii_n k}(\omega_{n+1}; \omega_m) \partial_k E_{i_n}^{(m)}. \quad (10) \end{aligned}$$

Здесь индексы $i, i_1, i_2, \dots, i_{n+1}$ и k принимают значения x, y и z , по дважды встречающимся индексам проводится суммирование, тензоры $\hat{\chi}^{(n)}$ и $\hat{\gamma}^{(n)}$ ранга соответственно $n+1$ и $n+2$ определяют вклады локального и нелокального нелинейного отклика n -го порядка в поляризацию среды, i_s^q , где $1 \leq s < q \leq n+1$, обозначает последовательность индексов $i_s, i_{s+1}, \dots, i_{q-1}, i_q$, а $\pm \bar{\omega}_s^q$ — соответственно последовательности частот $\omega_s, \omega_{s+1}, \dots, \omega_{q-1}, \omega_q$ и $-\omega_s, -\omega_{s+1}, \dots, -\omega_{q-1}, -\omega_q$, совокупность s одинаковых частот ω_m обозначена в этих формулах как $\tilde{\omega}_m^s$. В (5)–(7) и далее $F(\omega_m)$ — кратность вырождения частоты ω_m , определяемая как число вхождений ω_m после точки с запятой в аргументах компоненты тензора $\hat{\chi}$ или $\hat{\gamma}$, и увеличенное на единицу число вхождений, если частота $-\omega_m$ является первым аргументом компонентов этих тензоров. Для удобства записи (8)–(10) введены вспомогательные тензоры

$$\begin{aligned} \Gamma_{ii_s k}(\omega_{n+1}; \omega_s) &= \partial P_i^{nloc}(\omega_{n+1}) / \partial (\partial_k E_{i_s}^{(s)}) = \\ &= \gamma_{ii_1^{s-1}i_{s+1}^n i_s k}^{(n)}(\omega_{n+1}; \bar{\omega}_1^{s-1}, \bar{\omega}_{s+1}^m, \tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m)-1)}, \omega_s) \times \\ &\quad \times \prod_{\substack{p=1 \\ p \neq s}}^m E_{i_p}^{(p)} \prod_{p=m+1}^n E_{i_p}^{(m)}, \quad (11) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \Gamma_{ii_{n+1}k}(\omega_l; \omega_{n+1}) &= \partial P_i^{nloc}(\omega_l) / \partial (\partial_k E_{i_{n+1}}^{(n+1)}) = \\ &= \gamma_{ii_1^{l-1}i_{l+1}^n i_{n+1} k}^{(n)}(\omega_l; -\bar{\omega}_1^{l-1}, -\bar{\omega}_{l+1}^m, -\tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m)-1)}, \omega_{n+1}) \times \\ &\quad \times \prod_{\substack{p=1 \\ p \neq l}}^m E_{i_p}^{(p)*} \prod_{p=m+1}^n E_{i_p}^{(m)*}, \quad (12) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \Gamma_{iis,k}(\omega_l; -\omega_s) &= \partial P_i^{nloc}(\omega_l) / \partial \left(\partial_k E_{i_s}^{(s)*} \right) = \\ &= \gamma_{i_{n+1} \min(l,s)-1, i_1 \max(l,s)-1, i_n \min(l,s)+1, i_{s+1} \max(l,s)+1}^{(n)} i_{s,k} \left(\omega_l; \omega_{n+1}, \right. \\ &\quad \left. - \bar{\omega}_1^{\min(l,s)-1}, -\bar{\omega}_{\min(l,s)+1}^{\max(l,s)-1}, -\bar{\omega}_{\max(l,s)+1}^m \right. \\ &\quad \left. - \tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m)-1)}, -\omega_s \right) E_{i_{n+1}}^{(n+1)} \prod_{\substack{p=1 \\ p \neq l, s}}^m E_{i_p}^{(p)*} \prod_{p=m+1}^n E_{i_p}^{(m)*}, \quad (13) \end{aligned}$$

позволяющие сократить запись $\mathbf{P}^{loc}(\omega_l)$ и $\mathbf{P}^{nloc}(\omega_l)$, а также последующих уравнений. Если верхний индекс у i_s^q или $\bar{\omega}_s^q$ меньше нижнего, то соответствующие множества являются пустыми, а связанные с ними произведения полей в $\mathbf{P}^{loc}(\omega_l)$, $\mathbf{P}^{nloc}(\omega_l)$, $\Gamma_{iis,k}(\omega_{n+1}; \omega_s)$, $\Gamma_{i_{n+1}k}(\omega_l; \omega_{n+1})$ и $\Gamma_{iis,k}(\omega_l; -\omega_s)$ считаются равными единице. Компоненты тензоров (11) и (13) удовлетворяют условию

$$\Gamma_{i_{n+1}k}(\omega_l; \omega_{n+1}) = -\Gamma_{iis,k}(-\omega_{n+1}; -\omega_s),$$

следующему из соотношений внутренней симметрии тензора $\hat{\gamma}^{(n)}$ [30]. После подстановки явного вида i_s^q , $\bar{\omega}_s^q$ и $\tilde{\omega}_m^s$ в (5)–(7) получившиеся выражения для $P_i^{loc}(\omega_l)$, $P_i^{loc}(\omega_m)$ и $P_i^{loc}(\omega_{n+1})$ совпадут с частным случаем формул, выписанных в [33], а после подстановки (11)–(13) в (8)–(10) и записывания в них явного вида i_s^q , $\bar{\omega}_s^q$ и $\tilde{\omega}_m^s$ получившиеся выражения для $P_i^{nloc}(\omega_l)$, $P_i^{nloc}(\omega_m)$ и $P_i^{nloc}(\omega_{n+1})$ совпадут с приведенными в [30]. В материальных уравнениях (5)–(10) частота ω_m имеет кратность вырождения $F(\omega_m) = n - m + 1$, а все остальные частоты — кратность вырождения 1.

Отсутствие в этих формулах нескольких разных совокупностей одинаковых частот связано исключительно с целью сделать используемые громоздкие формулы более короткими. Все дальнейшие полученные в этом приближении формулы легко обобщаются на случаи нескольких вырожденных частот.

3. ЭНЕРГИЯ И ИМПУЛЬС СВЕТА ПРИ ВЫРОЖДЕННОМ ПО ЧАСТОТЕ НЕЛИНЕЙНОМ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ ВОЛН

Для получения добавок к плотности энергии

$$U^{(n)} = U^{(n,loc)} + U^{(n,nloc)}$$

вектору плотности потока энергии поля

$$\mathbf{S}^{(n)} = \mathbf{S}^{(n,loc)} + \mathbf{S}^{(n,nloc)}$$

(также известному как вектор Пойнтинга), компоненте плотности импульса

$$g_i^{(n)} = g_i^{(n,loc)} + g_i^{(n,nloc)}$$

и компоненте плотности потока импульса

$$G_{ij}^{(n)} = G_{ij}^{(n,loc)} + G_{ij}^{(n,nloc)},$$

связанных с локальным и нелокальным нелинейным оптическим откликом n -го порядка объема однородной непоглощающей среды, необходимо аналогично [27] сначала подставить выражения (5)–(10) в формулу для $\mathbf{D}(\mathbf{r}, t)$. Полученный результат, а также $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$, $\mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$ нужно далее подставить в следующие из уравнений Максвелла законы сохранения энергии и импульса [1–3]:

$$\frac{1}{c} (\mathbf{E} \cdot \partial_t \mathbf{D} + \mathbf{B} \cdot \partial_t \mathbf{B}) + \text{div}[\mathbf{E} \times \mathbf{B}] = 0, \quad (14)$$

$$\frac{1}{c} \partial_t [\mathbf{D} \times \mathbf{B}] + \mathbf{D} \times \nabla \times \mathbf{E} + \mathbf{B} \times \nabla \times \mathbf{B} = 0, \quad (15)$$

и провести усреднение получившихся выражений по времени. В результате этого в равенствах останутся производные только от медленно меняющихся величин. Затем полученные выражения необходимо преобразовать так, чтобы они приняли вид уравнений непрерывности:

$$\frac{1}{c} \partial_t U + \text{div} \mathbf{S} = 0, \quad (16)$$

$$\frac{1}{c} \partial_t g_i + \partial_j G_{ij} = 0, \quad (17)$$

связывающих плотность энергии U с плотностью потока энергии \mathbf{S} и плотность импульса g_i с плотностью потока импульса G_{ij} . Поскольку в \mathbf{D} аддитивно входят слагаемые, обусловленные соответственно линейной и нелинейной составляющими поляризации среды, причем каждое из них состоит из суммы локальной и нелокальной составляющих, входящие в (16), (17) U , \mathbf{S} , g_i и G_{ij} можно записать в виде

$$U = \sum_{n=1}^{\infty} \left(U^{(n,loc)} + U^{(n,nloc)} \right), \quad (18)$$

$$\mathbf{S} = \sum_{n=1}^{\infty} \left(\mathbf{S}^{(n,loc)} + \mathbf{S}^{(n,nloc)} \right), \quad (19)$$

$$g_i = \sum_{n=1}^{\infty} \left(g_i^{(n,loc)} + g_i^{(n,nloc)} \right), \quad (20)$$

$$G_{ij} = \sum_{n=1}^{\infty} \left(G_{ij}^{(n,loc)} + G_{ij}^{(n,nloc)} \right). \quad (21)$$

Для нахождения явного вида слагаемых в правых частях уравнений (18)–(21) необходимо преобразовать выражения $\langle \mathbf{E} \cdot \partial_t \mathbf{P} \rangle = \partial_t \langle \mathbf{E} \cdot \mathbf{P} \rangle - \langle \mathbf{P} \cdot \partial_t \mathbf{E} \rangle$ и $\langle \mathbf{P} \cdot \partial_p \mathbf{E} \rangle$, в которых угловые скобки означают усреднение по времени, а p принимает значения x , y и z . К

сожалению, эта процедура оказывается принципиально зависящей от числа слагаемых в материальных уравнениях и поэтому результаты работы [27], в которой m было равно n , т. е. частоты всех $n + 1$ взаимодействующих волн были различными, не могут быть непосредственно использованы для их нахождения.

Подставляя материальные уравнения (5)–(7) для локальной нелинейной поляризации в $(\mathbf{P} \cdot \partial_p \mathbf{E})$ и учитывая свойство перестановочной симметрии тензора $\hat{\chi}^{(n)}$, согласно которому [29]

$$\begin{aligned} & \frac{1}{F(-\omega_m)} \times \\ & \times \chi_{i_1^{m-1} i_{m+1}^{n-1} i_{n+1}}^{(n)} \left(\omega_m; -\bar{\omega}_1^{m-1}, -\tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m)-1)}, \omega_{n+1} \right) = \\ & = \frac{1}{F(\omega_{n+1})} \times \\ & \times \chi_{i_{n+1} i_1^{m-1} i_{m+1}^{n-1} i}^{(n)} \left(-\omega_{n+1}; -\bar{\omega}_1^{m-1}, -\tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m))} \right), \quad (22) \end{aligned}$$

можно убедиться, что для любой из множества частот $\omega_{1,2,\dots,m,n+1}$ взаимодействующих волн справедливо равенство

$$\begin{aligned} & \sum_{s=1}^m P_{i_s}^{loc}(\omega_s) \partial_p E_{i_s}^{(s)*} + P_{i_{n+1}}^{loc}(\omega_{n+1}) \partial_p E_{i_{n+1}}^{(n+1)*} + \text{с.с.} = \\ & = \frac{1}{F(\omega_l)} \partial_p [P_{i_l}^{loc}(\omega_l) E_{i_l}^{(l)*}] + \text{с.с.} \quad (23) \end{aligned}$$

Для этого необходимо подставить в левую часть (23) формулы (5)–(7), далее в слагаемом, содержащем производную напряженности электрического поля на частоте ω_m , внести, применяя правила дифференцирования, под производную все поля на этой частоте, а затем, используя соотношения внутренней симметрии (22), преобразовать во всех получившихся слагаемых левой части (23) компоненты тензора $\hat{\chi}^{(n)}$ так, чтобы у всех них были одинаковые последовательности индексов и частотных аргументов. Если, например, в качестве первой частоты выбрана ω_l , то в результате полученное выражение будет совпадать с правой частью формулы (23). Преобразование последней и, как следствие, нахождение явного вида связанных с локальным нелинейным оптическим откликом объема непоглощающей изотропной среды добавок к компонентам тензора энергии-импульса электромагнитного поля связано с различием двух подходов к формальному определению числа участвующих во взаимодействии волн.

При широко распространенном *прямом подходе* считается, что в среде, демонстрирующей нелинейность n -го порядка, взаимодействуют $m + 1$ волн с разными частотами $\omega_{1,2,\dots,m,n+1}$, где $m < n$, для

каждой из которых уравнения Максвелла имеют одинаковый вид. Это выглядит более естественно при проверке описывающей взаимодействие волн в нелинейной среде системы уравнений на необходимое выполнение законов сохранения энергии, импульса и углового момента света. Результирующее электрическое поле в этом случае вначале представляется в виде суперпозиции напряженностей полей заданного числа взаимодействующих волн с различными частотами, а затем используется связь между ними, обусловленная нелинейностью среды. Но в рамках *подхода, основанного на предельном переходе* от случая $n + 1$ волн с разными частотами к рассматриваемому в настоящей работе вырожденному случаю, можно считать, что в среде взаимодействуют $n + 1$ волн, но уравнения для $n - m + 1$ из них, имеющих одинаковую частоту ω_m , совпадают. Этот случай отражает точку зрения, согласно которой в среде, обладающей нелинейностью n -го порядка, всегда взаимодействуют ровно $n + 1$ волн, даже если имеет место вырождение частот. В рамках первого подхода формула (23) принимает вид

$$\begin{aligned} & \sum_{s=1}^m P_{i_s}^{loc}(\omega_s) \partial_p E_{i_s}^{(s)*} + P_{i_{n+1}}^{loc}(\omega_{n+1}) \partial_p E_{i_{n+1}}^{(n+1)*} + \text{с.с.} = \\ & = \frac{1}{m+1} \partial_p \left[\sum_{l=1}^m \frac{1}{F(\omega_l)} P_{i_l}^{loc}(\omega_l) E_{i_l}^{(l)*} + \right. \\ & \left. + \frac{1}{F(-\omega_{n+1})} P_{i_{n+1}}^{loc}(\omega_{n+1}) E_{i_{n+1}}^{(n+1)*} + \text{с.с.} \right]. \quad (24) \end{aligned}$$

Для получения правой части (24) необходимо $m + 1$ раз записать равенство (23), последовательно выбирая $\omega_{1,2,\dots,m,n+1}$ в качестве частоты, стоящей слева от точки с запятой в последовательности частотных аргументов тензора $\hat{\chi}^{(n)}$, сложить эти выражения и поделить полученный результат на $m + 1$. В соответствии со вторым подходом формула (23) записывается в виде

$$\begin{aligned} & \sum_{s=1}^m P_{i_s}^{loc}(\omega_s) \partial_p E_{i_s}^{(s)*} + P_{i_{n+1}}^{loc}(\omega_{n+1}) \partial_p E_{i_{n+1}}^{(n+1)*} + \text{с.с.} = \\ & = \frac{1}{n+1} \partial_p \left[\sum_{l=1}^m P_{i_l}^{loc}(\omega_l) E_{i_l}^{(l)*} + \right. \\ & \left. + P_{i_{n+1}}^{loc}(\omega_{n+1}) E_{i_{n+1}}^{(n+1)*} + \text{с.с.} \right]. \quad (25) \end{aligned}$$

Для получения этого равенства необходимо правую и левую части (23), записанные для частот $\omega_{1,2,\dots,m,n+1}$, домножить соответственно на $F(\omega_l)$, где $l = 1, 2, \dots, m, n+1$, сложить получившиеся $m + 1$ равенств и поделить полученный результат на $n + 1$.

Поскольку $\sum_{l=1}^m F(\omega_l) + F(-\omega_{n+1}) = n + 1$, левая часть после такого преобразования остается неизменной.

Подстановка найденных выражений $\langle \mathbf{P}^{loc} \cdot \partial_p \mathbf{E} \rangle$ в (15) и $\langle \mathbf{P}^{loc} \cdot \partial_t \mathbf{E} \rangle$ в (14) и сравнение полученных формул с (16), (17) позволяют записать связанные с локальным нелинейным оптическим откликом объема непоглощающей среды добавки к компонентам тензора энергии-импульса в следующем виде:

$$U^{(n,loc)} = \sum_{l=1}^m [1 - K(\omega_l)] P_i^{loc}(\omega_l) E_i^{(l)*} + [1 - K(-\omega_{n+1})] P_i^{loc}(\omega_{n+1}) E_i^{(n+1)*} + \text{c.c.}, \quad (26)$$

$$S_k^{(n,loc)} = 0, \quad (27)$$

$$g_p^{(n,loc)} = \sum_{l=1}^m e_{pij} P_i^{loc}(\omega_l) B_j^{(l)*} + e_{pij} P_i^{loc}(\omega_{n+1}) B_j^{(n+1)*} + \text{c.c.} \quad (28)$$

(e_{pij} — тензор Леви-Чивиты),

$$G_{pk}^{(n,loc)} = \sum_{l=1}^m [\delta_{pk} K(\omega_l) P_i^{loc}(\omega_l) E_i^{(l)*} - P_k^{loc}(\omega_l) E_p^{(l)*}] + \delta_{pk} K(-\omega_{n+1}) P_i^{loc}(\omega_{n+1}) E_i^{(n+1)*} - P_k^{loc}(\omega_{n+1}) E_p^{(n+1)*} + \text{c.c.} \quad (29)$$

В формулах (26)–(29) в случае прямого подхода $K(\omega_{l,n+1}) = [(m+1)F(\omega_{l,n+1})]^{-1}$, а в рамках подхода, основанного на предельном переходе, $K(\omega_{l,n+1}) = (n+1)^{-1}$. При $m = n$ для всех индексов

$F(\omega_l) = 1$, и использование любого из них приводит к одинаковому результату.

Формулы (26) и (29), полученные в рамках подхода, основанного на предельном переходе, и формула (28), не зависящая от выбора подхода, отличаются от аналогичных им выражений для обусловленных нелинейным локальным оптическим откликом объема среды плотностей энергии и импульса и плотности потока импульса в случае, когда все $n+1$ частот взаимодействующих волн различаются только числом слагаемых во входящих в них суммах. При этом формулы (26) и (29) в случае прямого подхода содержат дополнительные коэффициенты. Ниже будет показано, что оба этих подхода к нахождению обусловленных нелинейностью среды добавок к плотности энергии, вектору плотности потока энергии поля, компоненте плотности импульса и компоненте плотности потока импульса распространяющегося излучения в случае их применения для получения обусловленного нелинейностью среды вклада в плотность потока углового момента приводят к выражениям, удовлетворяющим одному и тому же критерию равнозначности вклада каждой из взаимодействующих волн, который был продемонстрирован в [28].

Если подставить в $\langle \mathbf{P} \cdot \partial_p \mathbf{E} \rangle$ материальные уравнения для нелокальной составляющей нелинейной поляризации среды (формулы (8)–(10)), то с учетом содержащихся в этих формулах пространственных производных амплитуд напряженности электрического поля на различных частотах можно записать равенство

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{P}^{nloc} \cdot \partial_p \mathbf{E} \rangle &= \sum_{s=1}^m P_s^{nloc}(\omega_s) \partial_p E_s^{(s)*} + P_{i_{n+1}}^{nloc}(\omega_{n+1}) \partial_p E_{i_{n+1}}^{(n+1)*} + \text{c.c.} = \\ &= \partial_p \left(\sum_{l=1}^{m-1} A_{i_1^n ik}^{(l)} \prod_{\substack{q=1 \\ q \neq l}}^{m-1} E_{i_q}^{(q)} \prod_{q=m}^n E_{i_q}^{(m)} E_i^{(n+1)*} \partial_k E_{i_l}^{(l)} + \right. \\ &\quad \left. + A_{i_1^n ik}^{(m)} \prod_{q=1}^{m-1} E_{i_q}^{(q)} \prod_{q=m}^{n-1} E_{i_q}^{(m)} E_i^{(n+1)*} \partial_k E_{i_n}^{(m)} + A_{i_1^{n+1} ik}^{(n+1)} \prod_{q=1}^{m-1} E_{i_q}^{(q)} \prod_{q=m}^n E_{i_q}^{(m)} \partial_k E_i^{(n+1)*} \right) - \\ &\quad - \partial_k \left(\sum_{l=1}^{m-1} A_{i_1^n ik}^{(l)} \prod_{\substack{q=1 \\ q \neq l}}^{m-1} E_{i_q}^{(q)} \prod_{q=m}^n E_{i_q}^{(m)} E_i^{(n+1)*} \partial_p E_{i_l}^{(l)} + A_{i_1^n ik}^{(m)} \prod_{q=1}^{m-1} E_{i_q}^{(q)} \prod_{q=m}^{m-1} E_{i_q}^{(m)} E_i^{(n+1)*} \partial_p E_{i_n}^{(m)} + \right. \\ &\quad \left. + A_{i_1^{n+1} ik}^{(n+1)} \prod_{q=1}^{m-1} E_{i_q}^{(q)} \prod_{q=m}^n E_{i_q}^{(m)} \partial_p E_i^{(n+1)*} \right) + \text{c.c.} \quad (30) \end{aligned}$$

Здесь $A_{i_1^n ik}^{(l)}$ — неизвестные вспомогательные тензоры, конкретный вид которых определяют $U^{(n,loc)}$,

$\mathbf{S}^{(n,nloc)}$, $g_i^{(n,nloc)}$ и $G_{ij}^{(n,nloc)}$. Для нахождения $A_{i_1^n ik}^{(l)}$ необходимо решить систему уравнений, которая

образуется после раскрытия входящих в правую часть (30) производных и приравнивания содержащихся в левой и правой частях коэффициентов при находящихся в них одинаковых комбинациях напряженностей электрических полей и их пространственных производных. Получившаяся таким способом система уравнений относительно $A_{i_1^{n}ik}^{(l)}$ не имеет единственного решения из-за того, что законы сохранения (16), (17) остаются неизменными при добавлении к ним выражений с равными нулю дивергенциями и производными по времени. Тем не менее, отталкиваясь от отличия формулы (23) от аналогичного выражения в случае, когда все частоты $\omega_{1,2,\dots,n+1}$ различны, и от вида, который принимает формула (30) при $m = n$ [27], также удается подобрать $A_{i_1^{n}ik}^{(l)}$ и записать (30) в виде

$$\begin{aligned} & \sum_{s=1}^m P_{i_s}^{nloc}(\omega_s) \partial_p E_{i_s}^{(s)*} + \\ & + P_{i_{n+1}}^{nloc}(\omega_{n+1}) \partial_p E_{i_{n+1}}^{(n+1)*} + \text{c.c.} = \\ & = \frac{1}{F(\omega_l)} \left[\partial_p \left(P_i^{nloc*}(\omega_l) E_i^{(l)} \right) - \right. \\ & - \partial_k \left(E_i^{(l)} \Gamma_{ijk}(-\omega_l; -\omega_{n+1}) \partial_p E_j^{(n+1)*} + \right. \\ & \left. \left. + E_i^{(l)} \sum_{\substack{s=1 \\ s \neq l}}^m \Gamma_{ijk}(-\omega_l; \omega_s) \partial_p E_j^{(s)} \right) \right] + \text{c.c.}, \quad (31) \end{aligned}$$

если $l = 1, 2, \dots, m$, и

$$\begin{aligned} & \sum_{s=1}^m P_{i_s}^{nloc}(\omega_s) \partial_p E_{i_s}^{(s)*} + \\ & + P_{i_{n+1}}^{nloc}(\omega_{n+1}) \partial_p E_{i_{n+1}}^{(n+1)*} + \text{c.c.} = \\ & = \frac{1}{F(-\omega_{n+1})} \left[\partial_p \left(P_i^{nloc}(\omega_{n+1}) E_i^{(n+1)*} \right) - \right. \\ & - \partial_k \left(E_i^{(n+1)*} \sum_{s=1}^m \Gamma_{ijk}(\omega_{n+1}; \omega_s) \partial_p E_j^{(s)} \right) \left. \right] + \\ & + \text{c.c.}, \quad (32) \end{aligned}$$

если $l = n + 1$. Чтобы убедиться в справедливости этих выражений, достаточно расписать в явном виде производные в их правых частях и сравнить коэффициенты при одинаковых комбинациях напряженностей полей и их производных в правой и левой частях уравнений. В силу соотношений внутренней симметрии [30] эти коэффициенты оказываются равными друг другу.

С помощью равенств (31) и (32) можно получить два набора формул для $U^{(n,nloc)}$, $\mathbf{S}^{(n,nloc)}$, $g_i^{(n,nloc)}$ и $G_{ij}^{(n,nloc)}$, соответствующих двум описанным выше различным критериям равноправия частот взаимодействующих волн. Для реализации прямого подхода необходимо сложить сумму поочередно записанных для $\omega_l = \omega_{1,2,\dots,m}$ выражений (31) с выражением (32) и поделить полученный результат на $m + 1$. Подход, основанный на предельном переходе, требует перед сложением суммы поочередно записанных для $\omega_l = \omega_{1,2,\dots,m}$ выражений (31) с выражением (32) сначала умножить слагаемые этой суммы соответственно на $F(\omega_l)$, а (32) — на $F(-\omega_{n+1})$. Затем получившийся в результате такой операции результат следует поделить на $n + 1$. Ввиду громоздкости получаемых окончательных выражений, аналогичных (23) и (24), мы не будем здесь приводить их явный вид, а сразу запишем формулы для добавок к компонентам тензора энергии-импульса электромагнитного поля, связанных с нелокальным нелинейным оптическим откликом объема непоглощающей среды:

$$\begin{aligned} U^{(n,nloc)} &= \sum_{l=1}^m [1 - K(\omega_l)] P_i^{nloc}(\omega_l) E_i^{(l)*} + \\ & + [1 - K(-\omega_{n+1})] P_i^{nloc}(\omega_{n+1}) E_i^{(n+1)*} + \text{c.c.}, \quad (33) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} S_k^{(n,nloc)} &= c^{-1} \sum_{l=1}^m \left[K(-\omega_{n+1}) E_i^{(n+1)*} \times \right. \\ & \times \Gamma_{ijk}(\omega_{n+1}; \omega_l) \partial_t E_j^{(l)} + \\ & + K(\omega_l) E_i^{(l)} \Gamma_{ijk}(-\omega_l; -\omega_{n+1}) \partial_t E_j^{(n+1)*} + \\ & \left. + K(\omega_l) \sum_{\substack{s=1 \\ s \neq l}}^m E_i^{(l)} \Gamma_{ijk}(-\omega_l; \omega_s) \partial_t E_j^{(s)} \right] + \\ & + \text{c.c.}, \quad (34) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} g_p^{(n,nloc)} &= \sum_{l=1}^m e_{pij} P_i^{nloc}(\omega_l) B_j^{(l)*} + \\ & + e_{pij} P_i^{nloc}(\omega_{n+1}) B_j^{(n+1)*} + \text{c.c.}, \quad (35) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} G_{pk}^{(n,nloc)} &= \\ & = \sum_{l=1}^m \left[\delta_{pk} K(\omega_l) P_i^{nloc}(\omega_l) E_i^{(l)*} - P_k^{nloc}(\omega_l) E_p^{(l)*} \right] - \\ & - P_k^{nloc}(\omega_{n+1}) E_p^{(n+1)*} + \\ & + \delta_{pk} K(-\omega_{n+1}) P_i^{nloc}(\omega_{n+1}) E_i^{(n+1)*} - \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& - \sum_{l=1}^m \left(K(-\omega_{n+1}) E_i^{(n+1)*} \Gamma_{ijk}(\omega_{n+1}; \omega_l) \partial_p E_j^{(l)} + \right. \\
& \quad + K(\omega_l) E_i^{(l)} \Gamma_{ijk}(-\omega_l; -\omega_{n+1}) \partial_p E_j^{(n+1)*} + \\
& \quad \left. + K(\omega_l) \sum_{\substack{s=1 \\ s \neq l}}^m E_i^{(l)} \Gamma_{ijk}(-\omega_l; \omega_s) \partial_p E_j^{(s)} \right) + \text{с.с.} \quad (36)
\end{aligned}$$

Здесь явный вид $K(\omega_{l,n+1})$ зависит от реализуемого подхода и принимает те же значения, что и в случае рассмотренного выше влияния локального нелинейного оптического отклика непоглощающей среды. Приведенное выше сравнение формул (26)–(29) с аналогичными им формулами для связанных с нелинейным локальным оптическим откликом объема среды плотности энергии, плотности потока энергии, плотности импульса и плотности потока импульса, полученными ранее для случая, при котором частоты всех $n + 1$ взаимодействующих волн различны, также остается в силе и для формул (33)–(36). Формула для связанной с нелокальным нелинейным оптическим откликом плотности потока энергии (34) при использовании подхода, основанного на предельном переходе, отличается от аналогичной формулы для невырожденного случая только числом входящих в нее слагаемых.

Несмотря на то, что материальные уравнения (5)–(10) для локальной и нелокальной составляющих нелинейной поляризации среды для краткости были записаны в виде, соответствующем ситуации, когда только одна частота ω_m имеет кратность вырождения выше единицы, полученные формулы (26)–(29) и (33)–(36) легко обобщаются на случай, когда несколько различных частот взаимодействующих волн обладают кратностью вырождения больше единицы (вплоть до ситуации, когда модули частот всех взаимодействующих волн равны друг другу). Используемый для записи поляризации среды тензор

$$\Gamma_{ijk}(\omega_l; \omega_s) = \partial P_i^{(n, nloc)}(\omega_l) / \partial (\partial_k E_j^{(s)}) \quad (37)$$

является в этом случае произведением компоненты тензора $\hat{\gamma}^{(n)}$, у которой первый частотный аргумент равен ω_l , а последний — ω_s , на $n - 1$ компонент вектора напряженности электрического поля, среди которых компоненты вектора на частотах $-\omega_l$ и ω_s встречаются $F(-\omega_l) - 1$ и $F(\omega_s) - 1$ раз соответственно, а компоненты на каждой из частот ω_r ($\omega_r \neq \omega_s$ и $\omega_r \neq -\omega_l$) встречаются $F(\omega_r)$ раз. Каждая из сумм от единицы до m в формулах (26)–(29) и (33)–(36) превращается в этом случае в сумму по

всем возможным различным частотам, кроме учитываемой отдельным слагаемым частоты ω_{n+1} . При этом при прямом подходе явный вид выражений для $K(\omega_{l,n+1})$ обеспечивает форму записи (26)–(29) и (33)–(36), содержащую коэффициенты, необходимые для учета возможного вырождения нескольких различных частот. Более того, при подходе, основанном на предельном переходе, формулы (26)–(29) и (33)–(36) вообще не зависят от кратностей вырождения частот взаимодействующих волн.

4. УГЛОВОЙ МОМЕНТ СВЕТА ПРИ ВЫРОЖДЕННОМ ПО ЧАСТОТЕ НЕЛИНЕЙНОМ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ ВОЛН

Из закона сохранения импульса (15) можно получить формулу, выражающую закон сохранения углового момента (момента импульса) электромагнитного поля [3, 8]:

$$c^{-1} \partial_t [e_{ijp} x_j g_p] + \partial_k [e_{ijp} x_j G_{pk}] = e_{ikp} G_{pk}. \quad (38)$$

Здесь x_j — декартовы координаты радиус-вектора. Аналогично тому, как уравнения для энергии (16) и импульса (17) связывают плотности этих величин с плотностями их потоков, можно поставить целью представить (38) в виде балансного уравнения для плотности углового момента J_i и плотности потока углового момента M_{ik} :

$$c^{-1} \partial_t J_i + \partial_k M_{ik} = \tau_i. \quad (39)$$

В (39) τ_i — компонента вектора плотности вращательного момента, обусловленного анизотропией среды. Она тождественно равна нулю, если ось i является осью симметрии среды бесконечного порядка. Поскольку g_p и G_{pk} выражаются в виде сумм линейной и соответствующих разным n нелинейных составляющих, причем каждая из последних состоит из двух слагаемых, ответственных за локальный и нелокальный оптические отклики объема среды на электрическое поле, J_i , M_{ik} и τ_i естественно представить в виде

$$J_i = \sum_{n=1}^{\infty} \left(J_i^{(n, loc)} + J_i^{(n, nloc)} \right), \quad (40)$$

$$M_{ik} = \sum_{n=1}^{\infty} \left(M_{ik}^{(n, loc)} + M_{ik}^{(n, nloc)} \right). \quad (41)$$

$$\tau_i = \sum_{n=1}^{\infty} \left(\tau_i^{(n, loc)} + \tau_i^{(n, nloc)} \right). \quad (42)$$

Сравнение (39) и (38) с учетом (40)–(42) дает основание утверждать, что если

$$\begin{aligned} J_i^{(n,loc)} &= e_{ijp} x_j g_p^{(n,loc)}, \\ M_{ik}^{(n,loc)} &= e_{ijp} x_j G_{pk}^{(n,loc)}, \\ \tau_i^{(n,loc)} &= e_{ikp} G_{pk}^{(n,loc)}, \end{aligned}$$

то эти выражения для любого натурального n (включая линейные среды) действительно можно считать соответственно плотностью углового момента, плотностью потока углового момента и плотностью вращательного момента света, связанными с локальным оптическим откликом объема среды. Если последний является нелокальным, то, как было показано в [27, 28], определенные аналогично $\tau_i^{(n,loc)}$ компоненты вектора $e_{ikp} G_{pk}^{(n,nloc)}$ не равны нулю в изотропной среде, и поэтому последняя формула не может считаться плотностью вращательного момента. В связи с этим необходимо осуществить преобразование выражения $e_{ikp} G_{pk}^{(n,nloc)}$ таким образом, чтобы оно представлялось в виде суммы полной пространственной производной от некоторой величины $S_{ij}^{(n)}$, которая в дальнейшем будет описывать вклад нелокальности нелинейного оптического отклика в плотность потока углового момента света, и вектора $\tilde{\tau}_i^{(n)}$, проекция которого на ось симметрии среды (при ее наличии) равна нулю [28], т. е. найти $S_{ij}^{(n)}$ и $\tilde{\tau}_i^{(n)}$, удовлетворяющие равенству

$$e_{ikp} G_{pk}^{(n,nloc)} = \partial_j S_{ij}^{(n)} + \tilde{\tau}_i^{(n)}. \quad (43)$$

После выполнения такого преобразования выражения для

$$M_{ik}^{(n,nloc)} = e_{ijp} x_j G_{pk}^{(n,nloc)} - S_{ik}^{(n)}$$

и

$$\tau_i^{(n,nloc)} = \tilde{\tau}_i^{(n)}$$

будут корректно описывать вклад нелокальности нелинейного оптического отклика соответственно в плотность потока углового момента света и плотность вращательного момента.

Для нахождения явного вида $S_{ik}^{(n)}$ и $\tilde{\tau}_i^{(n)}$ аналогично [28] с помощью символа Кронекера переобозначим в каждом из слагаемых формулы (36) для $G_{pk}^{(n,nloc)}$ индексы у компонент напряженностей электрических полей так, чтобы поля на одинаковых частотах в каждом из них имели один и тот же индекс, а связанный с дифференцированием индекс всегда был равен j , естественно не нарушая

правила, согласно которому по дважды встречающимся одинаковым индексам проводится суммирование. Преобразованное таким способом выражение для $G_{pk}^{(n,nloc)}$ затем домножим на e_{ikp} и сгруппируем в нем все слагаемые с одинаковыми комбинациями полей и их пространственных производных. Далее в слагаемом, содержащем пространственную производную от поля на вырожденной частоте, внесем все оставшиеся напряженности на той же самой частоте под оператор дифференцирования. В результате в дальнейших выражениях это слагаемое будет содержать множитель $[F(\omega_m)]^{-1}$. Выполненное преобразование является специфичным для вырожденных процессов и оказывается возможным исключительно вследствие внутренней симметрии тензора $\hat{\gamma}^{(n)}$ [30], благодаря которой можно свободно переставлять между собой индексы полей, относящихся к одной и той же частоте.

Если несколько частот вырождены, то эту процедуру нужно повторить в каждом из слагаемых, содержащих производные от полей на этих частотах. В остальные слагаемые, где под пространственной производной находятся поля на невырожденных частотах, нужно формально добавить равный единице коэффициент $[F(\omega_l)]^{-1}$. Затем в полученном выражении для $e_{ikp} G_{pk}^{(n,nloc)}$ представить слагаемое, содержащее пространственную производную от компоненты поля на частоте ω_l , в виде разности слагаемого с производной от произведения всех напряженностей электрических полей на всех частотах и выражения, равного произведению всех полей на частоте ω_l , и пространственной производной от произведения всех остальных полей, частоты которых отличны от ω_l . Далее следует записать $m+1$ раз получившуюся формулу для $e_{ikp} G_{pk}^{(n,nloc)}$, последовательно считая в каждой из них величину ω_l равной $\omega_{1,2,\dots,m,n+1}$, сложить их и, реализуя вышеупомянутый прямой подход к числу взаимодействующих волн, поделить результат на $m+1$.

При подходе, основанном на предельном переходе от взаимодействия $n+1$ волн с разными частотами к случаю, когда среди частот взаимодействующих волн есть равные друг другу, необходимо непосредственно после записи вышеупомянутых $m+1$ уравнений умножить каждое из них на $F(\omega_l)$ ($l = 1, 2, \dots, m, n+1$), а только потом последовательно подставлять вместо ω_l частоты $\omega_{1,2,\dots,m,n+1}$. Результат суммирования получившихся $m+1$ уравнений следует при этом разделить на $n+1$. Оба этих подхода после деления соответствующих сумм вышеупомянутых $m+1$ равенств на $m+1$ и $n+1$

приводят к $e_{ikp}G_{pk}^{(n,nloc)}$ в левой части итогового выражения. Его правой частью в обоих случаях явля-

ется сумма двух достаточно громоздких слагаемых.

Первое из них — это $\partial_j S_{ij}^{(n)}$, где

$$\begin{aligned}
 S_{ij}^{(n)} = & -e_{ikp} \left\{ \left[\sum_{s=1}^{m-1} K(\omega_s) \gamma_{ki_1^{s-1} i_{s+1}^n i_{sj}} \left(\omega_{n+1}; \bar{\omega}_1^{s-1}, \bar{\omega}_{s+1}^{m-1}, \tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m))}, \omega_s \right) + K(\omega_m) \gamma_{ki_1^n j} \left(\omega_{n+1}; \bar{\omega}_1^{m-1}, \tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m))} \right) \right] \times \right. \\
 & \times E_p^{(n+1)*} \prod_{r=1}^{m-1} E_{i_r}^{(r)} \prod_{r=m}^n E_{i_r}^{(m)} + \sum_{l=1}^{m-1} \left[K(-\omega_{n+1}) \gamma_{ki_1^{l-1} i_{l+1}^n i_{n+1} j} \left(-\omega_l; \bar{\omega}_1^{l-1}, \bar{\omega}_{l+1}^{m-1}, \tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m))}, -\omega_{n+1} \right) + \right. \\
 & + \sum_{\substack{s=1 \\ s \neq l}}^{m-1} K(\omega_s) \gamma_{ki_{n+1} i_1^{\min(l,s)-1} i_{\min(l,s)+1}^{\max(l,s)-1} i_{\max(l,s)+1}^n i_{sj} \left(-\omega_l; -\omega_{n+1}, \bar{\omega}_1^{\min(l,s)-1}, \bar{\omega}_{\min(l,s)+1}^{\max(l,s)-1}, \bar{\omega}_{\max(l,s)+1}^{m-1}, \tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m))}, \omega_s \right) + \\
 & + K(\omega_m) \gamma_{ki_{n+1} i_1^{l-1} i_{l+1}^n j} \left(-\omega_l; -\omega_{n+1}, \bar{\omega}_1^{l-1}, \bar{\omega}_{l+1}^{m-1}, \tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m))} \right) \left. \right] E_{i_{n+1}}^{(n+1)*} E_p^{(l)} \prod_{\substack{r=1 \\ r \neq l}}^{m-1} E_{i_r}^{(r)} \prod_{r=m}^n E_{i_r}^{(m)} + \\
 & + \left[\sum_{s=1}^{m-1} K(\omega_s) \gamma_{ki_{n+1} i_1^{s-1} i_{s+1}^{m-1} i_{m+1}^n i_{sj}} \left(-\omega_m; -\omega_{n+1}, \bar{\omega}_1^{s-1}, \bar{\omega}_{s+1}^{m-1}, \tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m)-1)}, -\omega_s \right) + \right. \\
 & + K(-\omega_{n+1}) \gamma_{ki_1^{m-1} i_{m+1}^n i_{n+1} j} \left(-\omega_m; \bar{\omega}_1^{m-1}, \tilde{\omega}_m^{(F(\omega_m)-1)}, -\omega_{n+1} \right) \left. \right] \times \\
 & \left. \times E_{i_{n+1}}^{(n+1)*} E_p^{(m)} \prod_{r=1}^{m-1} E_{i_r}^{(r)} \prod_{r=m+1}^n E_{i_r}^{(m)} \right\} + \text{с.с.} \quad (44)
 \end{aligned}$$

Здесь

$$K(\omega_{l,n+1}) = [(m+1)F(\omega_{l,n+1})]^{-1}$$

в случае прямого подхода, а в рамках подхода основанного на предельном переходе,

$$K(\omega_{l,n+1}) = (n+1)^{-1}.$$

При $m = n$ для всех индексов $F(\omega_l) = 1$ и использование любого из подходов приводит к одинаковому выражению для $S_{ij}^{(n)}$. Второе слагаемое, естественно равное

$$e_{ikp}G_{pk}^{(n,nloc)} - \partial_j S_{ij}^{(n)},$$

где $G_{pk}^{(n,nloc)}$ задается формулой (36), обращается в нуль, если нелинейная среда имеет совпадающую с x_i ось симметрии бесконечного порядка, т.е. является $\tilde{\tau}_i^{(n,nloc)}$. Явный вид $\tilde{\tau}_i^{(n,nloc)}$ мы не приводим, так как дифференцирование сложных несколько раз встречающихся произведений напряженностей электрических полей в $S_{ij}^{(n)}$ делает эту формулу очень громоздкой. Полный вклад нелинейного оптического отклика в плотность вращательного момента

$$\tau_i^{(n)} = e_{ikp}G_{pk}^{(n,nloc)} + \tilde{\tau}_i^{(n,nloc)}.$$

В завершение этого раздела отметим, что среди различных режимов взаимодействия волн, вызванных нелинейностями нечетных порядков (включая линейный отклик), существуют такие, для

которых суммы в выражениях (26)–(28), (33)–(36) и (44) действительны, и поэтому эти формулы необходимо записывать без слагаемого с.с. Если выбрать одну из волн, участвующих в таком взаимодействии, например, имеющую частоту ω_{n+1} , и записать частотные аргументы во входящих в $P_i^{(loc)}(\omega_{n+1})$ и $P_i^{(nloc)}(\omega_{n+1})$ тензорах $\hat{\chi}^{(n)}$ и $\hat{\gamma}^{(n)}$ в виде последовательности $\omega_{n+1}, -\omega_1, -\omega_2, \dots, -\omega_m$, то окажется, что, руководствуясь соотношениями внутренней симметрии, частотные аргументы всегда можно переставить так, чтобы сумма рядом стоящих на нечетных и четных местах частот была равна нулю. Примером такого процесса является самовоздействие света в среде с кубической нелинейностью, которое вместе с другими будет рассмотрено в следующем разделе.

5. НЕКОТОРЫЕ ПРИМЕРЫ

В качестве примеров использования полученных общих формул приведем выражения для связанных с нелокальным нелинейным оптическим откликом объема непоглощающей среды добавок к плотности энергии $U^{(n,nloc)}$, вектору плотности потока энергии $S_k^{(n,nloc)}$, компонентам вектора плотности импульса $g_p^{(n,nloc)}$, компонентам тензора плотности потока импульса $G_{pk}^{(n,nloc)}$ и компоненте тензора $S_{ij}^{(n)}$ для генерации второй и третьей гармоник и самофокусировки. Громоздкие выражения для связанных

с нелинейным оптическим откликом объема среды плотности углового момента

$$J_i^{(n,nloc)} = e_{ijp} x_j g_p^{(n,nloc)},$$

плотности потока углового момента

$$M_{ik}^{(n,nloc)} = e_{ijp} x_j G_{pk}^{(n,nloc)} - S_{ik}^{(n)}$$

и $\tilde{T}_i^{(n,nloc)}$ для этих процессов при необходимости могут быть записаны с помощью приведенных ниже выражений для $G_{pk}^{(n,nloc)}$ и $S_{ij}^{(n)}$.

При генерации второй гармоники в среде с квадратичной нелинейностью $n = 2$, $\omega_{1,2} = \omega$, $m = 1$, $\omega_3 = 2\omega$, а $F(\omega) = 2$, $F(-2\omega) = 1$. Поэтому

$$\begin{aligned} U^{(2,nloc)} = & \\ = & \{ [1 - K(\omega)] \gamma_{ijlk}(-\omega; \omega, -2\omega) E_i(\omega) \partial_k E_l^*(2\omega) + \\ & + [1 - K(-2\omega)] \gamma_{ijlk}(2\omega; \omega, \omega) \times \\ & \times E_i^*(2\omega) \partial_k E_l(\omega) \} E_j(\omega) + \text{c.c.}, \quad (45) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} S_k^{(2)} = & c^{-1} [K(-2\omega) \gamma_{ijlk}(2\omega; \omega, \omega) E_i^*(2\omega) \partial_t E_l(\omega) + \\ & + K(\omega) \gamma_{ijlk}(-\omega; \omega, -2\omega) E_i(\omega) \partial_t E_l^*(2\omega)] E_j(\omega) + \\ & + \text{c.c.}, \quad (46) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} g_p^{(2,nloc)} = & e_{pij} (\gamma_{ilmk}(-\omega; \omega, -2\omega) B_j(\omega) \partial_k E_m^*(2\omega) + \\ & + \gamma_{ilmk}(2\omega; \omega, \omega) B_j^*(2\omega) \partial_k E_m(\omega)) E_l(\omega) + \text{c.c.}, \quad (47) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} G_{pk}^{(2,nloc)} = & \\ = & \{ \delta_{pk} [K(\omega) \gamma_{ijlm}(-\omega; \omega, -2\omega) E_i(\omega) \partial_m E_l^*(2\omega) + \\ & + K(-2\omega) \gamma_{ijlm}(2\omega; \omega, \omega) E_i^*(2\omega) \partial_m E_l(\omega)] - \\ & - [K(-2\omega) \gamma_{ijlk}(2\omega; \omega, \omega) E_i^*(2\omega) \partial_p E_l(\omega) + \\ & + K(\omega) \gamma_{ijlk}(-\omega; \omega, -2\omega) E_i(\omega) \partial_p E_l^*(2\omega)] - \\ & - [\gamma_{kjlm}(2\omega; \omega, \omega) E_p^*(2\omega) \partial_m E_l(\omega) + \\ & + \gamma_{kjlm}(-\omega; \omega, -2\omega) E_p(\omega) \partial_m E_l^*(2\omega)] \} E_j(\omega) + \\ & + \text{c.c.}, \quad (48) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} S_{ij}^{(2)} = & -e_{ikp} [K(\omega) \gamma_{klmj}(2\omega; \omega, \omega) E_p^*(2\omega) E_m(\omega) + \\ & + K(-2\omega) \gamma_{klmj}(-\omega; \omega, -2\omega) E_p(\omega) E_m^*(2\omega)] E_l(\omega) + \\ & + \text{c.c.} \quad (49) \end{aligned}$$

Здесь $K(\omega) = 1/4$ и $K(-2\omega) = 1/2$ для прямого подхода, и $K(\omega) = K(-2\omega) = 1/3$ для подхода, основанного на предельном переходе. Используя формулы работы [27], полученные в случае невырожденных

процессов, мы получили бы в формулах (45)–(49) неправильные значения $K(\omega) = 2/3$ и $K(-2\omega) = 1/3$. Помимо этого, в формулах (45), (47), а также в не содержащих $K(\omega)$ слагаемых правой части уравнения (48) появился бы не существующий в правильном равенстве коэффициент 2 перед компонентами тензора $\hat{\gamma}$, первый частотный аргумент которых равен $-\omega$.

В случае генерации третьей гармоники в среде с кубической нелинейностью $n = 3$, $\omega_{1,2,3} = \omega$, $\omega_4 = 3\omega$, т. е. $m = 1$, $F(\omega) = 3$, а $F(-3\omega) = 1$. В результате получаем

$$\begin{aligned} U^{(3,nloc)} = & \\ = & \{ [1 - K(\omega)] \gamma_{ijlmk}(-\omega; \omega, \omega, -3\omega) E_i(\omega) \partial_k E_m^*(3\omega) + \\ & + [1 - K(-3\omega)] \gamma_{ijlmk}(3\omega; \omega, \omega, \omega) E_i^*(3\omega) \times \\ & \times \partial_k E_m(\omega) \} E_j(\omega) E_l(\omega) + \text{c.c.}, \quad (50) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} S_k^{(3)} = & \\ = & c^{-1} [K(-3\omega) \gamma_{ijlmk}(3\omega; \omega, \omega, \omega) E_i^*(3\omega) \partial_t E_m(\omega) + \\ & + K(\omega) \gamma_{ijlmk}(-\omega; \omega, \omega, -3\omega) E_i(\omega) \partial_t E_m^*(3\omega)] \times \\ & \times E_j(\omega) E_l(\omega) + \text{c.c.}, \quad (51) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} g_p^{(3,nloc)} = & \\ = & e_{pij} (\gamma_{ilmnk}(-\omega; \omega, \omega, -3\omega) B_j(\omega) \partial_k E_n^*(3\omega) + \\ & + \gamma_{ilmnk}(3\omega; \omega, \omega, \omega) B_j^*(3\omega) \partial_k E_n(\omega)) \times \\ & \times E_l(\omega) E_m(\omega) + \text{c.c.}, \quad (52) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} G_{pk}^{(3,nloc)} = & \\ = & \{ \delta_{pk} [K(\omega) \gamma_{ijlmn}(-\omega; \omega, \omega, -3\omega) E_i(\omega) \partial_n E_m^*(3\omega) + \\ & + K(-3\omega) \gamma_{ijlmn}(3\omega; \omega, \omega, \omega) E_i^*(3\omega) \partial_n E_m(\omega)] - \\ & - [K(-3\omega) \gamma_{ijlmk}(3\omega; \omega, \omega, \omega) E_i^*(3\omega) \partial_p E_m(\omega) + \\ & + K(\omega) \gamma_{ijlmk} E_i(\omega) \partial_p E_m^*(3\omega)] - \\ & - [\gamma_{kjlmn}(3\omega; \omega, \omega, \omega) E_p^*(3\omega) \partial_n E_m(\omega) + \\ & + \gamma_{kjlmn}(-\omega; \omega, \omega, -3\omega) E_p(\omega) \partial_n E_m^*(3\omega)] \} \times \\ & \times E_j(\omega) E_l(\omega) + \text{c.c.}, \quad (53) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} S_{ij}^{(3)} = & -e_{ikp} [K(\omega) \gamma_{klmnj}(3\omega; \omega, \omega, \omega) E_p^*(3\omega) E_n(\omega) + \\ & + K(-3\omega) \gamma_{klmnj}(-\omega; \omega, \omega, -3\omega) E_p(\omega) E_n^*(3\omega)] \times \\ & \times E_l(\omega) E_m(\omega) + \text{c.c.} \quad (54) \end{aligned}$$

В этих формулах

$$K(\omega) = 1/6 \quad \text{и} \quad K(-3\omega) = 1/2$$

при использовании прямого подхода и

$$K(\omega) = K(-3\omega) = 1/4$$

при использовании подхода, основанного на предельном переходе. Используя формулы работы [27], полученные в случае невырожденных процессов, мы получили бы в формулах (50)–(54) неправильные значения $K(\omega) = 3/4$ и $K(-3\omega) = 1/4$. Также в формулах (50), (52) и (53) появился бы несуществующий в правильном выражении коэффициент 3 перед слагаемыми, содержащими компоненты тензора $\hat{\gamma}$, у которых первый частотный аргумент равен $-\omega$.

Если происходит самовоздействие электромагнитной волны (процесс $\omega = -\omega + \omega + \omega$) в среде с кубической нелинейностью ($n = 3$), то частота $\omega_1 = -\omega$, а $\omega_{2,3,4} = \omega$. Формально можно считать, что взаимодействуют две волны с частотами ω и $-\omega$, и поэтому $m = 2$, а $F(\omega) = F(-\omega) = 2$. В этом случае формулы принимают вид

$$U^{(3,nloc)} = \frac{3}{4} [\gamma_{ijklmk}(\omega; -\omega, \omega, \omega) E_i^*(\omega) \partial_k E_m(\omega) + \gamma_{iljmk}(-\omega; \omega, -\omega, -\omega) E_i(\omega) \partial_k E_m^*(\omega)] \times E_j^*(\omega) E_l(\omega), \quad (55)$$

$$S_k^{(3)} = \frac{1}{4c} [\gamma_{ijklmk}(\omega; -\omega, \omega, \omega) E_i^*(\omega) \partial_t E_m(\omega) + \gamma_{iljmk}(-\omega; \omega, -\omega, -\omega) E_i(\omega) \partial_t E_m^*(\omega)] \times E_j^*(\omega) E_l(\omega), \quad (56)$$

$$g_p^{(3,nloc)} = e_{pij} [\gamma_{ilmnk}(\omega; -\omega, \omega, \omega) B_j^*(\omega) \partial_k E_n(\omega) + \gamma_{imlnk}(-\omega; \omega, -\omega, -\omega) B_j(\omega) \partial_k E_n^*(\omega)] \times E_l^*(\omega) E_m(\omega), \quad (57)$$

$$G_{pk}^{(3,nloc)} = \left\{ \frac{1}{4} [\delta_{pk} (\gamma_{ijlmn}(\omega; -\omega, \omega, \omega) E_i^*(\omega) \partial_n E_m^*(\omega) + \gamma_{iljmn}(-\omega; \omega, -\omega, -\omega) E_i(\omega) \partial_n E_m^*(\omega)) - (\gamma_{ijlmk}(\omega; -\omega, \omega, \omega) E_i^*(\omega) \partial_p E_m(\omega) + \gamma_{iljmk}(\omega; \omega, -\omega, -\omega) E_i(\omega) \partial_p E_m^*(\omega))] - \gamma_{kjlmn}(\omega; -\omega, \omega, \omega) E_p^*(\omega) \partial_n E_m(\omega) - \gamma_{kljmn}(-\omega; \omega, -\omega, -\omega) E_p(\omega) \partial_n E_m^*(\omega) \right\} \times E_j^*(\omega) E_l(\omega), \quad (58)$$

$$S_{ij}^{(3)} = -\frac{e_{ikp}}{4} [\gamma_{klmnj}(\omega; -\omega, \omega, \omega) E_p^*(\omega) E_n(\omega) + \gamma_{kmlnj}(-\omega; \omega, -\omega, -\omega) E_p(\omega) E_n^*(\omega)] \times E_l^*(\omega) E_m(\omega). \quad (59)$$

При самофокусировке оба подхода приводят к одинаковым результатам. Отметим, что в этом процессе каждое из выражений автоматически является действительным и наличия комплексного сопряжения в формулах не требуется. Используя формулы [27], полученные в случае невырожденных процессов, мы получили бы в два раза большие величины, чем те, которые стоят в правых частях равенств (55)–(59).

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе получены аналитические выражения для добавок к плотности энергии, плотности потока энергии, плотности импульса, плотности потока импульса, компонентам плотности углового момента и компонентам тензора плотности потока углового момента, обусловленных локальным и нелокальным нелинейным оптическим откликом n -го порядка объема однородной непоглощающей среды в случае, когда реальное число взаимодействующих в ней волн с различными частотами меньше или равно n . Эти добавки не могут быть непосредственно определены из аналогичных им выражений, ранее полученных в случае нелинейного взаимодействия $n + 1$ волн с различными частотами в такой среде, если в них положить некоторые из частот равными друг другу, т.е. формально считать, что распространяется $n + 1$ волн, но частоты, амплитуды и волновые векторы некоторых из них полностью совпадают. Полученные в работе формулы могут использоваться не только теми, кто справедливо считает, что число взаимодействующих волн с различными частотами, участвующих в вырожденных нелинейных оптических процессах, меньше или равно n , но и теми, для кого вырожденный процесс получается как предельный переход от случая $n + 1$ различных частот взаимодействующих волн, в результате которого некоторые из них кладутся равными друг другу, т.е. в среде формально распространяется $n + 1$ волн, но несколько из них полностью идентичны друг другу. Полученные в результате этих двух подходов два набора формул различаются лишь численными коэффициентами, значения которых определяются кратностями вырождения частот взаимодействующих волн и числом слагаемых во входящих в них суммах. Формулы, полученные в первом случае, имеют более сложный вид. Каждое слагаемое в них

явным образом содержит кратность вырождения соответствующей частоты. Во втором случае аналитические выражения для фундаментальных характеристик поля оказываются внешне похожими на аналогичные формулы работ, в которых все $n + 1$ частот взаимодействующих волн различны. Принципиальное различие полученных в работе формул проявляется в числе слагаемых в суммах, входящих в выражения для обусловленных нелинейностью среды добавок к характеристикам электромагнитного поля.

Найденные формулы для добавок к плотности энергии, плотности потока энергии, плотности импульса, плотности потока импульса, компонентам плотности углового момента и компонентам тензора плотности потока углового момента, обусловленных локальным и нелокальным нелинейным оптическим откликом объема однородной непоглощающей среды, позволяют записать их конкретный вид для всех вырожденных процессов нелинейной оптики.

ЛИТЕРАТУРА

1. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика. Том 8. Электродинамика сплошных сред*, Физматлит, Москва (2005).
2. И. Н. Топтыгин, К. Левина, УФН **186**, 141 (2016).
3. I. Campos-Flores, J. L. Jiménez-Ramírez, and J. Roa-Neri, *J. Electromagn. Anal. Appl.* **9**, 203 (2017).
4. D. E. Soper, *Classical Field Theory*. Dover Publications, New York (2008).
5. S. M. Barnett, *J. Opt. B: Quantum and Semiclassical Optics* **4**, S7 (2002).
6. В. П. Макаров, А. А. Рухадзе, УФН **181**, 1357 (2011).
7. S. Stallinga, *Phys. Rev. E* **73**, 026606 (2006).
8. О. Yamashita, *Optik* **122**, 2119 (2011).
9. В. М. Агранович, В. Л. Гинзбург, *Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов*, Наука, Москва (1965).
10. P. W. Milonni and R. W. Boyd, *Adv. Opt. Photon.* **2**, 519 (2010).
11. C. Heredia and J. Llosa, *J. Phys. Commun.* **5**, 055003 (2021).
12. R. Boyd, *Nonlinear Optics*. Elsevier, Amsterdam (2020).
13. S. Serulnik and Y. Ben-Aryeh, *Quantum Optics: J. Europ. Opt. Soc. Part B* **3**, 63 (1991).
14. G. Moe and W. Happer, *J. Phys. B: Atomic and Molecular Physics* **10**, 1191 (1977).
15. С. А. Ахманов, С. Ю. Никитин, *Физическая оптика*, Наука, Москва (2004).
16. S. M. Barnett, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 070401 (2010).
17. A. Willner, H. Huang, Y. Yan et al., *Adv. Opt. Photonics* **7**, 66 (2015).
18. A. Trichili, C. Rosales-Guzmán, A. Dudley et al., *Sci. Rep.* **6**, 27674 (2016).
19. V. D'Ambrosio, E. Nagali, S. Walborn et al., *Nature Commun.* **3**, 961 (2012).
20. W. Brullot, M. Vanbel, T. Swusten et al., *Science Advances* **2**, e1501349 (2016).
21. P. Polimeno, A. Magazzù, M. Iati et al., *J. Quant. Spectr. Radiat. Trans.* **218**, 131 (2018).
22. Y. Tian, L. Wang, and G. Duan, *Opt. Commun.* **485**, 126712 (2020).
23. M. Padgett and R. Bowman, *Nature Photonics* **5**, 343 (2011).
24. S. Franke-Arnold, L. Allen and M. Padgett, *Laser and Photonics Rev.* **2**, 299 (2008).
25. A. Yao and M. Padgett, *Adv. Opt. Photonics* **3**, 161 (2011).
26. M. Ritsch-Marte, *Phil. Trans. Roy. Soc. A* **375**, 20150437 (2017).
27. П. С. Рыжиков, В. А. Макаров, ЖЭТФ **162**, 45 (2022).
28. P. S. Ryzhikov and V. A. Makarov, *Laser Phys. Lett.* **19**, 115401 (2022).
29. Y. R. Shen, *Principles of Nonlinear Optics*, Wiley, New York (1984).
30. P. S. Ryzhikov and V. A. Makarov, *Laser Phys. Lett.* **20**, 105401 (2023).
31. S. V. Popov, Yu. P. Svirko, and N. I. Zheludev, *Susceptibility Tensors for Nonlinear Optics*. Taylor and Francis, New York (2015).
32. Y. P. Svirko and N. I. Zheludev, *Polarization of Light in Nonlinear Optics*. Wiley, New York (1998).
33. P. S. Ryzhikov and V. A. Makarov, *Laser Phys. Lett.* **19**, 035401 (2022).

СИЛЬНОЕ ВОЗБУЖДЕНИЕ ЭЛЕКТРОННОЙ ПОДСИСТЕМЫ ЗОЛОТА УЛЬТРАКОРОТКИМ ЛАЗЕРНЫМ ИМПУЛЬСОМ И ПРОЦЕССЫ РЕЛАКСАЦИИ ОКОЛО ТЕМПЕРАТУРЫ ПЛАВЛЕНИЯ

Н. А. Иногамов^{a,b,c}, В. А. Хохлов^{a,c}, С. А. Ромашевский^c, Ю. В. Петров^a,
М. А. Овчинников^c, С. И. Ашитков^c*

^a *Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау
Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

^b *Всероссийский НИИ автоматики им. Н. Л. Духова, Росатом
127030, Москва, Россия*

^c *Объединенный институт высоких температур Российской академии наук
125412, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 15 сентября 2023 г.,
после переработки 9 октября 2023 г.
Принята к публикации 10 октября 2023 г.

Фемтосекундные импульсы широко используются в научных исследованиях и современных технологиях. При воздействии на металлы ультракороткое оптическое лазерное воздействие формирует выраженное двухтемпературное состояние с горячими электронами: $T_e \gg T_i$, где T_e и T_i — температуры электронной и решеточной подсистем. Представлены экспериментальные измерения, выполненные с помощью техники фазочувствительного или синхронного детектирования (lock-in) на объемной и пленочной (толщина 100 нм) мишенях из золота. Благодаря тому, что в наших опытах частота повторений нагревающих импульсов снижена до 31 Гц, нам удалось достичь температур около температуры плавления золота. Это происходит на выходе из двухтемпературной стадии в объемных мишенях. Как известно, по окончании этой стадии температуры сближаются, $T_e \approx T_i$. В объемных мишенях при наибольших достигнутых нами флюенсах пиковая электронная температура повышается до значений около 20 кК. Теоретические расчеты, имеющиеся в литературе, дают определенные зависимости для параметра электрон-фононного взаимодействия α и коэффициента электронной теплопроводности κ — ключевых параметров, характеризующих двухтемпературную стадию. Наши опыты показали, что в диапазоне флюенсов с пиковыми температурами T_e выше 10 кК и до 20 кК измеренные значения α и κ существенно ниже тех значений, которые дают теории. Ниже этого диапазона флюенсов, т. е. когда пиковые T_e меньше 10 кК, измеренные нами значения согласуются с прежними данными. Это первый результат статьи. Кроме того, показано, что на однотемпературной стадии, когда тепловая энергия, запасенная в электронах, весьма мала, имеется значительное влияние принципиально двухтемпературного коэффициента α на теплоотвод из скин-слоя. Это связано с относительно малой толщиной прогретого слоя, которая в золоте составляет величину порядка 200–300 нм.

DOI: 10.31857/S0044451024020032

1. ВВЕДЕНИЕ

Фемтосекундные (фс) лазерные системы представляют собой незаменимый инструмент для исследований в науке [1–4] и в технологиях обработки материалов [5–9]. Соответственно изучение взаимодействия фс-излучения с веществом ведется широким фронтом и уже продолжительное время [10–18].

* E-mail: nailinogamov@gmail.com

Тем не менее многие проблемы сохраняют свою актуальность.

Физика фс-воздействия делится на две основные части (ограничимся случаем металлов и оптического возбуждающего облучения.) В первой части исследуется возбуждение электронов конденсированной среды и релаксация возбужденных состояний. Во второй части анализируются последующие явления, имеющие место уже в термодинамически равновесной среде. С одной стороны, рассматриваются переход конденсированного вещества в неравновесное состояние и релаксация к термодинамическому равновесию. С другой стороны, анализируются последствия сверхбыстрого нагрева уже в равновесных состояниях.

В свою очередь, первая часть делится на два раздела по степени возбуждения. Это кнудсеновские и гидродинамические течения. В первый (кнудсеновский) раздел целесообразно отнести слабые воздействия, а во второй — сильные воздействия (гидродинамика). Чем они различаются? Различие между ними заключается во времени релаксации t_{e-e} электронной подсистемы. При слабом возбуждении время t_{e-e} превышает длительность лазерного импульса τ_L и становится сопоставимым со временем релаксации t_{eq} .

Ограничимся случаем золота и фс-импульсов, когда время t_{eq} составляет единицы и десятки пикосекунд и существенно превосходит длительность τ_L . На временах меньше масштаба t_{e-e} фермиевское распределение в электронной подсистеме еще не установилось [19, 20]. Для установления термодинамического равновесия электронов необходимо несколько электрон-электронных столкновений. Слабые возбуждения происходят от слабых воздействий, поскольку время свободного пробега между электрон-электронными столкновениями, $t_{e-e} \propto 1/T_e^2$ [21], убывает с поглощенной энергией F_{abs} . Дело в том, что $t_{e-e} \propto 1/E_e$ вследствие того, что $E_e \propto T_e^2$, где E_e — энергия электронов.

Далее в тексте будут представлены опыты и расчеты со слабыми и достаточно сильными нагревами. Они относятся к кнудсеновскому и гидродинамическому случаям.

Ситуацию на временах $t < t_{e-e}$ необходимо описывать с помощью кинетического уравнения [19, 20]. При этом число Кнудсена $\text{Kn} \sim 1$. Число Kn характеризует переход от неравновесного к равновесному случаю. Оно равно отношению длины свободного пробега к характерному пространственному масштабу, $\text{Kn} = l_{mfp}/L$, или оно равно отношению продолжительности свободного пробега к характерно-

му временному масштабу, $\text{Kn} = t_{mfp}/t_{eq}$. Работа с кинетическим уравнением в пространственно-неоднородной среде является сложной.

В аэродинамике разреженного воздуха для упрощения решения кинетического уравнения Больцмана создан метод Чепмена–Энскога [22]. Это направление связано с аппроксимацией кинетического уравнения Больцмана в виде разложения по степеням малого параметра, которым считается число Kn . Первым приближением по числу Kn является уравнение Навье–Стокса. Для конденсированной среды с возбужденными электронами таких аналогов к настоящему времени еще не создано. В такого рода среде имеются подходы к решению кинетического уравнения в пространственно-однородном случае (тонкие пленки) [19, 20].

К существенному упрощению решений в неравновесном случае приводит подход с разделением на электронную (e) и ионную (i) подсистемы [10, 23]. В равновесном случае термодинамическая система характеризуется одной температурой. В подходе работ [10, 23] температур две — это отдельные температуры T_e и T_i для электронов и решетки — двухтемпературное (2Т) приближение. 2Т-приближение опирается на то обстоятельство, что установление равновесия между подсистемами длится дольше, чем установление равновесия внутри e - и i -подсистем.

2Т-подход имеет смысл, если время установления равновесия в электронной подсистеме мало,

$$t_{e-e} \ll t_{eq}. \quad (1)$$

Выравнивание температур T_e и T_i происходит за время t_{eq} . Понятно, что для выполнения неравенства (1) поглощенная энергия F_{abs} должна быть достаточно большой. Насколько большой? Грубые оценки дают пороговое значение $F_{abs} \sim 1 \text{ мДж/см}^2$. Ниже в статье на базе опытов и расчетов мы уточним данное положение.

В наших опытах и расчетах мишень из золота до воздействия находится при комнатной температуре, т.е. нагрета выше дебаевской температуры золота $\Theta = 170 \text{ К}$. В термодинамическом равновесии при $T > \Theta$ основной вклад в решеточную теплоемкость связан с фоновыми модами с волновыми векторами $k \sim k_D$ возле границы зоны Бриллюэна. Подчеркнем, что в 2Т-состояниях ($T_e \gg T_i$) практически весь поток передаваемой электронами энергии направляется в те же коротковолновые моды [24].

Заменим зону Бриллюэна на сферу. Радиус этой сферы в пространстве волновых векторов равен $k_D = (6\pi^2 n_{at})^{1/3}$, где n_{at} — концентрация атомов.

Длина волны $\lambda_D = 2\pi/k_D = 0.2$ нм. Фонон-фононное взаимодействие обусловлено ангармонизмом кристаллического потенциала. Оценим частоту ν_{p-p} фонон-фононных столкновений по решеточной теплопроводности:

$$\kappa_{lat} \sim (1/3) c_{lat} c_s^2 / \nu_{p-p}.$$

Отсюда $\nu_{p-p} \simeq 7 \cdot 10^{12} / \kappa_{lat} \text{ с}^{-1}$, где κ_{lat} выражается в единицах измерения СИ. Соответственно время свободного пробега фонона $1/\nu_{p-p}$ между столкновениями порядка 100–200 фс при $\kappa_{lat} \sim 1$ Вт/К/м. Приведенная оценка следует из молекулярно-кинетической теории. В ней c_{lat} и c_s — теплоемкость решетки и скорость звука соответственно. Понятно, что для термализации дальнего хвоста распределения Ферми и термализации длинноволновых фононов требуется много соответственно электрон-электронных и фонон-фононных столкновений. Но энергии в обоих этих хвостах мало, поэтому их наполнение относительно малосущественно.

Оценим длину пробега электрона l_{mfp} в золоте при комнатной температуре. Пробег l_{mfp} называют также баллистической длиной. Частота столкновений электрона, оцененная с помощью формулы Друде по электрическому сопротивлению, порядка 10^{14} с^{-1} . При комнатной температуре частота столкновений определяется рассеяниями на фононах. Если скорость Ферми оценить как $v_F \sim 10^8 \text{ см/с}$, то мы получим $l_{mfp} \sim 10^{-6} \text{ см} \sim 10 \text{ нм}$, т.е. порядка 30 межатомных промежутков. С ростом электронной и/или ионной температур выше комнатной температуры частота столкновений увеличивается, соответственно баллистическая длина уменьшается. В кнудсеновском режиме толщина пленки порядка баллистической длины.

Поговорим теперь об экспериментальной ситуации. Облучение (возбуждение/нагрев (pump)) и диагностика (зондирование (probe)) являются важнейшим pump-probe-методом прямого слежения за происходящим вследствие фс-облучения [25]. Другими словами — это измерения терморектанса (transient thermo reflectivity, TTR [26]). Принцип простой. Облучение («термо») возбуждает электронную подсистему. В результате возбуждения меняются оптические характеристики. Диагностические импульсы нужны для того, чтобы определять эволюцию (поэтому «transient») во времени измененных оптических характеристик, например, вариацию коэффициента отражения (эволюция рефлектанса).

В первых работах конца 80-х начала 90-х годов энергетика фс-лазеров была слабой [11–14], см. также [27]. Облучение (pump) вызывало столь малое отклонение от комнатного значения, что диагностический сигнал тонул в шумах. Поэтому измерения велись в режиме накопления полезного сигнала — методика lock-in [12–14]. При этом на мишень подавалась последовательность $N \gg 1$ четверок (по две пары) лазерных импульсов.

Первая пара в четверке состояла из пропущенного нагревающего импульса (нет pump-импульса) и диагностического (probe) импульса. Таким образом, первая пара измеряла и запоминала в памяти устройства невозмущенное значение коэффициента отражения R_0 . Во второй паре, относящейся к той же четверке, были и греющий (pump), и диагностический (probe) импульсы. Измерялось и запоминалось измененное значение коэффициента отражения R' . В серии из N четверок разнесение во времени греющего и диагностического импульсов t_{delay} и амплитуда греющего импульса были строго фиксированы. Амплитуда диагностического импульса пренебрежимо мала.

Изменение ΔR коэффициента отражения, $\Delta R = R' - R_0$, флуктуирует из-за шумов. При большом количестве импульсов $N \gg 1$ вариация ΔR сходится к среднему $\langle \Delta R \rangle$. При этом относительная погрешность убывает пропорционально $1/\sqrt{N}$.

В следующих сериях менялось время t_{delay} задержки между греющим и диагностическим сигналами. Таким образом определялась эволюция во времени $\langle \Delta R \rangle(t_{delay})$ возбужденной системы после греющего импульса фиксированной амплитуды [12–14, 28]. При изменении параметров греющего импульса (амплитуда, длительность) меняется и эволюция.

Промежуток времени t_4 ($t_4 \gg t_{delay}$) между последовательными четверками должен быть достаточно продолжительным. Это необходимо для того, чтобы за время t_4 гарантировать остывание вещества и возвращение мишени к исходному состоянию с коэффициентом R_0 . В противном случае вещество в пятне облучения деградирует в режиме усталостного разрушения [27, 29]. Усталостная деградация ограничивает сверху амплитуду греющего (pump) импульса в методике lock-in. Понятно, что время остывания t_4 после воздействия pump-импульса растет вместе с амплитудой этого импульса.

С течением времени разрабатывались новые лазерные системы, и энергетика фс-воздействия усиливалась. При достаточно мощной энергетике уже в 90-е гг. оказалось возможным отказаться от пред-

ставленного выше сложного режима lock-in с многими повторами ($N \gg 1$) импульсов высокой стабильности. Измеряемое значение ΔR стало определяться в одной паре греющего (pump) и диагностического (probe) импульсов, т./к. величина ΔR являлась довольно большой [25,30,31]. Варьируя задержку t_{delay} между импульсами, можно найти зависимость $\Delta R(t)$. Отметим, что сильное одиночное воздействие необратимо меняет характеристики вещества мишени в пятне воздействия. Поэтому следующий лазерный выстрел необходимо направлять в новое, необлученное место на поверхности мишени.

Также была разработана техника спектральной интерферометрии, с помощью которой в одном опыте с одним греющим импульсом сразу определяется зависимость $\Delta R(t)$ [32,33]. При этом с одиночным греющим фс-импульсом синхронизован длинный (субнаносекундный) частотно модулированный диагностический (probe) импульс, различные спектральные компоненты которого прибывают на мишень с разными временами задержки t_{delay} .

Таким образом, техника lock-in (II) и техника с одиночным диагностическим импульсом (I) дополняют друг друга. Благодаря II можно работать со слабыми импульсами, когда точности техники I не хватает. Наоборот, благодаря I снимается лимит сверху на амплитуду воздействия. Как сказано выше, появление лимита обусловлено деградацией мишени из-за накопления повреждений и/или постепенной аккумуляции тепла.

В перечисленных выше экспериментах нагрев и зондирование проводятся оптическими импульсами. Иногда это гармоники основной частоты. Скажем, нагрев проводится на второй гармонике, а зондирование — на первой, см. пример в работе [27]. Имеются более сложные схемы с синхронизацией во времени прихода на мишень разного рода импульсов. Проводятся pump-probe-исследования с оптическим (pump) и неоптическим (probe) импульсами. С помощью мягкого рентгеновского излучения строят изображения того, как происходит развитие купола [34] при отделении (блистеринге) от подложки тонкой пленки в пятне облучения. Для диагностики используются кольца Ньютона и сдвиги интерференционных полос [34] в лучах лазера на длине волны 13.9 нм. Путем дифракции на меняющейся во времени решетке кристалла изучают изменения структуры кристалла в результате фс-воздействия. В таких работах для дифракции в качестве диагностического (probe) импульса используется жесткое рентгеновское излучение [35] или электронный пучок [36].

Вернемся к чисто оптическим pump-probe-методам. Первые исследования специфики протекающих процессов, вызванных фс-импульсом, во-первых, опирались на аппаратуру lock-in и, во-вторых, ставили целью описание электрон-фононной релаксации [12–14]. Такая релаксация длится пикосекунду(ы). При этом пятно освещения pump-импульса гораздо шире пятна освещения probe-импульса. Это необходимо для исключения эффектов неоднородности.

Настоящая революция произошла в конце 90-х годов. Во-первых, как сказано выше, возросла энергетика фс-лазера (поэтому удалось превысить порог нанооткола). Во-вторых, исследователи в своем слежении за процессами, инициированными фс-воздействием, стали охватывать намного более продолжительный интервал времен (t_{delay} — до единиц и десятков наносекунд [30]; см. также работу [37] о рекордных длительностях наблюдения). В-третьих, размер пятна probe-импульса стал больше пятна pump-импульса [30].

Эти три обстоятельства позволили наблюдать кольца Ньютона с растущим во времени числом колец. Указанные обстоятельства суть: превышение порога; длительность наблюдения, достаточная для того, чтобы откольная оболочка прошла путь, сопоставимый с длиной волны probe-импульса; широкое поле обзора probe-фотографии, покрывающее всю область откольной оболочки.

Полученные данные позволили заявить о новом (не испарение) характере течения, порожденном фс-воздействием [30,38,39]. Оказалось, что фс-воздействие приводит к наноотколу [38,39] вместо привычной (для более длительных импульсов) испарительной абляции. Эквивалентно вместо терминов откол или нуклеация/кавитация говорят о термомеханической абляции [38,39] или об инерционном удержании (stress confinement) [40]. В ранних исследованиях электрон-фононной релаксации [12–14] гидродинамические эффекты были пренебрежимо малы; в этих работах применялась техника lock-in, нагревы были слабыми, намного ниже порога термомеханической абляции.

Завершим на этом обзор по физике ультракоротких лазерных воздействий. Работа построена следующим образом. В разд. 2–7 представлена общая картина. Говорится о том, что на ранней стадии в объемных мишенях охлаждение электронной подсистемы в скин-слое обусловлено в основном выносом электронной энергии из скин-слоя посредством электронной теплопроводности (разд. 2–5). При этом на данной стадии передача энергии от

электронов фононам играет второстепенную роль (разд. 6 и 7).

В разд. 8 и 9 представлена использованная экспериментальная техника и описаны основные результаты. Именно эти результаты послужили основой для последующей теоретической обработки. Дело в том, что представленный выше метод TTR позволяет получить экспериментальные данные для относительного изменения коэффициента отражения $\Delta R(t)/R_0$ со временем в течение и после ультракороткого лазерного воздействия. Это косвенный метод: по кривой $\Delta R(t)/R_0$ необходимо судить о состоянии конденсированной среды с возбужденными электронами. Для пересчета кривой в параметры, характеризующие систему, необходимо иметь численную реализацию адекватной физической модели.

В разд. 10 и 11 разъясняются использованные нами физические методики: расчет коэффициента теплопроводности приводится в разд. 10, оптическая модель дается в разд. 11. В заключительном разделе подведены итоги работы.

2. ДОМИНИРОВАНИЕ ЭЛЕКТРОННОГО ТЕПЛОТВОДА В ОБЪЕМНЫХ МИШЕНЯХ

В работе приводятся данные lock-in-измерений для пленочной и объемной мишеней. Сравнение TTR в случае этих двух типов мишеней приведено на рис. 1. В объемных мишенях на 2T-стадии охлаждение электронной подсистемы в скин-слое (т. е. снижение поверхностной температуры $T_e|_{surf}$) обусловлено главным образом передачей электронной энергии E_e из скин-слоя в объем посредством электронного теплового потока

$$q = -\kappa \nabla T_e, \quad (2)$$

где κ — коэффициент теплопроводности. При этом на данной стадии передача энергии E_e в фононную подсистему мало сказывается на темпе снижения температуры T_e в скин-слое.

Наоборот, в пленке поток (2) подавлен геометрически из-за ультрамалой толщины пленки — в наших опытах толщина пленки равна $d_f = 100$ нм. Охлаждение в такой пленке связано с передачей энергии из электронной подсистемы (энергия E_e) в ионную подсистему (энергия E_i). Удельная (на единицу объема) мощность

$$\dot{E}_{ei} = \dot{E}_e - \dot{E}_i$$

обмена энергией между указанными подсистемами равна (обычно в единицах Вт/м³)

$$\dot{E}_{ei} = \alpha(T_e - T_i), \quad (3)$$

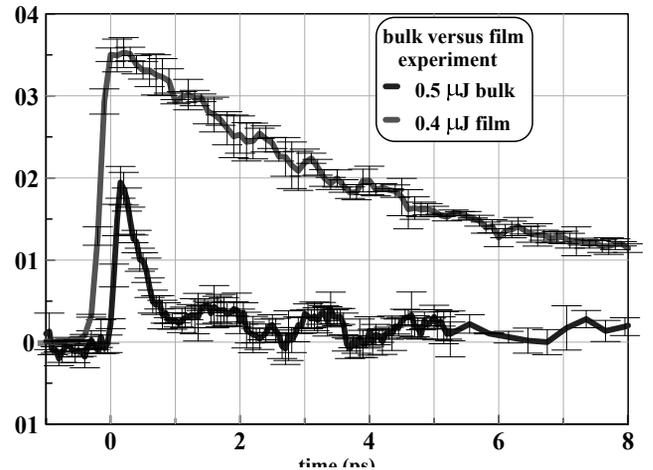


Рис. 1. (В цвете онлайн) Сравнение TTR (т. е. $\Delta R/R_0$) в пленочной и объемной мишенях; $\Delta R = R(t) - R_0$, R_0 — значение коэффициента отражения probe-импульса с $\lambda = 800$ нм при комнатной температуре. Указаны энергии соответствующих лазерных рипр-импульсов, (см. разд. 8, посвященный описанию проведенных нами опытов). Как видно, в пленке электрон-ионная релаксация происходит намного медленнее. В пленке и в объемной мишени механизмы снижения поверхностной электронной температуры $T_e|_{surf}$ разные. В пленке снижение $T_e|_{surf}$ (и соответственно TTR) происходит из-за обмена (3), тогда как в объемной мишени доминирует охлаждение за счет электронного теплового потока (2), см. пояснения в тексте

где α — коэффициент электрон-фононного обмена.

Приведем оценки, поясняющие ситуацию, показанную на рис. 1. Пересчет энергии рипр-импульса (указана в рамке на рис. 1 в мкДж) сначала во флюенс падающего излучения F_{inc} , а затем в поглощенную энергию F_{abs} дает значения F_{abs} , равные 3.4 мДж/см² для пленки и 3.7 мДж/см² для объемной мишени. В наших опытах измеряется количество отраженной энергии рипр-импульса. Из этих измерений коэффициент поглощения A на длине волны рипр-импульса 400 нм под углом 45° при p -поляризации получается равным 0.7 и 0.8 для объема и пленки соответственно. Отсюда следуют приведенные значения F_{abs} . Отметим, что для угла 45° литературные данные по A варьируют в пределах от 0.7 до 0.75, см. <https://refractiveindex.info/>. Отметим, что толщина пленки золота (100 нм) такова, что энергией излучения, прошедшей через пленку, можно пренебречь.

Если распределить поглощенную энергию $F_{abs} = 3.4$ мДж/см² в электронной подсистеме на толщине $d_f = 100$ нм, то электроны нагреются от комнатной температуры $T_{rt} = 293$ К до 3600 К. При подсчете принято, что приращение удельной

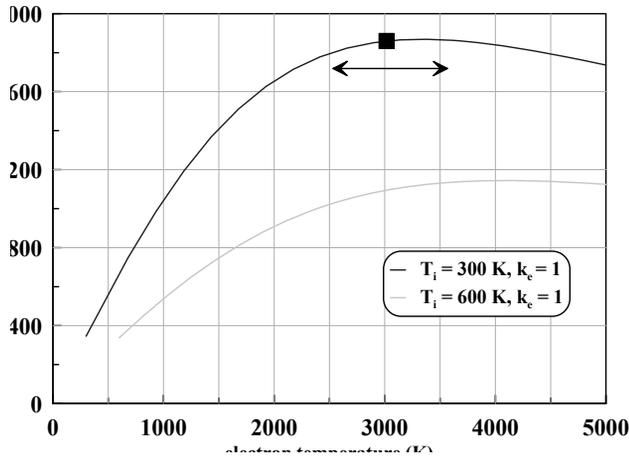


Рис. 2. (В цвете онлайн) Зависимости коэффициента теплопроводности κ золота в твердой фазе при нормальной плотности 19.3 г/см^3 от температур T_e и T_i . Для оценки (4) полагаем, что нагрев ионной подсистемы в поверхностном слое мал, т. е. $T_i \approx 300 \text{ К}$. Среднее значение $\kappa \approx 1900 \text{ Вт/К/м}$ на отрезке изменения температуры T_e от 3600 до 2600 К . Указанный отрезок температур T_e выделен двусторонней горизонтальной стрелкой. Описанию модели, посредством которой вычисляется коэффициент κ , посвящен разд. 10

электронной энергии равно

$$E_e = \frac{\gamma}{2}(T_e - T_{rt})^2 = \frac{F_{abs}}{d_f}.$$

Согласно теории ферми-газа для золота коэффициент $\gamma = 63 \text{ Дж/К}^2/\text{м}^3$.

В объемной мишени оценка энергии на единицу площади, вынесенной тепловым потоком из поверхностного слоя толщиной $d_f = 100 \text{ нм}$ за время t_{cool} , имеет вид

$$Q_{ehc} = (\kappa \Delta T_e / d_f) t_{cool}. \quad (4)$$

Здесь индекс «ehc» означает «электронная теплопроводность» (electron heat conduction). Для оценки необходимо принять значения κ , ΔT_e и t_{cool} , которые относятся к экспериментальной ситуации, показанной на рис. 1. Нас интересует случай объемной мишени, представленный синей кривой на рис. 1.

Разность температур $T_e|_{surf}$ в выражении (4) возьмем от максимальной, равной примерно 3600 К , до температуры в $\sqrt{2}$ раз меньшей. При этом электронная энергия E_e слоя уменьшится в два раза, поскольку $E_e \propto T_e^2$. На 2Т-стадии амплитуда ТТР-сигнала $\Delta R(t)/R_0$ примерно пропорциональна $(T_e|_{surf})^2$. Поэтому за время охлаждения электронной подсистемы t_{cool} примем отрезок времени на полувысоте пика синей кривой на рис. 1. Это соответствует примерно 500 фс .

Указанная разность температур поверхности отмечена горизонтальным отрезком на рис. 2. В оцен-

ку (4) подставляем $\kappa \approx 1900 \text{ Вт/К/м}$. Коэффициент теплопроводности κ в разработанной нами теории составлен из электрон-электронного и электрон-ионного (рассеяние на фононах) вкладов. Коэффициент κ представлен на рис. 2. Электрон-электронный вклад в κ выберем согласно работе [41]. Электрон-фононный вклад вычисляется в соответствии с работой [42].

Подставляя в выражение (4) принятые значения $\kappa \approx 1900 \text{ Вт/К/м}$, $\Delta T_e = 1000 \text{ К}$ и $t_{cool} = 0.5 \text{ пс}$, получаем $Q_{ehc} = 1 \text{ мДж/см}^2$, т. е. за время t_{cool} электронный тепловой поток (2) уносит из поверхностного слоя в объем более четверти поглощенной энергии $F_{abs} = 3.7 \text{ мДж/см}^2$.

Сильнейшее электронное охлаждение за счет теплопроводности существенно снижает пиковое значение ТТР на рис. 1 уже на промежутке времени поглощения энергии рпмр-импульса. В наших экспериментах длительность рпмр-импульса была довольно значительной: $150\text{--}200 \text{ фс}$. Это обстоятельство объясняет разность высоты ТТР-пиков объемной и пленочной мишеней на рис. 1.

Теперь оценим темп охлаждения электронной подсистемы пленки толщиной $d_f = 100 \text{ нм}$. Соответствующая зависимость ТТР показана красной кривой на рис. 1. Такая оценка позволит нам определить величину коэффициента электрон-фононного обмена α в формуле (3).

В соответствии с формулой (3) запишем

$$\Delta E_{ei} = \alpha T_e d_f t_{cool-film}. \quad (5)$$

В (5) величина ΔE_{ei} дает снижение энергии, запасенной в пленке, за время охлаждения пленки $t_{cool-film}$. Величина ΔE_{ei} относится к единице площади пленки. Снижение происходит за счет передачи энергии в решеточную подсистему. В (5) в разнице температур из формулы (3) пренебрегаем ионной температурой T_i .

Возьмем обычно принимаемое значение коэффициента электрон-фононного обмена

$$\alpha = 0.2 \cdot 10^{17} \text{ Вт/К/м}^3. \quad (6)$$

Эта величина соответствует значению коэффициента электрон-фононного обмена для золота при малых нагревах. Примем за T_e в (5) среднюю температуру 3100 К на отрезке снижения температур от 3600 до 2600 К . Эти температуры определяются из закона сохранения энергии по поглощенной энергии и фермиевского выражения для плотности электронной энергии, см. выше. Согласно красной кривой на

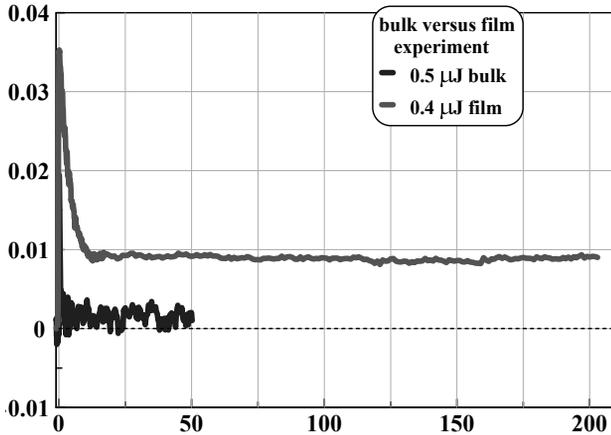


Рис. 3. (В цвете онлайн) Штриховая горизонталь соответствует $\Delta R = 0$, т.е. возвращению коэффициента отраженияprobe-импульса на комнатное значение. Как видим, температура пленки примерно в 4–5 раз выше температуры поверхности объемной мишени. Дело в том, что пленка нанесена на подложку из стекла. Теплопроводность стекла намного меньше теплопроводности золота. По ΔR мы судим о температуре, поскольку на однотемпературной (1Т) стадии отклонение ΔR примерно пропорционально температуре. Опыты, с помощью которых получены кривые TTR, описаны в разд. 8 и 9

рис. 1 длительность промежутка времени на полувысоте пика равна примерно 4.5 пс. Примем это время за время охлаждения $t_{cool-film}$ в выражении (5). Подставляя эти значения в выражение (5), находим, что $\Delta E_{ei} = 2.8$ мДж/см². Это значение примерно равно поглощенной пленкой энергии 3.4 мДж/см².

Для нашей пленки с $d_f = 100$ нм поглощенная энергия $F_{abs}|_{lim} = 3.4$ мДж/см² является предельной, т.е. не удастся провести измерения TTR при значениях F_{abs} , превышающих этот предел. Это обусловлено отсутствием теплоотвода в объем, который охлаждает поглощающую поверхность. На рис. 3 показаны продленные по времени (по сравнению с рис. 1) зависимости TTR. Понятно, что ультратонкая пленка на стекле охлаждается в промежутке времени t_4 между рипр-импульсами намного меньше, чем объемная мишень из золота; теплопроводность стекла на два порядка ниже теплопроводности золота. Поэтому предел $F_{abs}|_{lim} \approx 60$ мДж/см² гораздо выше для объемной мишени.

Таким образом, к сожалению, нет возможности сравнивать TTR на пленочной и объемной мишенях при более сильных нагревах $F_{abs} > 3.4$ мДж/см², как это сделано на рис. 1. В диапазоне энергий $3.4 < F_{abs} [\text{мДж/см}^2] < 60$ придется ограничиться данными, полученными на объемных мишенях.

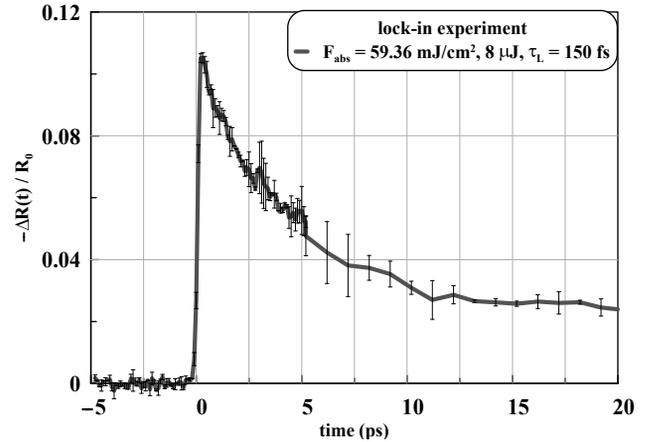


Рис. 4. То же, что на рис. 3 для объемной мишени, но при поглощенной энергии F_{abs} в 16 раз больше. Схема, иллюстрирующая взаимосвязь временных зависимостей интенсивности $I(t)$ рипр-импульса и TTR, представлена на рис. 5

Два основных вывода, которыми следует завершить данный раздел, следующие.

Во-первых, в объемных мишенях на 2Т-стадии охлаждение скин-слоя обусловлено в основном электронной теплопроводностью.

Во-вторых, теоретические значения для коэффициентов κ (см. рис. 2) и α (6) пригодны для описания эксперимента. Ниже будет показано, что при поглощенных энергиях выше примерно 30 мДж/см² теоретические значения этих коэффициентов становятся непригодными для описания опытов.

Из дальнейшего изложения будет ясно, что тезис об определяющей роли электронного теплового потока сохраняется при сильных нагревах. Это имеет место для случая объемной мишени, для 2Т-стадии и для случая, когда энергия существенно выше предела $F_{abs} = 3.4$ мДж/см² «прогорания» пленки золота толщиной 100 нм на частоте повторения рипр-импульсов в несколько десятков–сотен гигагерц в технике lock-in.

3. ОПРЕДЕЛЯЮЩАЯ РОЛЬ ЭЛЕКТРОННОЙ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ

На рис. 4 показана начальная часть (полное наблюдение продолжалось до 350 пс) экспериментальной зависимости TTR для объемной мишени. Данные собраны на пределе «прогорания» для объемной мишени. Удалось получить эти результаты при рекордном значении поглощенной энергии F_{abs} . Рекорд был достигнут благодаря сверхнизкой частоте $1/t_4 = 31$ Гц следования импульсов в технике lock-in — см. разд. 1.

Максимум зависимости TTR на рис. 4 смещен относительно максимума временного хода интенсивности

$$I(t) \approx I_0 \exp(-t^2/\tau_L^2)$$

примерно в область перегиба аппроксимации Гаусса на нисходящем крыле функции Гаусса, см. рис. 5. При плохом теплоотводе и малом значении коэффициента α , определенного в формуле (3), точка M на рис. 5 смещается вправо относительно точки $t = 0$, вниз по нисходящему крылу. И наоборот, при быстром теплоотводе и медленном вводе лазерной энергии в слой поглощения (скин-слой) точка M смещается влево. Участок от начала облучения и до максимума TTR обозначен цифрой 1 на рис. 5.

Оценки и численное моделирование 2Т-гидродинамическим кодом показывают, что спад электронной температуры поверхности $T_e|_{surf}$ и TTR на участке 2 на рис. 5 происходит в основном за счет электронной теплопроводности. В этом отношении случай с сильным нагревом, рассматриваемый здесь, не отличается от случая со слабым нагревом, рассмотренным в разд. 2.

Постепенно по мере снижения TTR и температуры $T_e|_{surf}$ темпы охлаждения поверхности за счет теплопроводности κ и за счет теплопередачи в решетку α сравниваются. Это происходит на заключительном участке 3 2Т-стадии на рис. 5. На этом переходе от 2Т-стадии к однотемпературной (1Т) стадии (когда $T_e \approx T_i$) $T_e|_{surf}$ все еще существенно выше $T_i|_{surf}$.

Номинально участок 4 на рис. 5 — это 1Т-участок теплового течения, поскольку локально по объему мишени температуры $T_e(x, t)$ и $T_i(x, t)$ примерно равны. На самом деле 2Т-эффект здесь скрыто присутствует. Теперь температура $T_e|_{surf}$ немного меньше, чем температура $T_i|_{surf}$. Такое условие обеспечивает продолжение охлаждения поверхности на 1Т-стадии. Как будет показано ниже, только при правильном выборе чисто 2Т-коэффициента α обеспечивается верный временной ход снижения температуры поверхности, а значит, и TTR на участке 4. Поэтому участок 4 называется скрытым 2Т-участком (latent presence of α).

В данном разделе мы будем в основном анализировать участок 2 на рис. 5. Необходимо понять, каким образом происходит пространственное распространение поступающей и уже поступившей в скин-слой радиационной энергии. Повторим оценки, которые применялись в разд. 2 при малых радиационных потоках. Эти оценки основаны на законе сохранения энергии, уравнении теплопроводности и урав-

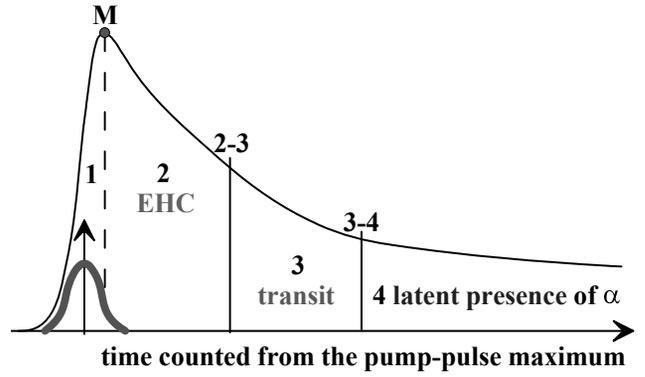


Рис. 5. (В цвете онлайн) Pump-импульс показан красным бугорком, его максимум достигается в момент времени $t = 0$. Данная схема поясняет характерные участки 1–2–3–4 временной зависимости TTR (черная кривая) и синхронизацию pump-импульса и TTR во времени (EHC — electron heat conduction)

нения, описывающем обмен энергией между электронной и ионной подсистемами.

Запишем закон сохранения энергии в виде

$$\frac{\gamma}{2} T_e^2 = \frac{F_{abs}}{d}.$$

Отсюда

$$T_e = \sqrt{2F_{abs}/d\gamma}.$$

При сильных нагревах можно пренебречь начальной комнатной температурой T_{rt} и вместо $(T_e - T_{rt})^2$ писать T_e^2 . Фиксируем энергию $F_{abs} = 59.36$ мДж/см² и возьмем $\gamma = 120$ Дж/К²/м³. Мы увеличили эффективное значение коэффициента γ по сравнению со значением, следующим из теории ферми-газа. Это необходимо, для того чтобы учесть повышение электронной теплоемкости из-за подключения электронов d -зоны золота $5d^{10}6s^1$ при значениях T_e больше 5 кК [17, 43]. Толщину слоя, принимающего радиационную энергию, нормируем как $d = d_{20} \cdot 20$ нм, где d_{20} — безразмерное отношение. Как будет видно, теплопроводность κ при высоких температурах T_e сильно подавлена. Поэтому нами выбрано значение 20 нм вместо 100 нм при слабых нагревах, см. разд. 2. Подставляя указанные значения, получаем

$$T_e = 22/\sqrt{d_{20}}, \tag{7}$$

где температура T_e дается в кельвинах. Оценка (7) согласуется с данными численного моделирования 2Т-гидрокодом. Эти данные будут приведены ниже.

Повторим оценку (4) для теплового потока, выносящего поглощенную радиационную энергию по электронной подсистеме из слоя d . Заменим в этой оценке толщину пленки d_f на толщину $20 d_{20}$ нм

и подставим вместо температуры ΔT_e температуру (7). В результате получим

$$Q_{ehc} = \kappa \sqrt{2F_{abs}/d^3\gamma} t_{cool} = 1.1 \cdot 10^{14} \kappa_{1000} t_{cool}/d_{20}^{3/2} \text{ мДж/см}^2. \quad (8)$$

Здесь t_{cool} — время охлаждения слоя d вследствие действия электронной теплопроводности, которое задается в секундах; коэффициент теплопроводности $\kappa = 1000$ записан в виде $\kappa = 1000\kappa_{1000}$ Вт/К/м. Охлаждение обусловлено передачей энергии в объем посредством теплопроводности.

Посмотрим, какое время охлаждения t_{cool}^* понадобится, чтобы вынести из слоя d всю поглощенную энергию $F_{abs} = 59.36$ мДж/см². В соответствии с этим запишем

$$Q_{ehc} = F_{abs},$$

где энергия Q_{ehc} дается выражением (8). Отсюда получаем

$$t_{cool}^* = (1/\kappa) \sqrt{F_{abs} d^3 \gamma / 2} = 0.53 d_{20}^{3/2} / \kappa_{1000} \text{ пс}. \quad (9)$$

Согласно оценке (9), требуется существенное уменьшение коэффициента теплопроводности κ , чтобы замедлить вывод энергии из поверхностного слоя до 5–7 пс. Время 5–7 пс соответствует времени спада TTR на экспериментальной зависимости на рис. 4.

4. ТЕПЛОВОЙ ПОТОК

В разд. 3 приведены оценки энергии (8), переданной в объем за счет теплопроводности. На рис. 6 показаны мгновенные расчетные профили (не оценка) потока $q(x, t = 0)$ (2), полученные интегрированием 2Т-уравнений; система уравнений выписана в работах [44, 45]. Аналогичные уравнения применяются в работе [46]. Как видим, интенсивность рпшр-импульса I_0 намного (в 26 раз) превосходит электронный тепловой поток $q(x = 20 \text{ нм}, t = 0) = 8.6 \cdot 10^9$ Вт/см², это поток в точке b на рис. 6. Максимальной интенсивности излучения $I_0 = 2.23 \cdot 10^{11}$ Вт/см² соответствует красный кружок на рис. 6. Поэтому длительность охлаждения поверхности существенно превышает длительность рпшр-импульса τ_L .

Отрезки ab и cd нанесены на рис. 6, чтобы оправдать выбор характерной толщины поверхностного слоя $d = 20$ нм, принятый при оценках в разд. 3. Можно выбрать d еще меньше, но большие толщины выбирать не целесообразно, поскольку поток в

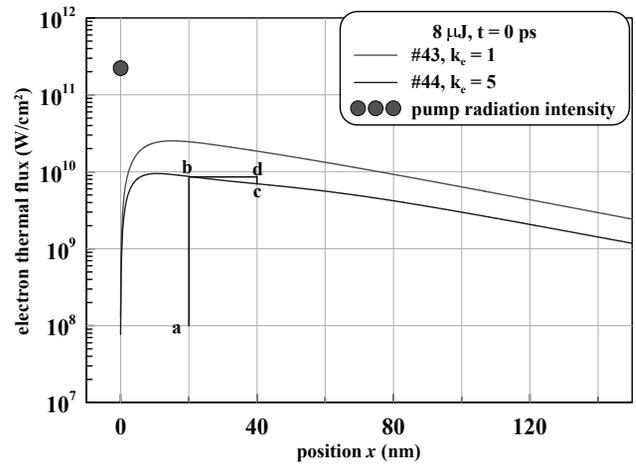


Рис. 6. (В цвете онлайн) Распределение потока (2) по пространству в момент $t = 0$, когда достигается максимум интенсивности $I_0 = \pi^{-1/2} F_{abs} / \tau_L$ поглощаемого радиационного потока $I(t)$; $\tau_L = 150$ фс. Этот максимум отмечен красным кружком сверху. Синяя кривая относится к случаю с пятикратным (коэффициент k_e) усилением вклада в тепловое сопротивление за счет электрон-электронного рассеяния, см. разд. 5

точке b равен $8.6 \cdot 10^9$ Вт/см², а изменение потока (отрезок cd) на промежутке $20 < x < 40$ нм равно $1.6 \cdot 10^9$ Вт/см², т. е. в 5 раз меньше. Максимум потока q (2) находится на глубине примерно 10 нм.

В расчетах 43 и 44, представленных на рис. 6, применялся 2Т-гидродинамический код без учета гидродинамического движения: скорость $u(x, t) \equiv 0$, см. [44, 45]. Сравнение расчетов 42 (с гидродинамикой) и 43 (неподвижная среда) показано на рис. 7–9. Отклик TTR на воздействие рпшр-импульса определяется эволюцией параметров поверхности: $T_e(t)|_{surf}$, $T_i(t)|_{surf}$ и плотности золота $\rho(t)|_{surf}$. Как видим, на временной ход температур поверхности наличие течения влияет слабо, см. рис. 7. Плотность золота на поверхности ниже на 2–3% в случае учета движения, см. рис. 8. Эти различия мало сказываются на зависимости TTR. Следовательно, при поглощенных энергиях от 60 мДж/см² и ниже при вычислении TTR можно не учитывать гидродинамику. Энергия 60 мДж/см² — это примерно четверть энергии относительно порога абляции; описание настолько высоких флюенсов требует отдельного исследования. Разумеется, возле порога абляции пренебрегать гидродинамикой нельзя.

Как было сказано выше, в нашем диапазоне энергий F_{abs} на сигнал TTR течение в мишени сказывается слабо. Однако имеется любопытная деталь. Это акустическое распространение в толщу мишени следа от кратковременного повышения электронного давления p_e на начальном отрезке 2Т-

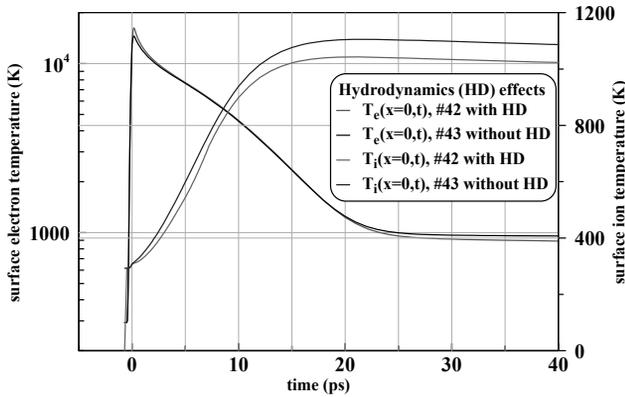


Рис. 7. (В цвете онлайн) Зависимости от времени электронной $T_e(t)|_{surf}$ и ионной $T_i(t)|_{surf}$ температур поверхности. Сравниваются результаты численного моделирования при одинаковых значениях исходных параметров. Разница в том, что в расчете 42 интегрируется полная система гидродинамических уравнений, см. [44, 45], а в расчете 43 в системе оставлены только тепловые уравнения

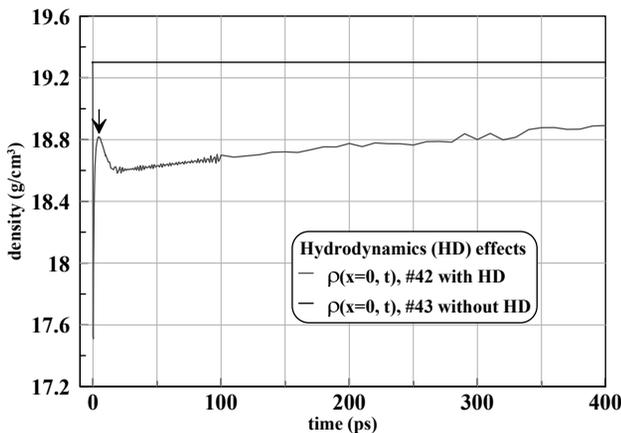


Рис. 8. (В цвете онлайн) Временная зависимость плотности золота на поверхности $\rho(t)|_{surf}$. В расчете 42 учтена гидродинамика (красная кривая). Поэтому вследствие нагрева происходит расширение (см. смещение Δ на рис. 9) и плотность уменьшается. В расчете 43 движения нет: $u \equiv 0$. Следовательно, плотность объемной мишени однородна и равна начальной плотности

стадии. Этот след в виде резкого зубца ясно виден на рис. 9. Электронное давление p_e учитывается в 2Т-уравнении состояния, которое необходимо для решения полной системы уравнений 2Т-гидродинамики [44, 45]. Уравнение состояния берется из квантовомеханических расчетов фотовозбужденного золота, см. [17].

С зубцом на рис. 9 связано резкое падение плотности на рис. 8. Координата максимума на рис. 8 равна 5.2 пс. Максимум отмечен стрелкой. Продолжительность спада плотности от момента начала действия рипр-импульса и до момента 5.2 пс обусловлено действием давления p_e . Это время корре-

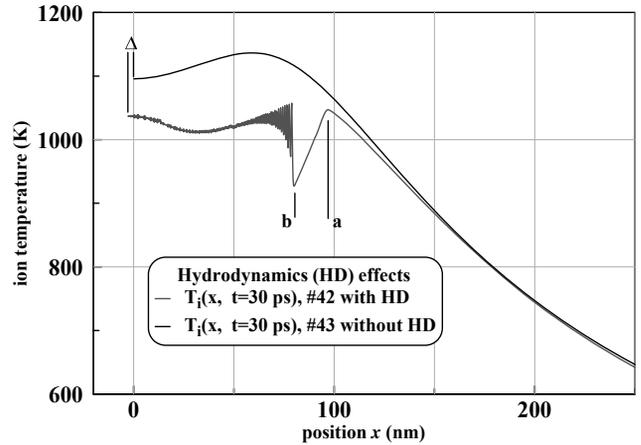


Рис. 9. (В цвете онлайн) Мгновенные пространственные профили ионной температуры на момент 30 пс. Анализируется влияние движения на профиль. Из-за движения происходит смещение границы на отрезок Δ . Яркий зубец на красной кривой обусловлен резким повышением электронного давления p_e вследствие воздействия рипр-импульса

лирует со временем спада сигнала ТТР. На рис. 4 ширина пика ТТР на его полувысоте равна 5–7 пс.

5. КОЭФФИЦИЕНТ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ

На рис. 6 показаны две мгновенные зависимости распределения электронного теплового потока $q(x, t)$ (2). Они относятся к разным зависимостям коэффициента теплопроводности $\kappa(T_e, T_i, \rho)$. Как говорилось выше, коэффициент κ вычислялся теоретически. Коэффициент κ находился сложением тепловых сопротивлений,

$$s = 1/\kappa, \quad s = k_e s_{ee} + s_{ei}.$$

Сопротивление s_{ee} вычислялось по физической модели, предложенной в работе [41] для алюминия, с модификацией этой модели на случай золота. Работа [41] основана на решении кинетического уравнения в тау-приближении. Сопротивление s_{ee} возникает из-за электрон-электронных рассеяний. Электрон-фононный вклад $\kappa_{ei} = 1/s_{ei}$ брался согласно работе [42] для золота в 2Т-состояниях.

Весовой множитель k_e нужен нам, для того чтобы согласовать расчетные и экспериментальные результаты. Теории соответствует значение $k_e = 1$. На рис. 10 представлены зависимости, относящиеся к красной и синей кривым на рис. 6. К красной кривой на рис. 6 относится верхняя группа из трех кривых на рис. 10. К синей кривой соответственно относится нижняя группа.

Нижняя группа из трех кривых на рис. 10 представляет случай с достаточно сильно подавленным

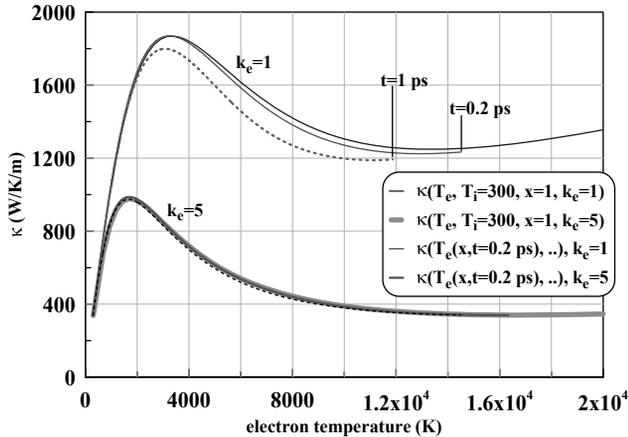


Рис. 10. (В цвете онлайн) Теоретические зависимости коэффициента теплопроводности κ от температуры T_e при фиксированной температуре $T_i = 300$ К и плотности (показаны тонкой синей и толстой зеленой кривыми). Эти кривые изображены в диапазоне температур T_e до 20 кК. Толстой и тонкой красными кривыми показаны мгновенные профили коэффициента κ на момент 0.2 пс для расчетов номер 43 и 44 соответственно. Точка окончания профиля, отмеченная вертикальным отрезком, соответствует максимуму температуры T_e на профиле на данный момент времени. С течением времени температура в максимуме снижается. Максимум достигается на границе. Моменту 0.2 пс соответствует самая высокая температура T_e поверхности. Штриховые кривые относятся к профилям на момент 1 пс

электронным вкладом в теплопроводность. Это достигается с помощью увеличения множителя k_e . Увеличение k_e приводит к усилению теплового сопротивления из-за электрон-электронного взаимодействия. При этом коэффициент теплопроводности κ уменьшается. Зависимости коэффициента κ от электронной температуры T_e представлены на рис. 10 в диапазоне температур до 20 кК. Это синяя сплошная и зеленая сплошная кривые. Зависимости от температуры T_e показаны при фиксированной ионной температуре $T_i = 300$ К и при фиксированной плотности. Плотность равна плотности золота ρ_0 при нормальных условиях. Величина $x = \rho/\rho_0$ равна плотности, нормированной на плотность ρ_0 (не следует путать обозначенное таким образом отношение плотностей с координатой). На графиках (синяя и зеленая кривые) на рис. 10 имеем $x = 1$.

При комнатных условиях теплопроводность золота равна $\kappa = 318$ Вт/К/м. Теория воспроизводит это значение. Из него начинаются синяя и зеленая зависимости на рис. 10. В 1Т-условиях величина κ слабо зависит от температуры вплоть до температуры плавления; как известно, после плавления коэффициент κ снижается в 2–3 раза. Слабая зави-

симость от температуры коэффициента κ твердого золота связана с тем, что рост частоты ν_{ei} электрон-фононных столкновений компенсируется ростом теплоемкости электронов — переносчиков тепла. При низких температурах частота электрон-фононных взаимодействий доминирует над частотой ν_{ee} электрон-электронных столкновений.

Понятно, что если зафиксировать температуру T_i и увеличивать температуру T_e , то коэффициент κ будет увеличиваться. Это связано с частичным снятием вырождения электронов и ростом теплоемкости на этой основе при фиксированной частоте электрон-фононных столкновений $\nu_{ei} \propto T_i$. Этому участку зависимости 2Т-теплопроводности $\kappa(T_e, T_i, \rho)$ соответствует рост синей и зеленых кривых на рис. 10.

При дальнейшем росте температуры T_e частота ν_{ee} становится равной частоте ν_{ei} , а затем начинает ее превышать. Для грубых оценок можно принимать, что частота ν_{ee} растет пропорционально квадрату температуры T_e . Точная зависимость отклоняется от закона $\nu_{ee} \propto T_e^2$, см. [41]. Из-за этого линейный рост коэффициента κ с ростом температуры T_e при фиксированной температуре T_i прекращается. Это прекращение роста происходит примерно при температуре $T_e \approx 3.2$ кК для синей кривой и $T_e \approx 1.8$ кК для зеленой кривой, см. рис. 10.

При численном моделировании в код закладывалась теоретическая формула для коэффициента κ . В расчете 43 (44) использовался коэффициент κ со значением $k_e = 1$ ($k_e = 5$). Результаты расчетов 43 и 44 сравниваются на рис. 6 и 10. В расчете находятся функции $T_e(x, t)$ и $T_i(x, t)$. По ним определяются остальные функции, например, тепловой поток $q(x, t)$ (2), см. рис. 6, или мощность теплопередачи \dot{E}_{ei} (3).

Возьмем из расчета мгновенный профиль коэффициента теплопроводности $\kappa(x, t = t_{fix})$ по пространственной переменной x . Возьмем из расчета также профиль электронной температуры $T_e(x, t = t_{fix})$ на тот же момент времени t_{fix} . Исключим из этой пары функций аргумент x . В результате получим зависимость $\kappa(T_e, t = t_{fix})$ на момент времени t_{fix} .

Именно такие параметрические профили на моменты времени 0.2 и 1 пс изображены на рис. 10. Одна пара профилей на моменты 0.2 и 1 пс относится к расчету 43, другая — к расчету 44. В выбранные моменты времени ионная температура не успела заметно измениться по сравнению с исходной; исходной (т. е. до облучения) была комнатная температура. Понятно поэтому, что указанные про-

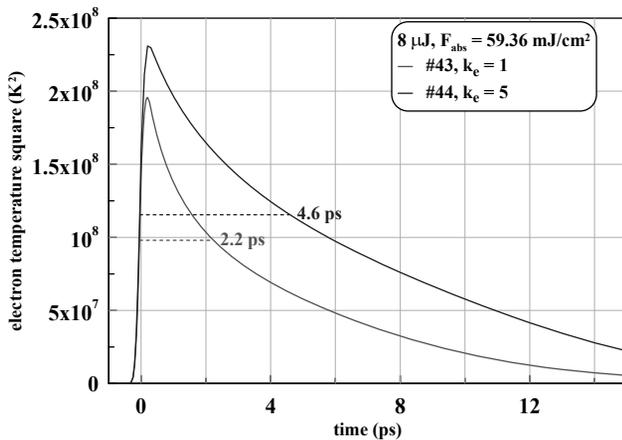


Рис. 11. (В цвете онлайн) Зависимости от времени квадрата поверхностной электронной температуры T_e . Видно, что ограничение теплового потока уширяет пик квадрата температуры примерно до соответствия экспериментальным результатам, приведенным на рис. 4. Синяя кривая относится к расчету 44 с подавленным ($k_e = 5$) коэффициентом теплопроводности κ

фили близки к температурной зависимости коэффициента теплопроводности при ионной температуре $T_i = 300$ К, принятой в расчетах 43 или 44 (выбор коэффициента k_e).

По мере роста времени t_{fix} параметрические профили на рис. 10 отходят от температурной зависимости коэффициента теплопроводности κ при ионной температуре $T_i = 300$ К. Это обусловлено ростом ионной температуры на профиле $T_i(x, t = t_{fix})$ по сравнению со значением 300 К. Сплошные параметрические кривые относятся к моменту времени 0.2 пс. Тонкая красная кривая получена из расчета 43, толстая красная кривая — из расчета 44. Кривые, показанные мелкими штрихами, представляют момент 1 пс. Малиновые штрихи — это расчет 43, а черные — расчет 44. В расчете 44 температура T_i возрастает медленнее. Поэтому разделение между параметрическим профилем, с одной стороны, и зависимостью коэффициента теплопроводности от электронной температуры, с другой стороны, происходит медленно. Если бы ионная температура на профиле оставалась равной 300 К, то разделения этих кривых не было бы.

Основные выводы данного раздела следующие.

Во-первых, электронный тепловой поток q доминирует в качестве механизма охлаждения скин-слоя при энергиях $F_{abs} \approx 60$ мДж/см². Это энергии порядка четверти от порога абляции и несколько ниже порога плавления.

Во-вторых, поток q не справляется с отводом в объем поглощаемого радиационного потока энер-

гии I , см. рис. 6. В связи с этим при указанных энергиях и длительностях импульса время остывания скин-слоя существенно превышает длительность лазерного ринг-импульса.

В-третьих, только при существенном ограничении теплового потока можно в теории добиться существенного уширения пика TTR (снижения темпа сброса энергии из скин-слоя), соответствующего эксперименту. На этом основании выбор в модели теплопроводности сделан в пользу величины множителя $k_e = 5$. Соответственно выбираем синюю кривую на рис. 6.

Чтобы обосновать третий вывод, мы приводим рис. 11. Понятно, что снижение электронного теплового потока замедлит темп спада электронной температуры на ранней стадии, когда поглощенная энергия сосредоточена почти полностью в электронной подсистеме. Как это скажется на сигнале TTR? Очевидно, пик TTR станет шире, см. рис. 4. Данные оптической модели будут приведены ниже. Здесь же ограничимся оценкой. Считаем, что форма сигнала TTR в верхней части определяется частотой электрон-электронных рассеяний ν_{ee} . Для грубой оценки можно принять, что частота $\nu_{ee} \propto T_e|_{surf}^2$. В соответствии с этим на рис. 11 приведен ход во времени квадрата температуры T_e на поверхности.

6. ЭЛЕКТРОН-ФОНОННОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ

Важную роль играет передача энергии из электронной подсистемы в ионную. Соответствующая удельная мощность дается формулой (3). Уравнение баланса энергии электронной подсистемы имеет вид [44, 45]

$$\rho_0 \frac{\partial(E_e/\rho)}{\partial t} = -\frac{\partial q}{\partial x^0} - \dot{E}_{ei} + \frac{\rho_0}{\rho} Q - p_e \frac{\partial u}{\partial x^0}. \quad (10)$$

В правой части уравнения три основных действующих члена. Это электронная теплопроводность (2), электрон-фононное тепловое взаимодействие (3) и короткодействующий ($\tau_L = 150$ фс) источник поглощаемой лазерной энергии Q . Четвертое слагаемое связано с механической работой. В рассматриваемых условиях оно мало, см. пояснения по этому поводу на рис. 7–9.

На самой начальной стадии имеет место интенсивная вспышка — член Q доминирует, см. рис. 6. Далее по времени следует стадия доминирования первого слагаемого (электронная теплопроводность, ЕНС — electron heat conduction), см. схему на рис. 5. Наконец, в конце 2Т-стадии и на всем дальнейшем

протяжении 1Т-стадии второй (2) и третий (3) члены одного порядка и дополняют друг друга в транспорте тепла в металле при относительно невысоких температурах. На этой стадии транспорт тепла осуществляют электроны, а отдача или аккумуляция энергии происходит в решеточной подсистеме, теплоемкость которой намного больше при этих температурах, чем электронная теплоемкость.

В 2Т-гидродинамическом коде используется одномерная по оси x схема разбиения на лагранжевы узлы, см. [44, 45]. Разумеется, одномерный подход оправдан, поскольку размер пятна освещения на поверхности (от единиц до тысяч микрометров) оптическим лазером больше глубины прогрева фс-импульсом (доли микрометра, см. рис. 6, 9). В выражении (10) переменная x^0 — лагранжева координата, ρ_0 — плотность золота при нормальных условиях. До воздействия ршпр-импульса мишень однородна и ее плотность равна ρ_0 .

В численных расчетах применялась аппроксимация коэффициента α вида

$$\alpha(T_e, \rho) = 0.2 \frac{1 + (T_e/5060)^2}{1 + (T_e/7050)^5} \left(\frac{\rho}{\rho_0}\right)^{5/3}. \quad (11)$$

В формуле (11) величина α приведена в единицах 10^{17} Вт/К/м³. Эта аппроксимация учитывает данные работы [27] по определению зависимости коэффициента обмена α (3), (11) от электронной температуры.

Сравнение потерь энергий в скин-слое за счет теплопроводности (2) и за счет нагрева решетки (3) приведено на рис. 12 и 13. Тепловой поток q (2) и удельная (на единицу объема) мощность обмена теплом между подсистемами (3) — разные по физическому смыслу и размерности величины. Нас интересует охлаждение поверхностного слоя с толщиной порядка толщины скин-слоя. За толщину этого поверхностного слоя взята величина $d = 20$ нм, см. разд. 3 и формулу (7). На рис. 12 и 13 сравниваются тепловой поток $q(x = 20 \text{ нм}, t)$ и величина E_{20} (12).

На рис. 12 и 13 показан тепловой поток $q(x = 20 \text{ нм}, t)$, который выводит электронную энергию из слоя d через правую границу данного слоя. Это так, поскольку граница с вакуумом (левая граница слоя d) является теплоизолированной: на ней указанный поток равен нулю, см. рис. 6. Таким образом поток q охлаждает слой d . Другой важный источник изменения внутренней энергии электронной подсистемы, сосредоточенной в слое d , это обмен энергиями между подсистемами, E_{20} . Эта величина определена как интеграл от стока (или притока) энергии в электронную подсистему

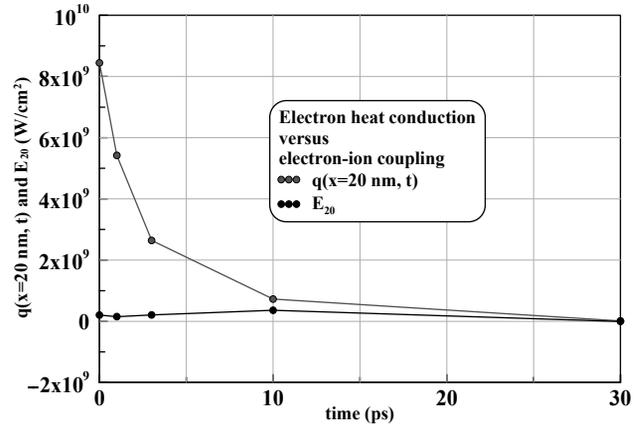


Рис. 12. (В цвете онлайн) Сравнение потоков энергии. Поток $q(x = 20 \text{ нм}, t)$ выносит энергию электронной подсистемы из поверхностного слоя толщиной d . Поток E_{20} (12) убавляет (или добавляет) энергию в электронную подсистему, принадлежащую слою d . Сведения, следующие из показанного здесь численного расчета, иллюстрируют участки 2, 3 и 4 на схеме на рис. 5. На участке 2 (выраженная 2Т-стадия) доминирует поток q . Затем на последующем участке 3 потоки q и E_{20} сближаются. На участке 4 эти потоки примерно равны по абсолютной величине

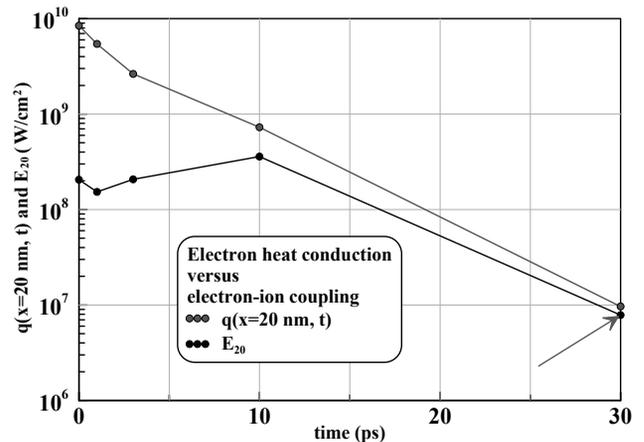


Рис. 13. (В цвете онлайн) Данный рисунок повторяет предыдущий, но с логарифмической вертикальной осью. Видим, что на 2Т-стадии поток q более, чем на порядок превосходит поток E_{20} , связанный с обменом между электронной и фононной подсистемами. На 1Т-стадии эти потоки примерно одинаковы. Зеленая стрелка справа указывает на значение потока E_{20} в момент 30 пс. В этот момент поток E_{20} имеет отрицательный знак. На данном рисунке мы заменили этот знак на положительный, чтобы можно было пользоваться осью логарифмов. Итак, после перехода от $T_{e|surf} > T_{i|surf}$ к $T_{e|surf} < T_{i|surf}$ потоки q и E_{20} имеют разные знаки. При этом по абсолютной величине они примерно равны и т. о. компенсируют друг друга

$$E_{20}(t) = \int_0^d \dot{E}_{ei}(x, t) dx. \quad (12)$$

Здесь подынтегральная величина дается формулой (3). Знак E_{20} зависит от знака разницы температур в формуле (3).

На участке 1 на схеме на рис. 5 в электронную подсистему слоя d за время $\tau_L = 150$ фс закачивается поглощенная энергия. В рассматриваемом здесь варианте эксперимента эта энергия равна 59.36 мДж/см². На участке поглощения 1 радиационный поток (интенсивность I) намного превышает охлаждающий электронный тепловой поток q , см. рис. 6. Поэтому электронная температура поверхности резко возрастает. На участке 2 снижение электронной температуры в основном обусловлено действием потока q , см. рис. 12 и 13. Причем из рис. 11 следует, что при описании коэффициента теплопроводности при температурах $T_e = 10\text{--}18$ К следует пользоваться не нашей теоретической кривой с $k_e = 1$, см. рис. 10 и 11, а зависимостью с сильно подавленным коэффициентом κ (параметр $k_e = 5$), см. обсуждение в разд. 5 и рис. 11.

Участок 3 на схеме на рис. 5 является переходным между 2Т-и 1Т-стадиями. На 1Т-стадии температуры $T_e(x, t)$ и $T_i(x, t)$ локально примерно одинаковы. Аналог рис. 7 для расчета 44 дает для времени окончания перехода (т. е. окончания участка 3) значение 31 пс. Примерно в этот момент времени резкое уменьшение электронной температуры $T_e|_{surf}(t)$ на поверхности сменяется на медленное уменьшение температуры $T_e|_{surf}(t)$. Расчету 43 на рис. 7 этому моменту соответствует значение 22 пс. Момент окончания переходного участка 3 показан отрезком 3–4 на рис. 5. Началом участка 3 на рис. 5 естественно положить время примерно 10 пс, когда происходит сближение потоков $q(x = 20 \text{ нм}, t)$ и $E_{20}(t)$ (12), см. рис. 12 и 13.

В конце участка 3 электронная температура поверхности становится меньше, чем ионная температура поверхности. Это знаменательный момент. Для расчетов 43 и 44 это происходит в моменты времени 21 и 26 пс соответственно. Далее из поверхностного слоя d потоком q выводится в объем энергия, накопленная именно в ионной подсистеме.

До этого знаменательного момента поток q выводил энергию E_e электронной подсистемы. Энергия E_e была мала и все-таки убывала за счет потока q (и за счет потока E_{20} тоже, разумеется). При этом энергия ионной подсистемы E_i увеличивалась за счет притока (12) — поток E_{20} имел знак плюс. После смены знака разницы поверхностных температур начинается убывание накопленной энергии E_i . В конце участка 3 энергия E_e пренебрежимо мала по сравнению с энергией E_i . Это обусловлено

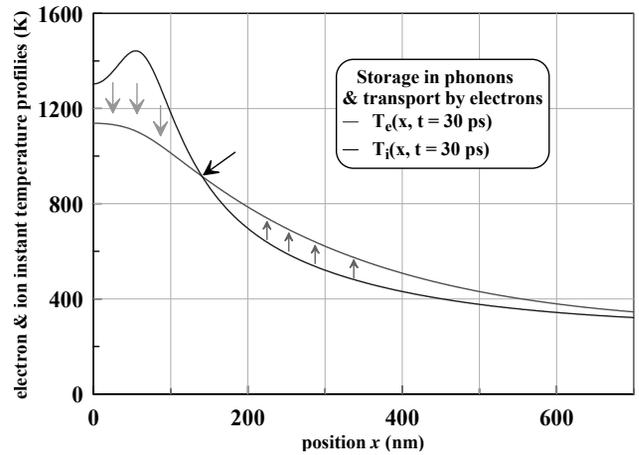


Рис. 14. (В цвете онлайн) Иллюстрация совместной работы фоновой и электронной подсистем в деле передачи тепла из горячей области в холодную. Фононы с большой теплоемкостью играют роль хранителей тепла, а легкие, быстрые электроны осуществляют передачу тепла, см. текст. Длина расчетного участка постепенно увеличивается. Это необходимо, чтобы исключить влияние правой границы, находящейся далеко в толще мишени. В момент 30 пс правая граница находится на расстоянии 2 мкм

громоздкой разностью теплоемкостей подсистем при низких температурах.

На участке 4 происходит снижение энергии E_i поверхностного слоя d . За промежуток времени dt малая порция dE_i энергии E_i передается в электронную подсистему, поскольку $T_e < T_i$, см. (3). Затем эта порция за указанный промежуток времени выводится из слоя d электронным потоком q . Отметим, что разница поверхностных температур $T_i - T_e$ значительна по величине. При $t = 50$ пс эта разница составляет 200 К (примерно 20% от температуры T_e). Постепенно разность температур $T_i - T_e$ уменьшается — при $t = 400$ пс она равна 80 К (10% от температуры T_e). Условие $T_i > T_e$ на температуре поверхности обеспечивает продолжение охлаждения поверхности на 1Т-стадии. Естественно назвать данное явление скрытым присутствием 2Т-эффектов на номинально 1Т-стадии.

В момент времени 30 пс смена знака разности $T_i - T_e$ как функции координаты x происходит в точке $x = 142$ нм. Эта точка отмечена кривой стрелкой на рис. 14. Таким образом, при $x < 142$ нм энергия dE_i изымается из более горячей ионной подсистемы и при $x > 142$ нм, наоборот, передается в более холодную ионную подсистему, см. рис. 14. На рис. 14 голубые стрелки вниз на участке $x < 142$ нм иллюстрируют передачу энергии от фононов (они горячее) в электроны — охлаждение фононов. Наоборот розовые стрелки вверх на по-

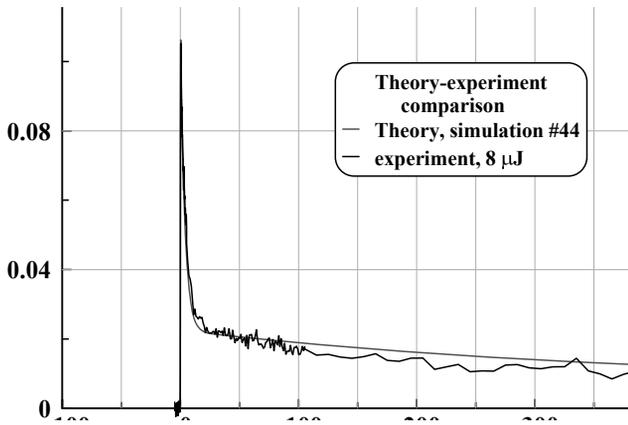


Рис. 15. (В цвете онлайн) Сравнение расчета 44 с экспериментом. Поглощенная энергия F_{abs} берется такой, как в данном опыте с энергией лазерного рипр-импульса 8 мкДж и энергией $F_{abs} = 59.36 \text{ мДж/см}^2$. Красная кривая — расчет, черная — опыт в технике lock-in. Оптическая модель, по которой выполнен пересчет временных зависимостей T_e, T_i, ρ на поверхности в TTR, описана ниже в разд. 11

луоси $142 \text{ нм} < x < \infty$ указывают на нагрев фононов на этой полуоси. Аналогичный эффект при боковом температурно-диффузионном расширении пятна нагрева подмечен недавно в работе [47]. Там он назван отрицательной теплопроводностью. На самом деле это обычный механизм теплопроводности, работающий в 1Т-условиях. В точке $x = 142 \text{ нм}$ располагается перегиб мгновенного профиля электронной температуры. С течением времени точка смены знака разности $T_i - T_e$ перемещается глубже и глубже в толщу мишени. При этом локальная разность температур, отнесенная к локальной температуре, становится все меньше и меньше.

В заключение данного раздела скажем, что анализ потоков q и E_{20} , показанных на рис. 12 и 13, позволил нам глубже понять физический смысл участков 2, 3 и 4 на рис. 5.

7. СРАВНЕНИЕ ТЕОРИИ И ОПЫТОВ

На рис. 15 и 16 сравниваются теоретическое и экспериментальное TTR, т. е. функции от времени $\Delta R(t)/R_0$, где $\Delta R = R(t) - R_0$, R_0 — коэффициент отражения мишени из золота при нормальном падении электромагнитной волны (probe) с длиной волны 800 нм при нормальных условиях: температура 293 К , давление равно 1 атм . Отметим, что в технике lock-in определяется изменение коэффициента отражения ΔR , а не сам коэффициент отражения R . На рис. 15 и 16 время отсчитывается от максимума импульса накачки (pump).

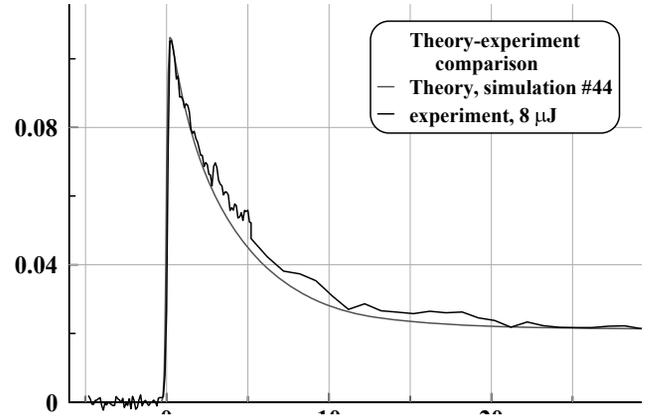


Рис. 16. (В цвете онлайн) Подробно показан 2Т-участок и область перехода в 1Т-стадию. Цвета, как на рис. 15

Зависимости на рис. 15 и 16 ясно делятся на стадии быстрого и медленного спада сигнала TTR. Первая стадия состоит из участков 1, 2 и 3 — резкое нарастание и быстрый спад амплитуды TTR, см. определения участков на рис. 5. Вторая стадия — это участок 4. Разделение стадий имеет место в точке 3–4 на рис. 5. На участке 4 продолжается спад амплитуды TTR, но в гораздо более медленном темпе. Обсуждению физических механизмов нагрева и охлаждения был посвящен разд. 6.

Важно отметить, что с помощью разработанной модели (описание параметров κ и α) удалось описать участок 4 с медленным затуханием амплитуды TTR. В предыдущей нашей статье по этой теме [27] медленное затухание отсутствовало — амплитуда TTR выходила на постоянное значение на участке 4, тогда как опыт указывал на снижение TTR, см. рис. 5 в статье [27].

В настоящей работе найдено, что отсутствие затухания в работе [27] было связано с выбором аппроксимации для параметра α . В статье [27] в качестве зависимости $\alpha(T_e)$ для золота была выбрана зависимость из статей [48, 49]. Аппроксимация этой зависимости имеет вид [49]

$$\alpha = \left(0.2 + \frac{(T_e|_{eV})^{3.6}}{1 + (T_e|_{eV})^{3.5} + 0.9(T_e|_{eV})^{4.1}} \right) \times \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^{5/3}. \quad (13)$$

Значения $\alpha(T_e, \rho)$ в формуле (13) даются в единицах 10^{17} Вт/К/м^3 . Электронная температура $T_e|_{eV}$ берется в эВ.

Зависимости $\alpha(T_e, \rho = \rho_0)$ представлены на рис. 17. В настоящей работе при численном моделировании применяется зависимость (11). В работе [27] использовалась формула (13). Для того чтобы при

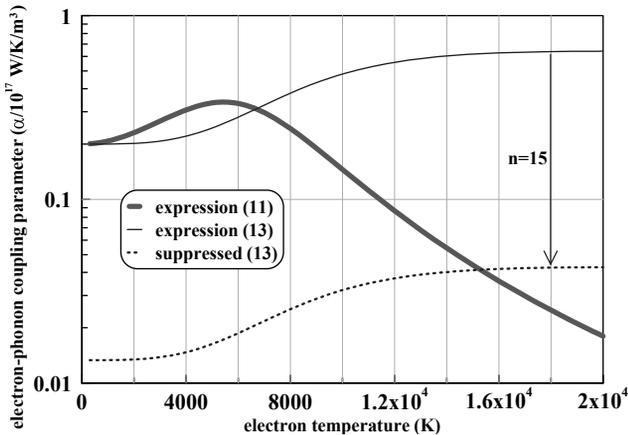


Рис. 17. (В цвете онлайн) Зависимость параметра электрон-фононного взаимодействия α от электронной температуры при нормальной плотности $\rho = \rho_0$

энергиях $F_{abs} > 30$ мДж/см² соответствовать эксперименту по темпу спада TTR на 2Т-стадии, необходимо было уменьшать коэффициент теплопроводности κ при высоких температурах T_e с помощью фактора k_e . Если при этом оставлять значения α на относительно высоком уровне, задаваемом формулой (13), то ионная температура при переходе к 1Т-стадии получалась слишком высокой и не соответствовала опыту. Поэтому необходимо было снижать значения α , чтобы дать возможность слабой теплопроводности κ прогреть слой достаточной толщины и таким образом снизить поверхностную температуру T_i .

Для снижения значения α функция (13) в работе [27] делилась на фактор подавления $n > 1$. Пример слабого электрон-фононного взаимодействия показан на рис. 17 синей пунктирной кривой. Эта кривая получается при делении функции (13) на фактор подавления $n = 15$. Для того чтобы замедлить темп снижения TTR и понизить температуру T_i на переходе от 2Т-стадии к 1Т-стадии, в работе [27] факторы k_e и n выбирались достаточно большими: k_e до 7.5, n до 30.

Таким образом удавалось и темп снижения TTR на 2Т-стадии привести в согласие с опытом, и температуру T_i в конце 2Т-стадии понизить до соответствия экспериментальным измерениям. Единственной проблемой оставалось слишком медленное убывание расчетной температуры $T_i(t)|_{surf}$ на 1Т-стадии.

В настоящей работе указанная трудность преодолена. Дело в том, что фактор подавления действовал на коэффициент α однородно — во всем диапазоне температур T_e . В том числе значения α оказывались ниже экспериментально определенных

значений (6) при относительно низких температурах $T_e < 4-5$ кК. Казалось бы, в 1Т-состояниях параметр α становится несуществен — теплопередача определяется коэффициентом κ . Причем коэффициент κ в нашей модели теплопроводности при стремлении к 1Т-состоянию в твердой фазе стремится к справочным значениям $\kappa \approx 300$ Вт/К/м, см. разд. 10. Получается, что оба коэффициента существенны для передачи тепла в 1Т-состояниях.

Наши расчеты в данной работе показали, что значения α при относительно низких температурах на 1Т-стадии определяют разность температур T_e и T_i , см. разд. 6, где написано про участки 3 и 4. Таким образом значения α влияют на теплопередачу с поверхности в объем на 1Т-участке 4. От данной теплопередачи зависит темп снижения температуры $T_i(t)|_{surf}$ на поверхности.

В свою очередь, от температуры $T_i(t)|_{surf}$ зависит амплитуда TTR, особенно на 3-м и 4-м участках на рис. 5; см. разд. 11, посвященный оптической модели. В принятом здесь подходе значения α даются формулой (11). Соответствующая зависимость показана на рис. 17 зеленой кривой. Как видим, данная кривая, во-первых, имеет низкие значения α при высоких температурах T_e и, во-вторых, выходит на экспериментальные значения α (6) при низких температурах T_e . Значения α (6) были получены в теперь уже старых работах [11–14], когда нагреты в технике lock-in были слабыми.

Сделаем небольшое отступление, связанное с современным развитием упомянутых работ.

(а) В работах [11–14], во-первых, подтверждено значение α (6), а во-вторых, показано, что при низких температурах T_e коэффициент κ в 2Т-состояниях высокий — температуропроводность χ на два порядка выше табличных значений в нормальных условиях. Работы [12–14] характеризовались первыми применениями техники lock-in на ультратонких пленках золота и слабыми нагревами электронной подсистемы — температуры T_e не более чем порядка 1 кК, флюенсы $F_{abs} \sim 1$ мДж/см² и меньше. Отметим недавние работы [50–52] с теми же параметрами очень слабого рингр-воздействия на ультратонкие пленки. В них рассматривается боковое распространение (пространственное уширение на поверхности) профиля электронной температуры поверхности $T_e|_{surf}(y, z, t)$ с течением времени. Здесь y, z — координаты на облучаемой поверхности пленки. Индекс « $|_{surf}$ » означает, что рассматривается температура поверхности. Поверхность — это плоскость $x = 0$. Положительные значения координаты x относятся к золоту, см. рис. 6, 9. Оптический

рпобе-импульс не может заглянуть в толщу золота глубже скин-слоя. Выход заключается в том, чтобы изучать эволюцию профиля $T_e|_{surf}(r, t)$ на поверхности; считаем пятно рпшр-импульса на поверхности кругом, тогда радиус r отсчитывается от центра круга. Так и делается в работах [50–52]. Оказывается эволюция диффузии электронной тепловой энергии вбок (вдоль поверхности ультратонкой пленки) аналогична диффузии вглубь.

(b) Результаты недавних работ [50–52], по существу, повторяют вывод, сделанный ранее в работах [12–14] и [53]. Вывод этот следующий. На 2Т-стадии температуропроводность $\chi = \kappa/c$ золота намного выше ($\chi \sim 100 \text{ см}^2/\text{с}$), чем на 1Т-стадии ($\chi \approx 1 \text{ см}^2/\text{с}$). В работе 2011 года [53] дано простое пояснение. Показано, что это связано со слабой связью электронной подсистемы (у нее малая теплоемкость c) с ионной подсистемой (большая теплоемкость $3k_B$). Слабое взаимодействие подсистем имеет место на 2Т-стадии. Здесь говорится о слабости теплового взаимодействия между подсистемами по сравнению с электронным транспортом тепла (см. рис. 12 по этому поводу). Другой вывод статей [50–52] касается определения коэффициента α . Как в старых, так и в новых работах приходят к выводу, что этот коэффициент равен значению (6). Подчеркнем, что это значение относится именно к слабым нагревам, см. рис. 17.

(c) Поворот электронного теплового потока в пленках с направления по нормали к пленке на направление вдоль пленки рассматривался ранее в статьях [54] (разд. 3.2 об остывании), [55] (разд. 2) и [56]. Было показано, что тепловое уширение Δr_T на 2Т-стадии вдоль поверхности пленки примерно равно толщине слоя прогрева $d_T \approx 2\sqrt{\chi t_{2T}}$ мишени в глубину на 2Т-стадии. Подставляя в оценку d_T увеличенную на 2Т-стадии температуропроводность $\chi = 100 \text{ см}^2/\text{с}$ и беря продолжительность 2Т-стадии t_{2T} в пикосекундах, получаем $d_T \approx 200\sqrt{t_{2T}}$ нм. Уширение Δr_T — это увеличение радиуса пятна облучения R_L рпшр-импульсом на поверхности мишени. Понятно, что для успеха измерений уширения Δr_T как функции времени, во-первых, пятно R_L должно быть мало (меньше микрометра), чтобы масштабы R_L и Δr_T были сопоставимы. Во-вторых, пятно должно иметь резкий край, на котором распределение интенсивности по радиусу резко уменьшается.

(d) В эксперименте часто применяют формулу Лиу [57], чтобы, во-первых, определить порог и, во-вторых, по наклону зависимости r^2 от логарифма энергии лазерного импульса $\ln E_L$ определить ради-

ус лазерного пучка R_L на облучаемой поверхности. Здесь r — это радиус пятна повреждения. Разумеется, для того чтобы работал метод работы [57], радиальное распределение интенсивности по поверхности должно быть функцией Гаусса. Понятно, что быстрое тепловое уширение пятна нагрева нарушит зависимость, взятую из работы [57], см. [58].

В заключение данного раздела можно сказать, что разработанный нами подход позволяет удовлетворительно описать эксперимент, см. рис. 15 и 16.

8. ЭКСПЕРИМЕНТ

В работе использована экспериментальная схема (рис. 18) «накачка–зондирование» (pump–probe) с использованием усиленных регенеративным усилителем импульсов с частотой следования до 1 кГц и методики фазочувствительного детектирования с помощью синхронного усилителя (СУ) и оптического модулятора (чоппера) [59].

В качестве экспериментального образца 11 использовались поликристаллический массивный образец золота. В другой серии опытов применялась поликристаллическая пленка золота толщиной 100 нм на стеклянной подложке. Толщина пленки измерялась с помощью атомно-силового микроскопа (Veeco, Multimode 5).

Источником излучения 1 служила фемтосекундная титан-сапфировая лазерная система (Legend, Coherent, США) с параметрами импульсов: длина волны $\lambda_1 = 800 \text{ нм}$, длительность $\tau_L = 60 \text{ фс}$, энергия E до 1.1 мДж. На выходе регенеративного уси-

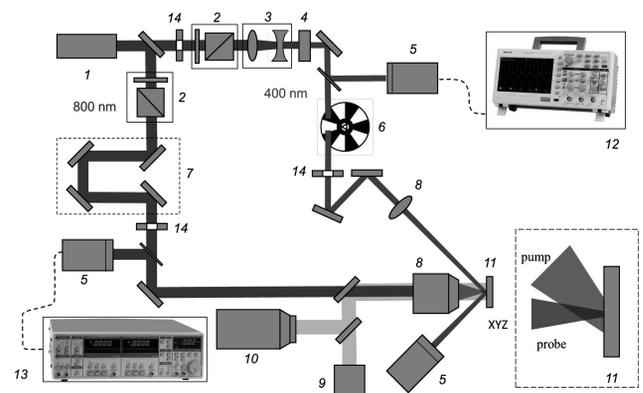


Рис. 18. Экспериментальная схема: 1 — лазер; 2 — аттенюатор; 3 — телескоп; 4 — кристалл второй гармоники ВВО; 5 — фотодиод; 6 — механический прерыватель (чоппер); 7 — оптическая линия задержки; 8 — фокусирующий объектив; 9 — лампа подсветки; 10 — ПЗС-камера; 11 — экспериментальный образец; 12 — осциллограф; 13 — синхронный усилитель; 14 — диафрагмы

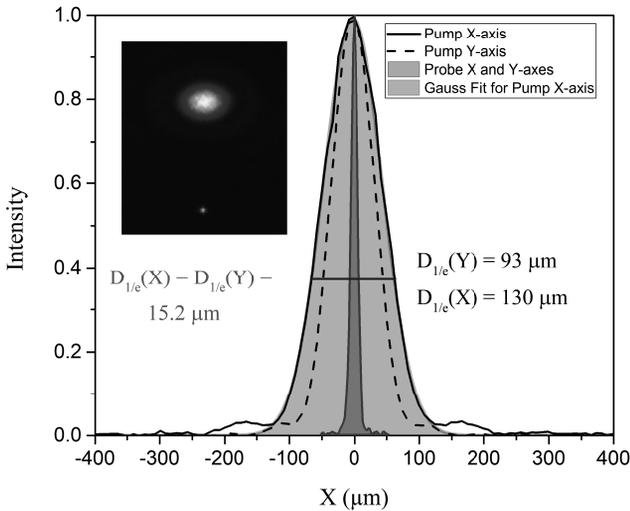


Рис. 19. (В цвете онлайн) Пространственное распределение нагревающего и зондирующего излучения: для нагревающего импульса показано распределение по осям X и Y ; для зондирующего распределение одинаковое по осям X и Y ; аппроксимация функцией Гаусса приведена для нагревающего импульса по оси X ; на вставке — распределение нагревающего (большое пятно вверху) и зондирующего (маленькое пятно внизу) излучения в фокусе на мишени, измеренное с помощью ПЗС-камеры. Синяя горизонтальная линия указывает уровень $1/e$ по отношению к максимуму

лителя была установлена ячейка Поккельса, улучшающая контраст лазерного импульса.

Частота следования зондирующих импульсов варьировалась от 63 Гц до 1 кГц. Опорная частота для СУ задавалась механическим прерывателем Thorlabs MC2000B с диском MC1F60 6, который прореживал нагревающее излучение до частоты следования рашп-импульсов 31.5–500 Гц. Синхронное детектирование осуществлялось при наклоне фильтра 24 дБ/октава и временной константе 100 мс. Эквивалентная ширина шумовой полосы частот при этом составляла 0.78 Гц, а время ожидания 1000 мс. Регистрация синфазной компоненты X на выходе СУ осуществлялась осциллографом Tektronix TDS 3054C 12 и программным обеспечением, управляющим положением моторизованной оптической линии задержки.

Нагревающий импульс лазерного излучения преобразовывался в кристалле β -бората бария (ВВО) 4 во вторую гармонику с длиной волны 400 нм и энергией до 25 мкДж. Для варьирования энергии нагревающего и зондирующего импульсов использовались аттенюаторы 2, состоящие из полуволновой пластины и поляризатора (призма Глана). Энергия зондирующего излучения контролировалась фотодиодом 5 Thorlabs DET100 А/М. Энергия нагрева-

ющего (рашп) импульса измерялась с помощью калиброванного фотодиода 5 и в эксперименте варьировалась от 0.4 до 8 мкДж.

Излучение нагревающего импульса p -поляризации на длине волны 400 нм падало на образец под углом 45° , а излучение зондирующего импульса на длине волны 800 нм — по нормали к поверхности образца.

На рис. 19 показан профиль распределения интенсивности нагревающего и зондирующего импульсов на мишени, регистрируемые ПЗС-камерой PCO Sencam QE 10.

Пространственное распределение нагревающего излучения соответствовало распределению Гаусса с радиусами $r_{0x} = 65$ мкм и $r_{0y} = 46.5$ мкм по уровню $1/e$. Величина падающей на мишень плотности энергии нагревающего импульса рассчитывалась по формуле

$$F_0 = \frac{E}{\pi r_{0x} r_{0y}}$$

Здесь F_0 — плотность энергии в центре фокального пятна, E — измеряемая фотодиодом энергия импульса. Величина падающей плотности энергии на мишени варьировалась в диапазоне от 5.3 до 84.8 мДж/см². Погрешность измерения плотности энергии не превышала $\pm 3\%$. Величина экспериментально измеренного коэффициента отражения нагревающего излучения составила 0.3 для массивного образца и 0.2 для пленки золота.

Радиус пятна зондирующего излучения (7.6 мкм по уровню $1/e$) был существенно меньше нагревающего (см. рис. 19), а плотность энергии не превышала 0.08 мДж/см².

Для изменения временной задержки между нагревающим и зондирующим импульсами использовалась оптическая линия задержки 7, состоящая из двух зеркал и моторизованного транслятора Thorlabs LTS300/М, позволяющего перемещать отражатель с точностью до 1 мкм, см. рис. 18. Указанная точность соответствует шагу задержки по времени 6.6 фс. Предельное временное разрешение в данном случае определяется длительностью пробе-импульса и составляет около 60 фс. Исследуемый образец располагался на моторизованном трехкоординатном мишенном узле. В качестве такого узла использовался моторизованный столик фирмы Standa с длиной хода 10 мм.

Отраженный от мишени зондирующий сигнал регистрировался фотодиодом 5 и подавался на вход СУ Stanford research systems SR830 13, имеющий динамический диапазон 100 дБ. Для визуализации поверхности мишени и пространственного совмещения

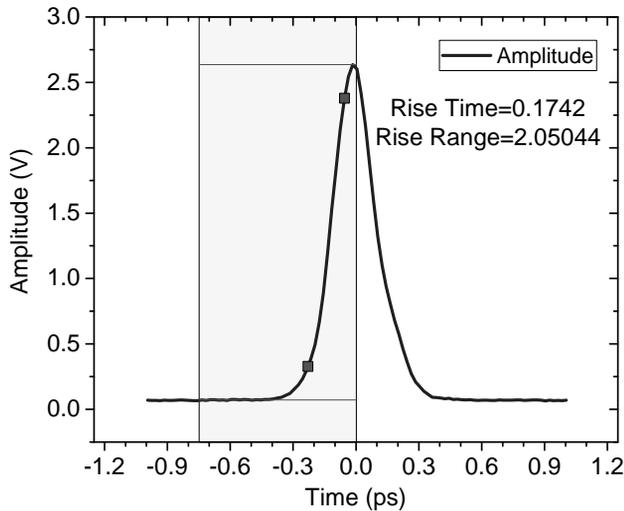


Рис. 20. Кросс-корреляционная функция нагревающего и зондирующего импульсов в плоскости мишени

нагревающего и зондирующего излучения использовалась подсветка 9 и ПЗС-камера 10.

Чтобы совместить по времени нагревающий и зондирующий пучки, в плоскость мишени помещался кристалл генерации третьей гармоники ВВО, а после него располагалась голографическая дифракционная решетка 300 штрих/мм для спектральной селекции излучения на длине волны 266 нм. Излучение третьей гармоники регистрировалось фотодиодом. Перемещая транслятор линии задержки, прописывалась кросс-корреляционная функция (рис. 20) нагревающего и зондирующего импульсов. Положение линии задержки, соответствующее максимуму сигнала третьей гармоники, принимался за «нулевую» задержку. В этом случае максимум нагревающего импульса совпадает во времени с максимумом зондирующего. После определения «нулевой» задержки исследуемый образец устанавливался на мишенный узел и проводились измерения временной динамики коэффициента отражения.

Длительность зондирующего импульса, измеряемая автокоррелятором, составляла 60 фс. Длительность свертки нагревающего и зондирующего импульсов по уровню полной ширины на половине высоты (FWHM) составляла 244 фс.

Для определения величины R_0 записывался сигнал зондирующего излучения на частоте 1 кГц в отсутствие нагрева и модуляции нагревающего излучения. После этого определялась величина $\Delta R/R_0$. Погрешность измерения амплитуды определялась как величина среднеквадратичного отклонения при усреднении по нескольким измерениям. Эта погрешность превышала величину приборной погрешности и составляла не более $2 \cdot 10^{-4}$.

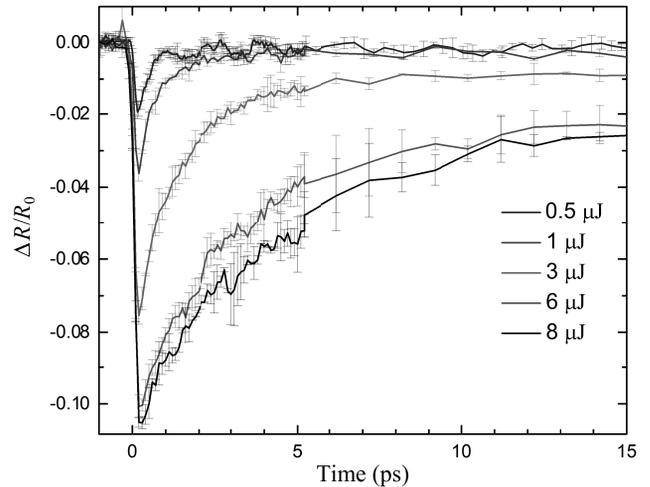


Рис. 21. (В цвете онлайн) Зависимости сигнала ТТР объемной золотой мишени от времени при различных энергиях лазерных импульсов во временном интервале 0–15 пс

9. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

В эксперименте проводились измерения относительного изменения коэффициента отражения мишени, $\Delta R/R_0$, в зависимости от времени с субпикосекундным разрешением при различной плотности энергии нагревающих импульсов. Используемая линия задержки позволяла регистрировать временные зависимости сигнала ТТР с шагом 6 фс. Шаг изменения задержки при сканировании изменялся в зависимости от скорости изменения сигнала ТТР и варьировался от 30 фс на малых временах (0–10 пс) до 10 пс на больших временах (100–350 пс). Зондирующее излучение фокусировалось в центр области нагрева. Экспериментальные зависимости были получены вплоть до максимально возможной плотности энергии нагревающих импульсов, не приводящей к необратимым изменениям, связанным с деградацией поверхности мишени. Для этого измерения проводились на минимальной частоте повторения нагревающих импульсов 31.5 Гц.

На рис. 21 приведены зависимости сигнала ТТР объемной золотой мишени при различной энергии фс-импульса.

Для каждого значения энергии лазерных импульсов проводились три серии сканирования с последующим усреднением полученных временных зависимостей. Погрешность определялась среднеквадратичным отклонением по этим измерениям.

В таблице приведено соотношение энергии лазерного импульса с падающей и поглощенной плотностями энергии для измеренного коэффициента отражения нагревающего излучения от объемной золотой мишени, равного 0.3.

Таблица. Параметры нагревающих импульсов на мишени

№	E , мкДж	F , мДж/см ²	F_{abs} , мДж/см ²
1	0.5	5.3	3.7
2	1	10.6	7.42
3	3	31.8	22.26
4	6	63.6	44.52
5	8	84.8	59.36

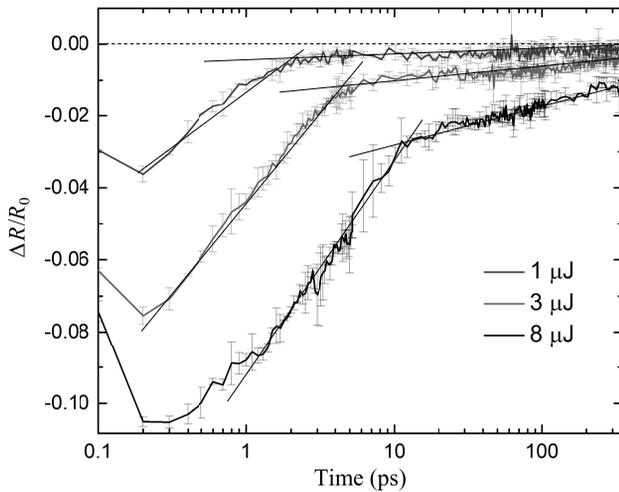


Рис. 22. (В цвете онлайн) Зависимости сигнала TTR объемной мишени от времени при различных энергиях фс-импульсов во временном интервале 0–300 пс. Шкала времени дана в логарифмическом масштабе

Из приведенных зависимостей следует, что с ростом энергии фс-импульса время спада сигнала TTR увеличивается и составляет по уровню $1/e$ от 0.5 пс для 0.5 мкДж до 7 пс для 8 мкДж.

На рис. 22 приведены зависимости сигнала TTR для трех значений энергии лазерных фс-импульсов в широком временном интервале.

На каждом из графиков выделяются два характерных временных интервала с различной скоростью убывания величины $\Delta R/R_0$, которые, очевидно, характеризуют динамику остывания электронной подсистемы золота на 2Т- и 1Т-стадиях. На рис. 22 эти участки аппроксимированы прямыми линиями. Как следует из рис. 22, длительность 2Т-стадии увеличивается с ростом энергии импульса. Кроме того, с ростом энергии на 1Т-стадии увеличивается наклон зависимостей.

10. ТЕОРИЯ ДВУХТЕМПЕРАТУРНОЙ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ

Теоретическая зависимость коэффициента теплопроводности κ находится сложением электрон-электронного и электрон-фононного тепловых сопротивлений $1/\kappa$. Теория электрон-электронного рассеяния описана в статье [41]. Здесь эта теория модифицирована на случай золота. Коэффициент теплопроводности в случае только электрон-фононного взаимодействия, κ_{ei} , вычисляем в соответствии с недавней работой [42]. Отметим, что в работе [42] электрон-электронное рассеяние не учитывается. Наш подход пригоден как в 2Т-, так и в 1Т-состояниях. В твердой фазе в 1Т-состоянии при температурах выше температуры Дебая значения нашего коэффициента κ выходят на известные табличные значения.

В 2Т-состоянии, $T_e \gg T_i$, основной вклад в электронную теплопроводность вносит теплопроводность за счет электрон-электронных столкновений. Коэффициент теплопроводности κ_{ee} за счет электрон-электронных столкновений вычислен нами, как это сделано в работе [41], с использованием кинетического уравнения для электронов. В случае золота коэффициент κ_{ee} состоит из суммы двух слагаемых: κ_{ss} и κ_{sd} . Они соответствуют вкладу $s-s$ - и $s-d$ -рассеяния электронов в коэффициент теплопроводности. Величины κ_{ss} и κ_{sd} в соответствии с формулой Друде определяют соответствующие средние частоты ν_{ss} , ν_{sd} $s-s$ - и $s-d$ -рассеяния.

Решение кинетического уравнения найдено в приближении времени релаксации. Аппроксимация этого решения как суммы отдельно вычисляемых κ_{ss} и κ_{sd} в случае золота [48] имеет вид

$$\kappa_{ee}^{-1}(T_e, x) = \frac{9.294 \cdot 10^{-4} (t/x)}{1 + 0.03\sqrt{t} - 0.2688t + 0.9722t^2}. \quad (14)$$

Формула (14) дает значения коэффициента κ_{ee} в единицах системы СИ: Вт/К/м. Здесь мы ввели приведенную плотность

$$x = \rho/\rho_0 \quad (15)$$

с $\rho_0 = 19.5 \text{ г/см}^3$ и безразмерную электронную температуру

$$t = 0.0000561977 T_e/x. \quad (16)$$

Как сказано, в нашем подходе коэффициент теплопроводности κ_{ei} для электрон-фононного рассеяния при нормальной плотности взят в соответствии с работой [42]. С учетом зависимости от плотности коэффициент κ_{ei} может быть аппроксимирован выражением

$$\kappa_{ei}(T_e, T_i, x) = 21857 t \frac{1 - 1.82427 t + 2.22019 t^2}{1 - 1.14826 t + 6.72599 t^2} \times x^{4/3} y(x) \frac{300}{T_i}. \quad (17)$$

Величина κ_{ei} в этом выражении так же, как в формуле (14) выше, дается в единицах системы СИ. Ионная температура T_i задается в градусах Кельвина.

В формуле (17) введена определенная ниже безразмерная функция

$$y(x) = \frac{1.1963 x^{4.6932}}{1 + 0.196302 x^{2.8466}},$$

учитывающая зависимость дебаевской температуры от плотности.

С учетом как электрон-ионного (17), так и электрон-электронного (14) рассеяния коэффициент теплопроводности записывается в следующем виде:

$$\kappa(T_e, T_i, x) = \left(k_e \kappa_{ee}^{-1}(T_e, x) + \kappa_{ei}^{-1}(T_e, T_i, x) \right)^{-1} \quad (18)$$

В выражении (18) мы ввели безразмерный коэффициент k_e , чтобы иметь возможность варьировать электрон-электронный вклад в коэффициент теплопроводности.

Формула (18) применяется в предшествующих разд. 2–7. Пример расчета коэффициента κ приведен выше на рис. 2 и 10. Из рис. 2 следует, что в 1Т-состояниях при температурах ниже температуры плавления золота коэффициент (18) выходит на табличные значения $\kappa \approx 300$ Вт/К/м.

Расчет теплопроводности является важной составляющей при моделировании лазерного воздействия с помощью 2Т-кода.

11. ОПТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Использованный выше 2Т-код превращает исходные данные в зависимости $T_e(x, t)$, $T_i(x, t)$. Исходными данными являются взятые из эксперимента значения поглощенной энергии F_{abs} и длительности импульса τ_L (разумеется, при заранее определенных зависимостях коэффициентов κ и α от параметров, описывающих состояние золота). Вместе с функциями $T_e(x, t)$, $T_i(x, t)$ определяются зависимости поверхностных температур от времени: $T_e|_{surf}(t)$, $T_i|_{surf}(t)$, см. пример на рис. 7 выше. Для пересчета эволюции поверхностных температур в зависимость TTR от времени, мы используем оптическую модель, которая приведена ниже. Теоретически вычисленные зависимости TTR от времени

сопоставляются с зависимостями TTR от времени из эксперимента, см. рис. 16 и 17.

В приближении Друде–Лоренца действительная и мнимая части диэлектрической проницаемости могут быть записаны соответственно в виде

$$\epsilon_1(\omega) = 1 - \frac{\omega_{ps}^2}{\omega^2 + \nu_s^2} + \frac{\omega_{pd}^2(\omega_d^2 - \omega^2)}{(\omega_d^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \nu_d^2},$$

$$\epsilon_2(\omega) = \frac{\omega_{ps}^2}{\omega^2 + \nu_s^2} \frac{\nu_s}{\omega} + \frac{\omega_{pd}^2 \omega \nu_d}{(\omega_d^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \nu_d^2}.$$

Считаем, что частоты ω_d и ν_d принадлежат d -зоне, ω — лазерная частота. Плазменные частоты ω_{ps}^2 и ω_{pd}^2 пропорциональны плотности и содержат также силы осцилляторов. Явно выделим пропорциональность ω_{ps}^2 и ω_{pd}^2 приведенной плотности x :

$$\omega_{ps}^2 = \omega_{0s}^2 x, \quad \omega_{pd}^2 = \omega_{0d}^2 x,$$

величина x определена формулой (15), индексом нуля выделены значения частот при нормальной плотности $x = 1$. Для рассматриваемых нами небольших частот излучения ω ($\lambda = 800$ нм, далеко от края d -зоны золота, ргобе-импульс) можно написать

$$\epsilon_1(\omega) = 1 - \frac{\omega_{0s}^2 x}{\omega^2 + \nu_s^2} + \frac{\omega_{0d}^2 x}{\omega_d^2},$$

$$\epsilon_2(\omega) = \frac{\omega_{0s}^2 x}{\omega^2 + \nu_s^2} \frac{\nu_s}{\omega} + \frac{\omega_{0d}^2 \nu_d}{\omega_d^4} \omega x.$$

В приближении Друде–Лоренца от d -зоны остаются добавочные слагаемые — это последние слагаемые в приведенных выше двух формулах. Этими добавками модель Друде–Лоренца отличается от модели Друде в случае, когда энергия фотона существенно меньше энергии края d -зоны.

Считая значения ω_{0d} , ω_d , ν_d постоянными и вводя постоянные величины b_1 , b_2 , получаем

$$\epsilon_1(\omega) = 1 - \frac{\omega_{0s}^2 x}{\omega^2 + \nu_s^2} + b_1 x,$$

$$\epsilon_2(\omega) = \frac{\omega_{0s}^2 x}{\omega^2 + \nu_s^2} \frac{\nu_s}{\omega} + b_2 \omega x.$$

При нормальных условиях ($x = 1$, $T_i = T_{rt} = 293$ К, T_{rt} — комнатная температура) обозначим частоту релаксации ν_s через ν_{s0} . Воспользуемся известными для двух частот ω_1 и ω_2 диэлектрическими постоянными из работы [60]. В результате получаем четыре уравнения для четырех неизвестных величин, ω_{0s}^2 , ν_{s0} , b_1 , b_2 :

$$\begin{aligned} \epsilon_1(\omega_1) &= 1 - \frac{\omega_{0s}^2}{\omega_1^2 + \nu_{s0}^2} + b_1, \\ \epsilon_2(\omega_1) &= \frac{\omega_{0s}^2}{\omega_1^2 + \nu_{s0}^2} \frac{\nu_{s0}}{\omega_1} + b_2\omega_1, \\ \epsilon_1(\omega_2) &= 1 - \frac{\omega_{0s}^2}{\omega_2^2 + \nu_{s0}^2} + b_1, \\ \epsilon_2(\omega_2) &= \frac{\omega_{0s}^2}{\omega_2^2 + \nu_{s0}^2} \frac{\nu_{s0}}{\omega_2} + b_2\omega_2. \end{aligned}$$

Из этой системы уравнений получаем кубическое уравнение для величины $\xi = \nu_{s0}/\omega_1$:

$$\xi \left(1 + \left(\frac{\omega_2}{\omega_1} \right)^2 + \xi^2 \right) = - \frac{\epsilon_2(\omega_1) \frac{\omega_2}{\omega_1} - \epsilon_2(\omega_2) \omega_2}{\epsilon_1(\omega_1) - \epsilon_1(\omega_2) \frac{\omega_2}{\omega_1}}.$$

Решая это уравнение, находим ξ , а значит, ν_{s0} . Затем находим нужные нам три величины ω_{0s}^2, b_1, b_2 :

$$\begin{aligned} \frac{\omega_{0s}^2}{\omega_1^2} &= \frac{\epsilon_1(\omega_1) - \epsilon_1(\omega_2)}{((\omega_2/\omega_1)^2 + \xi^2)^{-1} - (1 + \xi^2)^{-1}}, \\ b_1 &= \epsilon_1(\omega_1) - 1 + \frac{\omega_{0s}^2}{\omega_1^2} (1 + \xi^2)^{-1}, \\ b_2\omega_1 &= \epsilon_2(\omega_1) - \frac{\omega_{0s}^2}{\omega_1^2} (1 + \xi^2)^{-1} \xi. \end{aligned}$$

Две частотные линии возьмем соответствующими длинам волн $\lambda_1 = 800$ нм и $\lambda_2 = 1800$ нм. Из работы [60] для рассматриваемого нами случая золота были взяты значения

$$\begin{aligned} \epsilon_1(\omega_1) &= -23.360, & \epsilon_2(\omega_1) &= 0.76850, \\ \epsilon_1(\omega_2) &= -147.20, & \epsilon_2(\omega_2) &= 5.4235. \end{aligned}$$

Это дает

$$\begin{aligned} \xi &= 0.01523, & \nu_{s0} &= 0.03588 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}, \\ \omega_{0s}^2/\omega_1^2 &= 30.5266, & b_1 &= 6.1595, & b_2\omega_1 &= 0.3038. \end{aligned}$$

В 2Т-состоянии частота релаксации ν_s есть сумма частот электрон-фононных $s-i$ - и электрон-электронных $s-s$ - и $s-d$ -столкновений:

$$\begin{aligned} \nu_s(T_e, T_i, x) &= \\ &= \nu_{si}(T_i, x) + A_{ss}\nu_{ss}(T_e, x) + A_{sd}\nu_{sd}(T_e, x). \end{aligned}$$

Здесь $A_{ss} \sim 1$, $A_{sd} \approx 1$ — параметры настройки. Они подбираются так, чтобы максимумы экспериментальной и теоретической ТТР-зависимостей были одинаковыми — нормировка на максимум.

Частота ν_{si} выражается через ν_{s0} как

$$\nu_{si}(T_i, x) = \nu_{s0} \frac{x}{x_0} \frac{y(x_0)}{y(x)} \frac{2/5 + T_i/\Theta(x)}{2/5 + T_i/\Theta(x)}.$$

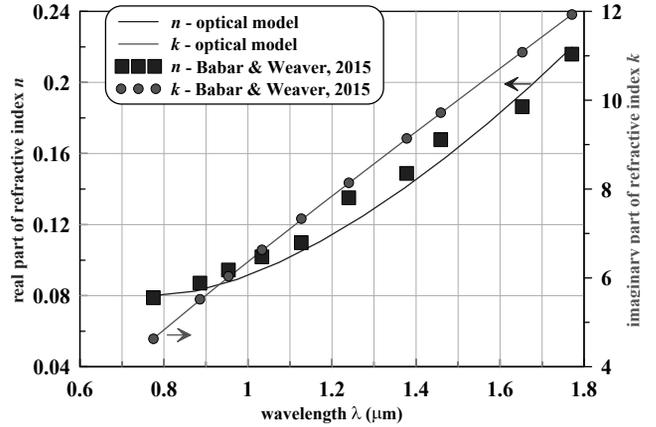


Рис. 23. (В цвете онлайн) Действительная (n , синие символы и кривая) и мнимая (k , красные символы и кривая) части показателя преломления $n + ik$ золота как функция длины волны. Символы — данные из работы [60], сплошные кривые — показатель преломления $n + ik$, соответствующий диэлектрической проницаемости в виде (19) и (20)

Здесь введены функция

$$y(x) = \frac{x^{2a+1}}{b + 1 + (a - b)x^{a+1}}$$

и зависящая от приведенной плотности x температура Дебая

$$\Theta(x) = \Theta_0 \left(\frac{x}{x_0} \right)^{1/3} \sqrt{\frac{y(x)}{y(x_0)}}.$$

В этом выражении $\Theta_0 = 170$ К — температура Дебая при плотности 19.3 г/см³, $a = 3.92$ и $b = 1.95$ — показатели степени в выражении $p(x) = p_0(x^{a+1} - x^{b+1})$, аппроксимирующем так называемое холодное давление (зависимость давления от плотности при нулевой температуре).

Частоты ν_{ss} и ν_{sd} вычислялись вместе с вычислением соответствующих коэффициентов теплопроводности κ_{ss} и κ_{sd} и могут быть представлены следующими аппроксимирующими зависимостями:

$$\nu_{ss}(T_e, x) = 1.13845 \frac{x}{x_0} t^2 \frac{1 + 0.784364 t^2}{1 + 0.656757 t^{3.11359}} 10^{15} \text{ с}^{-1}$$

и

$$\nu_{sd}(T_e, x) = 2.7956 \frac{x}{x_0} e^{-\frac{2.6047}{t}} \frac{1 + 3.4355 t^{1.6311}}{1 + 1.3559 t^{1.8054}} 10^{15} \text{ с}^{-1},$$

где безразмерная электронная температура t определена нормировкой (16).

В 2Т-состоянии действительная и мнимая части диэлектрической проницаемости равны

$$\epsilon_1(\omega, T_e, T_i, x) = 1 - \frac{\omega_{0s}^2 x}{\omega^2 + \nu_s^2(T_e, T_i, x)} + b_1 x, \quad (19)$$

$$\epsilon_2(\omega, T_e, T_i, x) = \frac{\omega_{0s}^2 x}{\omega^2 + \nu_s^2(T_e, T_i, x)} \frac{\nu_s(T_e, T_i, x)}{\omega} + b_2 \omega x. \quad (20)$$

Они определяют комплексный коэффициент преломления пленки золота толщины H_2 :

$$n_2 = \left(\frac{\sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2} + \epsilon_1}{2} \right)^{1/2} + i \left(\frac{\sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2} - \epsilon_1}{2} \right)^{1/2}.$$

Действительная (n) и мнимая (k) части показателя преломления золота в зависимости от длины волны в интересующем нас диапазоне длин волн приведены на рис. 23. Символами показаны данные работы [60], а сплошными кривыми — расчет по приведенной в этой главе оптической модели.

Рассматриваемая нами многослойная структура состоит из вакуума, в котором волновое число зондирующего (пробе) импульса $k_1 = 2\pi/\lambda$, пленки золота толщины H_2 , в которой волновое число $k_2 = k_1 n_2$, стеклянной подложки толщины H_3 , в которой волновое число $k_3 = k_1 n_3$ ($n_3 = 1.5$), и снова вакуума. Введем для такой структуры величины A и B следующего вида:

$$A = \left(1 - \frac{k_2}{k_1}\right) e^{-ik_2 H_2} \left[\left(1 + \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 + \frac{k_4}{k_3}\right) e^{-ik_3 H_3} + \left(1 - \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 - \frac{k_4}{k_3}\right) e^{ik_3 H_3} \right] + \left(1 + \frac{k_2}{k_1}\right) e^{ik_2 H_2} \left[\left(1 - \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 + \frac{k_4}{k_3}\right) e^{-ik_3 H_3} + \left(1 + \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 - \frac{k_4}{k_3}\right) e^{ik_3 H_3} \right],$$

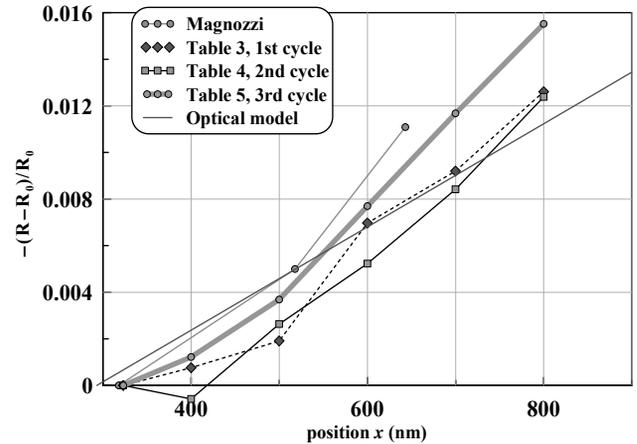


Рис. 24. (В цвете онлайн) Сравнение расчета по нашей оптической модели с данными работ [61, 62]. Зеленая кривая с зелеными круглыми символами взята из статьи [62]. Кривые из таблиц 3, 4 и 5 взяты из этих таблиц в работе [61]. Зависимость, показанная красной линией, представляет нашу модель в 1Т-случае

$$B = \left(1 + \frac{k_2}{k_1}\right) e^{-ik_2 H_2} \left[\left(1 + \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 + \frac{k_4}{k_3}\right) e^{-ik_3 H_3} + \left(1 - \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 - \frac{k_4}{k_3}\right) e^{ik_3 H_3} \right] + \left(1 - \frac{k_2}{k_1}\right) e^{ik_2 H_2} \left[\left(1 - \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 + \frac{k_4}{k_3}\right) e^{-ik_3 H_3} + \left(1 + \frac{k_3}{k_2}\right) \left(1 - \frac{k_4}{k_3}\right) e^{ik_3 H_3} \right].$$

С помощью описанной оптической модели проведено преобразование данных 2Т-кода в зависимость ТТР от времени. Эта зависимость показана на рис. 15 и 16.

Для проверки модели мы использовали литературные данные — работы [61, 62]. В них изучались изменения в отражательной способности золота при нагревании. Это необходимо для приложений в плазмонике. На рис. 24 показано сравнение разработанной оптической модели с результатами работ [61, 62]. Оптические характеристики вычислялись в 1Т-состояниях с одной температурой $T_e = T_i$. Эта температура отложена по оси абсцисс на рис. 24. Как видим, имеется удовлетворительное согласие.

Результаты, представленные на рис. 24, имеют важное значение для понимания зависимостей α и κ . Попробуем объяснить почему.

Как было показано выше (см. разд. 5–7), на выраженной 2Т-стадии охлаждение поверхности объемной мишени осуществляется, в основном, электронной теплопроводностью. Нам потребовалось снизить коэффициент κ , чтобы добиться согласия с опытом по темпу спада электронной температуры поверхности. Тогда, если пользоваться известными теоретическими значениями для коэффициента α (т. е. достаточно высокими значениями), мы получим высокие значения для ионной температуры на переходе от 2Т- к 1Т-стадии.

Дело в том, что при малых коэффициентах κ слой прогрева получается тонким. В нем сосредоточена поглощенная энергия. И температура этого слоя на 1Т-стадии становится высокой. Это следует из закона сохранения энергии. Производство толщины слоя прогрева на его температуру пропорционально поглощенной энергии. Чтобы снизить ионную температуру на переходе от 2Т- к 1Т-стадии, необходимо снижение коэффициента α существенно ниже теоретических значений, см. рис. 17.

Из сказанного ясно, насколько важно точное определение температуры поверхности по экспериментально измеренной зависимости TTR на переходе к 1Т-стадии. Поэтому для уверенности в этом необходимо было сопоставление нашей модели с 1Т-опытами. Такое сопоставление представлено на рис. 24.

12. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Работа опирается на эксперимент. В представленном эксперименте модифицирована техника lock-in с целью измерения сигнала TTR при возможно более высоких поглощенных энергиях. Снижение частоты в технике lock-in до 31 Гц позволила в объемных мишенях из золота подняться до температур, близких к температуре плавления золота. В предшествующих опытах предельные температуры в технике lock-in были существенно ниже.

Полученные экспериментальные результаты представляют собой измерения отражающей способности золота после облучения мишени фс-импульсом. Безусловно, данные TTR-измерений являются косвенными свидетельствами протекающих в веществе мишени процессов 2Т-релаксации. Научную ценность представляет интерпретация указанных измерений. Для интерпретации необходимы теоретическая модель и численное моделирование на базе этой модели. Такая модель была создана и расчеты

проведены. Есть две наиболее важные характеристики 2Т-состояний. Это коэффициент теплопроводности κ и коэффициент α , который определяет темп обмена энергией между электронной и ионной подсистемами.

Благодаря данной работе были выяснены следующие обстоятельства.

В объемных мишенях во всем исследованном диапазоне энергий лазерного фс-импульса темп снижения электронной температуры поверхности на 2Т-стадии определяется электронным транспортом поглощенной энергии. При этом охлаждение поверхности за счет коэффициента α имеет место, но играет второстепенную роль. Максимальная электронная температура составляла величину около 20 кК.

Показано, что в диапазоне максимальных электронных температур 10–20 кК имеется существенное уменьшение коэффициента электронной теплопроводности κ по сравнению с его значением в разработанной теории. При более низких температурах теоретический коэффициент κ хорошо описывает ситуацию.

Из обработки опытов аналогичный вывод делается относительно коэффициента α . В диапазоне максимальных электронных температур 10–20 кК коэффициент α значительно меньше, чем значения, следующие из существующих теорий. При низких температурах T_e коэффициент α возвращается к теоретическим значениям.

Возвращение коэффициента α к довольно большим теоретическим значениям при низких температурах T_e , т. е. на 1Т-стадии, позволяет описать медленное снижение температуры в опытах на 1Т-стадии в продолжительном интервале времен (сотни пикосекунд). При заниженных значениях коэффициента α темп снижения температуры на длинном временном интервале получается слишком малым.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант 19-19-00697-П, продленный).

ЛИТЕРАТУРА

1. A. B. Cherepakhin, D. V. Pavlov, I. I. Shishkin et al., *Appl. Phys. Lett.* **117**, 041108 (2020).
2. S. I. Kudryashov, A. A. Samokhvalov, Ya. D. Golubev et al., *Appl. Surf. Sci.* **537**, 147940 (2021).
3. K. Kaleris, E. Kaniolakis-Kaloudis, E. Kaselouris et al., *Appl. Phys. A* **129**, 527 (2023).

4. S. A. Romashevskiy, A. I. Ignatov, V. V. Zhakhovskiy et al., *Appl. Surf. Sci.* **615**, 156212 (2023).
5. T. Kawashima, T. Sano, A. Hirose et al., *J. Mater. Process. Technol.* **262**, 111 (2018).
6. U. Trdan, T. Sano, D. Klobcar et al., *Corrosion Sci.* **143**, 46 (2018).
7. Н. А. Иногамов, Е. А. Перов, В. В. Жаховский и др., *Письма в ЖЭТФ* **115**, 80 (2022) [N. A. Inogamov, E. A. Perov, V. V. Zhakhovskiy et al., *JETP Lett.* **115**, 71 (2022)].
8. В. А. Хохлов, В. В. Жаховский, Н. А. Иногамов и др., *Письма в ЖЭТФ* **115**, 576 (2022) [V. A. Khokhlov, V. V. Zhakhovskiy, N. A. Inogamov et al., *JETP Lett.* **115**, 523 (2022)].
9. V. Zhakhovskiy, Yu. Kolobov, S. Ashitkov et al., *Phys. Fluids* **35**, 096104 (2023).
10. С. И. Анисимов, Б. Л. Капелиович, Т. Л. Перельман, *ЖЭТФ* **66**, 776 (1974) [S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, and T. L. Perel'man, *Sov. Phys. JETP* **39**, 375 (1974)].
11. W. S. Fann, R. Storz, H. W. K. Tom, and J. Bokor, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2834 (1992).
12. С.-К. Sun, F. Vallée, L. H. Acioli et al., *Phys. Rev. B* **50**, 15337 (1994).
13. J. Hohlfeld, S.-S. Wellershoff, J. Guedde et al., *Chem. Phys.* **251**, 237 (2000).
14. N. Del Fatti, C. Voisin, M. Achermann et al., *Phys. Rev. B* **61**, 16956 (2000).
15. A. N. Smith and P. M. Norris, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 1240 (2001).
16. P. E. Hopkins, J. M. Klopff, and P. M. Norris, *Appl. Opt.* **46**, 2076 (2007).
17. Yu. V. Petrov, K. P. Migdal, N. A. Inogamov, and V. V. Zhakhovskiy, *Appl. Phys. B* **119**, 401 (2015).
18. Ю. В. Петров, К. П. Мигдал, Н. А. Иногамов, С. И. Анисимов, *Письма в ЖЭТФ* **104**, 446 (2016) [Yu. V. Petrov, K. P. Migdal, N. A. Inogamov, and S. I. Anisimov, *JETP Lett.* **104**, 431 (2016)].
19. B. Y. Mueller and B. Rethfeld, *Phys. Rev. B* **87**, 035139 (2013).
20. B. Rethfeld, D. S. Ivanov, M. E. Garcia, and S. I. Anisimov, *J. Phys. D* **50**, 193001 (2017).
21. А. А. Абрикосов, *Основы теории металлов*, Москва, Наука (1987).
22. S. Chapman and T. G. Cowling, *The Mathematical Theory of Non-Uniform Gases*, Cambridge Univ. Press (1970).
23. М. И. Каганов, И. М. Лифшиц, Л. В. Танатаров, *ЖЭТФ* **31**, 232 (1956) [M. I. Kaganov, I. M. Lifshitz, and L. V. Tanatarov, *Sov. Phys. JETP* **4**(2), 173 (1957)].
24. Yu. V. Petrov, *Laser Part. Beams* **23**, 283 (2005).
25. V. V. Temnov, K. Sokolowski-Tinten, P. Zhou, and D. von der Linde, *J. Opt. Soc. Am. B* **23**, 1954 (2006).
26. C. A. Paddock and G. L. Eesley, *J. Appl. Phys.* **60**, 285 (1986).
27. Н. А. Иногамов, В. А. Хохлов, С. А. Ромашевский и др., *Письма в ЖЭТФ* **117**, 107 (2023) [N. A. Inogamov, V. A. Khokhlov, S. A. Romashevskiy et al., *JETP Lett.* **117**, 104 (2023)].
28. V. V. Temnov, C. Klieber, K. A. Nelson et al., *Nature Commun.* **4**, 1468 (2013).
29. F. Akhmetov, I. Milov, S. Semin et al., *Vacuum* **212**, 112045 (2023).
30. K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri et al., *Phys. Rev. Lett.* **81**, 224 (1998).
31. Н. А. Иногамов, В. В. Жаховский, С. И. Ашитков и др., *ЖЭТФ* **134**, 5 (2008) [N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, S. I. Ashitkov et al., *JETP* **107**, 1 (2008)].
32. J. C. Crowhurst, M. R. Armstrong, K. B. Knight et al., *Phys. Rev. Lett.* **107**, 144302 (2011).
33. С. И. Ашитков, П. С. Комаров, М. Б. Агранат и др., *Письма в ЖЭТФ* **98**, 439 (2013) [S. I. Ashitkov, P. S. Komarov, M. B. Agranat et al., *JETP Lett.* **98**, 384 (2013)].
34. N. Hasegawa, M. Nishikino, M. Ishino et al., *Springer Proc. Phys.* **202**, 273 (2018).
35. B. Albertazzi, N. Ozaki, V. Zhakhovskiy et al., *Sci. Adv.* **3**, e160270 (2017).

36. M. Z. Mo, Z. Chen, R. K. Li et al., *Science* **360** (6396), 1451 (2018).
37. R. Fang, A. Vorobyev, and Ch. Guo, *Light: Sci. Appl.* **6**, e16256 (2017).
38. Н. А. Иногамов, А. М. Опарин, Ю. В. Петров и др., *Письма в ЖЭТФ* **69**, 284 (1999) [N. A. Inogamov, A. M. Oparin, Yu. V. Petrov et al., *JETP Lett.* **69**, 310 (1999)].
39. В. В. Жаховский, К. Нишихара, С. И. Анисимов, Н. А. Иногамов, *Письма в ЖЭТФ* **71**, 241 (2000) [V. V. Zhakhovskii, K. Nishihara, S. I. Anisimov, and N. A. Inogamov, *JETP Lett.* **71**, 167 (2000)].
40. L. V. Zhigilei and B. J. Garrison, *J. Appl. Phys.* **88**, 1281 (2000).
41. Н. А. Иногамов, Ю. В. Петров, *ЖЭТФ* **137**, 505 (2010) [N. A. Inogamov and Yu. V. Petrov, *JETP* **110**, 446 (2010)].
42. N. A. Smirnov, *Phys. Rev. B* **106**, 024109 (2022).
43. Zh. Lin, L. V. Zhigilei, and V. Celli, *Phys. Rev. B* **77**, 075133 (2008).
44. Н. А. Иногамов, В. В. Жаховский, В. А. Хохлов, *ЖЭТФ* **147**, 20 (2015) [N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, and V. A. Khokhlov, *JETP* **120**, 15 (2015)].
45. С. И. Анисимов, В. В. Жаховский, Н. А. Иногамов и др., *ЖЭТФ* **156**, 806 (2019) [S. I. Anisimov, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov et al., *JETP* **129**, 757 (2019)].
46. M. E. Povarnitsyn, T. E. Itina, P. R. Levashov, and K. V. Khishchenko, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 3108 (2013).
47. A. Block, R. Yu, Ieng-Wai Un et al., *ACS Photonics* **10**, 1150 (2023).
48. Ю. В. Петров, Н. А. Иногамов, К. П. Мигдал, *Письма в ЖЭТФ* **97**, 24 (2013) [Yu. V. Petrov, N. A. Inogamov, and K. P. Migdal, *JETP Lett.* **97**, 20 (2013)].
49. S. I. Ashitkov, P. S. Komarov, V. V. Zhakhovsky et al., *J. Phys.: Conf. Ser.* **774**, 012097 (2016).
50. A. Block, M. Liebel, R. Yu et al., *Sci. Adv.* **5**, eaav8965 (2019).
51. M. Segovia and X. Xu, *Nano Lett.* **21**, 7228 (2021).
52. G. Gao, L. Jiang, B. Xue et al., *Small Methods* **7**, 2201260 (2023).
53. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, S. I. Ashitkov et al., *Contrib. Plasma Phys.* **51**, 367 (2011).
54. N. A. Inogamov and V. V. Zhakhovsky, *J. Phys.: Conf. Ser.* **681**, 012001 (2016).
55. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, V. A. Khokhlov et al., *J. Phys.: Conf. Ser.* **774**, 012102 (2016).
56. V. V. Shepelev and N. A. Inogamov, *J. Phys: Conf. Ser.* **946**, 012010 (2018).
57. J. M. Liu, *Opt. Lett.* **7**, 196 (1982).
58. S. I. Kudryashov, A. A. Samokhvalov, Ya. D. Golubev et al., *Appl. Surf. Sci.* **537**, 147940 (2021).
59. S. I. Ashitkov, N. A. Inogamov, P. S. Komarov et al., *High Temp.* **60**, 192 (2022).
60. S. Babar and J. H. Weaver, *Appl. Opt.* **54**, 477 (2015).
61. H. Reddy, U. Guler, A. V. Kildishev et al., *Opt. Mater. Express* **6**, 2776 (2016).
62. M. Magnozzi, M. Ferrera, L. Mattera et al., *Nanoscale* **11**, 1140 (2019).

NON-SEQUENTIAL DOUBLE IONIZATION OF THE ALKALINE EARTH ATOMS WITH A NEAR-SINGLE CYCLE LASER PULSE IN A LINEARLY POLARIZED LASER FIELD

H. Delibašić Marković^{a}, V. Petrović^a, I. Petrović^b*

^a Faculty of Science, University of Kragujevac
34000 Kragujevac, Serbia

^b Academy of Professional Studies Šumadija, Department in Kragujevac
34000 Kragujevac, Serbia

Received September 25, 2023
revised version September 25, 2023,
Accepted for publication October 4, 2023

Extended Abstract. The full text of this paper is published in the English version of JETP.

DOI: 10.31857/S0044451024020044

Introduction. Over recent decades, the phenomena of multiple ionization events within atoms have been at the forefront of scientific discussion [1–3]. Specifically, nonsequential double ionization (NSDI) occurs when more than one electron is ejected after a single photon absorption, with the process relying on electron-electron correlation. This concept, theoretically proposed, has been validated experimentally for alkaline-earth metals, showing intensity-dependent "knee" shapes in double-ionization yield curves, hinting at electron correlation's significance [4]. This correlation aspect has been neglected by many theorists [5, 6]. NSDI is now crucial in attosecond physics, largely due to the recollision mechanism requiring high-intensity, short-pulse lasers [7]. Within this context, electron dynamics and multi-electron collisions remain focal research points.

Laser field polarization is vital for understanding NSDI. Initial studies focused on linearly polarized laser fields [8], wherein another electron is ejected upon recollision with its parent ion. Circularly polarized fields, however, reduce or negate this recollision [9], though some experiments challenge this [10]. Corkum's rescattering model accounts for this by explaining the absence of nonsequential events in circular polar-

ization [11]. Numerous studies have theorized that NSDI results primarily from electron-electron correlation, specifically through the collective tunneling mechanism [12, 13]. Through tests and simulations [14, 15], the energy of recolliding electrons has been associated with the ponderomotive potential U_p . The semiclassical theory, which combines the adiabatic Landau-Dykhne (LD) approach and classical treatments of subsequent rescattering, provides compelling explanations for atomic NSDI processes [16].

This research introduces an analytical expression for the NSDI transition rate under an intense linearly polarized laser using the LD approach. We delve into the double ionization of alkaline earth atoms across diverse laser intensities. This paper is divided into sections, beginning with this introduction, followed by the main findings, and finally our conclusions.

Theoretical modeling and discussion of results. For years, the two-electron problem puzzled physicists due to its nature as the simplest many-body system where electron interactions matter [17]. When exposed to short-wavelength intense radiation, this system helps explore the relationship between correlation and double ionization. In our work, using a linearly polarized laser field, we derived a formula for the transition rate. This rate describes double ionization in two stages: (i) single photoionization, where electron e_1 interacts with the parent ion, and (ii) recollision phase, where e_1 energizes the bounded electron e_2 , leading to potential recollision with the divalent ion. Follow-

* E-mail: hristinadelibasic@pmf.kg.ac.rs

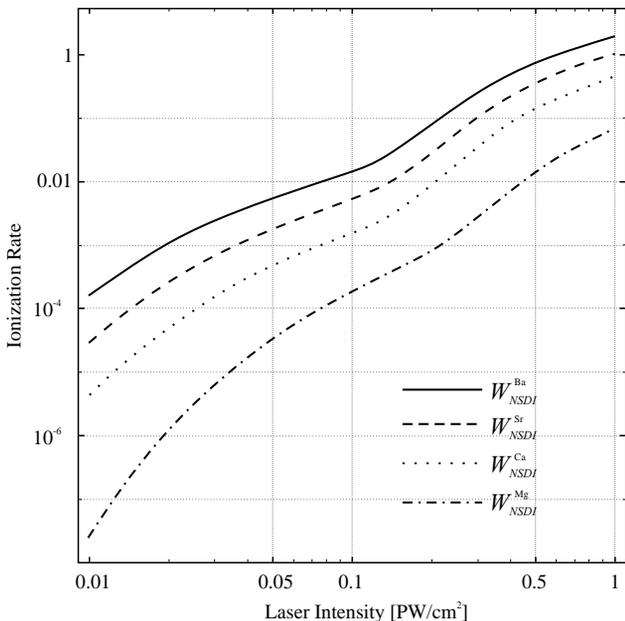


Fig. 1. Intensity dependent NSDI rates for different alkaline-earth metal atoms. The laser’s power density ranged from 0.01 PW/cm² to 1 PW/cm². Solid line is used to represent Ba, dashed line for Sr, dotted line for Ca, and dashed-dotted line for Mg

ing [18], for a system with a time-varying Hamiltonian $H(t)$, the ionization rate, W , between states ψ_i and ψ_f , can be derived using the imaginary part of the classical action as

$$W \propto \exp[-2 \operatorname{Im}\{S(\tau)\}],$$

where

$$S(\tau) = \int_{t_1}^{\tau} [E_f(t) - E_i(t)] dt.$$

It is pivotal to identify the closest complex turning point τ to the real-time axis t , as the roots of the equation $E_f(\tau) = -E_i$ contribute less to the rate formula compared to the nearest one to the real axis.

In the comprehensive exploration of the single photoionization phase, emphasis is placed on the phenomena where the initial electron, denoted e_1 , exhibits correlation with its parent ion. This correlation serves as a precursor to the dynamics that unfold in subsequent phases. The context in which this phenomenon is discussed assumes a linearly polarized laser field, described by the equation $F(t) = F \cos \omega t$. One of the pivotal understandings stems from relating the electric fields to the vector potential, $A(t)$. This relationship is epitomized by the equation

$$F(t) = -\frac{1}{c} \frac{\partial A(t)}{\partial t},$$

culminating in the vector potential

$$A(t) = -\frac{\omega}{cF} \sin \omega t.$$

To decipher the nuances of tunneling ionization, one must lean on the reversed Landau-Dykhne approach. This approach illuminates the existence of complex turning points in the complex time plane, culminating in the equation $E_f(\tau_1) = -E_i$. This equation carries significant weight, chiefly because it encompasses the energies of the initial and final states. The initial energy, intriguingly, incorporates a term representing electron correlation, derived from previous literature. The culmination of this understanding leads to the depiction of the momentum of expelled photoelectrons as

$$p = \frac{1}{2} \frac{\sqrt{F\eta - 1} - 1}{\eta \sqrt{F\eta - 1}}.$$

Delving further, using the aforementioned energies, we identify the zeros of $E_f(\tau_1) = -E_i$ that reside in the upper half-plane of complex time. This is described by equation

$$\tau_1 = \arcsin\left(\omega \left(p - i\sqrt{2I_p^c}\right)\right) / F + 2\pi c_1,$$

where I_p^c is corrected ionization potential defined as in [19].

Subsequent analyses focus on the temporal integration of the classical turning point relation. This effort culminates in an analytical expression for $S(\tau_1)$ [19]. A notable insight in this context is that at extremely high intensities, certain terms within $S(\tau_1)$ become less consequential, yielding a more concise equation representation. A significant advancement in our investigation was the derivation of the single photoionization rate, W_{SP} . This equation leverages a refined notation of the renowned Keldysh parameter, denoted as

$$\gamma_c = \omega \sqrt{2I_p^c} / F,$$

and is defined as follows:

$$W_{SP} \propto \exp\left[-2\left(p^2 \gamma_c^3 / 3\omega + \left(\sqrt{2I_p^c}\right)^3 / 3F(1 - \gamma_c^2 / 5)\right)\right].$$

In the complex world of atomic interactions, understanding the recollision phase in Nonsequential Double Ionization (NSDI) is paramount. During this phase, the initial electron, e_1 , is able to transfer energy to the bound electron e_2 . This transfer is contingent upon the kinetic energy of e_1 being less than the ionization

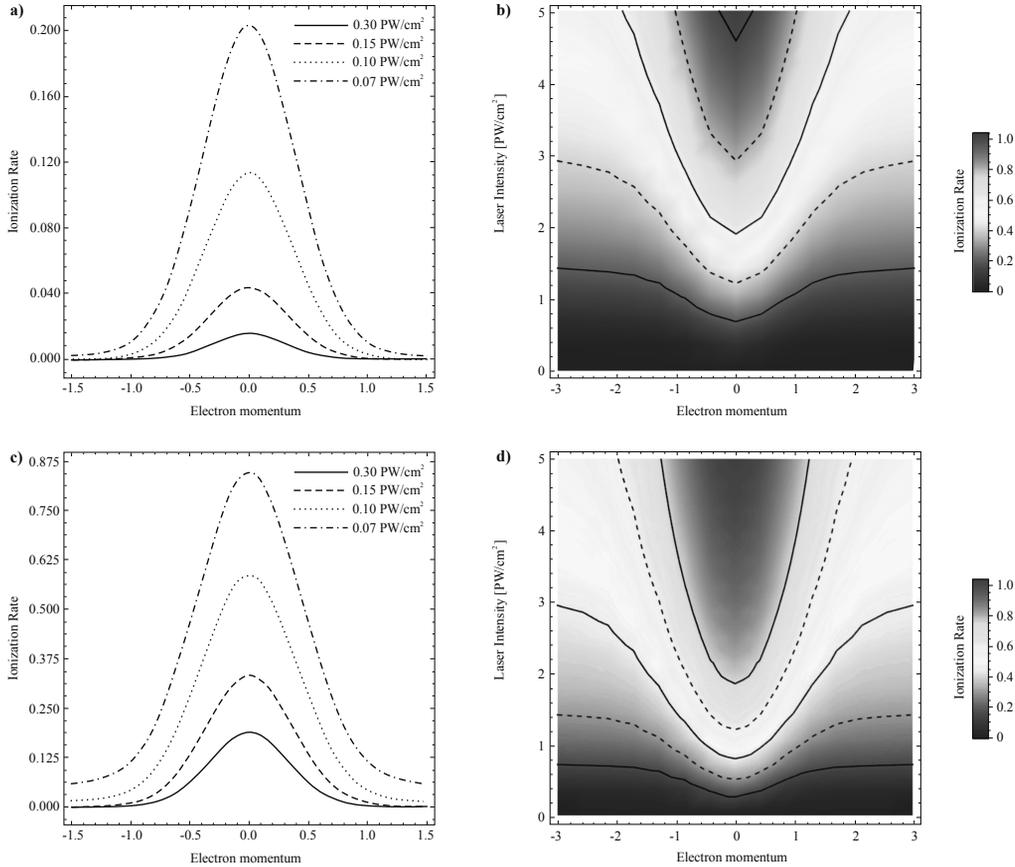


Fig. 2. The momentum distributions of (a), (b) Mg target and (c), (d) Ba target at intensities ranging from 0.3 PW/cm² to 0.07 PW/cm². The solid lines on the left plots ((a) and (c)) show a laser intensity of 0.3 PW/cm², the dashed lines of 0.15 PW/cm², the dotted lines of 0.1 PW/cm², and the dashed-dotted lines of 0.07 PW/cm². The right density plots ((b) and (d)) are the representation of the NSDI ionization rate W_{NSDI} as a function of electron momentum and laser intensity

potential of e_2 . Once e_2 undergoes tunneling ionization, it's driven back, influenced by the potent divalent ion, emphasizing the significance of post-tunneling dynamics. Remarkably, the observed probability of NSDI surpasses initial expectations, both experimentally and theoretically, hinting at a rich dynamic beneath the observed phenomena. To gain a clearer mathematical understanding, we determined the energy states for both electrons during the second part of NSDI. Notably, the Coulomb interaction was neglected for the sake of this analysis, simplifying our calculations without compromising the essence of the interaction. Our analytical journey led us to define a complex turning point, τ_2 , using the Landau-Dykhne method. This crucial juncture represents a key moment during the recollision phase, shedding light on the underpinnings of the electron interactions. Further mathematical scrutiny, utilizing the Maclaurin series, provided a nuanced expression for this turning point, as well as the classical action $S(\tau_2)$. The culmination of this endeavor was the derivation of the

recollision photoionization rate:

$$W_{REC} \propto \exp \left[-2 \left(p^2 \frac{I_{p2} \gamma_c^2}{4} + \frac{I_p^c \gamma_c}{3\omega} + \frac{1}{5F^2} \left(I_{p2} - \frac{5}{3I_p^c} \right) \right) \right].$$

The complete NSDI rate, encapsulating both the single photoionization and recollision phases, can be formulated as:

$$W_{NSDI} \propto \exp[-2 \text{Im}[S(\tau_1) + S(\tau_2)]].$$

This detailed analysis unveils the complex dynamics underlying NSDI, laying a solid groundwork for subsequent research and prospective advancements in the realm of atomic physics.

In examining prior research, it's evident that past studies primarily focused on noble gas atoms. Only recently have fully differential measurements of NSDI on alkaline earth atoms like Mg, Ca, Sr, and Ba been conducted. Despite this, the electron correlation dynamics across various atoms and molecules remain largely

uncharted. Our work employs semiclassical calculations to probe the NSDI physics of Mg, Ca, Sr, and Ba atoms under 800 nm fields and varied laser intensities ($0.01\text{--}5\text{ PW/cm}^2$), specifically when the Keldysh parameter $\gamma_c \ll 1$.

From our results, as illustrated in Fig. 1, it becomes clear that the atomic species plays a critical role in determining the NSDI ionization rates. As the ionization potentials of the atoms increase, there is a discernible reduction in the ionization rates. This suggests that atoms with higher ionization potentials possess an inherent robustness against the external laser field, making them less susceptible to releasing their electrons. When the laser power density surpasses 1 PW/cm^2 , a saturation point is reached in the nonsequential contributions, indicating that beyond this intensity, the atoms no longer show a significant increase in ionization activity. Among the studied atoms, Ba stands out as an exception, consistently registering a slightly elevated NSDI probability compared to Sr, Ca, or Mg. This observation not only emphasizes the unique behavior of barium in the context of NSDI but also resonates well with existing experimental findings, as documented in [20].

In Fig. 2, the intricacies of the momentum distributions for Mg and Ba atoms under different laser intensities are laid bare. Contrary to the anticipated double-hump pattern that is typically observed in certain atomic responses, our results showcase a predominant Gaussian-like distribution, with a pronounced peak centering around zero momentum. This intriguing deviation from the expected trend is potentially attributed to the initial simplification where the influence of the Coulomb interactions was not considered [14]. Such an oversight might have resulted in suppressing the subtle structures and patterns that arise due to electron-electron interactions. Furthermore, an intriguing observation from our data is the symmetric nature of these momentum distributions. They not only show symmetry but also exhibit distinct variations as the laser intensity changes, which mirrors the findings of prior research endeavors. Adding another layer to the complexity of these observations is the behavior at lower laser intensities. Here, the momentum density distributions manifest a particularly notable 'plateau' feature that spans between momenta values of -1 au to 1 au . This plateau structure might hint at specific atomic response behaviors or underlying mechanisms at these specific intensities, warranting further investigation.

Summary. In this study, using the LD approach, we formulated a semiclassical model of NSDI, accounting for electron-electron correlation with the assumption that laser radiation is essential for doubly charged ion production. Our results demonstrate a consistent 'knee' structure in NSDI rates across all alkali atoms and a singular peak (Gaussian-like) in momentum distributions. While our model aligns with experimental data for alkaline earth atoms, discrepancies arise in momentum distribution structures when compared to noble gas experiments. The NSDI rates from our model also align closely with those from the ADK theory at higher intensities for the examined targets.

Acknowledgments. This work was supported by the Science Fund of the Republic of Serbia through Program PRISMA - Atoms and (bio)molecules-dynamics and collisional processes on short time scale (ATMOLCOL), Serbian Ministry of Education, Science and Technological Development (Agreement No. 451-03-47/2023-01/200122) and COST Action CA18222 «Attosecond Chemistry».

The full text of this paper is published in the English version of JETP.

REFERENCES

1. Z. X. Lei, Q. Y. Xu, Z. J. Yang, Y. L. He, and J. Guo, *Chin. Phys. B.* **31**, 063202 (2022).
2. S. L. Haan, L. Breen, A. Karim, and J. H. Eberly, *Opt. Express.* **15**, 767 (2007).
3. B. HuP, J. Liu, and S. Chen, *Phys. Lett. A* **236**, 533 (1997).
4. V. V. Suran and I. P. Zapesochny, *Sov. Tech. Phys. Lett.* **1**, 2 (1975).
5. F. Mauger, C. Chandre, and T. Uzer, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **42**, 165602 (2009).
6. L. Sarkadi, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **53**, 165401 (2020).
7. X. M. Ma, A. H. Tong, Z. Wang, and C. Y. Zhai, *Chin. Phys. B.* **30**, 123402 (2021).
8. S. Augst, A. Talebpour, S. L. Chin, Y. Beaudoin, and M. Chaker, *Phys. Rev. A* **52**, R917 (1995).
9. L. B. Fu, G. G. Xin, D. F. Ye, and J. Liu, *Phys. Rev. Lett.* **108**, (2012).

10. Y. Li, B. Yu, Q. Tang, X. Wang, D. Hua, A. Tong, C. Jiang, G. Ge, Y. Li, and J. Wan, *Opt. Express* **24**, 6469 (2016).
11. P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett* **71**(13), 1994 (1993).
12. R. Lafon, J. L. Chaloupka, B. Sheehy, P. M. Paul, P. Agostini, K. C. Kulander, and L. F. DiMauro, *Phys. Rev. Lett* **86**, 2762 (2001).
13. W. Becker, X. Liu, P. J. Ho, and J. H. Eberly, *Rev. Mod. Phys.* **84**, 1011 (2012).
14. Y. Liu, S. Tschuch, M. Durr, A. Rudenko, R. Moshhammer, J. Ullrich, M. Siegel, and U. Morgner, *Opt. Express* **15**, 18103 (2007).
15. A. S. Johnson, A. Staudte and D. M. Villeneuve, *Chinese J. Phys.* **52**, 329 (2014).
16. D. I. Bondar, W. K. Liu, and M. Yu. Ivanov, *Phys. Rev. A* **79**(2), (2009).
17. X. M. Tong and C. D. Lin, *J. Phys. B* **38**(15), 2593-2600 (2005).
18. Y. Li, L. Mei, H. Chen, J. Xu, Q. Tang, Y. Zhao, Q. Han, C. Wang, A. Tong, G. Ge, and B. Yu, *Int. J. Mod. Phys. B* **32**, 1850302 (2018).
19. V. M. Petrovic and T. B. Miladinovic, *JETP* **122**, 813 (2016).
20. H. P. Kang, S. Chen, W. Chu, J. P. Yao, J. Chen, X. J. Liu, Y. Cheng, and Z. Z. Xu, *Opt. Express* **28**, 19325 (2020).

СТАБИЛИЗАЦИЯ ГЕНЕРАЦИИ ФЕМТОСЕКУНДНЫХ ИМПУЛЬСОВ В ЛАЗЕРЕ С ПАССИВНОЙ СИНХРОНИЗАЦИЕЙ МОД НА КРИСТАЛЛЕ $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Cr}^{4+}$ ЗА СЧЕТ СПЕКТРАЛЬНОЙ РАЗГРУЗКИ РЕЗОНАТОРА В БОКОВЫЕ КОМПОНЕНТЫ КЕЛЛИ

А. А. Иванов ^{a,b,c}, А. А. Ланин ^{b,c}, А. А. Воронин ^{b,c}, Е. В. Жариков ^d, А. Б. Федотов ^{b*}

^a Центр фотохимии Российской академии наук,
ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» Российской академии наук
119333, Москва, Россия

^b Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, физический факультет
119991, Москва, Россия

^c Российский квантовый центр
143025, Сколково, Московская обл., Россия

^d Институт общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук
119991, Москва, Россия

Поступила в редакцию 26 сентября 2023 г.,
после переработки 16 октября 2023 г.
Принята к публикации 18 октября 2023 г.

Повышение эффективности и стабильности генерации фемтосекундных импульсов в твердотельных лазерах имеет в настоящее время большую технологическую значимость, сохраняя при этом необходимость проведения исследований ряда физических вопросов. Переменное действие мгновенной керровской нелинейности в кристалле, необходимой для пассивной синхронизации мод резонатора, и дисперсии призмных элементов, необходимой для генерации сверхкоротких импульсов, неизбежно приводит к регулярному возмущению формы генерирующихся импульсов. В работе исследуются режимы трансформации потерь лазерного генератора фемтосекундных импульсов с пассивной синхронизацией мод на кристалле $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Cr}^{4+}$ (хром-форстерит) при достижении внутрирезонаторной пиковой мощности поля порядка 2 МВт, близкой к критической мощности самофокусировки. Анализ спектров и длительностей импульсов в различных частях резонатора показывает, что поддержка квазисолитонного режима генерации импульсов с предельной для лазера пиковой мощностью проводится за счет удаления лишней энергии из резонатора через генерацию спектральных компонент Келли и уширения спектра импульса за полосу усиления активной среды. Сильное уширение спектра импульса в кристалле нарушает баланс дисперсионного и нелинейного фазовых набегов и приводит к деформации формы генерируемого импульса. Возникающие за счет нелинейного преобразования в кристалле дополнительные пассивные потери существенно снижают эффективность лазерной генерации импульсов с предельными по пиковой мощности параметрами.

DOI: 10.31857/S0044451024020056

1. ВВЕДЕНИЕ

Сверхкороткие лазерные импульсы уже два десятилетия широко используются в фундаментальных физических исследованиях: в области взаимодействия экстремальных электрических полей с веществом [1,2], науках о материалах [3], астрономии [4] и метрологии [5]. Развитие источников фемтосекундных импульсов привело к появлению новых мето-

* E-mail: a.b.fedotov@physics.msu.ru

дов неинвазивной визуализации биологических тканей с субклеточным пространственным разрешением на основе классических явлений нелинейной оптики: генерации оптических гармоник и двухфотонного возбуждения флуоресценции [6, 7]. Объединение нескольких техник в мультимодальный инструмент визуализации открывает широкие возможности проведения оптической биопсии [8], внутриоперационной гистологии [9] и прижизненной безмаркерной визуализации [10, 11], но выставляет высокие требования к параметрам лазерного источника. Генераторы фемтосекундных импульсов на кристалле $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Cr}^{4+}$ (хром-форстерит) [12] занимают особое место в многофотонной микроскопии и нелинейной спектроскопии живых систем вследствие того, что излучение на центральной длине волны 1.25 мкм обладает сравнительно большой глубиной проникновения в биологические ткани, что позволяет восстанавливать пространственное распределение флуоресцентных маркеров с большой глубины при двухфотонном возбуждении, а генерирующиеся вторая и третья гармоники попадают в области прозрачности тканей вблизи 630 нм и 420 нм [13–16]. Увеличение пиковой мощности импульсов генератора особенно важно для повышения чувствительности нелинейно-оптической спектроскопии и радикального увеличения глубины визуализации микроскопии за счет трехфотонного возбуждения флуоресценции [17–20].

Высокая пиковая мощность выходных импульсов лазера достигается при росте энергии и уменьшении длительности импульсов при аккуратной настройке суммарной дисперсии групповых задержек резонатора (ДГЗ), равной сумме дисперсии групповых задержек второго порядка каждого элемента резонатора, во всем диапазоне длин волн полосы усиления кристалла. В типичном солитон-подобном лазере с пассивной синхронизацией мод добавка энергии, которую получает импульс на каждом обходе резонатора в активной среде, не соответствует в полной мере временному и спектральному профилю фундаментального солитона. Периодические возмущения дисперсии, нелинейности и усиления импульса при его распространении в лазерном резонаторе приводят к тому, что вследствие фазового согласования и различных групповых скоростей солитонного импульса и дисперсионных волн [21] (ДВ, световые волны низкой интенсивности) часть энергии солитона неизбежно перетекает в дисперсионные волны в процессе приобретения усиленным импульсом необходимой формы для реализации баланса воздействия нелинейности и дисперсии

на импульс. Наиболее ярко это проявляется в волоконных импульсных лазерах в качестве формирования симметричных спектральных компонент Келли за счет растянутых вдоль большей части резонатора физических процессов нелинейной модификации фазы и относительно слабого усиления [22–24]. Экспоненциальный рост таких паразитных компонент на краях спектра солитона приводит к конкуренции за энергию накачки и нелинейному кросс-взаимодействию с основным импульсом, проявляющееся в нестабильности мощности и потере генерации солитон-подобных импульсов [25]. Ограниченное воздействие спектральных компонент Келли в волоконных лазерах на генерацию объясняется относительно малой шириной усиления допированных ионами редкоземельных металлов световодов [26]. Однако привнесение дополнительных потерь на длинах волн компонент Келли при помощи спектральных фильтров позволяет улучшить стабильность лазера: уменьшить шумы мощности, временной джиттер и увеличить временную контрастность огибающей интенсивности [27, 28]. В твердотельных лазерах компоненты Келли также могут оказывать негативное влияние на стабильность импульсной лазерной генерации, хотя наблюдать их сложнее из-за разнесенных в пространстве нелинейного воздействия на импульс и ее компенсация в призменном компрессоре или chirpированных зеркалах. В фемтосекундных лазерах на кристаллах хром-форстерита нелинейный набег фазы проявляется сильнее, чем в других твердотельных лазерах, из-за использования более длинных активных элементов вследствие сравнительно невысокого коэффициента поглощения накачки [29, 30]. Это неизбежно приводит к уширению спектра, нелинейно-оптическому преобразованию импульса и дополнительным пассивным потерям. Селективное выведение из резонатора излучения на частотах генерирующихся компонент Келли может повысить энергию поддерживающегося квазисолитонного импульса.

В данной работе мы исследуем влияние разгрузки резонатора лазера на кристалле хром-форстерита с пассивной синхронизацией мод на керровской нелинейности, генерирующего квазисолитонные импульсы длительностью до 30 фс, и внутрирезонаторной пиковой мощностью до 2.2 МВт, сопровождающиеся сильными компонентами Келли, на возможность поддерживать стабильный режим генерации при сильной накачке. Проведены исследования спектров и длительностей излучения в различных точках резонатора при варьировании коэффициента пропускания выходного зеркала.

Показано влияние фазовой самомодуляции импульсов на предельную интенсивность генерируемых импульсов. Показано, что при генерации предельно коротких импульсов высокой интенсивности в кристалле хром-форстерита происходит спектральная трансформация импульсов, приводящая к росту пассивных потерь в резонаторе лазера.

2. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Экспериментальные исследования особенностей формирования спектральных компонент Келли в твердотельном лазере проводились на макете фемтосекундного хром-форстеритного лазера с пассивной синхронизацией мод на керровской нелинейности, собранный по стандартной Z-образной схеме для компенсации аберраций пучка в активном элементе с возможностью варьировать выходные зеркала M1 (рис. 1a). Излучение накачки волоконного иттербиевого лазера (ИРЭ-Полюс, Россия) мощностью 14 Вт фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 15 см через сферическое зеркало M2 в поддерживаемый при температуре +5°C кристалл Mg₂SiO₄:Cr⁴⁺ длиной 15 мм с торцами, вырезанными под углом Брюстера. Коэффициент поглощения кристалла на длине волны 1064 нм составлял 1 см⁻¹. Коллимация люминесценции из кристалла осуществлялась сферическими зеркалами M2 и M3 с радиусом кривизны 15 см. Пара почти равносторонних призм из стекла SF14, разнесенных на расстояние 35 см друг от друга, использовалась для компенсации нормальной дисперсии групповых задержек резонатора и для тонкой подстройки дисперсии. Плоское зеркало M5, выводящее длинноволновое излучение из резонатора, имело границу прозрачности на длине волны 1490 нм.

Характеризация излучения проводилась за выходным зеркалом M1 и зеркалом M5. Спектры регистрировались InGaAs-спектрометром SDH-IV (СОЛАР ЛС, Республика Беларусь). Корреляционные функции импульсов регистрировались сканирующим автокоррелятором АА-М (Авеста-Проект, Россия). Средняя мощность излучения регистрировалась тепловым измерителем мощности 407-А (Spectra-Physics, США). Частота следования импульсов составляла 100 МГц и контролировалась лавинным германиевым фотодиодом ФД-2Г (СССР). В работе был проведен анализ особенностей генерации импульсов и спектральных компонент Келли при пассивной синхронизации мод в лазере при

фиксированном уровне накачки и варьируемом пропуски выходного зеркала M1 от 10% до 0.2% в окне 1200–1350 нм (рис. 1b). Для каждого выходного зеркала резонатор лазера настраивался на максимальную среднюю мощность в режиме стабильной импульсной генерации. Выходная средняя мощность лазера в фемтосекундном режиме генерации была примерно на 5–10% выше, чем в непрерывном режиме генерации для одинаковой юстировки оптических элементов резонатора. Дискриминация такого уровня между непрерывным и импульсным режимами обеспечивала стабильную работу лазера в импульсном режиме. Лазер переходил из непрерывного в импульсный режим самопривольно или при незначительной флуктуации, вызванной легким ударом по оптическому столу.

3. РАСЧЕТ ДИСПЕРСИИ РЕЗОНАТОРА

Солитонные твердотельные лазеры с пассивной синхронизацией, в том числе на кристалле хром-форстерита, обеспечивают стабильную генерацию сверхкоротких импульсов в режиме аномальной суммарной ДГЗ резонатора (рис. 2), которые для краткости будем называть «солитонами».

Оформление такого импульса обусловлено взаимно компенсирующими за полный обход резонатора воздействиями нелинейного набега фазы

$$\phi_{nl} = 2\gamma Pl_{cr},$$

где

$$\gamma = \frac{\omega n_0 n_2}{c A},$$

l_{cr} , n_0 , n_2 — длина, линейный и нелинейный показатели преломления кристалла соответственно, A — эффективная нелинейная площадь моды в кристалле, и суммарного дисперсионного набега фазы

$$\phi_d = \frac{1}{2}\omega_s^2 \sum D_i,$$

где

$$\omega_s^2 = \frac{1}{\tau_s^2} = \left(\frac{1.76}{\tau}\right)^2$$

— спектральная ширина солитона, а τ — длительность по полувысоте, D_i — дисперсия групповой задержки i -го элемента резонатора. Условие существования солитона

$$\sum D_i = D_{cr} + D_{pr} + D_{co} < 0, \quad (1)$$

где

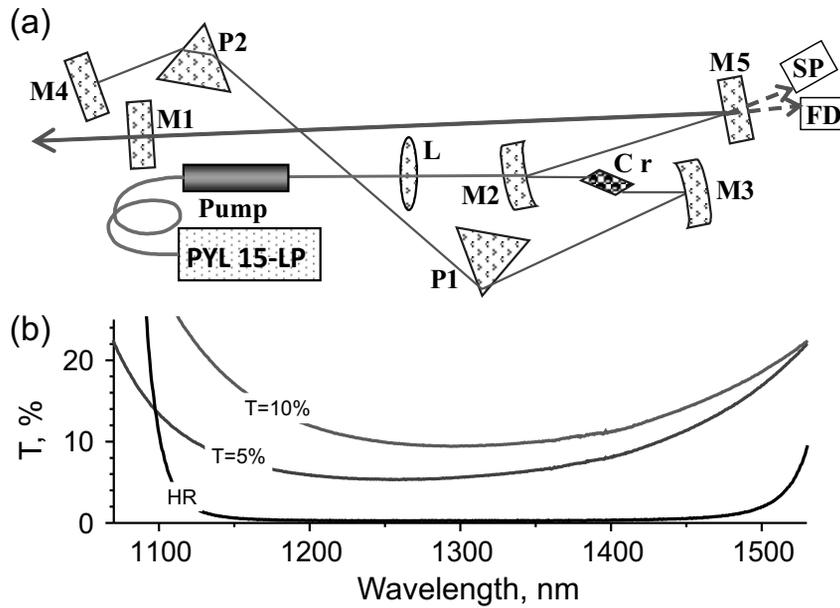


Рис. 1. *a* — Оптическая схема резонатора лазера: M1 — выходное зеркало, M2, M3 — сферические зеркала с радиусом кривизны 15см; M4, M5 — плоские зеркала; P1, P2 — призмы из стекла SF14; Cr — кристалл $Mg_2SiO_4:Cr^{4+}$; Pump — коллиматор иттербиевого волоконного лазера накачки PYL15-LP; L — линза излучения накачки с фокусным расстоянием 15см; SP-спектрометр; FD — лавинный фотодиод ФД-2Г. *b* — Спектральные характеристики выходных зеркал 10%, 5% и 0.2%

$$\begin{aligned}
 D_{cr} &= \frac{\lambda^3 l_{cr}}{\pi c^3} \frac{\partial^2 n_{cr}}{\partial \lambda^2}, \\
 D_{pr} &= \frac{\lambda^3 l_{pr}}{\pi c^3} \frac{\partial^2 n_{pr}}{\partial \lambda^2}, \\
 D_{co} &= -4 \frac{\lambda^3 l_{co}}{\pi c^3} \left(\frac{\partial n_{pr}}{\partial \lambda} \right)^2
 \end{aligned} \tag{2}$$

описывают вклады материальной дисперсии кристалла и призм, а также угловой дисперсии призмленного компрессора соответственно [31]. Вклад дисперсии групповых задержек третьего порядка (ДТП), анализ которой позволяет оценить поддерживаемую спектральную ширину формирующихся импульсов, рассчитывается по формуле

$$T = \frac{-\lambda^4 l}{2\pi^2 c^3} \left(3 \frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2} + \lambda \frac{\partial^3 n}{\partial \lambda^3} \right) \tag{3}$$

для оптических элементов толщиной l и

$$T_{co} = \frac{-6\lambda^4 l_{co}}{\pi^2 c^3} \frac{\partial n_{pr}}{\partial \lambda} \left(\frac{\partial n_{pr}}{\partial \lambda} + \lambda \frac{\partial^2 n_{pr}}{\partial \lambda^2} \right) \tag{4}$$

для призмленного компрессора за полный обход резонатора. Расчет материальной дисперсии стекла призм SF14 и кристалла форстерита проведен по данным показателей преломления в работах [32, 33].

С учетом измеренных на стенде толщин оптических элементов и расстояний между призмами были построены ДГЗ и ДТП ключевых узлов резонатора: кристалла, призм и компрессора (рис. 2 *a-c*). Суммарная ДГЗ регулировалась путем перемещения призмы P2 внутри резонатора, т. е. путем изменения величины положительной дисперсии, вносимой материалом призмы P2. Минимальная положительная ДГЗ, вносимая материалом двух призм при двойном обходе импульсом резонатора лазера и прохождении луча по вершинам призм, составляла примерно 1100 фс^2 на длине волны 1260 нм (сплошная черная линия на рис. 2 *b*). На рис. 2 *d* представлены рассчитанные кривые дисперсии групповых задержек за круговой обход импульсом всего резонатора, соответствующие трем положениям призмы P2, отстоящие друг от друга на 0.5 мм в направлении перпендикулярном распространению луча в призме, что добавляет 100 фс^2 за каждый сдвиг. Как будет показано далее, все стабильные режимы генерации импульсов в лазере соответствовали аномальной ДГЗ порядка от -600 фс^2 до -300 фс^2 в области длин волн полосы усиления кристалла, что удовлетворяет необходимому условию существования солитон-подобных импульсов в резонаторе.

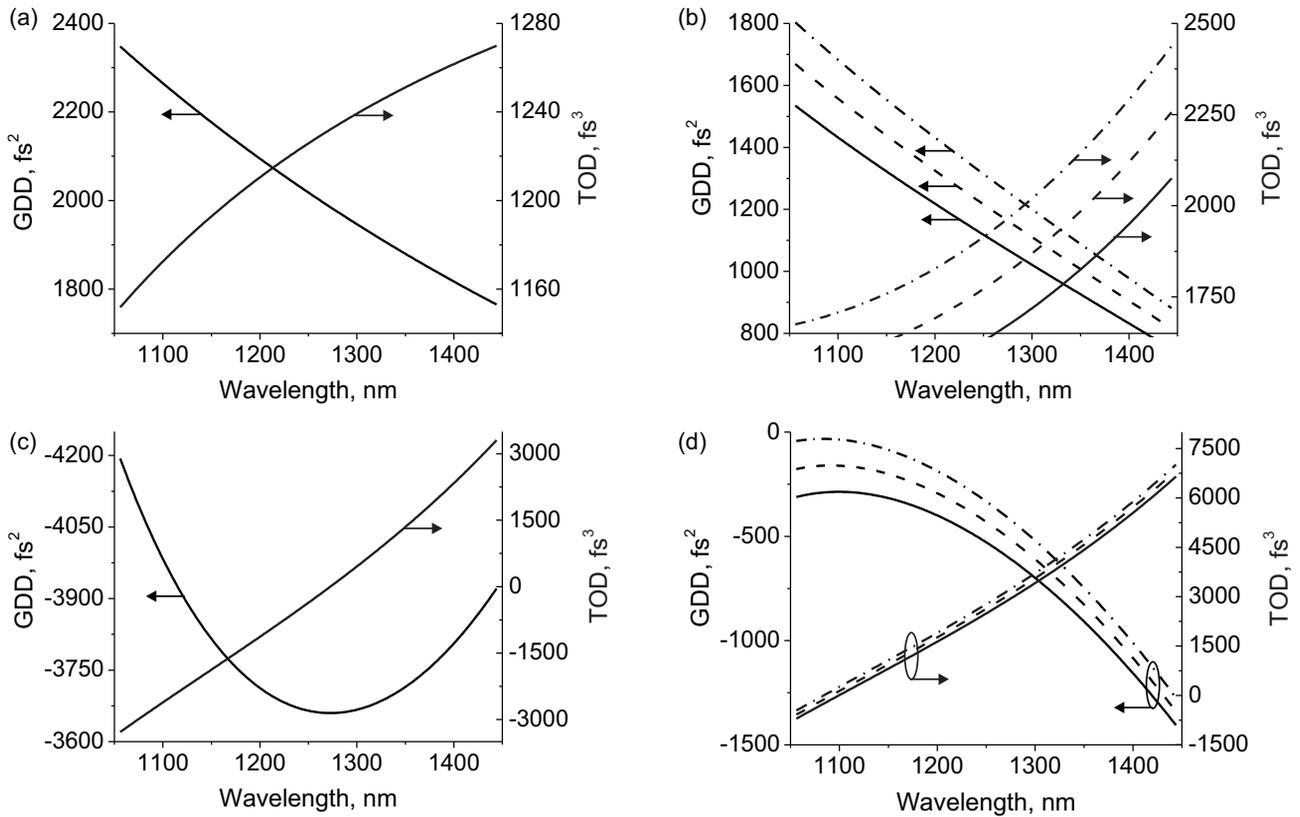


Рис. 2. Расчетные зависимости ДГЗ (GDD, черные линии) и ДТП (TOD, синие линии) кристалла (a), призмы (b), призмного компрессора (c) и резонатора целиком (d). ДГЗ и ДТП отдельных элементов резонатора показаны за один обход импульса по резонатору. ДГЗ (b, d) построены для призмного вклада $D_{pr} = 1100 \text{ фс}^2$ (сплошная линия), 1200 фс^2 (пунктирная линия) и 1300 фс^2 (штрихпунктирная линия) на длине волны 1260 нм, соответствующие эффективным толщинам призм $l_{pr} = 6.6, 7.2$ и 7.8 мм соответственно

4. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Как показывает опыт практического применения, наибольшая выходная средняя мощность хром-форстеритного лазера достигается при коэффициенте пропускания выходного зеркала около 10% [29, 30, 34, 35], поэтому исследования были начаты с этого режима. На рис. 3 представлены спектры 2 и 4 (штриховые линии) излучения после выходного зеркала M1 при значениях положительной ДГЗ призм на длине волны 1260 нм, соответственно 1180 фс^2 и 1270 фс^2 . Спектры 1, 3 и 5 (сплошные линии на рис. 3), регистрировавшиеся после поворотного зеркала M5, при ДГЗ призм 720 фс^2 , 1180 фс^2 и 1270 фс^2 , содержат широкое спектральное плечо в области 1400–1500 нм далеко за пределами полосы усиления лазерного элемента хром-форстерита. Данная особенность спектра не

проявляется после выходного зеркала M1. При перестройке ДГЗ призм в широком диапазоне от 720 фс^2 до 1270 фс^2 , что соответствовало сдвигу на 3 мм в направлении перпендикулярном пучку, в резонаторе сохранялся стабильный режим генерации фемтосекундных импульсов без дополнительной юстировки оптических элементов, изменения мощности накачки и температуры кристалла. На рис. 3 b приведена автокорреляционная функция импульса после выходного зеркала M1, обладающего длительностью около 43 фс, близкой к предельной (рис. 3 b), при значении дисперсии призм 1180 фс^2 . Произведение ширины спектра и длительности автокорреляционной функции $\Delta\nu\Delta\tau$ является важной величиной, характеризующей форму импульса. Действительно, для приведенной на рис. 3 b автокорреляционной функции произведение ширины спектра и длительности $\Delta\nu\Delta\tau \approx 0.48$, что близко к значению для спектрально-ограниченного импульса

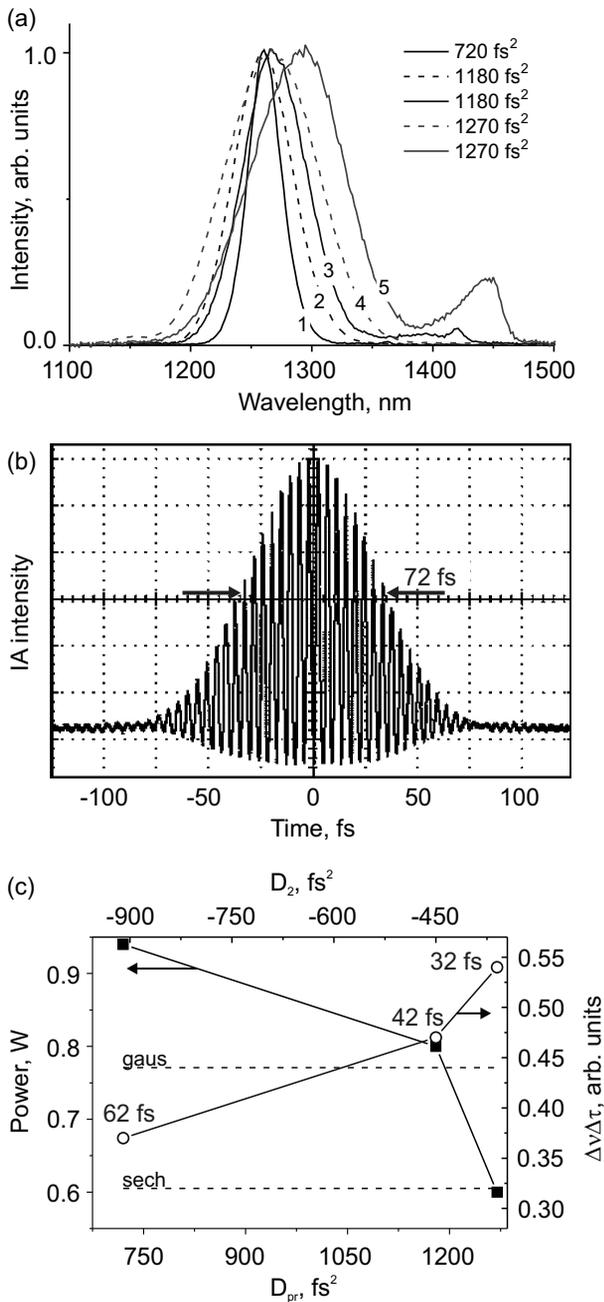


Рис. 3. *a* — Спектры излучения лазера хром-форстерита за глухим зеркалом М1 (штриховые линии) и ломающим зеркалом М5 (сплошные линии) с коэффициентом пропускания М1 10% при ДГЗ призм 720 фс² (черная линия), 1180 фс² (синие линии) и 1260 фс² (красные линии). *b* — Интерференционная автокорреляционная функция интенсивности импульса (IA) при дисперсии призм 1180 фс². *c* — Зависимости средней мощности и произведения $\Delta\nu\Delta\tau$ импульсов от дисперсии резонатора

гауссовой формы $\Delta\nu\Delta\tau_{\text{gaus}} = 0.44$. Уменьшение вклада призм до 720 фс² приводит к образованию импульса длительностью около 63 фс с более пологими фронтами, форма которого ближе к форме фундаментального солитона. Такая форма подтверждается и соотношением $\Delta\nu\Delta\tau \approx 0.37$, которое близко к соотношению для гиперболического секанса $\Delta\nu\Delta\tau_{\text{sech}} = 0.32$ у фундаментального солитона. Напротив, увеличение вклада ДГЗ призм до 1270 фс² приводит к формированию излучения длительностью всего около 34 фс с шириной спектра до 91 нм. Компенсацию нелинейного и дисперсионного фазового набега весьма сложно поддерживать в таком широком частотном диапазоне без остаточного chirpa, что отражается на произведении $\Delta\nu\Delta\tau \approx 0.54$ (рис. 3 *c*) и искажении симметричной формы импульса. Увеличение суммарной ДГЗ резонатора с -910 фс² до -365 фс² приводит к почти трехкратному спектральному уширению импульса от 32 нм до 91 нм, уменьшению его длительности с 63 фс до 34 фс и энергии с 9.4 нДж до 6 нДж, что дает оценки перестройки пиковой мощности излучения внутри кристалла хром-форстерита 1.5 МВт, 1.8 МВт и 1.7 МВт. Данные пиковые мощности весьма близко подходят к критической мощности самофокусировки в кристалле форстерита $P_{cr} \approx 7$ МВт, рассчитанного с учетом $n_2 = 2 \cdot 10^{-16}$ Вт⁻¹см⁻² [36]. Таким образом, увеличение в эксперименте интенсивности компонент в области 1350–1500 нм и уменьшение средней мощности выходных лазерных импульсов за зеркалом М1 объясняется возникающими дополнительными источниками потерь в резонаторе за счет эффективных нелинейно-оптических преобразований излучения. Отметим, что типичная величина энергетических потерь за обход резонатора из-за синхронизации мод лазера керровской линзой составляет по порядку величины около 10^{-5} энергии импульса [37].

Различное положение и форма спектров после зеркал М1 и М5 при одной и той же величине дисперсии резонатора может быть вызвано как спектральными характеристиками зеркал М1 и М5, так и различной расходимостью спектральных компонент основной полосы с центральной длиной волны 1260 нм и компонент Келли в области 1150 и 1450 нм. Спектры после зеркала М1 регистрировались в дальней зоне, а после М5 непосредственно за зеркалом. Проведенные измерения спектров на различных расстояниях от зеркал М1 и М5 показали, что соотношение интенсивностей полос в области 1450 нм и 1250 нм за зеркалом М5 не зависит от расстоя-

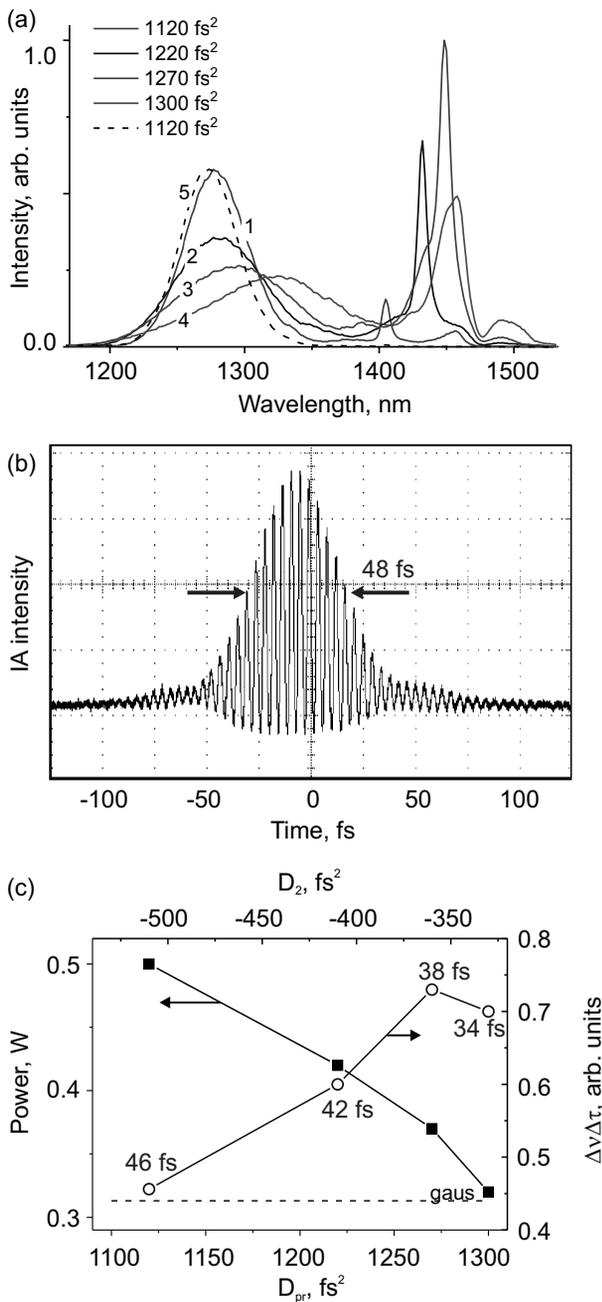


Рис. 4. *a* — Спектры излучения лазера хром-форстерита за глухим зеркалом М1 (штриховая линия) и ломающим зеркалом М5 (сплошные линии) с коэффициентом пропускания М1 5% при ДГЗ призм 1120 фс^2 (черная и зеленая линии), 1220 фс^2 (синяя линия), 1270 фс^2 (красная линия), 1300 фс^2 (фиолетовая линия). *b* — Интерференционная автокорреляционная функция интенсивности импульса (IA) при дисперсии призм 1300 фс^2 . *c* — Зависимости средней мощности и отношения $\Delta\nu\Delta\tau$ импульсов от дисперсии резонатора

ния от зеркала до интегральной сферы спектрометра, в то время как интенсивность полосы в области 1150 нм за зеркалом М1 уменьшается по отношению к интенсивности полосы в области 1250 нм с увеличением расстояния от зеркала. Это свидетельствует о том, что излучение в полосе усиления и компонента Келли в области 1150 нм имеют различную расходимость. Появление спектральных компонент в области 1150 и 1450 нм обусловлено предельно высокой пиковой мощностью излучения в кристалле, приводящей к возникновению пиков Келли в резонаторе. Таким образом, при приближении ДГЗ резонатора к нулю в резонаторе растет дополнительный канал потерь генерируемого излучения в результате перекачки энергии из основной полосы в полосы 1150 и 1450 нм. Также видно, что при увеличении ДГЗ призм происходит сдвиг в длинноволновую область максимумов в спектрах, регистрируемых после зеркал М1 и М5, что можно объяснить изменением ДГЗ резонатора (суммарной по всем элементам резонатора ДГЗ) при увеличении ДГЗ материала призм (рис. 2).

Далее мы перешли к анализу возникающих в лазере импульсов при уменьшении пропускания выходного зеркала до 5%. Дисперсия призм варьировалась от 1120 фс^2 до 1300 фс^2 . На рис. 4 приведены спектры импульсов в резонаторе после поворотного зеркала М5 и после выходного зеркала М1. С увеличением суммарной ДГЗ резонатора в регистрируемых спектрах (рис. 4) происходит рост компонент в полосе 1400–1550 нм и снижение средней выходной мощности лазера с 500 мВт до 320 мВт, что соответствует импульсам с энергиями 5 и 3.2 нДж. В корреляционных функциях выходных импульсов для всех представленных спектров наблюдался положительный частотный чирп в виде «крыльев» по краям основного пика корреляционной функции (рис. 4 *b*) [38]. Увеличение дисперсии призм путем движения призм в пучок лазера приводит к небольшому изменению длительности от 47 фс до 35 фс , что соответствует вариации пиковой мощности импульса в резонаторе от 1.9 до 2.1 МВт. Генерирующиеся импульсы обладают весьма большим чирпом, что отражается на изменении произведения $\Delta\nu\Delta\tau$ от 0.43 до 0.7 (рис. 4 *c*) и объясняется невозможностью идеальной компенсации набега фазы импульсов с ширинами спектров до 80 нм. Интерферометрическая автокорреляционная функция таких импульсов приобретает небольшой «пьедестал» (рис. 4 *b*).

В случае, если на месте выходного зеркала М1 установить высокоотражающее, то регистрировались спектры, представленные на рис. 5. Здесь,

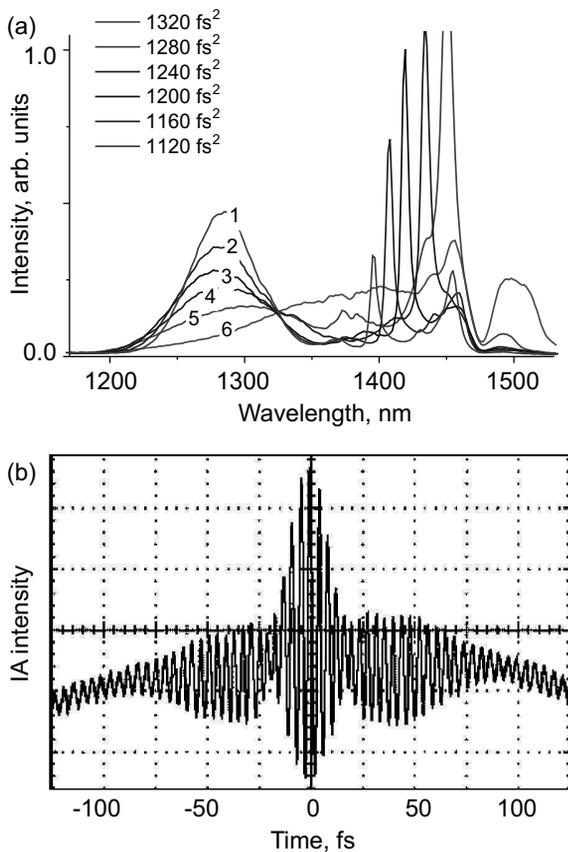


Рис. 5. *a* — Спектры излучения лазера хром-форстерита за ломающим зеркалом М5 (сплошные линии) с коэффициентом пропускания М1 0.2% при ДГЗ призм 1120 fs^2 (зеленая линии), 1160 fs^2 (голубая линия), 1200 fs^2 (синяя линия), 1240 fs^2 (бардовая линия), 1280 fs^2 (красная линии) и 1320 fs^2 (фиолетовая линии). *b* — Интерференционная автокорреляционная функция импульса при дисперсии призм 1280 fs^2

внесение призм в пучок изменяло дисперсию от 1120 fs^2 до 1320 fs^2 . На рис. 5 *b* показана характерная автокорреляционная функция импульса с шириной спектра около 90 нм, формирующегося при дисперсии 1280 fs^2 . Видно, что здесь формируется двугорбая структура импульса, в которой узнается последовательное сильное воздействие фазовой самомодуляции и дисперсии групповых скоростей, приводящие к сильному разбеганию красного и синего крыльев спектра [31]. Пассивные потери генерируемого излучения в кристалле форстерита при поглощении излучения на длине волны 1250 нм составляли около 7%, и суммарные потери при пропускании излучения на зеркалах резонатора М1–М5 — примерно 1%. Видно, что в резонаторе существенно выросли компоненты в области 1400–1550 нм, уве-

личилась перекачка энергии из генерационной полосы в боковые компоненты Келли. При четырехволновом нелинейно-оптическом взаимодействии, как и при фазовой самомодуляции импульса, новые спектральные компоненты формируются по обе стороны центральной длины волны импульса. Интенсивность длинноволновых компонент в спектре значительно сильнее коротковолновых, это объясняется наличием сильного поглощения хром-форстерита в диапазоне до 1150 нм [39]. Для нашего кристалла на длине волны 1150 нм поглощение составляет 27%. Спектральные компоненты в диапазоне 1150 нм, возникающие при перекачке энергии импульсов из основной полосы 1250 нм в процессе четырехволнового взаимодействия и спектрального уширения генерируемых импульсов, также претерпевают сильное поглощение в кристалле и не проявляются в спектрах за зеркалом М5 на фоне сильных полос в области 1250 и 1450 нм.

Чтобы лучше понять особенности перетекания энергии импульса в боковые компоненты, был проведен теоретический анализ генерации импульсов в лазере с пассивной синхронизацией мод, работающий в квазисолитонном режиме формирования импульсов. Избыток энергии, который возникает у импульса каждый проход и не удается заключить в фундаментальный солитон, может быть направлен на усиление дисперсионной волны, расположенной на частоте ω_{dm} на периферии солитона $\omega_{dm} = \omega_0 \pm \Delta\omega_m$, если ее фаза ϕ_{dm} отличается от фазы солитона ϕ_s на $\phi_{dm} - \phi_s = 2\pi m$, где k_j — дисперсия групповых скоростей j -го порядка, а произведение $k_{2i}l_i$ — ДГЗ различных отрезков резонатора. Фаза солитона на дисперсионной длине волны

$$\phi_s(\omega_0 \pm \Delta\omega_m) \approx \sum (k_0(\omega_0) \pm k_1\Delta\omega_m - k_2/(2\tau_s^2))l_i \quad (5)$$

и фаза самой ДВ

$$\phi_{dm}(\omega_0 \pm \Delta\omega_m) \approx \approx (k_0(\omega_0) \pm k_{1i}\Delta\omega_m + k_{2i}\Delta\omega_m^2/2 \pm k_{3i}\Delta\omega_m^3/6)l_i. \quad (6)$$

Используя условие фазового синхронизма для перекачки энергии $\phi_{dm} - \phi_s = 2\pi m$, имеем

$$3D_2(\Delta\omega_m^2 + \tau_s^{-2}) \pm D_3\Delta\omega_m^3 = 12\pi m, \quad (7)$$

где $D_3 = \sum k_{3i}l_i$. Здесь мы перешли к суммарной ДГЗ (D_2) и суммарной ДТП (D_3) по всем элементам резонатора. Случай $m = 0$ не наблюдается в экспериментах, поэтому будем рассматривать $m = \pm 1, \pm 2$. Когда суммарная дисперсия третьего порядка незначительна, $D_3\Delta\omega_m/|D_2| \ll 1$, выражение для ближайшего положения компоненты Келли получается

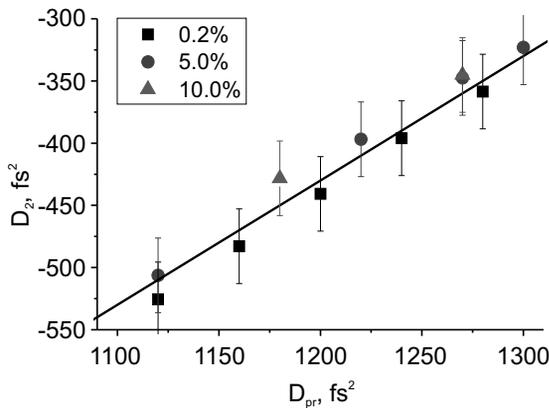


Рис. 6. Вычисленная (сплошная линия) и экспериментально определенная по формуле (8) через положение спектральных компонент Келли ($\Delta\omega_1$) суммарная ДГЗ резонатора с выходным зеркалом M1 0.2% (черные квадраты), 5% (красные круги) и 10% (фиолетовые треугольники)

$$\Delta\omega_1 = \frac{1}{\tau_s} \sqrt{\frac{\pi\tau_s^2}{D_2} - 1}. \quad (8)$$

Минимальная наблюдаемая в экспериментах отстройка по частоте пиков Келли от центра лазерного импульса, при которой еще наблюдается стабильная генерация импульсов, составляет не менее двух обратных длительностей импульса $\Delta\omega_1^{min} \approx 2/\tau_s$, что дает оценку для минимальной длительности импульсов по полувысоте $T_s^{min} \approx 1.1\sqrt{D_2}$. Влияние пиковой мощности импульсов P на положение боковых компонент Келли видно, если подставить условие существования фундаментального солитона

$$\frac{\tau_s^2}{2D_2} = \frac{2l_{cr}}{\gamma P}$$

в уравнение (8):

$$\Delta\omega_1 = \frac{1}{\tau_s} \sqrt{\frac{4\pi l_{cr}}{\gamma P} - 1}. \quad (9)$$

В эксперименте можно влиять на суммарную ДГЗ резонатора, вдвигая призмы в лазерный пучок внутри компрессора.

На рис. 6 точками нанесены рассчитанные по формуле (8) значения суммарной ДГЗ резонатора (D_2) по экспериментальным положениям компонент Келли ($\Delta\omega_1$), показанных на рис. 3–5 при различных ДГЗ призм и степени пропускания выходного зеркала 10%, 5% и 0.2%. Данный расчет также требовал измерения длительностей импульсов. На точность расчета дисперсии сказывалась большая ши-

рина спектра, усложняющая определение центральной длины волны, погрешность определения длительности импульсов, а также величины дисперсии призм. Вместе с этим, для всех выходных зеркал наблюдается линейная зависимость с единым наклоном и слегка различающимися вертикальными отстройками. Также на этот график была наложена вычисленная суммарная ДГЗ резонатора, проходящая вблизи всех экспериментально полученных значений. Таким образом подтверждена связь формируемых узких спектральных линий с компонентами Келли и показана возможность оценки суммарной дисперсии резонатора путем точного измерения их положения при варьировании положения призм.

Как следует из экспериментов, эффективность перекачки энергии из основной полосы в диапазон 1350 – 1550 нм определяется суммарной ДГЗ резонатора и пиковой мощностью импульсов в резонаторе. Интенсивность внутррезонаторных импульсов отвечает за эффективность спектрального уширения при солитонной динамике импульса в резонаторе, а дисперсия резонатора лазера определяет спектральное положение генерируемых импульсов и пиков Келли. Таким образом, и рост ДГЗ резонатора, и рост внутррезонаторной интенсивности приводят к росту перекачки энергии импульсов в спектральные диапазоны с малым коэффициентом усиления резонатора. Эти процессы ярко выражены в спектрах импульсов внутри резонатора лазера и не проявляются в спектрах импульсов после выходного зеркала вследствие спектральных характеристик зеркал и разной расходимости спектральных компонент в полосе усиления лазера и спектральных компонент, возникающих в резонаторе в результате процессов нелинейно-оптического взаимодействия излучения в кристалле активного элемента. Регистрация спектров импульсов внутри резонатора лазера позволяет понять, какие нелинейно-оптические процессы преобладают в лазере и ограничить их влияние на эффективность генерации при конструировании оптической схемы резонатора и параметров накачки. Таким образом, в нашей работе приводится анализ измеренных спектров и длительностей излучения в различных точках резонатора при варьировании пропускания выходного зеркала лазера. Показано, что при генерации предельно коротких импульсов длительностью до 30 фс с пиковой мощностью до 2 МВт в кристалле хром-форстерита происходит спектральное уширение солитона, которое является причиной дополнительных пассивных потерь в резонаторе лазера и ограничивает получение импульсов предельной минимальной длительности

с максимальной выходной мощностью. Представленные результаты имеют значение при выборе оптимальных режимов работы фемтосекундных лазерных генераторов с пассивной синхронизацией мод, в частности на кристалле хром-форстерита.

Благодарности. Авторы выражают благодарность руководителю научной группы профессору А. М. Желтикову за всестороннюю поддержку.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант № 22-22-00792).

ЛИТЕРАТУРА

1. M. D. Perry and G. Mourou, *Science* **264**, 917 (1994).
2. C. N. Danson, C. Haefner, J. Bromage, T. Butcher, J.-C. F. Chanteloup, E. A. Chowdhury, A. Galvanauskas, L. A. Gizzi, J. Hein, and D. I. Hillier, *High Power Laser Science and Engin.* **7**, e54 (2019).
3. R. R. Gattass and E. Mazur, *Nature Photonics* **2**, 219 (2008).
4. T. Steinmetz, T. Wilken, C. Araujo-Hauck, R. Holzwarth, T. W. Hansch, L. Pasquini, A. Manescau, S. D'odorico, M. T. Murphy, and T. Kentscher, *Science* **321**, 1335 (2008).
5. T. Udem, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch, *Nature* **416**, 233 (2002).
6. W. R. Zipfel, R. M. Williams, and W. W. Webb, *Nat. Biotech.* **21**, 1369 (2003).
7. S. Yue, M. N. Slipchenko, and J.-X. Cheng, *Laser & Photonics Rev.* **5**, 496 (2011).
8. M.-R. Tsai, S.-Y. Chen, D.-B. Shieh, P.-J. Lou, and C.-K. Sun, *Biomed. Opt. Express* **2**, 2317 (2011).
9. M. Blokker, P. C. de W. Hamer, P. Wesseling, M. L. Groot, and M. Veta, *Sci. Rep.* **12**, 11334 (2022).
10. S. You, H. Tu, E. J. Chaney, Y. Sun, Y. Zhao, A. J. Bower, Y.-Z. Liu, M. Marjanovic, S. Sinha, and Y. Pu, *Nature Commun.* **9**, 2125 (2018).
11. A. A. Lanin, A. S. Chebotarev, I. V. Kelmanson, M. S. Pochechuev, E. S. Fetisova, D. S. Bilan, E. K. Shevchenko, A. A. Ivanov, A. B. Fedotov, and V. V. Belousov, *J. Phys.: Photonics* **3**, 044001 (2021).
12. V. Petričević, S. K. Gayen, R. R. Alfano, K. Yamagishi, H. Anzai, and Y. Yamaguchi, *Appl. Phys. Lett.* **52**, 1040 (1988).
13. S.-W. Chu, I.-H. Chen, T.-M. Liu, P. C. Chen, C.-K. Sun, and B.-L. Lin, *Opt. Lett.* **26**, 1909 (2001).
14. C.-K. Sun, S.-W. Chu, S.-Y. Chen, T.-H. Tsai, T.-M. Liu, C.-Y. Lin, and H.-J. Tsai, *J. Struct. Biol.* **147**, 19 (2004).
15. L. V. Doronina-Amitonova, A. A. Lanin, O. I. Ivashkina, M. A. Zots, A. B. Fedotov, K. V. Anokhin, and A. M. Zheltikov, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 231109 (2011).
16. M. S. Pochechuev, A. A. Lanin, I. V. Kelmanson, D. S. Bilan, D. A. Kotova, A. S. Chebotarev, V. Tarabykin, A. B. Fedotov, V. V. Belousov, and A. M. Zheltikov, *Opt. Lett.* **44**, 31669 (2019).
17. T. Wang and C. Xu, *Optica* **7**, 947 (2020).
18. A. A. Lanin, A. S. Chebotarev, M. S. Pochechuev, I. V. Kelmanson, D. A. Kotova, D. S. Bilan, Y. G. Ermakova, A. B. Fedotov, A. A. Ivanov, V. V. Belousov, and A. M. Zheltikov, *J. Biophotonics* **13**, e201900243 (2020).
19. A. A. Lanin, M. S. Pochechuev, A. S. Chebotarev, I. V. Kelmanson, D. S. Bilan, D. A. Kotova, V. S. Tarabykin, A. A. Ivanov, A. B. Fedotov, V. V. Belousov, and A. M. Zheltikov, *Opt. Lett.* **45**, 836 (2020).
20. A. A. Lanin, A. S. Chebotarev, M. S. Pochechuev, I. V. Kelmanson, D. A. Kotova, D. S. Bilan, A. A. Ivanov, A. S. Panova, V. S. Tarabykin, A. B. Fedotov, V. V. Belousov, and A. M. Zheltikov, *J. Raman Spectroscopy* **51**, 1942 (2020).
21. P. F. Curley, Ch. Spielmann, T. Brabec, F. Krausz, E. Wintner, and A. J. Schmidt, *Opt. Lett.* **18**, 54 (1993).
22. S. M. J. Kelly, *Electron. Lett.* **28**, 806 (1992).
23. M. L. Dennis and I. N. Duling, *IEEE J. Quantum Electronics* **30**, 1469 (1994).
24. H. A. Haus, *IEEE J. Selected Topics in Quantum Electronics* **6**, 1173 (2000).
25. L. E. Nelson, D. J. Jones, K. Tamura, H. A. Haus, and E. P. Ippen, *App. Phys. B: Lasers and Optics* **65**, 277 (1997).

26. M. E. Fermann, M. J. Andrejco, M. L. Stock, Y. Silberberg, and A. M. Weiner, *App. Phys. Lett.* **62**, 910 (1993).
27. K. Tamura, E. P. Ippen, and H. A. Haus, *IEEE Photonics Technology Lett.* **6**, 1433 (1994).
28. J. Li, Y. Wang, H. Luo, Y. Liu, Z. Yan, Z. Sun, and L. Zhang, *Photon. Res. PRJ* **7**, 103 (2019).
29. A. A. Ivanov, A. A. Voronin, A. A. Lanin, D. A. Sidorov-Biryukov, A. B. Fedotov, and A. M. Zheltikov, *Opt. Lett.* **39**, 205 (2014).
30. A. A. Ivanov, G. N. Martynov, A. A. Lanin, A. B. Fedotov, and A. M. Zheltikov, *Opt. Lett.* **45**, 1890 (2020).
31. *Springer Handbook of Lasers and Optics*, ed. by F. Träger, Springer, New York (2012).
32. Z. Burshtein and Y. Shimony, *Opt. Materials* **20**, 87 (2002).
33. Refractive Index of SCHOTT-SF (Dense flint)-SF14, <https://refractiveindex.info>
34. S.-H. Chia, T.-M. Liu, A. A. Ivanov, A. B. Fedotov, A. M. Zheltikov, M.-R. Tsai, M.-C. Chan, C.-H. Yu, and C.-K. Sun, *Opt. Express* **18**, 24085 (2010).
35. H. Cankaya, S. Akturk, and A. Sennaroglu, *Opt. Lett.* **36**, 1572 (2011).
36. B. Chassagne, A. Ivanov, J. Oberle, G. Jonusauskas, and C. Rulliere, *Opt. Commun.* **141**, 69 (1997).
37. G. Cerullo, S. De Silvestri, and V. Magni, *Opt. Lett.* **19**, 1040 (1994).
38. T. Hirayama and M. Sheik-Bahae, *Opt. Lett.* **27**, 860 (2002).
39. V. Petričević, S. K. Gayen, and R. R. Alfano, *App. Phys. Lett.* **53**, 2590 (1988).

НАРУШЕНИЕ СИММЕТРИИ ПРИ РАССЕЯНИИ НЕЙТРОНОВ

*В. В. Лукашевич**

*Петербургский институт ядерной физики им. Б. П. Константинова
Национального исследовательского центра «Курчатовский институт»
188300, Гатчина, Ленинградская обл., Россия*

Поступила в редакцию 3 ноября 2022 г.,
после переработки 19 июня 2023 г.
Принята к публикации 27 июня 2023 г.

Показано, что зависящая от спиральности мнимая часть слабого взаимодействия нейтронов не сохраняет пространственную четность и нарушает T -инвариантность. Нарушение симметрии при обращении времени имеет место также и при сильном спин-зависимом взаимодействии. Групповая структура преобразования спиноров в обоих случаях связана с преобразованием спиноров по группе Лоренца.

DOI: 10.31857/S0044451024020068

1. ВВЕДЕНИЕ

В данной работе анализируются свойства дискретных симметрий при трансмиссии нейтронов. Произведение дискретных симметрий CPT , где C — зарядовая четность, P — инверсия системы координат и T — обращение времени, является сохраняющейся величиной и составляет содержание фундаментальной теоремы Людерса–Паули. Эта теорема доказана исходя из двух основополагающих принципов: лоренц-инвариантности и локальности взаимодействия. При этом эрмитовость гамильтониана или лагранжиана не является обязательной [1]. В силу этой теоремы дискретные симметрии могут нарушаться только парами. Далее рассмотрим возможные случаи.

1. Если сохраняется симметрия при обращении времени T , то возможны нарушения пространственной P и зарядовой C четностей. Комбинированная четность CP при этом также сохраняется. Это свойство слабого взаимодействия проявляется, например, при бета-распаде. При действии преобразований C и P на динамические переменные изменяется спиральность, а частица заменяется на античастицу, так что левополяризованная частица переходит в правополяризованную античастицу. Это свойство является отражением того факта, что слабое

взаимодействие разделило мир на левое и правое. В слабом взаимодействии участвуют левополяризованные частицы или правополяризованные античастицы.

2. При сохранении зарядовой четности C могут быть нарушены пространственная четность P и симметрия при обращении времени T . Другими словами, при таком слабом взаимодействии нарушается комбинированная четность CP , но сохраняется PT . Преобразование PT в этом случае оставляет направление импульса неизменным, но меняется знак спина, т. е. при этом преобразовании изменяется спиральность. Поскольку в рассеянии нейтронов античастицы не участвуют, изменение спиральности при рассеянии нейтронов является указанием на нарушение T -инвариантности.

3. При сохранении пространственной четности P могут иметь место нарушения зарядовой четности C и симметрия при обращении времени T . Таким свойством может обладать сильное взаимодействие.

Цель данной работы — показать, что три рассмотренных типа нарушенных парных симметрий имеют место при спин-зависимом рассеянии нейтронов на нулевой угол в веществе мишени. Основное внимание будет уделено слабому взаимодействию, которое кроме хорошо известного нарушения пространственной четности может приводить еще и к нарушению симметрии при обращении времени. Прежде чем рассматривать симметрии спин-зависимого взаимодействия нейтронов в веществе мишени, обсудим свойства дискретных преобразований в рамках CPT -теоремы. Инверсии системы коор-

* E-mail: lukashevich_vv@npni.nrcki.ru

динат P и зарядовое сопряжение C представляют собой пример унитарных преобразований. Оператор P изменяет знаки координат на противоположные, а оператор C заменяет частицу на античастицу. Операция обращения времени является неунитарной операцией. При простой замене $t \rightarrow -t$ спин и импульс частицы изменяют знак, но при этом изменяются перестановочные соотношения между координатой и импульсом $[x, p_x] = -i\hbar$, а также коммутационные соотношения между компонентами спина $[s_i, s_j] = i\epsilon_{i,j,k}s_k$ и другие соотношения, содержащие спин или импульс. При этом в операторе эволюции положительно-частотные решения становятся отрицательно-частотными. Если состояние с нулевой энергией принято считать вакуумом, то энергии становятся меньше вакуумных, чего не должно быть.

Чтобы законы природы не зависели от направления времени, принято определять оператор обращения времени T как произведение унитарного оператора U_T на операцию комплексного сопряжения K . Такой оператор называется антиунитарным и результат его действия сохраняет соотношения между другими операторами. Обоснование такого представления дано в книгах по теории квантовых полей Пескина и Шредера [2], Вайнберга [3] и структуре атомного ядра Бора и Моттельсона [4]. При таком определении оператор обращения времени меняет знак мнимой единицы. Тогда, если $T(\sigma) = -\sigma$, то $T(i\sigma) = i\sigma$ и $T(\psi(t)) = \psi^*(-t)$.

2. СИММЕТРИИ СПИН-ЗАВИСИМЫХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ НЕЙТРОНОВ

В первом борновском приближении амплитуду рассеяния нейтронов вперед обычно представляют в следующей форме:

$$f(0) = a + g_w(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p}/p) + g_{str}(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{I}/I) + d(\boldsymbol{\sigma} \cdot [\mathbf{I} \times \mathbf{p}]), \quad (1)$$

где s, p, I — соответственно спин, импульс нейтрона и угловой момент ядер мишени. Коэффициенты в соотношении (1) являются в общем случае комплексными числами. Константы a и g_{str} определяют силу спин-независимого и спин-зависимого сильных взаимодействий. Слабое взаимодействие представлено вторым слагаемым в (1), а последнее слагаемое в (1) описывает предполагаемое слабое взаимодействие спина нейтрона с векторным полем, создаваемым векторным произведением углового момента ядра на импульс нейтрона.

В течение последних 40 лет сложилось устойчивое представление, что слабое взаимодействие

при спин-зависимом рассеянии нейтронов нарушает только пространственную четность и степень такого нарушения является измерение асимметрии рассеяния в зависимости от спиральности нейтронов. Также полагалось, что нарушение симметрии при обращении времени возникает при рассеянии нейтронов на векторном поле, представленном последним слагаемым в (1), и мерой T -неинвариантного эффекта является величина мнимой части коэффициента d . Такое представление является не совсем точным, поскольку в анализе симметрии амплитуды рассеяния не учитывалось антиунитарное свойство операции обращения времени.

Рассмотрим симметрии различных слагаемых в выражении (1). Подействуем оператором T на второе слагаемое в выражении (1), тогда будем иметь $T(g_w) = g_w^*$. Этот результат означает, что при обращении времени вещественная и мнимая части амплитуды со спиральностью отличаются симметриями. Вещественная часть остается P -нечетной и сохраняющей CP -четность, а мнимая часть, ответственная за спин-зависимое поглощение нейтронов, P -нечетна и меняет знак при обращении времени, т. е. левополяризованные частицы переходят в правополяризованные, что явно нарушает T -инвариантность или CP -четность. Таким образом, для измерения эффекта нарушения симметрии при обращении времени достаточно измерения поляризации с неполяризованным начальным пучком, проходящим через неполяризованную мишень.

В слабом взаимодействии участвуют левополяризованные частицы или правополяризованные античастицы, поэтому левополяризованные нейтроны поглощаются сильнее, чем правополяризованные, и после прохождения мишени пучок приобретает правую поляризацию, т. е. происходит переход нулевой поляризации в конечную. В соответствии с оптической теоремой для неполяризованной мишени полное сечение процесса зависит от спиральности в мнимой части амплитуды (1):

$$\sigma_{\pm} = \frac{4\pi}{k} f_{\pm}(0),$$

где знаки указывают на спиральность, и это сечение больше для левополяризованных нейтронов. Возможен и другой случай, когда последовательно измеряется прохождение нейтронов, поляризованных по импульсу и против него. В обоих случаях измеренная величина асимметрии определяет поляризацию пучка и, следовательно, степень нарушения T -инвариантности.

Сильное спин-зависимое взаимодействие характеризуется тем, что нейтроны со спинами, проти-

воположными спинам ядер мишени, взаимодействуют сильнее, чем нейтроны, спины которых параллельны спинам мишени. И если вещественная часть взаимодействия (скаляр) сохраняет все дискретные симметрии, то мнимая часть (мнимый скаляр) нарушает T -инвариантность и, в силу CPT -теоремы, зарядовую четность C . Это означает, что при зарядовом сопряжении, т. е. при переходе к античастицам, поглощение будет сильнее в случае параллельных спинов.

Вещественная часть взаимодействия, представленная последним слагаемым в (1), нарушает пространственную четность и симметрию при обращении времени, т. е. нарушает CP -четность. Мнимая же часть нарушает P -четность и сохраняет CP -четность.

Таким образом, мы показали, что в рассеянии нейтронов возможны все парные нарушения дискретных симметрий, допускаемые CPT -теоремой.

3. СЛАБОЕ СПИН-ЗАВИСИМОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ И ГРУППА ЛОРЕНЦА

Амплитуда рассеяния (1) с точностью до постоянной представляет собой фурье-образ потенциала по нулевому переданному импульсу, фурье-образ в этом случае равен среднему значению потенциала по объему ядра и называется псевдопотенциалом Ферми. Поэтому далее будем последовательно рассматривать спин-зависимые взаимодействия, соответствующие слагаемым амплитуды (1). Тогда слабое взаимодействие нейтронов определяется следующим образом:

$$W = -g_w(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p}/p)/2. \quad (2)$$

Операторная часть выражения (2) является псевдоскаляром, т. е. величиной, которая не сохраняет пространственную четность. Подставим (2) в выражение для оператора эволюции $U = \exp(-iWt/\hbar)$ и введем следующую параметризацию:

$$\vartheta = t \operatorname{Re} g_w/\hbar, \quad \varphi = -t \operatorname{Im} g_w/\hbar. \quad (3)$$

Выбор знака минус перед $\operatorname{Im} g_w$ сопряжен с тем фактом, что в слабом взаимодействии участвуют левополяризованные частицы. С другой стороны, при таком выборе столбец биспинора, как будет видно ниже, имеет традиционный вид с правым спинором в верхней позиции столбца. С параметризацией (3) оператор эволюции будет иметь следующий вид:

$$U = \exp(i(\vartheta - i\varphi)(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n})/2). \quad (4)$$

При $\varphi = 0$ матрица (4) представляет собой унитарную группу $SU(2)$ поворота спиноров на угол $\vartheta/2$ вокруг направления импульса нейтрона, определяемого единичным вектором \mathbf{n} . Эта группа имеет соответствие ортогональной группе $SO(3)$ поворотов в трехмерном пространстве на угол ϑ . Эти группы гомоморфны.

В общем виде оператор (4) совпадает с матрицей преобразования спиноров по группе $SL(2, C)$. Имеется соответствие этой группы с группой Лоренца $SO(1, 3)$, где цифры 1, 3 указывают на сигнатуру пространства Минковского. Группа $SL(2, C)$ гомоморфна группе $SO(1, 3)$. Сведения об этих группах можно найти, например, в [5].

Известно, что собственные преобразования Лоренца не образуют группу, потому что генераторы бустов K_i ($i = x, y, z$) в трех направлениях не имеют замкнутой алгебры. Замкнутая алгебра возникает при объединении преобразований Лоренца с трехмерными вращениями. Три генератора вращений, которыми являются компоненты углового момента J_i , и три генератора бустов K_i , где $i = x, y, z$, рождают шестипараметрическую группу. При переходе к новым генераторам $M_i = (J_i + iK_i)/2$ и $N_i = (J_i - iK_i)/2$ возникают два неприводимых представления группы Лоренца, характеризующихся генераторами M_i и N_i соответственно. Коммутаторы для каждого из генераторов подобны коммутаторам углового момента: $[M_x, M_y] = iM_z$ плюс циклические перестановки и такое же правило для коммутаторов с генераторами N_i .

При переходе к спинорам возможны два случая. В первом случае $M_i = J_i = \sigma_i/2$, $K_i = -i\sigma_i/2$ и $N_i = 0$. Это представление обозначается как $(1/2, 0)$ и описывает правые спиноры, поскольку спин в этом случае параллелен направлению буста (или импульсу частицы). Во втором случае (это представление $(0, 1/2)$) направление спина противоположно импульсу. При этом $M_i = 0$, $N_i = J_i = \sigma_i/2$ и $K_i = i\sigma_i/2$, т. е. подгруппа с генераторами N_i в этом случае описывает левые спиноры. Тогда, обозначив через ϑ угол трехмерного поворота и через φ угол буста, можем написать результирующую матрицу:

$$\begin{pmatrix} \psi_r \\ \psi_l \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \exp(i(\vartheta - i\varphi)(\exp \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n})) & 0 \\ 0 & \exp(i(\vartheta + i\varphi)(\exp \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n})) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \psi_{0r} \\ \psi_{0l} \end{pmatrix}. \quad (5)$$

Как уже отмечалось, матрицы, входящие в выражение (5), представляют собой группу $SL(2, C)$ преобразования спиноров по группе Лоренца. Начальные спиноры неразличимы для покоящихся частиц или для частиц неполяризованного пучка. Полагая их равными $\psi_{0r} = \psi_{0l}$, найдем соотношение для ко-

нечных спиноров и представим это соотношение в матричном виде:

$$0 = \begin{pmatrix} -1 & \exp(\varphi(\exp \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n})) \\ \exp(-\varphi(\exp \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n})) & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \psi_r \\ \psi_l \end{pmatrix}.$$

Разворачивая экспоненты, будем иметь окончательное выражение:

$$0 = \begin{pmatrix} -1 & \operatorname{ch} \varphi + (\exp \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n}) \operatorname{sh} \varphi \\ \operatorname{ch} \varphi - (\exp \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n}) \operatorname{sh} \varphi & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \psi_r \\ \psi_l \end{pmatrix}. \quad (6)$$

Здесь при выводе использовалось следующее свойство матриц Паули:

$$(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n})^{2k} = 1, \quad (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n})^{2k+1} = (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n}).$$

Унитарные матрицы группы SU(2) поворота спиноров на угол $\vartheta/2$ при выводе равенства (6) сокращаются и не дают вклада в связь между правыми и левыми спинорами. Как это следует из равенства (6), при инверсии системы координат $\mathbf{n} \rightarrow -\mathbf{n}$ и спиноры меняются местами. То же самое происходит и при обращении времени, потому что изменяется знак гиперболического синуса из-за изменения знака угла φ при этой операции.

С точки зрения группового подхода к слабому взаимодействию (2) можно сделать некоторые заключения. Во первых, при T -неинвариантном рассеянии мнимая часть слабого потенциала отрицательна. Вещественная часть этого потенциала инициирует вращение спиноров по группе SU2, что для трехмерных вращений означает прецессию спина в псевдомагнитном поле, направленном вдоль импульса и равном $\operatorname{Re} g_w$. Слабое взаимодействие нарушает пространственную четность и T -инвариантность.

Отметим универсальность соотношения (6). Слабое взаимодействие в (6) представлено параметризацией угла φ согласно (3). Но возможна и другая параметризация, например, релятивистская, при которой $\operatorname{tg} \varphi = \beta = v/c$, где c — скорость света, а v — скорость буста. Полагая скорость света равной единице, имеем

$$\operatorname{ch} \varphi = \gamma = (1 - \beta^2)^{-0.5} = E/m$$

и

$$\operatorname{sh} \varphi = \beta\gamma = p/m,$$

где E , m и p — соответственно энергия, масса и импульс частицы. Далее, используя равенство $\mathbf{n}p = \mathbf{p}$, вместо (6) получим уравнение Дирака, записанное для биспиноров:

$$0 = \begin{pmatrix} -m & E + \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p} \\ E - \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p} & -m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \psi_r \\ \psi_l \end{pmatrix}.$$

Это является отражением известного факта, что преобразование спиноров по группе Лоренца приводит к уравнению Дирака. При переходе к 4-спинорам и гамма-матрицам это уравнение приобретает традиционный вид в форме однострочной записи.

4. СПИНОВАЯ МАТРИЦА ПЛОТНОСТИ, СКОРОСТЬ СЧЕТА НЕЙТРОНОВ И АСИММЕТРИЯ РАССЕЯНИЯ

Для выделения эффектов нарушенных симметрий будем использовать формализм спиновой матрицы плотности, описанный в [6]. Обратимся к системе уравнений (5) и вычислим матрицу плотности, исходя из первого уравнения для волновой функции:

$$\begin{aligned} \varrho_f &= \psi_r \psi_r^\dagger = \\ &= \exp\left(\frac{i}{2}(\vartheta - i\varphi)(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n})\right) \varrho_0 \times \\ &\quad \times \exp\left(-\frac{i}{2}(\vartheta + i\varphi)(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n})\right). \quad (7) \end{aligned}$$

Для начальной матрицы поток нейтронов будем считать нормированным на единицу. Тогда эта матрица имеет следующий вид:

$$\varrho_0 = \frac{1}{2}(I + \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p}_0),$$

где \mathbf{p}_0 — вектор поляризации, I — единичная матрица и след матрицы плотности равен единице. Если поляризация начального пучка равна нулю, то выражение (7) принимает вид

$$\varrho_f = \frac{1}{2} \exp(\varphi(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n})) = \frac{1}{2} (\operatorname{ch} \varphi + (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n}) \operatorname{sh} \varphi). \quad (8)$$

На выходе из мишени пучок приобретает поляризацию $\mathbf{p}_f = \mathbf{n} \operatorname{sh} \varphi$ и новую нормировку интенсивности, равную $\operatorname{ch} \varphi$. Для того чтобы перейти к числу отсчетов, пучок должен пройти через анализатор, матрица плотности которого определяется его эффективностью

$$\varrho_a = \frac{1}{2}(I + \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p}_a),$$

тогда для скорости счета будем иметь

$$N_{\pm} = \operatorname{Tr} \varrho_f \varrho_{a\pm}, \quad (9)$$

где знаки указывают на эффективность измерения поляризации по импульсу и против него. Вычислив отношение разности числа отсчетов нейтронов с

противоположными поляризациями к их сумме, получим величину асимметрии

$$A_w = -(\mathbf{p}_a \cdot \mathbf{n}) \operatorname{th} \varphi = -(\mathbf{p}_a \cdot \mathbf{n}) \operatorname{th}(t \operatorname{Im} g_w / \hbar). \quad (10)$$

В этом выражении псевдоскаляр нарушает пространственную четность, а гиперболический тангенс изменяет знак при обращении времени. В результате асимметрия становится P -нечетной и T -неинвариантной. В силу того, что матрица плотности пучка нейтронов коммутирует с матрицей плотности анализатора, устройство анализатора, которое теперь назовем поляризатор, можно установить перед мишенью. Асимметрия в этом случае останется прежней.

Вычислим теперь эффект прецессии спина в псевдомагнитном поле слабого взаимодействия. Для этого будем считать, что в выражении (7) импульс нейтрона направлен по оси x и это направление задается единичным вектором \mathbf{n}_{px} , где индекс p указывает на импульс, а начальный поток нейтронов имеет поперечную поляризацию вдоль единичного псевдовектора, например, $\mathbf{P}_y = \mathbf{n}_y P_y$. Тогда в выражении (7) начальная матрица плотности будет равна

$$\varrho_0 = \frac{1}{2}(I + \boldsymbol{\sigma}_y \cdot \mathbf{P}_y). \quad (11)$$

Нейтроны после прохождения мишени поступают в анализатор, для которого выберем направление z и эффективность \mathbf{P}_{az} :

$$\varrho_z = \frac{1}{2}(I + \boldsymbol{\sigma}_z \cdot \mathbf{P}_{az}). \quad (12)$$

Здесь псевдовектор поляризации $\mathbf{P}_z = \mathbf{n}_z P_z$. Тогда, используя выражения (7), (9), (11) и (12), для величины эффекта можно записать

$$A = \frac{N_+ - N_-}{N_+ + N_-} = -\frac{([\mathbf{n}_{px} \times \mathbf{n}_y] \cdot \mathbf{n}_{az}) P_{az} P_y \sin \vartheta}{\operatorname{ch} \varphi}. \quad (13)$$

В этом выражении скалярное произведение представляет собой псевдоскаляр, зависящий от времени. При обращении времени изменяется также знак угла ϑ , поэтому это выражение P -нечетно, T -инвариантно и в силу CPT -теоремы, если она справедлива, нарушает зарядовую четность. CP -четность в этом случае сохраняется. При уменьшении энергии p -волнового резонанса и увеличении длины мишени эффект нарушения T -инвариантности в соответствии с (10) растет, так как увеличивается угол φ . При этом также растет угол поворота спина ϑ и уменьшается величина амплитуды синуса в (13), т. е. величина P -нечетного эффекта уменьшается.

Описанный аппарат применим для определения свойств симметрии сильного взаимодействия. Для этого введем новую параметризацию: $\vartheta = t \operatorname{Re} g_{str} / \hbar$ и $\varphi = -t \operatorname{Im} g_{str} / \hbar$, и единичный псевдовектор \mathbf{n}_I в направлении углового момента ядра. Тогда унитарной группе $SU(2)$ будет соответствовать группа вращения в трехмерном пространстве $SO(3)$, описывающая прецессию спина в псевдомагнитном поле, направленном по угловому моменту ядра. В поляризованных мишенях такие поля могут быть значительными [7]. Все дискретные симметрии при этом сохраняются.

С параметризацией по сильному взаимодействию в уравнении (6) изменяется определение левого и правого. Скалярное произведение в этом уравнении определяет проекцию спина нейтрона на направление углового момента ядра. И для правых спиноров эта проекция положительна, а для левых — отрицательна. При операции обращения времени спиноры меняются местами. Это означает, что сильное спин-зависимое взаимодействие разделило мир на левое и правое. Нейтроны сильнее участвуют в этом взаимодействии с левой поляризацией, а антинейтроны — с правой.

Изменив параметризацию в выражении (10), получим выражение для асимметрии рассеяния для спин-зависимого сильного взаимодействия:

$$A_{str} = -(\mathbf{p}_a \cdot \mathbf{n}_I) \operatorname{th} \varphi.$$

Это выражение не сохраняет T -инвариантность, так как изменяет знак при обращении времени. В соответствии с CPT -теоремой при этом должна нарушаться также и зарядовая четность.

И, наконец, рассмотрим симметрии взаимодействия спина нейтрона с векторным полем $\mathbf{V} = [\mathbf{I} \times \mathbf{p}]$, представленным последним членом в амплитуде (1). В соответствии с изложенным подходом вещественная часть такого взаимодействия описывает прецессию спина вокруг этого поля и эта прецессия P -нечетна и T -неинвариантна. Если во взаимодействии с векторным полем имеется мнимая компонента, то выражение для асимметрии имеет следующий вид:

$$A_V = -(\mathbf{p}_a \cdot \mathbf{n}_V) \operatorname{th} \varphi,$$

где \mathbf{n}_V — единичный вектор в направлении векторного поля. Как следует из вида этого выражения, асимметрия рассеяния P -нечетна и T -инвариантна.

5. ОБСУЖДЕНИЕ

Слабое взаимодействие для мало нуклонных систем на 7 порядков меньше сильного, поэтому на-

блюдать его чрезвычайно сложно. Но, как было предсказано в работах [8–11], эффект нарушения пространственной четности усилен в миллион раз в нейтронных реакциях, имеющих место вблизи p -волнового резонанса. Это усиление возникает из-за того, что при рассеянии нейтронов через компаунд-состояние слабое взаимодействие перемешивает близко лежащие уровни одного спина, но противоположной четности. Возникает состояние с неопределенной четностью и распад этого состояния приводит к нарушению пространственной симметрии.

Эксперименты, выполненные в ОИЯИ [12–14], подтвердили это предсказание и положили начало интенсивному исследованию нейтронного рассеяния через компаунд-состояния вблизи p -волнового резонанса. Эксперименты проводились в ПИЯФ (Гатчина), ОИЯИ (Дубна), LANL (Los Alamos), КЕК (Tsukuba). Детальная информация имеется в обзорах [15, 16]. Этот же механизм усиления слабого взаимодействия был расширен и на эффекты, не сохраняющие CP -четность за счет нарушения симметрии при обращении времени и нарушения пространственной четности [17–20].

На масштаб исследований указывают 125 ссылок в [21] на работы, относящиеся к обсуждаемому вопросу. Как отмечается в обзоре [21], эффект нарушения четности был измерен на 150 резонансах. Асимметрия при рассеянии нейтронов с правой и левой поляризациями имеет величину от нескольких долей процента до 10 %. В La^{139} эффект, согласно [22], составляет 10.2 %. Эта величина при энергии нейтронов $E = 0.734$ эВ и длине мишени в 10 см, в соответствии с (10), позволяет определить мнимую часть взаимодействия $\text{Im } g_w$. По порядку эта величина оказывается равной 10^{-11} эВ.

Нарушение комбинированной четности или нарушение симметрии при обращении времени было открыто в 1964 году в распадах K_0 -мезонов и позднее в распадах B_0 -мезонов. Поиски нарушения CP -четности в других физических явлениях, например, ядерных реакциях, рассеянии на ядрах, в атомной и молекулярной физике, в молекулах и кристаллах пока не привели к успеху, так же как и многолетние измерения электрического дипольного момента нейтрона, которые дают только ограничение на эту величину. Но, как показано в данной работе, зависящее от спиральности рассеяние нейтронов на нулевой угол за счет слабого взаимодействия оказалось хорошо измеряемым эффектом несохранения симметрии при обращении времени. Вещественная часть этого взаимодействия нарушает P -четность с

сохранением CP -четности, а мнимая часть создает P -нечетный эффект с нарушением CP -четности.

Тот факт, что измеренное более 40 лет назад в многочисленных экспериментах нарушение T -инвариантности в рассеянии нейтронов вблизи p -волнового резонанса не было озвучено до сих пор, следует отнести к историческому курьезу. Другим, длящимся около 40 лет, заблуждением является представление о способе обнаружения эффекта нарушения симметрии при обращении времени. Считалось, что этот эффект будет открыт, если измерить величину взаимодействия нейтрона с векторным полем, представленным в соотношении (1) последним членом.

Величины $\text{Re } d$ и $\text{Im } d$ не измерялись, обсуждались только схемы выделения $\text{Im } d$, поскольку спин-зависимое поглощение измерить проще, чем прецессию спина. Обсуждению этих схем посвящено большое количество работ, ссылки на которые можно найти в [23]. До сих пор считалось, что мерой T -неинвариантного эффекта является величина $\text{Im } d$. Но это не так, поскольку при обращении времени величина $i \text{Im } d (\boldsymbol{\sigma} \cdot [\mathbf{I} \times \mathbf{p}])$ знака не изменяет, т. е. T -инвариантна. По этой же причине мнимый псевдоскаляр $i \text{Im } g_w (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})$ и мнимый скаляр $i \text{Im } g_{str} (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{I})$, соответственно, T -неинвариантны. То есть в этом случае исследование тройной корреляции смысла не имеет.

Другим устойчивым стереотипом является утверждение, что в сильных взаимодействиях все дискретные симметрии сохраняются по отдельности. Но, как было показано, сильное спин-зависимое взаимодействие нейтронов с поляризованными ядрами нарушает симметрию при обращении времени. Величина такого нарушения может быть весьма значительна. В качестве примера укажем на прохождение нейтронами поляризованной среды из He^3 . При энергии нейтронов менее 10 эВ сечение поглощения при противоположно направленных спинах много больше сечения в случае параллельных спинов [24]. В этой работе поляризация пучка нейтронов, полученная при прохождении поляризованного He^3 , составляет 25 %. Это максимальная величина эффекта нарушения T -инвариантности.

В распадах K_0 -мезонов эффект нарушения CP -четности составляет три случая на тысячу, в распадах B_0 -мезонов — восемь случаев на тысячу. В рассеянии нейтронов T -неинвариантный эффект проявляется гораздо сильнее. Для исследованных изотопов его величина находится в пределах от нескольких долей процента до 10 %, но еще больше T -неинвариантный эффект проявляется в сильном взаимодействии.

В заключение заметим, что как в трансмиссии нейтронов, так и в распадах K_0 - и V_0 -мезонов эффекты T -неинвариантности объясняются использованием неэрмитовых гамильтонианов.

Укажем на близкую аналогию в объяснении T -неинвариантного рассеяния нейтронов и распадов K -мезонов. В книге Окуня [25] отмечается, что в первом порядке теории возмущений с эффективным четырехфермионным локальным взаимодействием эффект нарушения CP -четности усилен примерно на шесть порядков благодаря малой разности масс K_1 - и K_2 -мезонов. Взаимодействие, нарушающее CP -четность, перемешивает эти состояния, так что матричный элемент смешивания оказывается равным недиагональной мнимой массе, которая определяет мнимую константу взаимодействия и, соответственно, нарушение T -инвариантности. На кварковом уровне мнимая часть взаимодействия возникает в произведении тока на ток при введении мнимой фазы в матрицу смешивания кварков.

Во всех случаях первичным является T -неинвариантный эффект, который при сохранении CPT -четности эквивалентен нарушению CP -симметрии.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. Паули, *Нильс Бор и развитие физики*, Изд-во иностр. лит., Москва (1958).
2. М. Е. Пескин, Д. В. Шредер, *Введение в квантовую теорию поля*, Научно-издательский центр «Регулярная и хаотическая динамика», Ижевск (2001).
3. С. Вайнберг, *Квантовая теория поля*, т. 1, Физматлит, Москва (2003).
4. О. Бор, Б. Моттelson, *Структура атомного ядра*, т. 1, Мир, Москва (1971).
5. А. П. Исаев, В. А. Рубаков, *Теория групп и симметрий*, Мат. науки, Изд-во Красанд, Москва (2018).
6. Л. Д. Ландау, Е. М. Лившиц, *Квантовая механика*, Физматлит, Москва (2004).
7. А. Abragam and M. Goldman, *Nuclear Magnetism: Order and Disorder*, Int. Series of Monographs on Physics, Oxford Univ. Press, Oxford (1982).
8. O. Sushkov and V. Flambaum, JETP Lett. **32**, 353 (1980).
9. O. Sushkov and V. Flambaum, Sov. Phys. Usp. **25**, 1 (1982).
10. V. Flambaum and O. Sushkov, Nucl. Phys. A **412**, 13 (1984).
11. V. Flambaum and O. Sushkov, Nucl. Phys. A **435**, 352 (1985).
12. V. Afimenkov, S. Borzakov, V. Tkhan, Y. Mareev, L. Pikelner, D. Ruben, A. Khrykin, and E. Sharapov, JETP Lett. **34**, 295 (1981).
13. V. Alfimenkov, S. Borzakov, V. Van Thuan, Y. Mareev, L. Pikelner, A. Khrykin, and E. Sharapov, Nucl. Phys. A **398**, 93 (1983).
14. V. Alfimenkov, S. Borzakov, V. Tkhan, Y. Mareev, L. Pikelner, I. Frank, A. Khrykin, and E. Sharapov, JETP Lett. **39**, 8 (1984).
15. G. E. Mitchell, J. D. Bowman, and H. A. Weidenmuller, Rev. Mod. Phys. **71**, 445 (1999).
16. G. Mitchell, J. Bowman, S. Penttila, and E. Sharapov, Phys. Rep. **354**, 157 (2001).
17. V. Bunakov and V. Gudkov, Nucl. Phys. A **401**, 93 (1983).
18. C. R. Gould, N. R. Bowman, and J. D. Robertson, *Tests of Time Reversal Invariance in Neutron Physics*, World Sci., Singapore (1987).
19. V. Gudkov, Phys. Rep. **212**, 77 (1992).
20. V. Flambaum and G. Gribakin, Progr. Particle Nucl. Phys. **35**, 423 (1995).
21. V. Flambaum and A. Mansour, arXiv:2111.02037v2 [nucl-th].
22. A. P. Serebrov et al., JETP Lett. **62**, 10 (1995).
23. S. K. Lamoreaux and R. Golub, Phys. Rev. D **50**, 5632 (1994); V. Gudkov and Hirochiko M. Shimizu, arXiv: 1710.02193v1 [nucl-th]; В. Е. Бунаков, И. С. Новиков, *Материалы XXXIV зимней школы*, ПИЯФ РАН, Санкт-Петербург (2000); V. R. Skoy, Takashi Ino, Y. Masuda, S. Muto, and G. Kim, J. Res. Inst. Stand. Technol. **110**, 421 (2005).
24. Н. Н. Колачевский, Ю. В. Прокофьевичев, В. Р. Ской, И. И. Собельман, В. Н. Сорокин, КЭ **33**, 18 (2003).
25. Л. Б. Окунь, *Лептоны и кварки*, Наука, Москва (1990).

К ТЕОРИИ ГОМОГЕННОГО ЗАРОЖДЕНИЯ НЕКОГЕРЕНТНЫХ ВКЛЮЧЕНИЙ В ТВЕРДЫХ РАСТВОРАХ

М. С. Вещунов *

*Институт проблем безопасного развития атомной энергетики Российской академии наук
115191, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 16 августа 2023 г.,
после переработки 16 августа 2023 г.
Принята к публикации 7 сентября 2023 г.

На основе критического анализа традиционной теории гомогенного зарождения выделений новой фазы в твердых растворах показано, что предсказание теории об увеличении свободной энергии зародышеобразования за счет упругой энергии, связанной с различием атомных объемов двух фаз, оказывается неверным для некогерентных частиц. К этому выводу приводит учет равновесных точечных дефектов в исходной фазе, которые могут поглощаться на границе раздела между частицей и матрицей в процессе зарождения некогерентной частицы, что приводит к релаксации упругих напряжений. Соответственно, разработана новая кинетическая модель скорости зарождения некогерентных выделений в пересыщенном твердом растворе легирующих атомов, которая также обобщена для учета избыточных вакансий, образующихся в неравновесных условиях закалочных испытаний.

DOI: 10.31857/S004445102402007X

1. ВВЕДЕНИЕ

При превращениях в твердом состоянии, т.е. между двумя твердыми фазами, обычно возникает энергия упругой деформации из-за несоответствия объема и/или формы зародыша новой фазы матрице. Изменения объема и формы зародыша не могут происходить свободно из-за жесткости окружающей матрицы, в результате чего возникают упругие деформации. При этом энергия упругой деформации и поверхностная энергия межфазной границы между зародышем и матрицей вносят положительный вклад в свободную энергию системы и, следовательно, действуют как барьер для зародышеобразования. Величина упругой энергии обычно зависит от таких факторов, как форма зародыша, несоответствие объемов зародыша и матрицы, а также от того, является ли интерфейс между матрицей и зародышем когерентным, полукogerентным или некогерентным [1–3].

Поверхностная энергия некогерентных границ раздела твердых фаз обычно составляет около

$(0.7 - 1) \text{ Дж} \cdot \text{м}^{-2}$, тогда как энергия когерентной границы раздела обычно в несколько раз меньше. Поэтому гомогенное зародышеобразование наиболее часто происходит с формированием когерентной границы раздела с относительно малой межфазной энергией.

Однако большая разница в атомных объемах и различие в кристаллических структурах могут приводить к формированию некогерентной границы раздела между зародышем и матрицей. Например, в алюминиевых сплавах с ГЦК-матрицей когерентные включения кремния не наблюдаются [4]. Чистый кремний имеет кубическую структуру алмаза, при этом отсутствуют свидетельства существования низкоэнергетической гранецентрированной кубической модификации. Кроме того, кремний имеет больший атомный объем, чем Al, с коэффициентом объемного несоответствия 0.2, который представляется слишком большим для формирования когерентной границы.

Выделение кремния из пересыщенного твердого раствора Al (1% Si) в виде равноосных частиц, хаотично распределенных внутри зерен, наблюдалось методами рентгеноструктурного анализа, а также методами световой и электронной микроскопии [5, 6]. Аналогичные наблюдения с использованием просвечивающего электронного микроскопа в

* E-mail: msvesh@gmail.com

сплавах Al–Si при различных тепловых обработках и закалках были представлены в [7].

Современные принципы создания новых сплавов предполагают, что идеальной микроструктурой для достижения сверхвысокой прочности и устойчивости к разрушению в ГЦК-матрице Al являются дисперсоиды новых фаз ультрамелких размеров. Основу такой микроструктуры составляют всего две бинарные системы сплавов: Al–Si и Al–Ge. Поэтому эти сплавы могут служить не только в качестве моделей для научных исследований зарождения некогерентных фаз, но и основой нового класса технических алюминиевых сплавов [8].

В традиционной теории нуклеации для превращений, в которых влияние энергии деформации является существенным (см., например, [1–3]), появление зародыша заданного размера происходит с увеличением свободной энергии Гиббса его образования ΔG_0 за счет дополнительного вклада упругой энергии. Упругая энергия пропорциональна числу атомов x в зародыше, так что

$$\Delta G_0(x) = x(-\Delta g_b + \Delta g_{el}) + \Delta G_{surf}, \quad (1)$$

где $\Delta g_b = kT \ln S_x$ — объемное изменение свободной энергии, приходящееся на один атом, участвующий в образовании зародыша в твердом растворе с пересыщением S_x ; Δg_{el} — упругая энергия, приходящаяся на атом; $\Delta G_{surf} = \gamma 4\pi R^2$ — поверхностная энергия зародыша с поверхностным натяжением γ .

Для определения полной энергии деформации, возникающей при формировании в матрице некогерентного сферического зародыша радиуса

$$R_x = \left(3 \frac{\Omega}{4\pi}\right)^{1/3} x^{1/3},$$

может быть использована модель Набарро (см. [3]), дающая

$$\Delta G_{el} = x\Delta g_{el} = 6\mu \left(\frac{3K}{3K+4\mu}\right) \delta^2 V_p, \quad (2)$$

где δ — деформация превращения (для простоты принята $\ll 1$) за счет образования сферической частицы $V_p = x\Omega$, помещенной в сферическую полость объемом $V_m = x\Omega_m$, рассчитываемая с помощью соотношения

$$\frac{V_p}{V_m} = (1 + \delta)^3 \approx 1 + 3\delta;$$

Ω и Ω_m — атомные объемы в частице и матрице, соответственно; μ — модуль сдвига матрицы, K — модуль объемного сжатия частицы. Общая граница

между включением и матрицей при совмещении будет занимать промежуточное положение между исходными поверхностями полости и включением с деформацией несоответствия

$$\varepsilon = \frac{\delta}{1 + 4\mu/3K}.$$

Однако в случае $3K \gg 4\mu$, когда вся деформация воспринимается матрицей и, следовательно, $\varepsilon \approx \delta$, это уравнение можно упростить:

$$\Delta G_{el} = x\Delta g_{el} \approx 6\mu\delta^2 V_p. \quad (3)$$

Минимизация уравнения (1),

$$\frac{\partial \Delta G_0(x)}{\partial x} = 0,$$

позволяет определить критический размер зародыша,

$$\begin{aligned} x^* &= \frac{32\pi}{3} \left(\frac{\gamma}{kT \ln S_x - \Delta g_{el}} \right)^3 \Omega^2 = \\ &= \frac{32\pi}{3} \left(\frac{\gamma}{kT \ln S_x - 6\mu\Omega\delta^2} \right)^3 \Omega^2, \end{aligned} \quad (4)$$

и, соответственно, свободную энергию Гиббса образования критического ядра,

$$\Delta G_0(x^*) = \frac{16\pi}{3} \frac{\gamma^3 \Omega^2}{(kT \ln S_x - 6\mu\Omega\delta^2)^2}, \quad (5)$$

которая показывает, что деформация несоответствия снижает эффективную движущую силу формирования зародышей и увеличивает критическое пересыщение до величины

$$S_x^* = \exp\left(\frac{6\mu\Omega\delta^2}{kT}\right) > 1,$$

см. [1–3].

В данной статье представлен критический анализ традиционной теории зарождения некогерентных зародышей в твердых растворах, основанной на уравнениях (4) и (5). Показано, что учет равновесных точечных дефектов в исходной фазе, которые могут поглощаться на границе раздела между частицей и матрицей в процессе зарождения частиц, приводит к устранению барьера зародышеобразования, связанного с энергией упругой деформации, создаваемой зародышами новой фазы. На этой основе разработана новая модель скорости зарождения некогерентных выделений в рамках теории бинарной гомогенной нуклеации Райса применительно к

бинарной системе пересыщенного твердого раствора и равновесных вакансий. Кинетическая модель также может быть обобщена для учета избыточных вакансий, образующихся в неравновесных условиях (например, при закалке).

2. КРИТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ ТРАДИЦИОННОЙ ТЕОРИИ

Следует отметить, что уравнения (4) и (5) определенно справедливы для когерентных частиц, поскольку вакансии и собственные межузельные элементы могут лишь захватываться (или адсорбироваться) на границе раздела частица-матрица и, таким образом, не изменяют упругую энергию частиц.

Однако для некогерентных частиц, на границе раздела которых с матрицей точечные дефекты поглощаются (или абсорбируются), ситуация может существенно измениться: из-за поглощения вакансий и эмиссии собственных междоузлий (с общим числом n) граница частицы избыточного объема перемещается наружу, что приводит к одновременно увеличению объема полости (в которую частица помещена),

$$V_m \rightarrow V'_m = (x + n)\Omega_m,$$

радиуса кривизны границы раздела,

$$\begin{aligned} R \rightarrow R' &= \left(3 \frac{\Omega_m}{4\pi}\right)^{1/3} (x + n)^{1/3} = \\ &= \left[3 \frac{\Omega}{4\pi(1 + \varphi)}\right]^{1/3} (x + n)^{1/3} \end{aligned}$$

и площади ее поверхности

$$S \rightarrow S'.$$

В свою очередь это приводит к уменьшению упругой энергии ΔG_{el} за счет уменьшения деформации превращения

$$\delta \rightarrow \delta' = \frac{V_p - V'_m}{3V_p}$$

и увеличению поверхностной энергии ΔG_{surf} .

Если предположить, что упругая деформация в матрице вблизи границы раздела мала (что будет самосогласованно подтверждено ниже) и, следовательно, химический потенциал точечных дефектов, находящихся в равновесии с интерфейсом, близок к нулю, то свободная энергия системы равновесных

точечных дефектов в матрице (с нулевым химическим потенциалом) не изменяется в результате их поглощения на границе раздела.

В этом случае уравнение (1) принимает вид

$$\begin{aligned} \Delta G_0(x, n) &= \\ &= -kTx \ln S_x + 4\pi\gamma \left(\frac{3}{4\pi}\Omega_m\right)^{2/3} (x + n)^{2/3} + \\ &\quad + \frac{2\mu\Omega}{3} \left(\frac{1}{1 + \varphi}\right)^2 x \left(\varphi - \frac{n}{x}\right)^2, \end{aligned} \quad (6)$$

где

$$\varphi = \frac{\Omega - \Omega_m}{\Omega_m}.$$

Минимизация (6) по отношению к двум переменным,

$$\frac{\partial \Delta G_0(x, n)}{\partial x} = \frac{\partial \Delta G_0(x, n)}{\partial n} = 0,$$

приводит к новому выражению для размера критического зародыша:

$$\begin{aligned} x^* &= \frac{288\pi\gamma^3\Omega^2}{[4\mu\Omega(1 - q)]^3 q} \approx \\ &\approx \frac{32\pi}{3} \left(\frac{\gamma}{kT \ln S_x}\right)^3 \Omega^2 \left(1 - \frac{3kT}{8\mu\Omega} \ln S_x\right), \end{aligned} \quad (7)$$

где

$$q = \left(1 - \frac{3kT}{2\mu\Omega} \ln S_x\right)^{1/2}$$

или

$$q \approx 1 - \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln S_x$$

в первом приближении по малому параметру

$$\frac{3kT}{4\mu\Omega} \ll 1,$$

и, соответственно,

$$\frac{n^*}{x^*} = (\varphi + 1)q - 1 \approx \varphi - \frac{3kT}{4\mu\Omega}(1 + \varphi) \ln S_x, \quad (8)$$

тогда как свободная энергия образования критического зародыша рассчитывается как

$$\begin{aligned} \Delta G_0^* &\equiv \Delta G_0(x^*, n^*) = \\ &= \frac{48\pi\gamma^3\Omega^2 [4\mu\Omega(q - 1) + 6kT \ln S_x]}{[4\mu\Omega(1 - q)]^3 q} \approx \\ &\approx \frac{16\pi}{3(kT \ln S_x)^2} \gamma^3\Omega^2 \left[1 + \frac{3kT}{4\mu\Omega} \left(\frac{1}{1 + \varphi}\right)^2 \ln S_x\right] \approx \\ &\approx \frac{16\pi}{3} \frac{\gamma^3\Omega^2}{(kT \ln S_x)^2}, \end{aligned} \quad (9)$$

что свидетельствует о том, что упругая деформация в матрице практически полностью компенсируется поглощенными точечными дефектами и, следовательно, уравнения (4) и (5) становятся неприменимыми для некогерентных выделений. Поэтому вывод традиционной теории о том, что энергия деформации, создаваемая зародышами новой фазы, является дополнительным барьером для зародышеобразования, неверен и должен быть скорректирован при оценке скорости зародышеобразования некогерентных частиц (как показано ниже).

Интересно заметить, что, как следует из (8), при относительно малой деформации несоответствия негабаритных частиц с

$$0 < \varphi < \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln S_x$$

критический зародыш не поглощает, а испускает вакансии, $n^* < 0$; это происходит потому, что при таких несоответствиях уменьшение поверхностной энергии зародыша за счет эмиссии вакансий преобладает над увеличением энергии упругой деформации. Это дополнительно доказывает важность самосогласованного учета изменений объема и поверхности зародыша вследствие поглощения/эмиссии точечных дефектов.

В типичных экспериментах с пересыщенными сплавами (см., например, [5–7]) максимальное количество частиц зарождалось при закалке образцов, создающей избыток вакансий в матрице (при уровне пересыщения $S_v = c_v/c_v^{(0)}$, где c_v – безразмерная неравновесная концентрация вакансий, а $c_v^{(0)}$ – ее равновесное значение), что позволяет существенно ускорить процесс нуклеации. Вообще говоря, также следует учитывать избыток собственных междоузлий в закаленной (неравновесной) матрице (с пересыщением $S_i = c_i/c_i^{(0)}$). Однако при условии $c_i^{(0)}/c_v^{(0)} \ll 1$ перед закалкой, которое обычно реализуется в металлах (поскольку собственные междоузельные атомы имеют достаточно высокие энтальпии образования по сравнению с вакансиями [10]), быстрая рекомбинация при последующем охлаждении приводит к выживанию только избыточных вакансий.

Влияние избыточных вакансий на барьер нуклеации рассматривался Расселом [11]. Его предсказания, будучи качественно правильными, количественно оказались не совсем адекватными из-за некоторых несоответствий в формулировке его модели, которых можно избежать после некоторой ее модификации. В частности, в свободной энергии образования некогерентной частицы учитывалось из-

менение ее объема за счет поглощения вакансий, но пренебрегалось увеличением площади интерфейса (что делает такой подход несогласованным, как пояснялось выше).

Более адекватный результат можно получить, обобщив представленную выше модель с учетом избыточных вакансий, образующихся в неравновесных (закалочных) условиях, что позволяет скорректировать модель Рассела. Для этого в уравнение (6) следует ввести дополнительный член $-kTn \ln S_v$, описывающий изменение свободной энергии n вакансий вследствие их поглощения на границе раздела,

$$\begin{aligned} \Delta G_0(x, n) = & -kTx \ln S_x - kTn \ln S_v + \\ & + 4\pi\gamma \left(\frac{3}{4\pi} \Omega_m \right)^{\frac{2}{3}} (x+n)^{\frac{2}{3}} + \\ & + \frac{2}{3} \mu\Omega \frac{1}{(1+\varphi)^2} x \left(\varphi - \frac{n}{x} \right)^2, \end{aligned} \quad (10)$$

минимизация которой по x и n в критической точке в первом приближении по параметру $3kT/4\mu\Omega \ll 1$ дает

$$\frac{n^*}{x^*} = (\varphi + 1)\tilde{q} - 1 \approx \varphi - (\varphi + 1) \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v}, \quad (11)$$

где

$$\tilde{q} = \left(1 - \frac{3kT}{2\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v} \right)^{1/2}$$

и

$$\begin{aligned} x^* = & \frac{288\pi\gamma^3\Omega^2}{[3kT(1+\varphi) \ln S_v + 4\mu\Omega(1-\tilde{q})]^3 \tilde{q}} \approx \\ \approx & \frac{32\pi}{3} \left(\frac{\gamma}{kT} \right)^3 \frac{\Omega^2}{\left[\ln S_x + \varphi \ln S_v + \frac{3}{8} \frac{kT}{\mu\Omega} \left(\ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2 \right]^3} \times \\ & \times \left(1 + \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v} \right) \end{aligned} \quad (12)$$

Соответственно выражение для свободной энергии образования критического зародыша принимает вид

$$\begin{aligned} \Delta G_0^* = & 48\pi\gamma^3\Omega^2 \times \\ & \times \frac{4\mu\Omega(q-1) + 6kT \ln S_x + 3kT[-2 + (1+\varphi)\tilde{q}]}{[4\mu\Omega(1-\tilde{q}) + 3kT(1+\varphi) \ln S_v]^3 \tilde{q}} \approx \\ \approx & \frac{16\pi}{3} \frac{\gamma^3\Omega^2}{(kT)^2} \frac{1}{\left[\ln S_x + \varphi \ln S_v + \frac{3}{8} \frac{kT}{\mu\Omega} \left(\ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2 \right]^3} \times \\ & \times \left\{ \ln S_x + \varphi \ln S_v + \frac{3kT}{2\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v} \ln S_v + \right. \\ & \left. + \frac{3}{4} \frac{kT}{\mu\Omega} \left[\left(\frac{1}{1+\varphi} \right)^2 + \frac{3}{2} \right] \left(\ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2 \right\}, \end{aligned} \quad (13)$$

с критическим пересыщением $\ln S_x^* \approx -\varphi \ln S_v$.

Поэтому результаты расчетов [11] с завышенным барьером нуклеации

$$\Delta G_0^* \approx \frac{16\pi\gamma^3\Omega^2}{3(kT)^2 \left(\ln S_x + \varphi \ln S_v - \frac{9kT(1-\nu)}{8\mu\Omega(1+\nu)} \ln^2 S_v \right)^2},$$

где ν — коэффициент Пуассона (появившийся из-за ошибочного применения выражения для энергии деформации когерентных частиц к некогерентным частицам), приводили к недооценке влияния избыточных вакансий на барьер нуклеации (наряду с завышением критического пересыщения S_x^*) или даже к исчезновению этого эффекта при типичных значениях $\varphi \approx 0.1$ и $\ln S_v \approx 5$, когда

$$\varphi \ln S_v \approx \frac{9kT(1-\nu)}{8\mu\Omega(1+\nu)} \ln^2 S_v.$$

3. БИНАРНАЯ НУКЛЕАЦИЯ

Проблема зарождения некогерентных выделений в твердых растворах (наблюдаемых в [5, 6]) является примером гомогенного зародышеобразования в бинарных системах, где зародыши можно рассматривать как сферические частицы новой фазы в исходной твердой фазе, содержащей атомы растворенного вещества и вакансии. Однако классическая теория нуклеации [12–14] развивалась применительно к однокомпонентным системам.

Эта теория была обобщена на кинетику нуклеации в бинарных смесях Райсом [15]. В его теории исходная фаза рассматривается как смесь молекул (мономеров) двух компонентов X и Y с молекулярными плотностями N_x и N_y (и соответствующими безразмерным концентрациям c_x и c_y), соответственно, вместе с кластерами всех размеров и составов. При этом каждый кластер характеризуется количеством молекул (или мономеров) x и y видов X и Y , соответственно, которые он включает. Райс показал, что критическая точка неустойчивого равновесия в этом случае соответствует седловой точке (x^*, y^*) на поверхности свободной энергии $\Delta G_0(x, y)$. Он охарактеризовал скорость зарождения значением в критической точке двумерного вектора потока (определенного в фазовом пространстве размеров кластера) $J(x^*, y^*)$, ориентированного в направлении наискорейшего спуска поверхности свободной энергии (ось прохода x').

Соответственно, в выражении Райса для скорости нуклеации

$$\dot{N} = J(x^*, y^*) \approx -f_0(x^*, y^*) \frac{\beta_x^* \beta_y^* (1 + \operatorname{tg}^2 \theta)}{\beta_y^* + \beta_x^* \operatorname{tg}^2 \theta} \times D'_{11} \left(\frac{1}{D_{12}^2 - D_{11}D_{22}} \right)^{1/2}, \quad (14)$$

где $f_0(x, y)$ — равновесная функция распределения по размерам,

$$f_0(x, y) = F \exp \left[-\frac{\Delta G_0(x, y)}{kT} \right], \quad (15)$$

F — предэкспоненциальный фактор, обсуждаемый ниже в разд. 3.1; θ — угол между исходной осью x и осью прохода x' ; $\beta_i^* = \beta_i(x^*, y^*) = 4\pi D_i c_i R^* \Omega^{-1}$, $i = x, y$, — скорости поступления мономеров X и Y в критический кластер (x^*, y^*) радиуса R^* ;

$$D_{ij} = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Delta G_0(x, y)}{\partial x_i \partial x_j} \Big|_{x^*, y^*}$$

— элементы матрицы $\mathbf{D} = (D_{ij})$, определитель которой отрицателен (в соответствии со свойствами седловой точки, см. [16]),

$$\det \mathbf{D} = D_{11}D_{22} - D_{12}^2 < 0;$$

$$D'_{11} = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Delta G_0(x', y')}{\partial x'^2} \Big|_{x^*, y^*} = D_{11} \cos^2 \theta + D_{22} \sin^2 \theta + 2D_{12} \sin \theta \cos \theta, \quad (16)$$

— вторая производная ΔG_0 в направлении x' ортогональной системы координат (x', y') , полученной поворотом исходной системы координат (x, y) на угол θ ; эта производная должна быть отрицательной, $D'_{11} < 0$, чтобы обеспечить максимум свободной энергии в критической точке в направлении оси x' .

Теория Райса была модифицирована Лангером [17] (с последующим рассмотрением Штауфером [18]), который скорректировал ориентацию вектора потока в направлении неустойчивой моды в седловой точке (новая ось прохода x'). Модифицированное значение θ было в явном виде рассчитано в [18] и позже уточнено в [19] как

$$\operatorname{tg} \theta = \begin{cases} s + (r + s^2)^{1/2}, & D_{21} < 0, \\ s - (r + s^2)^{1/2}, & D_{21} > 0, \end{cases} \quad (17)$$

где

$$r = \frac{\beta_y^*}{\beta_x^*}, \quad s = \frac{d_a - r d_b}{2},$$

$$d_a = -\frac{D_{11}}{D_{12}}, \quad d_b = -\frac{D_{22}}{D_{12}}.$$

3.1. Предэкспоненциальный фактор равновесной функции распределения

В теории Райса при условии, что число кластеров N_{xy} мало по сравнению с числом одиночных молекул (мономеров) X и Y в исходной фазе, $N_{xy} \ll N_x, N_y$, предэкспоненциальный множитель F функции равновесного распределения по размерам в уравнении (15) принимает вид

$$F = N_x + N_y. \quad (18)$$

При этом в трех различных случаях, исследованных Райсом [6], предполагалось, что в исходной фазе отсутствует инертный газ-носитель. Применительно к решеточному газу (с плотностью узлов N_0) это предположение соответствует полному заполнению узлов решетки мономерами, т. е.

$$N_x + N_y = N_0.$$

Этот подход является обобщением модели Френкеля [20], характеризующей распределение кластеров по размерам в однокомпонентных сплавах.

Корректность такого подхода применительно к газам в инертной атмосфере (при $N_x + N_y \ll N_0$, где N_0 — общая плотность молекул газовой смеси, включая инертный газ) широко критиковалась в литературе. В частности, Лоте и Паунд [21] предположили, что при разработке теории нуклеации для однокомпонентных систем не были учтены степени свободы, соответствующие трансляциям кластеров. Это привело их к тому, что предэкспоненциальный множитель оказался пропорциональным общей плотности молекул газа (или узлов решетки в случае решеточного газа) N_0 , а не молекул пара (примеси), т. е. к большому расхождению с предыдущими результатами. Аналогичный вывод применительно к решеточному газу был сделан в большом количестве последующих работ, приведенных (и поддержанных) в работе [22].

Это разногласие («трансляционный парадокс») обсуждалось Райсом и Кацем [23], которые исследовали статистическую сумму системы с учетом перестановок мономеров между кластерами и показали, что поправка Лоте и Паунда к теории нуклеации в итоге не возникает (для однокомпонентных систем). Однако в их последующей работе [24], где были подтверждены основные качественные выводы работы [23], был найден поправочный коэффициент, составивший несколько порядков (однако гораздо меньший, чем поправка Лоте и Паунда). Вероятно, по этой причине Кац пренебрег своими предыдущими результатами [23] и модифицировал модель

Френкеля в соответствии с поправкой Лоте и Паунда в своих последующих работах (например, в работах [25, 26]).

Таким образом, противоречие между различными подходами не было разрешено до конца и требовало дальнейшего анализа. Такой анализ был проведен для однокомпонентных систем в недавней работе автора [27] в рамках термодинамического подхода [28] с учетом взаимодействия мономеров с кластерами (рассматриваемого в статистическом подходе [23, 24]), которое не принималось во внимание в модели Лоте и Паунда [21, 22]). Обобщение этого рассмотрения на бинарные системы представлено в Приложении А, где справедливость уравнения (18) обоснована применительно к твердым растворам.

3.2. Скорость нуклеации

При применении теории Райса к зарождению некогерентных частиц индекс x будет присвоен атомам растворенного вещества, а индекс y — вакансиям в матрице. Результаты расчетов элементов матрицы $\mathbf{D} = (D_{ij})$ и других параметров уравнения (14) представлены в Приложении В, где предполагается, что $D_v c_v^{(0)} \geq D_x c_x$, учитывая, что в большинстве металлов коэффициент самодиффузии D_s определяется вакансионным механизмом и таким образом, $D_s \approx D_v c_v^{(0)}$ [10], и что $D_x \approx D_s$ для Si в Al [29], тогда как типичная концентрация Si в Al в экспериментах [5–7] составляла несколько процентов, $c_x \ll 1$. В случае равновесных вакансий в матрице (для которых $c_v^{(0)} \ll c_x$) скорость зарождения некогерентных частиц (количество в единице объема в единицу времени) принимает вид

$$\dot{N} \approx 4\pi D_x c_x^2 \frac{\gamma}{kT} \left(\frac{kT}{4\mu\Omega} \right)^{1/2} \ln^{-1/2} S_x \times \exp \left(-\frac{16\pi\gamma^3\Omega^2}{3(kT)^3 \ln^2 S_x} \right). \quad (19)$$

Для закаливаемых образцов с избытком вакансий в матрице в Приложении В получено более об-

щее выражение

$$\dot{N} \approx \frac{\gamma}{kT} \left(\frac{kT}{4\mu\Omega} \right)^{1/2} \times \frac{4\pi D_x c_x (c_x + c_v)}{\left[\ln S_x + \varphi \ln S_v + \frac{3}{8} \frac{kT}{\mu\Omega} \left(\ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2 \right]^{1/2}} \times \exp \left\{ - \frac{16\pi\gamma^3\Omega^2}{3(kT)^3 \left[\ln S_x + \varphi \ln S_v + \frac{3}{8} \frac{kT}{\mu\Omega} \left(\ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2 \right]^2} \right\}. \quad (20)$$

Из этого уравнения можно сделать вывод, что избыток вакансий в закаливаемых образцах не только снижает барьер нуклеации, но и увеличивает предэкспоненциальный фактор за счет увеличения диффузии растворенных атомов $D_x \propto c_v$ в материалах с вакансионным механизмом диффузии.

Как отмечается в [1], экспериментальное измерение скорости нуклеации при осаждении в твердых растворах чрезвычайно сложно, поскольку измерения удается проводить только в очень ограниченном диапазоне условий экспериментов. Дополнительная трудность связана с расчетом реального числа образующихся частиц, поскольку одновременно может происходить укрупнение частиц за счет их слияния. Поэтому главная цель состоит в том, чтобы найти термодинамическую движущую силу для образования зародышей. При этом, поскольку процесс образования зародышей наиболее чувствителен к величине движущей силы, нет необходимости знать с высокой точностью многие другие (кинетические) факторы в общем выражении для скорости нуклеации. Поэтому ключевой проблемой теории нуклеации в твердых растворах, ввиду множества связанных с ней неопределенностей, является качественно правильное понимание лежащих в ее основе механизмов и их согласованность с экспериментальными наблюдениями. В связи с этим полученные уравнения (19) и (20) для скорости нуклеации могут быть использованы для правильной интерпретации имеющихся и новых наблюдений.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Критически проанализирована традиционная теория гомогенного зарождения некогерентных выделений в твердых растворах [1–3]. Показано, что предсказание теории об увеличении свободной энергии зародышеобразования за счет упругой энергии,

связанной с различием атомных объемов двух фаз, оказывается неверным для некогерентных выделений. Это связано с тем, что учет равновесных точечных дефектов в исходной фазе, которые могут поглощаться на некогерентной границе раздела между частицей и матрицей в процессе зарождения частицы, приводит к релаксации возникающего зародыша внутри матрицы и исчезновению вклада энергии упругой деформации в барьер нуклеации, а также к восстановлению величины критического пересыщения $S_x^* \approx 1$ (завышенной в традиционной теории).

На основании этого в рамках теории Райса бинарной гомогенной нуклеации разработана кинетическая модель скорости зарождения некогерентных выделений в пересыщенном однокомпонентном твердом растворе при учете равновесных вакансий в матрице (в качестве второго компонента).

Модель обобщена для учета избыточных вакансий, образующихся в неравновесных условиях закалочных испытаний в разбавленных сплавах (например, Al–Si). Показано, что избыток вакансий в закаливаемых образцах снижает барьер нуклеации, смещает критическое пересыщение до значения

$$S_x^* \approx -\varphi \ln S_v$$

(которое может существенно отличаться от оценок упрощенной термодинамической модели [11]) и увеличивает предэкспоненциальный кинетический фактор в выражении для скорости нуклеации.

Благодарности. Автор благодарит В. И. Тарасова (ИБРАЭ РАН) за критическое прочтение рукописи и ценные замечания.

ПРИЛОЖЕНИЕ А. РАСЧЕТ ПРЕДЭКСПОНЕНЦИАЛЬНОГО ФАКТОРА РАВНОВЕСНОЙ ФУНКЦИИ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПО РАЗМЕРАМ

Хотя подход Лоте и Паунда [21] правильно выявил ограничения более ранних работ (в которых не учитывалось присутствие инертного газа-носителя), в нем сохранился главный недостаток этих работ, рассматривающих систему мономеров и кластеров как идеальную газовую смесь.

Действительно, такое рассмотрение справедливо только в случае статистики Больцмана (которой подчиняется идеальный газ), когда все частицы распределяются по различным термодинамическим состояниям независимо друг от друга [28]. Для кластеров конечных размеров их взаимодействием

с мономерами (описываемым в статистическом подходе [23, 24] перестановками мономеров между кластерами) нельзя пренебрегать, поскольку кластеры, в отличие от мономеров, не могут рассматриваться как точечные частицы.

В соответствии с общей термодинамикой аддитивность термодинамических величин, таких как свободная энергия или энтропия, сохраняется лишь до тех пор, пока взаимодействие между различными частями системы незначительно, как в случае идеальных газовых смесей, для которых, например, энтропия смеси равна сумме энтропий каждого из газов. Поэтому для неидеальной смеси нескольких веществ (например, мономеров и кластеров) энтропия уже не равна сумме энтропий каждого из веществ [28].

Для нахождения избыточной энтропии смеси мономеров и кластеров обозначим через $\Phi_0(P, T, N_x, N_y)$ свободную энергию Гиббса идеального твердого раствора в кристаллической матрице (с плотностью узлов решетки N_0) мономеров X и Y (с плотностью молекул N_x и N_y , соответственно), химические потенциалы которых равны

$$\mu_i(P, T, c_i) = \psi_i(P, T) + kT \ln c_i, \quad i = x, y,$$

$$c_i = N_i/N_0 \ll 1.$$

Обозначим через α_{xy} небольшое изменение свободной энергии при добавлении в систему одного сферического кластера $X_x Y_y$ (зародыша новой фазы), состоящего из (x, y) мономеров. В термодинамическом подходе кластеры рассматриваются как «макроскопические» подсистемы (или «тела») с $n_x, n_y \gg 1$, распределенные во «внешней среде» (в твердом растворе).

С учетом взаимодействия кластеров с мономерами,

$$X_x Y_y \pm X = X_{x\pm 1} Y_y,$$

$$X_x Y_y \pm Y = X_x Y_{y\pm 1},$$

эту величину следует искать как функцию N_x и N_y , т. е.

$$\alpha_{xy} = \alpha_{xy}(P, T, N_x, N_y).$$

Благодаря тому, что

$$N_{xy} \ll N_x, N_y,$$

где N_{xy} — количество (в единице объема) кластеров размера (x, y) , взаимодействием между класте-

рами можно пренебречь, и, таким образом, свободная энергия принимает вид

$$\Phi = N_x \mu_x + N_y \mu_y + N_{xy} \alpha_{xy}(P, T, N_x, N_y) + kT \ln(N_{xy}!), \quad (21)$$

где член поступательной энтропии

$$kT \ln(N_{xy}!) \approx kT N_{xy} \ln \frac{N_{xy}}{e}$$

учитывает, что все (сферические) кластеры одного размера (x, y) идентичны и, будучи макроскопическими телами, равномерно распределены во внешней среде (представляемой решеточным газом).

Это принципиально отличается от распределения нового идеального газа Z (с плотностью молекул $N_z \ll N \approx N_0$) в существующей смеси решеточных газов, который становится составной частью «среды» и преобразует конфигурационную энтропию

$$kT \ln \frac{N!}{N_0! N_x! N_y!} \approx -kT \left[N_0 \ln \frac{N_0}{N} + N_x \ln \frac{N_x}{N} + N_y \ln \frac{N_y}{N} \right]$$

(которая входит в Φ через члены химических потенциалов) в

$$kT \ln \frac{(N + N_z)!}{N_0! N_x! N_y! N_z!}.$$

Следовательно, дополнительный энтропийный член в уравнении (21) будет иметь вид $kT N_z \ln(N_z/N)$ (вместо $kT N_z \ln(N_z/e)$) с одновременным обращением в нуль члена взаимодействия $N_z \alpha_z$.

Тогда уравнение (21) можно представить в виде [28]

$$\Phi = N_x \mu_x + N_y \mu_y + kT N_{xy} \ln \left[\frac{N_{xy}}{e} \exp \left(\frac{\alpha_{xy}}{kT} \right) \right]. \quad (22)$$

Поскольку Φ должна быть однородной функцией первого порядка по N_x , N_y и N_{xy} [28], член

$$\exp \left[\frac{\alpha_{xy}(P, T, N_x, N_y)}{kT} \right]$$

в аргументе логарифма следует искать в самом общем виде,

$$\frac{f_{xy}(P, T)}{N_x + \beta N_y}.$$

Учитывая, что после переопределения $x \leftrightarrow y$ свободная энергия не должна измениться, можно заключить, что $\beta = 1$. Соответственно, получаем

$$\Phi = N_x \mu_x + N_y \mu_y + kT N_{xy} \ln \left[\frac{N_{xy}}{e(N_x + N_y)} f_{xy}(P, T) \right], \quad (23)$$

или, вводя новую функцию

$$\psi_{xy}(P, T) = kT \ln f_{xy}(P, T),$$

получаем

$$\Phi = N_x \mu_x + N_y \mu_y + N_{xy} \psi_{xy}(P, T) + kT N_{xy} \ln \left[\frac{N_{xy}}{e(N_x + N_y)} \right]. \quad (24)$$

Сравнение уравнений (24) и (21) показывает, что

$$N_{xy} \alpha_{xy}(P, T, N_x, N_y) = N_{xy} \psi_{xy}(P, T) - kT N_{xy} \ln(N_x + N_y). \quad (25)$$

Следовательно, поскольку первый член в уравнении (25), $N_{xy} \psi_{xy}(P, T)$, не зависит от количества мономеров, величина $\psi_{xy}(P, T)$ является стандартной свободной энергией кластера, а второй член уравнения (25), $kT N_{xy} \ln(N_x + N_y)$, описывает избыточную энтропию смеси.

Это приводит к следующим выражениям для химических потенциалов «растворителей»:

$$\mu'_x = \frac{\partial \Phi}{\partial N_x} = \mu_x - kT c_{xy} \approx \mu_x, \quad (26)$$

$$\mu'_y = \frac{\partial \Phi}{\partial N_y} = \mu_y - kT c_{xy} \approx \mu_y, \quad (27)$$

где

$$c_{xy} \approx \frac{N_{xy}}{(N_x + N_y)} \ll 1,$$

и «растворенного вещества»

$$\mu_{xy} = \frac{\partial \Phi}{\partial N_{xy}} = kT \ln c_{xy} + \psi_{xy}. \quad (28)$$

Следовательно, из условия равновесия химической реакции $xX + yY = X_x Y_y$,

$$x\mu_x + y\mu_y = \mu_{xy}, \quad (29)$$

закон действующих масс можно представить в виде

$$c_{xy} \approx \frac{N_{xy}}{N_x + N_y} = K_{xy}(T), \quad (30)$$

с константой равновесия

$$K_{xy}(T) = \exp \left(-\frac{\Delta G_0(x, y)}{kT} \right), \quad (31)$$

где

$$\Delta G_0(x, y) = \psi_{xy} - x\mu_x - y\mu_y$$

— свободная энергия Гиббса образования кластера.

Если концентрации других кластеров также малы, их вклады в полную свободную энергию системы линейны; поэтому равновесная функция распределения по размерам имеет вид

$$f_0(x, y) = (N_x + N_y) \exp \left(-\frac{\Delta G_0(x, y)}{kT} \right), \quad (32)$$

который получается, как уже говорилось выше, в термодинамическом пределе для «макроскопических» кластеров с $x, y \gg 1$. По этой причине замечание [26] о том, что это выражение в применении к кластерам размером (1, 0) должно было бы совпадать с количеством мономеров N_x , не является корректным.

ПРИЛОЖЕНИЕ В. РАСЧЕТ ПАРАМЕТРОВ СКОРОСТИ НУКЛЕАЦИИ

Первая и вторая производные свободной энергии (10) рассчитываются как

$$\begin{aligned} \frac{\partial \Delta G_0(x, n)}{\partial n} = & -kT \ln S_v + \frac{8}{3} \pi \gamma \left(\frac{3}{4\pi} \Omega_m \right)^{\frac{2}{3}} x^{-\frac{1}{3}} \left(1 + \frac{n}{x} \right)^{-\frac{1}{3}} - \\ & - \frac{4\mu\Omega}{3} \frac{1}{(1+\varphi)^2} \left(\varphi - \frac{n}{x} \right), \quad (33) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \Delta G_0(x, n)}{\partial x} = & -kT \ln S_x + \frac{8}{3} \pi \gamma \left(\frac{3}{4\pi} \Omega_m \right)^{\frac{2}{3}} x^{-\frac{1}{3}} \left(1 + \frac{n}{x} \right)^{-\frac{1}{3}} + \\ & + \frac{2\mu\Omega}{3} \frac{1}{(1+\varphi)^2} \left[\varphi^2 - \left(\frac{n}{x} \right)^2 \right], \quad (34) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \Delta G_0(x, n)}{\partial n^2} = & -\frac{8}{9} \pi \gamma \left(\frac{3}{4\pi} \frac{\Omega}{1+\varphi} \right)^{\frac{2}{3}} x^{-\frac{4}{3}} \left(1 + \frac{n}{x} \right)^{-\frac{4}{3}} + \\ & + \frac{4\mu\Omega}{3} \frac{1}{(1+\varphi)^2} \frac{1}{x}, \quad (35) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \Delta G_0(x, n)}{\partial x^2} &= \\ &= -\frac{8}{9} \pi \gamma \left(\frac{3}{4\pi} \frac{\Omega}{1+\varphi} \right)^{\frac{2}{3}} x^{-\frac{4}{3}} \left(1 + \frac{n}{x} \right)^{-\frac{4}{3}} + \\ &\quad + \frac{4\mu\Omega}{3} \frac{1}{(1+\varphi)^2} \frac{1}{x} \left(\frac{n}{x} \right)^2, \quad (36) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \Delta G_0(x, n)}{\partial n \partial x} &= \\ &= -\frac{8}{9} \pi \gamma \left(\frac{3}{4\pi} \frac{\Omega}{1+\varphi} \right)^{\frac{2}{3}} x^{-\frac{4}{3}} \left(1 + \frac{n}{x} \right)^{-\frac{4}{3}} - \\ &\quad - \frac{4\mu\Omega}{3} \frac{1}{(1+\varphi)^2} \frac{1}{x} \frac{n}{x}. \quad (37) \end{aligned}$$

Соответственно, элементы

$$D_{ij} = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Delta G_0(x, y)}{\partial x_i \partial x_j} \Big|_{x^*, y^*}$$

матрицы \mathbf{D} , рассчитанные в первом приближении по малому параметру

$$\frac{3kT}{4\mu\Omega} \sim 10^{-2} \ll 1$$

с использованием (11), принимают вид

$$\begin{aligned} D_{11} &= \frac{\partial^2 \Delta G_0(x, n)}{\partial x^2} \Big|_{x^*, n^*} \approx \\ &\approx \frac{4\mu\Omega}{3} \frac{1}{(1+\varphi)^2} \frac{1}{x^*} \left[\left(\varphi - \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2 - \right. \\ &\quad \left. - \frac{kT}{4\mu\Omega} (1+\varphi)^{\frac{4}{3}} \left(\ln S_x + \varphi \ln S_v + \frac{3kT}{8\mu\Omega} \left(\ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2 \right) \right], \quad (38) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} D_{22} &= \frac{\partial^2 \Delta G_0(x, n)}{\partial n^2} \Big|_{x^*, n^*} \approx \\ &\approx \frac{4\mu\Omega}{3} \frac{1}{(1+\varphi)^2} \frac{1}{x^*} \left(1 - \frac{kT}{4\mu\Omega} \ln S_x \right), \quad (39) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} D_{12} &= \frac{\partial^2 \Delta G_0(x, n)}{\partial n \partial x} \Big|_{x^*, n^*} \approx \\ &\approx -\frac{4\mu\Omega}{3} \frac{1}{(1+\varphi)^2} \frac{1}{x^*} \left[\left(\varphi - \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v} \right) + \right. \\ &\quad \left. + \frac{kT}{4\mu\Omega} (1+\varphi)^{\frac{4}{3}} (\ln S_x + \varphi \ln S_v) \right], \quad (40) \end{aligned}$$

и поэтому детерминант матрицы

$$\begin{aligned} \det \mathbf{D} &= D_{11} D_{22} - D_{12}^2 \approx \\ &\approx - \left(\frac{1}{x^*} \frac{4\mu\Omega}{3} \right)^2 \left(\frac{1}{1+\varphi} \right)^{\frac{8}{3}} \frac{kT}{4\mu\Omega} \times \\ &\quad \times \left(\ln S_x + \varphi \ln S_v + \frac{3kT}{8\mu\Omega} \left(\ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2 \right), \quad (41) \end{aligned}$$

является отрицательным выше критического пере-
сыщения,

$$\ln S_x > \ln S_x^* \approx -\varphi \ln S_v,$$

и тем самым подтверждает, что (x^*, y^*) является седловой точкой. Это приводит к выражению

$$\begin{aligned} (-\det \mathbf{D})^{\frac{1}{2}} &= \frac{1}{x^*} \frac{4\mu\Omega}{3} \left(\frac{1}{1+\varphi} \right)^{\frac{4}{3}} \times \\ &\quad \times \left[\frac{kT}{4\mu\Omega} \left(\ln S_x + \varphi \ln S_v + \frac{3kT}{8\mu\Omega} \left(\ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}}. \quad (42) \end{aligned}$$

Для простоты далее будут анализироваться только относительно большие значения

$$|\varphi| \gg \left| \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v} \right| \sim 0.01,$$

учитывая, что для Si ($\Omega = a_{Si}^3/8$ и $a_{Si} = 0.5431$ нм) в Al ($\Omega_m = a_{Al}^3/4$ и $a_{Al} = 0.4049$ нм) $\varphi \approx 0.2$; для Ge ($\Omega = a_{Ge}^3/8$ и $a_{Ge} = 0.5658$ нм) в Al $\varphi \approx 0.41$; и отрицательное значение $\varphi \approx -0.1$ для некогерентной фазы CuAl₂ в Al. В этих случаях

$$\begin{aligned} \left| \varphi - \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v} \right| &\gg \\ &\gg \frac{kT}{4\mu\Omega} (1+\varphi)^{\frac{4}{3}} (\ln S_x + \varphi \ln S_v) \sim 0.01, \end{aligned}$$

и, следовательно, уравнение (40) можно упростить:

$$D_{12} \approx -\frac{4\mu\Omega}{3} \left(\frac{1}{1+\varphi} \right)^2 \frac{1}{x^*} \left(\varphi - \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v} \right). \quad (43)$$

В рассматриваемом случае

$$\frac{\beta_x^*}{\beta_v^*} = \frac{D_x c_x}{D_v c_v} \ll 1,$$

и из (17) получаем

$$\operatorname{tg} \theta \approx \varphi - \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v},$$

если $D_{21} < 0$, или

$$\varphi - \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln S_x > 0,$$

и

$$\operatorname{tg} \theta \approx - \left| \varphi - \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v} \right|,$$

если $D_{21} > 0$, или

$$\varphi - \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln S_x < 0,$$

или в общем виде

$$\operatorname{tg} \theta \approx \varphi - \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v} \ll 1, \quad (44)$$

$$\cos^2 \theta = \frac{1}{1 + \operatorname{tg}^2 \theta} \approx \frac{1}{1 + \left(\varphi - \frac{3kT}{4\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2} \approx 1, \quad (45)$$

и, таким образом, принимая во внимание, что $\beta_x^* \ll \beta_v^*$, получим

$$\frac{\beta_x^* \beta_v^* (1 + \operatorname{tg}^2 \theta)}{\beta_v^* + \beta_x^* \operatorname{tg}^2 \theta} \approx \beta_x^* (1 + \operatorname{tg}^2 \theta). \quad (46)$$

Подставляя (44)–(46) в (16), получаем выражение

$$D'_{11} \approx -\frac{1}{3} \left(\frac{1}{1 + \varphi} \right)^{\frac{2}{3}} \frac{1}{x^*} kT \times \left(\ln S_x + \varphi \ln S_v + \frac{3}{8} \frac{kT}{\mu\Omega} \left(\ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2 \right), \quad (47)$$

которое отрицательно выше критического пересыщения,

$$\ln S_x > \ln S_x^* \approx -\varphi \ln S_v,$$

и, таким образом, обеспечивает максимум свободной энергии в критической точке в направлении оси x' (и положительный знак правой части уравнения (14)).

С учетом (46) и соотношения

$$R^* = \left[\frac{3\Omega}{4\pi(1 + \varphi)} \right]^{1/3} (x^* + n^*)^{1/3} \approx \left(1 - \frac{kT}{4\mu\Omega} \ln \frac{S_x}{S_v} \right) \frac{2\gamma\Omega/(kT)}{\ln S_x + \varphi \ln S_v + \frac{3}{8} \frac{kT}{\mu\Omega} \left(\ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2} \approx \frac{2\gamma\Omega/(kT)}{\ln S_x + \varphi \ln S_v + \frac{3}{8} \frac{kT}{\mu\Omega} \left(\ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2},$$

уравнение (14) принимает вид

$$\dot{N} \approx \frac{\gamma}{kT} \left(\frac{kT}{4\mu\Omega} \right)^{\frac{1}{2}} \times \frac{4\pi D_x c_x (c_x + c_v)}{\left[\ln S_x + \varphi \ln S_v + \frac{3}{8} \frac{kT}{\mu\Omega} \left(\ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}} \times \exp \left\{ - \frac{16\pi\gamma^3\Omega^2}{3(kT)^3 \left[\ln S_x + \varphi \ln S_v + \frac{3}{8} \frac{kT}{\mu\Omega} \left(\ln \frac{S_x}{S_v} \right)^2 \right]^2} \right\}.$$

Учитывая, что обычно можно пренебречь $c_v^{(0)}$ по сравнению с c_x , в отсутствие избыточных вакансий это уравнение сводится к виду

$$\dot{N} \approx 4\pi D_x c_x^2 \frac{\gamma}{kT} \left(\frac{kT}{4\mu\Omega} \right)^{\frac{1}{2}} \ln^{-\frac{1}{2}} S_x \times \exp \left(- \frac{16\pi\gamma^3\Omega^2}{3(kT)^3 \ln^2 S_x} \right).$$

Следует отметить, что приведенное выше выражение для объема полости $V_m = (x + n)\Omega_m$, используемое в уравнениях (6) и (10), применимо только в случае $\Omega/\Omega_m \leq 2$, что соответствует $\varphi \leq 1$, а в случае $2 < \Omega/\Omega_m \leq 3$ и $\varphi \leq 2$ правильным выражением является

$$V_m = (2x + n)\Omega_m.$$

Поэтому деформацию превращения $\delta(x, n)$ следует пересчитывать из выражения

$$\frac{V_p - V_m}{V_p} = 1 - \frac{(2x + n)\Omega_m}{x\Omega} = \left(\varphi - 1 - \frac{n}{x} \right) \frac{1}{1 + \varphi} = \left(\tilde{\varphi} - \frac{n}{x} \right) \frac{1}{2 + \tilde{\varphi}} = (1 + \delta)^3 \approx 1 + 3\delta,$$

где

$$\tilde{\varphi} = \varphi - 1 < 1.$$

ЛИТЕРАТУРА

1. R.W. Balluffi, S.M. Allen, and W.C. Carter, *Kinetics of Materials*, John Wiley and Sons (2005).
2. R.E. Smallman and A.H.W. Ngan, *Physical Metallurgy and Advanced Materials*, 7th ed. Elsevier (2007).
3. J.W. Christian, *The Theory of Transformations in Metals and Alloys*, Pergamon, Oxford (1975).

4. D. Turnbull, H.S. Rosenbaum, and H.N. Treafits, *Kinetics of Clustering in Some Aluminium Alloys*, Acta Metallurgica **8**, 277 (1960).
5. H.S. Rosenbaum and D. Turnbull, *On the Precipitation of Silicon out of a Supersaturated Aluminum-Silicon Solid Solution*, Acta Metallurgica **6**, 653 (1958).
6. H.S. Rosenbaum and D. Turnbull, *Metallographic Investigation of Precipitation of Silicon from Aluminum*, Acta Metallurgica **7**, 664 (1959).
7. E. Ozawa and H. Kimura, *Excess Vacancies and the Nucleation of Precipitates in Aluminum-Silicon Alloys*, Acta Metallurgica **18**, 995 (1970).
8. E. Hornbogen and E. A. Starke Jr., *Theory Assisted Design of High Strength Low Alloy Aluminum*, Acta Metallurgica et Materialia **41**, 1 (1993).
9. F.R.N. Nabarro, *The Influence of Elastic Strain on the Shape of Particles Segregating in an Alloy*, Proc. Phys. Soc. **52**, 90 (1940).
10. H. Mehrer, *Diffusion in Solids: Fundamentals, Methods, Materials, Diffusion-Controlled Processes*, Springer Series in Solid State Science, Vol. 155, Springer (2007).
11. K.C. Russel, *The Role of Excess Vacancies in Precipitation*, Scripta Metallurgica **3**, 313 (1969).
12. M. Volmer and A. Weber, *Keimbildung in Übersättigten Gebilden*, Z. Phys. Chem. **119**, 277 (1926).
13. R. Becker and W. Doering, *Kinetische Behandlung der Keimbildung in Übersättigten Dämpfen*, Ann. Phys. **24**, 719 (1935).
14. Ja.B. Zeldovich, *On the Theory of New Phase Formation: Cavitation*, Acta Physicochim. URSS **18**, 1 (1943).
15. H. Reiss, *The kinetics of Phase Transitions in Binary Systems*, J. Chem. Phys. **18**, 840 (1950).
16. A. Katok and B. Hasselblatt, *Introduction to the Modern Theory of Dynamical Systems*, Cambridge University Press, Cambridge (1995).
17. J.S. Langer, *Statistical Theory of the Decay of Metastable States*, Annals of Physics **54**, 258 (1969).
18. D. Stauffer, *Kinetic Theory of Two-Component, Nucleation and Condensation*, J. Aerosol Sci. **7**, 319 (1976).
19. L.M. Berezhkovskii and V.Yu. Zitserman, *Direction of the Nucleation Current through the Saddle Point in the Binary Nucleation Theory and the Saddle Point Avoidance*, J. Chem. Phys. **102**, 3331 (1995).
20. Я.И. Френкель, *Кинетическая теория жидкостей*, Изд. АН СССР (1945).
21. J. Lothe and G.M. Pound, *Reconsiderations of Nucleation Theory*, J. Chem. Phys. **36**, 2080 (1962).
22. D. Kashchiev, *Nucleation: Basic Theory with Applications*, Butterworth Heinemann, Oxford, Boston (2000).
23. H. Reiss and J.L. Katz, *Resolution of the Translation – Rotation Paradox in the Theory of Irreversible Condensation*, J. Chem. Phys. **46**, 2496 (1967).
24. H. Reiss, J.L. Katz, and E.R. Cohen, *Translation–Rotation Paradox in the Theory of Nucleation*, J. Chem. Phys. **48**, 5553 (1968).
25. J.L. Katz and H. Wiedersich, *Nucleation of Voids in Materials Supersaturated with Vacancies and Interstitials*, J. Chem. Phys. **55**, 1414 (1971).
26. J.L. Katz, *Homogeneous Nucleation Theory and Experiment: A Survey*, Pure and Appl. Chem., **64**, 1661 (1992).
27. M.S. Veshchunov, *On the Theory of Void Nucleation in Irradiated Crystals*, J. Nucl. Mater. **571**, 154021 (2022).
28. L.D. Landau and E.M. Lifshitz, *Theoretical Physics, Vol. 5: Statistical Physics*, Pergamon Press (1980).
29. S.-I. Fujikawa, K.-I. Hirano, and Y. Fukushima, *Diffusion of Silicon in Aluminium*, Metallurgical Transactions A **9**, 1811 (1978).

КВАНТОВАЯ ДИНАМИКА ЯН-ТЕЛЛЕРОВСКИХ КОМПЛЕКСОВ $\text{Cr}^{2+}\text{F}_8^-$ В КРИСТАЛЛЕ $\text{CdF}_2 : \text{Cr}$

М. Н. Сарычев^a, Н. Ю. Официрова^a, И. В. Жевстовских^{a,b}, А. В. Егранов^{c,d},

В. Т. Суриков^e, Н. С. Аверкиев^f, В. В. Гудков^{a}*

^a *Уральский федеральный университет
620002, Екатеринбург, Россия*

^b *Институт физики металлов им. М. Н. Михеева
Уральского отделения Российской академии наук
620137, Екатеринбург, Россия*

^c *Институт геохимии им. А. П. Виноградова
Сибирского отделения Российской академии наук
664033, Иркутск, Россия*

^d *Иркутский государственный университет
664003, Иркутск, Россия*

^e *Институт химии твердого тела
Уральского отделения Российской академии наук
620990, Екатеринбург, Россия*

^f *Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук
194021, Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 10 сентября 2023 г.,
после переработки 30 сентября 2023 г.
Принята к публикации 2 октября 2023 г.

Представлены результаты ультразвуковых исследований кристалла со структурой флюорита CdF_2 , легированного атомами хрома малой концентрации ($n_{\text{Cr}} = 6.3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$) с преобладанием ионов Cr^{3+} . Измерения выполнялись в интервале 3.6–150 К на частотах 18–268 МГц с использованием поперечной и продольной нормальных мод, распространяющихся в кристаллографическом направлении [100]. На температурных зависимостях поглощения и скорости ультразвуковых волн были обнаружены аномалии, характерные для систем ян-теллеровских кубических комплексов с орторомбическими минимумами адиабатического потенциала. Интерпретация результатов проведена в рамках квадратичной $T \otimes (e + t_2)$ задачи эффекта Яна–Теллера для комплексов $\text{Cr}^{2+}\text{F}_8^-$, концентрация которых составляла величину порядка $10^{-2}n_{\text{Cr}}$. Анализ экспериментальных данных позволил установить механизмы конфигурационной релаксации ян-теллеровской подсистемы и значения параметров, их определяющих.

DOI: 10.31857/S0044451024020081

1. ВВЕДЕНИЕ

Кристаллы, легированные ионами переходных металлов, привлекают повышенное внимание в плане фундаментальных исследований и в связи с их практическим применением в устройствах лазерной техники, электроники и квантовых вы-

числений [1–3]. Легирующие примеси одного и того же химического элемента, но в разных зарядовых состояниях, проявляют различные свойства. В качестве примера можно привести кристаллы со структурой флюорита (пространственная группа $Fm\bar{3}m$, рис. 1), в которых примеси хрома оказываются в состояниях Cr^+ , Cr^{2+} и Cr^{3+} [4–6]. В связи с этим встает вопрос о методиках их исследований, которые были бы ориентированы на ионы с определенным зарядовым состоянием в особенности, когда ионы одного из состояний являются доминирую-

* E-mail: v.v.gudkov@urfu.ru

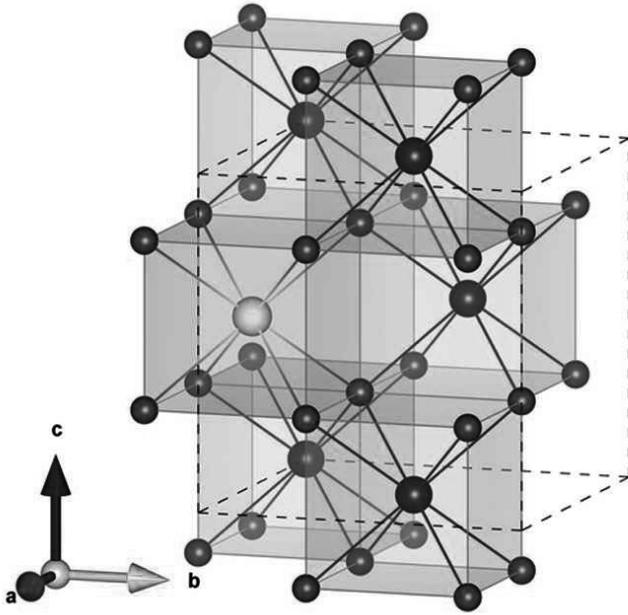


Рис. 1. Структура изовалентно замещенного кристалла $\text{CdF}_2 : 3d$. $3d$ -ион (желтый цвет), в данной работе Cr^{2+} , замещает Cd^{2+} и, находясь в окружении восьми ионов фтора (красные позиции), формирует кубический ЯТ-комплекс

щими, а другие — малыми добавками. Уникальная возможность для реализации этой программы предоставляется методами физической акустики при наличии ионов, формирующих ян-теллеровские (ЯТ) комплексы. В частности, основное состояние 5D свободного иона Cr^{2+} (d^4) в кристаллическом поле кубической (или тетраэдрической) симметрии расщепляется на орбитальный дублет 5E (возбужденное состояние) и орбитальный триплет 5T_2 (основное) [7]. Поскольку оба эти состояния вырождены, дальнейшее рассмотрение требует учета эффекта Яна–Теллера (ЭЯТ) (см., например, [8]).

В силу малости энергии фононов, используемых в ультразвуковом эксперименте, наблюдать резонансные переходы между вибранными уровнями крайне сложно. Это легко понять, если оценить энергию фононов, используемую в эксперименте. Так, на частоте 100 МГц в единицах температуры она составляет ≈ 5 мК. То есть только при очень низких температурах могут проявиться переходы между близко расположенными уровнями в виде аномалий резонансного типа. Таким образом, изменения от внешнего параметра кривых дисперсии и поглощения ультразвуковой волны могут иметь лишь релаксационную природу. Этот факт был установлен в самых первых работах по исследованию ЭЯТ в легированных кристаллах ультразвуковыми методами (см. обзор [9]). Неравновес-

ность, вносимая ультразвуковой волной в ЯТ-подсистему, приводит к перераспределению ЯТ-комплексов по уровням энергии, зависящим от деформаций, а механизмы, приводящие к равновесному состоянию при низких температурах, имеют квантовую природу. В связи с этим время релаксации функции распределения по энергиям комплексов различной конфигурации имеет смысл называть конфигурационным (ян-теллеровским, вибранным), чтобы отличать от времени спин-спиновой или спин-решеточной релаксации, а низкотемпературную динамику комплексов — квантовой в отличие от наблюдаемой при более высоких температурах [10, 11].

В легированных кристаллах со структурой флюорита аномалии релаксационной природы были обнаружены в $\text{SrF}_2:\text{Cr}^{2+}$ [12], $\text{CaF}_2:\text{Ni}^{2+}$ [13], $\text{CaF}_2:\text{Cr}^{2+}$ [14] и $\text{CaF}_2:\text{Cu}^{2+}$ [15]. Ультразвуковые эксперименты, выполненные во всех перечисленных выше кристаллах, показали, что глобальные минимумы адиабатического потенциала (АП) ЯТ-комплексов имеют орторомбическую симметрию, что возможно лишь в случае квадратичной $T \otimes (e + t_2)$ задачи ЭЯТ либо за счет ангармонизма решетки (см., например, [16]). В данном случае причины формирования орторомбических глобальных минимумов АП, безусловно, интересны, но не важны для интерпретации экспериментальных данных. Там, где их можно было сравнить с данными ЭПР относительно симметричных свойств окружения, они всегда совпадали в предположении изовалентного замещения катиона ЯТ-ионом [5, 17, 18].

В ранее изученных кристаллах CaF_2 и SrF_2 с замещением катионов ионами хрома увеличение массы атома металла в матрице MeF_2 приводило к увеличению энергии активации и, как следствие, увеличению высоты потенциального барьера и низкотемпературного значения времени релаксации. Поскольку в матрице SrF_2 энергия активации составляла достаточно большую величину, 264 см^{-1} , по сравнению с 91.7 см^{-1} для матрицы CaF_2 , представляло интерес установить, продолжится ли эта тенденция для более тяжелого катиона? В связи с этим настоящая работа посвящена исследованию кристалла $\text{CdF}_2 : \text{Cr}$ и сравнению данных с ранее полученными для других кристаллов со структурой флюорита.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Использованные в работе образцы были вырезаны из исходных кристаллов $\text{CdF}_2 : \text{Cr}$ и CdF_2 , показанных на рис. 2. Они выращены в Институ-

те геохимии им. А. П. Виноградова СО РАН методом Бриджмена–Стокбаргера в графитовом тигле в инертной атмосфере. В качестве активатора применялся CrF_3 , проходивший вакуумную сушку. Анализ состава легированного кристалла выполнялся с помощью ELAN 9000 ICP-MS (Perkin-Elmer SCIEX) в Институте химии твердого тела УрО РАН. Концентрация примеси хрома составила $n_{\text{Cr}} = (6.29 \pm 0.03) \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$. Концентрации переходных металлов, способных образовать трехкратно вырожденные состояния ионов в кубическом окружении, Mn^{3+} и V^{2+} , были на порядок меньше, а Ni^{2+} и Cu^{2+} — на два порядка по сравнению с n_{Cr} .

Ультразвуковые измерения проводились в Физико-технологическом институте УрФУ на установке, работающей по принципу перестраиваемого по частоте высокочастотного моста [19]. Для генерации и регистрации ультразвуковых колебаний использовались резонансные пьезопреобразователи, изготовленные из ниобата лития. Погрешности измерений изменений поглощения и фазовой скорости составляли 0.1 дБ и 10^{-5} соответственно. Измерения температурных зависимостей коэффициента поглощения $\alpha = -\text{Im } k$ и фазовой скорости $v = \omega / \text{Re } k$, где $k = \text{Re } k - i\alpha$ — комплексное волновое число, выполнялись в интервале $T = 3.6\text{--}150 \text{ К}$ на частотах $\omega/2\pi = 18\text{--}268 \text{ МГц}$. Результаты измерений могут быть представлены в виде температурных зависимостей $\Delta\alpha_\beta/k_0$ и $\Delta v_\beta/v_0$ или $\text{Im } \Delta c_\beta/c_0$ и $\text{Re } \Delta c_\beta/c_0$. При малых изменениях величин

$$\frac{\text{Re } \Delta c_\beta}{c_0} = 2 \frac{\Delta v_\beta}{v_0}, \quad (1)$$

$$\frac{\text{Im } \Delta c_\beta}{c_0} = 2 \frac{\Delta \alpha_\beta}{k_0}, \quad (2)$$

где индекс β характеризует тип нормальной моды и соответствующую компоненту тензора динамических модулей упругости \mathbf{c} , а индекс 0 обозначает величину, определенную при некотором фиксированном значении температуры T_0 .

Тензор модулей упругости кристалла представляет собой сумму вкладов различных подсистем, в том числе и подсистемы, образованной ЯТ-комплексами. ЯТ-вклад в компоненты тензора динамических модулей упругости имеет вид (см., например, [15])

$$\frac{c_\beta^{JT}}{c_0} = \frac{\left(c_\beta^{JT}\right)^T}{c_0} \frac{1}{1 + i\omega\tau} = \frac{\left(c_\beta^{JT}\right)^T}{c_0} (f_1 - if_2), \quad (3)$$

где $\left(c_\beta^{JT}\right)^T$ — вклад ЯТ-подсистемы в изотермический модуль упругости, f_1 и f_2 — действительные

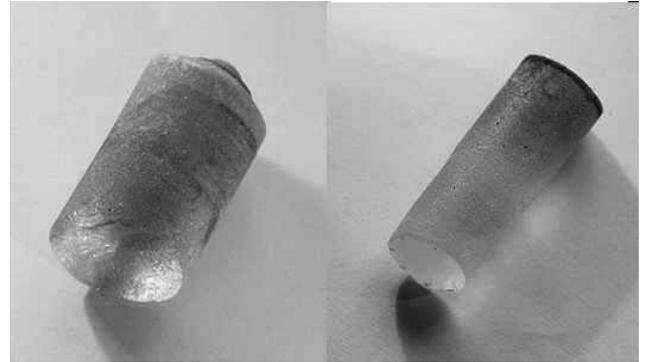


Рис. 2. Кристаллы $\text{CdF}_2 : \text{Cr}$ (слева) и номинально чистый CdF_2 (справа)

(положительные) функции. Изотермический вклад ЯТ-подсистемы можно представить в виде

$$\left(c_\beta^{JT}\right)^T = -a_\beta^S \frac{n^{JT} F_i^2 a_0^2}{k_B T} = -\frac{A_\beta^S}{T}, \quad (4)$$

где a_0 — расстояние между ЯТ-ионом и ближайшим окружением, k_B — постоянная Больцмана, n^{JT} — концентрация ЯТ-комплексов, F_i — линейная константа вибронной связи, a_β^S — коэффициент (положительный), зависящий от симметричных свойств глобальных минимумов АП, симметрии кристалла и компоненты тензора модулей упругости. Для кубических комплексов в кристаллах со структурой флюорита выражения для $\left(c_\beta^{JT}\right)^T$ приведены, в частности, в [15].

В настоящей работе были исследованы тригональный модуль упругости $c_T = c_{44}$ и продольный $c_L = c_{11}$. Эти модули связаны с нормальными модами, распространяющимися вдоль кристаллографической оси [100]: поперечной и продольной. На температурных зависимостях действительной и мнимой составляющих этих модулей были обнаружены типичные для проявления ЭЯТ аномалии. Пример таких зависимостей приведен на рис. 3.

3. ВРЕМЯ РЕЛАКСАЦИИ

Конфигурационное время релаксации τ может быть вычислено с помощью данных о температурных зависимостях действительной части ЯТ-вклада $\text{Re } c_\beta^{JT}$ в динамический модуль упругости [20]:

$$\tau = \frac{1}{\omega} \sqrt{2 \frac{\text{Re} \left[c_\beta^{JT}(T_1)/c_0 \right] T_1}{\text{Re} \left[c_\beta^{JT}(T)/c_0 \right] T} - 1}, \quad (5)$$

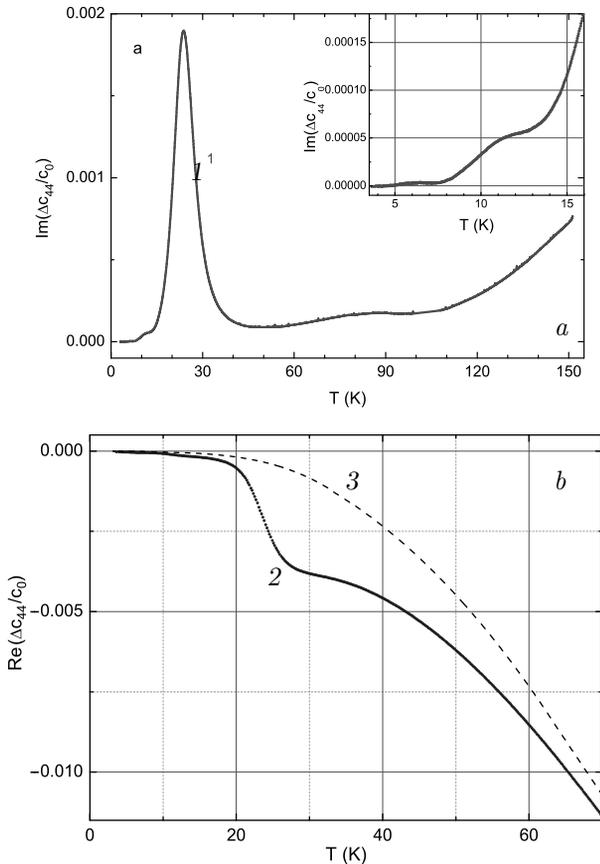


Рис. 3. Температурные зависимости мнимой (а) и действительной (б) составляющих модуля упругости c_{44} . Кривые 1 и 2 измерены на частоте $\omega/2\pi = 56.16$ МГц в кристалле $\text{CdF}_2 : \text{Cr}^{2+}$. Кривая 3 — действительная составляющая этого же модуля в номинально чистом CdF_2 , измеренная на частоте 56.43 МГц. $\Delta c_{44} = c_{44}(T) - c_0$, $c_0 = c_{44}(T_0)$, $T_0 = 4.2$ К. На вставке показана низкотемпературная часть кривой 1

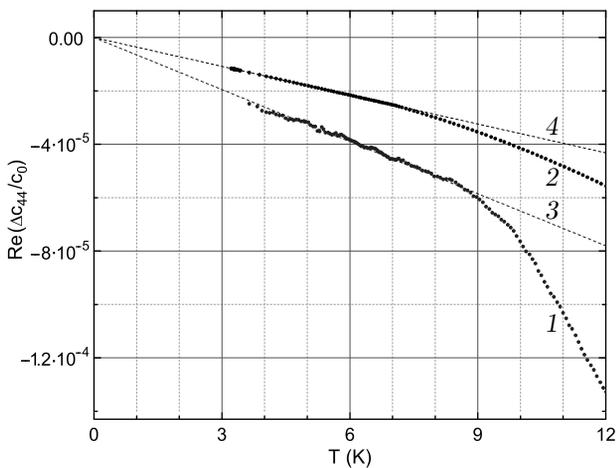


Рис. 4. Температурные зависимости действительных составляющих модуля упругости c_{44} в кристаллах $\text{CdF}_2 : \text{Cr}$ (кривая 1) и CdF_2 (кривая 2); 3 и 4 — линейные асимптоты. $\Delta c_{44} = c_{44}(T) - c_0$, $c_0 = c_{44}(T \rightarrow 0)$

где

$$\text{Re} \left[\frac{c_{\beta}^{JT}(T)}{c_0} \right] = \text{Re} \left[\frac{c_{\beta}(T)}{c_0} \right] - \text{Re} \left[\frac{c_{\beta}^b(T)}{c_0} \right]$$

— разность между температурными зависимостями, полученными на примесном и номинально чистом кристаллах (соответственно кривые 1 и 2 на рис. 4), а T_1 удовлетворяет условию $\omega\tau = 1$. Подробное описание метода построения температурной зависимости времени релаксации приведено в разд. 4.2 в [14]. Далее, в предположении, что релаксация определяется тремя механизмами (активационным, туннельным и двухфононным) [9], с помощью моделирования установлены параметры, их определяющие. Результаты расчетов приведены на рис. 5, где кривая 2 представляет общее время релаксации $\tau = (\tau_a^{-1} + \tau_t^{-1} + \tau_R^{-1})^{-1}$, а скорости релаксации, характеризующие отдельные механизмы, имеют вид

$$\tau_a^{-1} = \tau_0^{-1} \exp\left(-\frac{V_0}{k_B T}\right), \quad (6)$$

$$\tau_t^{-1} = BT, \quad (7)$$

$$\tau_R^{-1} = \frac{B}{\Theta^2} T^3, \quad (8)$$

где V_0 — энергия активации, τ_0^{-1} — частота попыток. В таком виде константы B и B/Θ^2 введены в [21], хотя изначально [22] они связывали время релаксации, а не скорость, с температурой в соответствующей степени. Из рис. 5 видно, что модельная кривая 2 в целом хорошо согласуется с экспериментальными данными, за исключением области $1/T = 0.06-0.10$ К⁻¹, где проявляются иные ЯТ-подсистемы, речь о которых пойдет ниже.

4. ОБСУЖДЕНИЕ

Аномалии, аналогичные изображенным на рис. 3, наблюдались и для модуля c_{11} . По внешнему виду они типичны для ЭЯТ в примесных кристаллах, а то, что они проявляются в модулях c_{44} и c_{11} , свидетельствует, что глобальные минимумы АП имеют орторомбическую симметрию. Процедура определения симметричных свойств экстремумов АП подробно описана в [15]. Кроме того, следует отметить, что на рис. 3, помимо основных особенностей при $T \approx 25$ К (пика на температурной зависимости мнимой части модуля и размытой ступеньки на графике действительной части), имеются слабые вклады при $T \approx 6$ К и $T \approx 11$ К, хорошо заметные на вставке к рис. 3а. Мы полагаем, что это есть

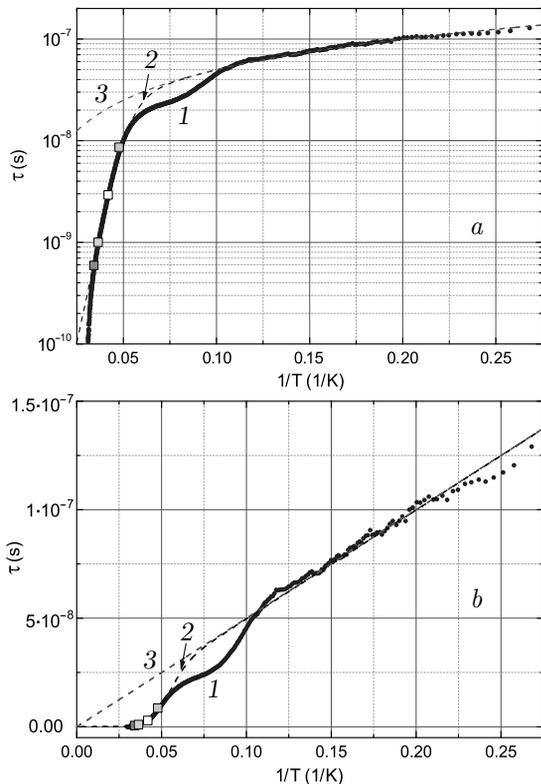


Рис. 5. Зависимости конфигурационного времени релаксации ЯТ-подсистемы от обратной температуры в полулогарифмических (а) и линейных (b) координатах. Кривая 1 построена с использованием данных $\text{Re } \Delta c_{44}(T)/c_0$, 2 — модельная кривая, кривая 3 — время релаксации, обусловленное туннельным механизмом, $\tau_t = 1.5 \cdot 10^{-6}/T$ с. Квадратные символы соответствуют условию $\omega\tau = 1$ для 268, 159, 56.2, 18.3 МГц (слева направо)

проявление ЯТ-подсистем, сформированных ионами Mn^{3+} или V^{2+} . Концентрации примесей марганца и ванадия составляли $(1.38 \pm 0.03) \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ и $(1.49 \pm 0.03) \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ соответственно. Хотя проявление ЭЯТ, обусловленного ионами Ni^{2+} или Cu^{2+} , также исключить нельзя в силу чувствительности метода даже к малым концентрациям примесей.

Температурные зависимости мнимой части динамического модуля (или поглощения ультразвука) при известной концентрации ЯТ-комплексов n^{JT} позволяют вычислить линейные вибронные константы. В частности, тригональная линейная константа вибронной связи F_T определяется из данных $\alpha_{44}^{JT}(T)$ (см., например, [13]) или $\text{Im } c_{44}^{JT}(T)$ (с учетом соотношения (2)):

$$F_T^2 = 9 \frac{c_0 k_B T_1}{n^{JT} a_0^2} \frac{\alpha_{44}^{JT}(T_1)}{k_0} = \frac{9}{2} \frac{c_0 k_B T_1}{n^{JT} a_0^2} \frac{\text{Im } c_{44}^{JT}(T_1)}{c_0}. \quad (9)$$

Расчет, выполненный по формуле (9) в предположении $n^{JT} = n_{\text{Cr}}$, привел к значению

$|F_T| = 1.4 \cdot 10^{-5}$ дин в кристалле $\text{CdF}_2 : \text{Cr}$. Это, безусловно, оценка снизу, но представляется сильно заниженной. Во-первых, полученная величина меньше всех значений вибронных констант, определенных ранее для кристаллов со структурой флюорита методами физической акустики (см. табл. 7 в [15]). Например, в CaF_2 и SrF_2 , допированных также ионами хрома, тригональная линейная константа вибронной связи равна $8.8 \cdot 10^{-5}$ и $5.5 \cdot 10^{-5}$ соответственно. Во-вторых, оптические спектры [6], полученные на кристаллах, аналогичных использованному нами, удавалось интерпретировать в предположении о преобладании ионов Cr^{3+} , которые смещаются из центрального положения, попадая в октаэдрическое окружение [23, 24]. Они не обладают основным орбитально-вырожденным состоянием и тем самым не формируют ЯТ-комплексы. Мы полагаем, что в исследованном нами кристалле CdF_2 с примесью хрома большая часть ионов хрома имеет зарядовое состояние 3+ и лишь меньшая часть ионов изовалентно замещает катион, образуя ЯТ-комплекс $\text{Cr}^{2+}\text{F}_8^-$. Для оценки концентрации таких центров в CdF_2 можно сравнить уровень поглощения в этом кристалле с поглощением в $\text{CaF}_2 : \text{Cr}$ [25], который оказался почти в 30 раз меньше. При этом известно, что релаксационное поглощение пропорционально концентрации ЯТ-центров. Таким образом, в ультразвуковом эксперименте в кристалле $\text{CdF}_2 : \text{Cr}$ проявились ионы Cr^{2+} с концентрацией порядка 10^{18} см^{-3} , что приводит к более реальному значению $|F_T| = 10^{-4}$ дин. Неопределенность концентрации ЯТ-ионов является существенным препятствием для сравнения ЯТ-подсистем, образованных различными 3d-ионами в различных матрицах с использованием данных о вибронных константах, линейных и квадратичной. Это же обстоятельство не дает возможности оценить линейные и квадратичный вклады в гамильтониан, хотя наличие релаксационного типа аномалий в зависимостях $\Delta c_{44}(T)$ и $\Delta c_{11}(T)$ однозначно указывает на орторомбическую симметрию глобальных минимумов АП, что возможно лишь при наличии заметного квадратичного вклада в гамильтониан ЯТ-комплекса.

Данная проблема отсутствует при нахождении параметров, определяющих время релаксации, поскольку его вычисление не требует знания концентрации ЯТ-ионов. Именно данные, характеризующие квантовую динамику ЯТ-подсистем, могут служить информационной базой для сравнения ЯТ-комплексов в различных матрицах. Значения этих параметров, определенные ранее и в настоящей ра-

Таблица. Параметры, характеризующие релаксацию подсистемы ЯТ-комплексов в некоторых кристаллах со структурой флюорита, исследованных ультразвуковыми методами. Значение T_1 определено из максимума функции $f_2(T) = \omega\tau / [1 + (\omega\tau)^2]$ для $\omega/2\pi = 50$ МГц

Конфиг. своб. иона	Матрица	Ион	Основное состояние	V_0 , см ⁻¹	τ_0^{-1} , с ⁻¹	B , с ⁻¹ · К ⁻¹	B/Θ_0^2 , с ⁻¹ · К ⁻³	T_1 , К	Ссылка
d^4	CaF ₂	Cr ²⁺	$^5T_{2g}(e_g^2t_{2g}^2)$	91.7	$3.3 \cdot 10^{12}$	$2.8 \cdot 10^6$	$1.0 \cdot 10^5$	8.8	[25]
d^9	BaF ₂	Cu ²⁺	$^2T_{2g}(e_g^4t_{2g}^5)$	93.8	$2.0 \cdot 10^{11}$	$1.4 \cdot 10^6$	$2.0 \cdot 10^4$	18.8	[27]
d^9	CaF ₂	Cu ²⁺	$^2T_{2g}(e_g^4t_{2g}^5)$	118	$3.3 \cdot 10^{11}$	$1.5 \cdot 10^6$	$5.0 \cdot 10^2$	23.8	[15]
d^4	CdF ₂	Cr ²⁺	$^5T_{2g}(e_g^2t_{2g}^2)$	139	$1.4 \cdot 10^{12}$	$6.7 \cdot 10^5$	$1.0 \cdot 10^2$	23.3	
d^4	SrF ₂	Cr ²⁺	$^5T_{2g}(e_g^2t_{2g}^2)$	264	$1.4 \cdot 10^{12}$	$3.6 \cdot 10^4$	$2.9 \cdot 10^2$	44.4	[26]
d^8	CaF ₂	Ni ²⁺	$^3T_{1g}(e_g^4t_{2g}^4)$	396	$1.0 \cdot 10^{13}$	$5.6 \cdot 10^5$	$6.7 \cdot 10^1$	54.3	[14]

боте, для различных флюоритов с разными примесями переходных элементов представлены в таблице. Там же приведены значения температуры T_1 , вблизи которой наблюдается пик релаксационного поглощения, если проводить измерения на частоте $\omega/2\pi = 50$ МГц. В низкотемпературной области на частотах 10^7 Гц и выше выполняется условие $\omega\tau \gg 1$. В этом случае уравнение (3) с учетом (4) примет вид

$$\left(\frac{c_{\beta}^{JT}}{c_0}\right)_{\omega\tau \gg 1} = -\frac{A_{\beta}^S}{c_0 T} \left(\frac{\tau^{-2}}{\omega^2} - i\frac{\tau^{-1}}{\omega}\right). \quad (10)$$

Видно, что вклады ЯТ-подсистемы в действительную и мнимую составляющие динамических модулей упругости пропорциональны скоростям релаксации в квадрате и в первой степени соответственно. Поэтому в таблице приведены скорости релаксации, заданные соотношениями (6)–(8).

Если сравнить параметры, характеризующие релаксацию комплексов $Cr^{2+}F_8^-$ в исследованных нами матрицах, то имеет смысл привести значения постоянной решетки a и атомной массы M катиона матрицы. Первое влияет на размер комплекса, а второе может оказывать влияние через следующие координационные сферы: $a_{CdF_2} = 5.399 \text{ \AA}$, $a_{CaF_2} = 5.463 \text{ \AA}$, $a_{SrF_2} = 5.799 \text{ \AA}$ [28], $M_{CaF} = 40.078 \text{ г/моль}$, $M_{Sr} = 87.62 \text{ г/моль}$, $M_{Cd} = 112.41 \text{ г/моль}$. Параметром, который в наибольшей степени характеризует релаксацию, является энергия активации. Она (совместно с энергией нулевых колебаний) определяет высоту потенциального барьера. Относительно это-

го параметра исследуемый ЯТ-комплекс занимает в CdF₂ промежуточное положение по сравнению с CaF₂ и SrF₂, в то время как Cd — самый тяжелый катион, а CdF₂ имеет самую малую постоянную решетки из рассматриваемых. По-видимому, сочетание нескольких факторов (в первую очередь рассмотренных) определяет релаксационные свойства системы комплексов $Cr^{2+}F_8^{2-}$ в различных матрицах.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате ультразвуковых исследований кристалла CdF₂, легированного ионами хрома малой концентрации ($n_{Cr} = 6.3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$), были обнаружены аномалии действительной и мнимой составляющих динамических модулей упругости, характерные для проявления ЭЯТ при изовалентном замещении катионов. Показано, что температурная зависимость конфигурационного времени релаксации хорошо описывается тремя механизмами: активационным, туннельным и двухфононным. Определены параметры, характеризующие скорость релаксации для этих механизмов. Сравнение параметров скоростей релаксации в исследованном в настоящей работе кристалле с аналогичными параметрами в CaF₂ : Cr²⁺ и SrF₂ : Cr²⁺ показало, что в CdF₂ : Cr они имеют промежуточные значения и увеличение массы катиона матрицы не приводит к монотонному росту энергии активации и низкотемпературного времени релаксации.

Финансирование. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 22-22-00735).

ЛИТЕРАТУРА

1. R. C. Powell, *Symmetry, Group Theory, and the Physical Properties of Crystals*, Springer, New York, Dordrecht, Heidelberg, London (2010).
2. G. Boulon, *Opt. Mater.* **34**, 499 (2012).
3. N. M. Avram and M. G. Brik (Editors), *Optical Properties of 3d-Ions in Crystals: Spectroscopy and Crystal Field Analysis*, Springer, Heidelberg, New York, Dordrecht, London (2013).
4. R. Alcala, P. J. Alonso, V. Orera, and H. W. den Hartog, *Phys. Rev. B* **32**, 4158 (1985).
5. М. М. Зарипов, В. Ф. Тарасов, В. А. Уланов, Г. С. Шакуров, *ФТТ* **44**, 1958 (2002).
6. А. В. Егранов, Е. А. Раджапов, В. А. Козловский, *Изв. РАН, сер. физ.* **86**, 962 (2022).
7. J. T. Vallin, G. A. Slack, S. Roberts, and A. E. Hughes, *Phys. Rev. B* **2**, 4313 (1970).
8. I. V. Bersuker and V. Z. Polinger, *Vibronic Interactions in Molecules and Crystals*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, London (1989).
9. M. D. Sturge, *The Jahn–Teller Effect in Solids*, in: *Solid State Physics*, ed. by F. Seitz, D. Turnbull, and H. Ehrenreich, *Acad. Press* **20**, 91 (1967).
10. Н. Е. Случанко, Е. С. Жукова, Л. Н. Алябьева, Б. П. Горшунов, А. В. Муратов, Ю. А. Алешенко, А. Н. Азаревич, М. А. Анисимов, Н. Ю. Шицева-лова, С. Е. Половец, Б. В. Филипов, *ЖЭТФ* **163**, 172 (2023).
11. А. В. Соболев, В. И. Ниценко, А. А. Белик, Я. С. Глазкова, М. С. Кондратьева, И. А. Пресняков, *ЖЭТФ* **164**, 467 (2023).
12. I. V. Zhevstovskikh, I. V. Bersuker, V. V. Gudkov, N. S. Averkiev, M. N. Sarychev, S. Zherlitsyn, S. Yasin, G. S. Shakurov, V. A. Ulanov, and V. T. Surikov, *J. Appl. Phys.* **119**, 225108 (2016).
13. M. N. Sarychev, W. A. L. Hosseny, A. S. Bondarevskaya, I. V. Zhevstovskikh, A. V. Egranov, O. S. Grunskiy, V. T. Surikov, N. S. Averkiev, and V. V. Gudkov, *J. Alloy. Comp.* **848**, 156167 (2020).
14. М. Н. Сарычев, А. С. Бондаревская, И. В. Жевстовских, В. А. Уланов, Г. С. Шакуров, А. В. Егранов, В. Т. Суриков, Н. С. Аверкиев, В. В. Гудков, *ЖЭТФ* **159**, 892 (2021).
15. М. Н. Сарычев, У. А. Л. Хоссени, И. В. Жевстовских, В. А. Уланов, А. В. Егранов, В. Т. Суриков, Н. С. Аверкиев, В. В. Гудков, *ЖЭТФ* **162**, 509 (2022).
16. I. V. Bersuker, *The Jahn–Teller Effect*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (2006).
17. М. М. Зарипов, В. Ф. Тарасов, В. А. Уланов, Г. С. Шакуров, М. Л. Попов, *ФТТ* **37**, 806 (1995).
18. В. А. Уланов, М. М. Зарипов, Е. П. Жеглов, Р. М. Еремина, *ФТТ* **45**, 71 (2003).
19. М. Н. Сарычев, *Исследование динамики ян-теллеровских комплексов в кристаллах методами физической акустики*, Дисс. ... канд. физ.-матем. наук, УрФУ, Екатеринбург (2023).
20. V. V. Gudkov, *Ultrasonic Consequences of the Jahn–Teller Effect*, in: *The Jahn–Teller Effect: Fundamentals and Implications for Physics and Chemistry*, ed. by H. Koppel, D. R. Yarkony, and H. Barentzen, Springer, Berlin, Heidelberg (2009).
21. M. D. Sturge, J. T. Krause, E. M. Gyorgy, R. C. Le-Craw, and F. R. Merritt, *Phys. Rev.* **155**, 218 (1967).
22. R. Pirc, B. Zeks, and P. Gosar, *J. Phys. Chem. Solids* **27**, 1219 (1966).
23. S. A. Payne, L. L. Chase, and W. F. Kupke, *J. Chem. Phys.* **86**, 3455 (1987).
24. S. A. Payne, L. L. Chase, and W. F. Kupke, *J. Luminescence* **40**, 305 (1988).
25. M. N. Sarychev, W. A. L. Hosseny, I. V. Zhevstovskikh, V. A. Ulanov, G. S. Shakurov, A. V. Egranov, V. T. Surikov, N. S. Averkiev, and V. V. Gudkov, *J. Phys.: Condens. Matter.* **34**, 225401 (2022).
26. M. N. Sarychev, W. A. L. Hosseny, A. S. Bondarevskaya, G. S. Shakurov, V. A. Ulanov, V. T. Surikov, I. V. Zhevstovskikh, N. S. Averkiev, and V. V. Gudkov, *AIP Conf. Proc.* **2313**, 030071 (2020).
27. N. Yu. Ofitserova, M. N. Sarychev, I. V. Zhevstovskikh, V. A. Ulanov, V. T. Surikov, N. S. Averkiev, and V. V. Gudkov, *J. Phys.: Conf. Ser.* (2004).
28. W. Gehlhoff and W. Ulrici, *Phys. Stat. Sol. B* **102**, 11 (1980).

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ФАЗ В ОДНОМЕРНОЙ ЛОКАЛИЗАЦИИ И ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ В ОДНОМОДОВЫХ ВОЛНОВОДАХ

И. М. Суслов*

Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук,
119334, Москва, Россия

Поступила в редакцию 31 мая 2023 г.,
после переработки 3 августа 2023 г.
Принята к публикации 18 сентября 2023 г.

Локализация электронов в одномерных неупорядоченных системах обычно описывается в рамках приближения случайных фаз, когда распределения фаз φ и θ , входящих в трансфер-матрицу, считаются однородными. В общем случае приближение случайных фаз нарушается, и уравнения эволюции (при изменении длины системы L) содержат три независимые переменные — ландауэровское сопротивление ρ и комбинированные фазы $\psi = \theta - \varphi$ и $\chi = \theta + \varphi$. Фаза χ не влияет на эволюцию ρ и не рассматривалась в предыдущих работах. Распределение фазы ψ при изменении энергии электрона \mathcal{E} испытывает своеобразный фазовый переход в точке \mathcal{E}_0 , состоящий в появлении у ψ мнимой части. Распределение сопротивлений $P(\rho)$ не имеет сингулярности в точке \mathcal{E}_0 и переход выглядит ненаблюдаемым в электронных системах. Однако теория одномерной локализации непосредственно применима к распространению волн в одномодовых волноводах. Оптические методы более эффективны и обеспечивают возможность измерения фаз ψ и χ . С одной стороны, это делает наблюдаемым фазовый переход в распределении $P(\psi)$, который можно рассматривать как «след» от порога подвижности, сохраняющийся в одномерных системах. С другой стороны, фаза χ становится наблюдаемой: это делает актуальным вывод уравнения для ее эволюции, который производится ниже. Релаксация распределения $P(\chi)$ к предельному распределению $P_\infty(\chi)$ при $L \rightarrow \infty$ описывается двумя экспонентами, показатели которых испытывают разрыв второй производной при изменении энергии \mathcal{E} .

DOI: 10.31857/S0044451024020093

и при наличии инвариантности относительно обращения времени допускает параметризацию [1]:

$$T = \begin{pmatrix} 1/t & -r/t \\ -r^*/t^* & 1/t^* \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sqrt{\rho+1} e^{i\varphi} & \sqrt{\rho} e^{i\theta} \\ \sqrt{\rho} e^{-i\theta} & \sqrt{\rho+1} e^{-i\varphi} \end{pmatrix}, \quad (2)$$

1. ВВЕДЕНИЕ

Локализация электронов в одномерных неупорядоченных системах может описываться с помощью трансфер-матрицы T , которая связывает амплитуды волн слева ($Ae^{ikx} + Be^{-ikx}$) и справа ($Ce^{ikx} + De^{-ikx}$) от рассеивателя,

$$\begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix} = T \begin{pmatrix} C \\ D \end{pmatrix}, \quad (1)$$

где t и r — амплитуды прохождения и отражения и $\rho = |r/t|^2$ — безразмерное сопротивление по Ландауэру [2]. При последовательном расположении рассеивателей их трансфер-матрицы перемножаются. Для слабого рассеивателя матрица T близка к единичной, что позволяет выводить дифференциальные уравнения эволюции (при изменении длины системы L) для ее параметров.

Обычно такие уравнения выводятся в приближении случайных фаз, когда распределения φ и θ считаются однородными [3–8]. Такое приближение хорошо работает для слабого беспорядка в глубине

* E-mail: suslov@kapitza.ras.ru

разрешенной зоны, что обычно и предполагается в теоретических работах (см. ссылки в [9–11]); флуктуационные состояния в запрещенной зоне обсуждаются сравнительно редко и лишь на уровне волновых функций [12–14]. Систематический анализ показывает, что приближение случайных фаз сильно нарушается вблизи края исходной зоны и в запрещенной зоне идеального кристалла [15]. В общем случае уравнения эволюции пишутся в терминах ландауэровского сопротивления ρ и комбинированных фаз (разд. 2)

$$\psi = \theta - \varphi, \quad \chi = \theta + \varphi. \quad (3)$$

Фаза χ не влияет на эволюцию ρ и не представляет интереса для физики конденсированного состояния; поэтому она не обсуждалась в предыдущих работах [15–17]. Оптические измерения (см. ниже) позволяют изучать распределение фазы χ , что делает актуальным его теоретическое исследование.

Полное уравнение эволюции для распределения $P(\rho, \psi, \chi)$ выводится в Приложении. Фактически оно не имеет практического значения: существенна лишь его общая структура, обеспечивающая разделение переменных (разд. 2). Факторизация $P(\rho, \psi, \chi) = P(\rho, \psi)P(\chi)$ справедлива при произвольной длине системы L , что позволяет ограничиться уравнениями для $P(\rho, \psi)$ и $P(\chi)$. При больших L возникает факторизация $P(\rho, \psi) = P(\rho)P(\psi)$, приводящая к замкнутому уравнению для $P(\rho)$ и уравнению для стационарного распределения $P(\psi)$.

Стационарное распределение фазы ψ изучалось в работах [16, 17]; в глубине неупорядоченной системы оно испытывает своеобразный фазовый переход в точке \mathcal{E}_0 при изменении энергии электрона \mathcal{E} [17], состоящий в появлении мнимой части ψ (разд. 3). При этом распределение сопротивлений $P(\rho)$ не имеет в точке \mathcal{E}_0 никакой сингулярности, и переход выглядит ненаблюдаемым в рамках физики конденсированного состояния.

Уравнение эволюции для $P(\chi)$ выводится в разд. 4: оно имеет вид обычного диффузионного уравнения, в котором коэффициент диффузии и скорость дрейфа экспоненциально зависят от L . Соответствующие показатели экспоненты имеют сингулярности при изменении \mathcal{E} , состоящие в скачке второй производной (разд. 5). Такие фазовые переходы также ненаблюдаемы для электронных неупорядоченных систем.

Однако подход, использованный в [15–17], непосредственно применим для описания рассеяния волн, распространяющихся в одномодовых волноводах (разд. 6.1). Существующие оптические методы

(гетеродинный подход, микроскопия ближнего поля и т. д.) достаточно эффективны и позволяют измерять распределение всех параметров ρ , ψ , χ внутри волновода¹⁾ (разд. 6.3). Это расширяет наблюдаемые аспекты теории одномерной локализации и делает возможным ее глубокую экспериментальную проверку. В частности, становятся наблюдаемыми фазовые переходы в распределениях $P(\psi)$ и $P(\chi)$ (разд. 6.2, 6.3). Возможные схемы измерений обсуждаются в разд. 6.4.

Краткое изложение обсуждаемых вопросов содержится в заметке автора с С. И. Божевольным [18].

2. ОБЩАЯ СТРУКТУРА УРАВНЕНИЙ ЭВОЛЮЦИИ

Наиболее общее уравнение эволюции описывает изменение совместной функции распределения $P(\rho, \psi, \chi)$ при увеличении длины системы L и имеет следующую структуру (см. Приложение):

$$\frac{\partial P}{\partial L} = \left\{ \hat{L}_{\rho, \psi} P \right\}'_{\rho} + \left\{ \hat{M}_{\rho, \psi} P \right\}'_{\psi} + \left\{ \hat{K}_{\rho, \psi, \chi} P \right\}'_{\chi}, \quad (4)$$

где \hat{L} , \hat{M} , \hat{K} — некоторые операторы, зависящие от указанных переменных. Правая часть является суммой полных производных, что обеспечивает сохранение вероятности. Как обсуждалось в [17, 19], условия для разделения переменных в уравнениях диффузионного типа оказываются более слабыми, чем для задачи на собственные значения. Независимость операторов \hat{L} и \hat{M} от χ обеспечивает факторизацию $P(\rho, \psi, \chi) = P(\rho, \psi)P(\chi)$, где $P(\rho, \psi)$ и $P(\chi)$ определяются уравнениями

$$\frac{\partial P(\rho, \psi)}{\partial L} = \left\{ \hat{L}_{\rho, \psi} P(\rho, \psi) \right\}'_{\rho} + \left\{ \hat{M}_{\rho, \psi} P(\rho, \psi) \right\}'_{\psi} \quad (5)$$

и

$$\frac{\partial P(\chi)}{\partial L} = \left\{ \hat{K}_{\chi} P(\chi) \right\}'_{\chi}, \quad (6)$$

$$\hat{K}_{\chi} = \int \hat{K}_{\rho, \psi, \chi} P(\rho, \psi) d\rho d\psi.$$

Конкретный вид уравнения (5) приведен в [16, 17], а уравнение (6) выводится в разд. 4. В пределе больших L , когда типичные значения ρ велики, оператор $\hat{M}_{\rho, \psi}$ становится независимым от ρ ; тогда решение

¹⁾ Разумеется, при этом параметр ρ больше не имеет смысла ландауэровского сопротивления, но определяет амплитуды проходящей и отраженной волн (разд. 6.2).

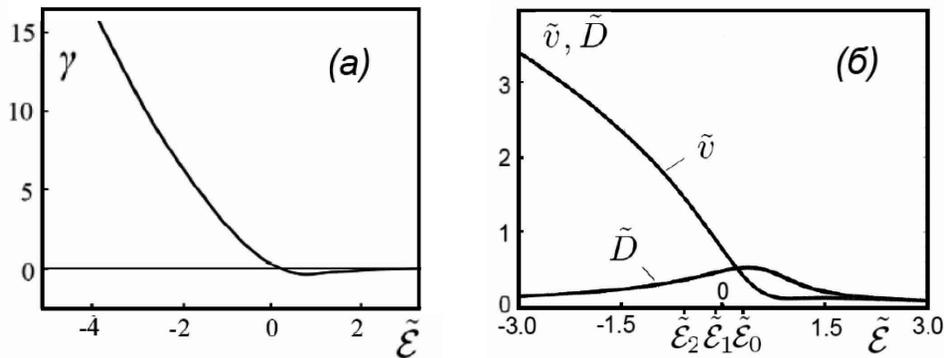


Рис. 1. Зависимости параметров γ , $\tilde{v} = v/W^{2/3}$ и $\tilde{D} = D/W^{2/3}$ от приведенной энергии $\tilde{\mathcal{E}} = \mathcal{E}/W^{4/3}$, полученные на основе анализа моментов для элементов трансфер-матрицы [15]. Эти моменты являются регулярными функциями энергии, что обеспечивает регулярность приведенных зависимостей. Малость параметра γ и равенство $v = D$, имеющие место в приближении случайных фаз, реализуются лишь в глубине разрешенной зоны. Точки $\tilde{\mathcal{E}}_0, \tilde{\mathcal{E}}_1, \tilde{\mathcal{E}}_2$ соответствуют фазовым переходам, обсуждаемым в разд. 3 и 5

уравнения (5) факторизуется, $P(\rho, \psi) = P(\rho)P(\psi)$, где для $P(\rho)$ и $P(\psi)$ справедливы уравнения

$$\frac{\partial P(\psi)}{\partial L} = \left\{ \hat{M}_\psi P(\psi) \right\}'_\psi, \quad (7)$$

$$\frac{\partial P(\rho)}{\partial L} = \left\{ \hat{\mathcal{L}}_\rho P(\rho) \right\}'_\rho, \quad \hat{\mathcal{L}}_\rho = \int \hat{L}_{\rho, \psi} P(\psi) d\psi. \quad (8)$$

Уравнение (7) обеспечивает существование стационарного распределения фазы ψ . Уравнение (8) для $P(\rho)$ имеет вид [15]

$$\frac{\partial P(\rho)}{\partial L} = D \frac{\partial}{\partial \rho} \left[-\gamma(1+2\rho)P(\rho) + \rho(1+\rho) \frac{\partial P(\rho)}{\partial \rho} \right] \quad (9)$$

и при больших L приводит к логнормальному распределению

$$P(\rho) = \frac{1}{\rho \sqrt{4\pi DL}} \exp \left\{ -\frac{[\ln \rho - vL]^2}{4DL} \right\}, \quad (10)$$

где $v = (2\gamma+1)D$. Типичное значение ρ экспоненциально растет с длиной L , что является наблюдаемым проявлением локализации состояний в одномерных системах. В приближении случайных фаз параметр γ равен нулю, и уравнения (9), (10) совпадают с результатами работ [3–8]. Зависимости параметров γ, D, v от приведенной энергии $\tilde{\mathcal{E}} = \mathcal{E}/W^{4/3}$, полученные на основе анализа моментов распределения для элементов трансфер-матрицы [15], показаны на рис. 1; здесь \mathcal{E} — энергия, отсчитанная от нижнего края зоны, и W — амплитуда случайного потенциала; все энергии измеряются в единицах интеграла

перекрывтия для одномерной модели Андерсона, который порядка ширины исходной зоны. Нарушение приближения случайных фаз является очевидным.

Из сказанного ясно, что явный вид уравнения (4) не имеет практического значения, а существенна лишь его общая структура. При произвольных L оно распадается на два уравнения (5) и (6), а при больших L — на три уравнения (6), (7), (8). Ясно также, что выбор независимых переменных ρ, ψ, χ носит объективный характер.

3. ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД В РАСПРЕДЕЛЕНИИ $P(\psi)$

Смысл фазового перехода в распределении ψ состоит в том, что различие между разрешенной и запрещенной зонами сохраняется (в некотором смысле) при наличии случайного потенциала, хотя особенность плотности состояний размывается и она становится гладкой. Это напоминает широко известную аргументацию Мотта [20], что роль края разрешенной зоны переходит к порогу подвижности. В одномерном случае порога подвижности нет, но некоторый «след» от него сохраняется. Дело в том, что в разрешенной зоне ($\mathcal{E} > 0$) пробный рассеиватель описывается трансфер-матрицей (2), а в запрещенной ($\mathcal{E} < 0$) — псевдо-трансфер-матрицей \mathcal{T} [15], связывающей коэффициенты при растущей и убывающей экспонентах слева ($Ae^{\kappa x} + Be^{-\kappa x}$) и справа ($Ce^{\kappa x} + De^{-\kappa x}$) от рассеивателя. В простейшем случае матрица \mathcal{T} действительна и соответствует чисто мнимым значениям фаз θ и φ в формуле (2).

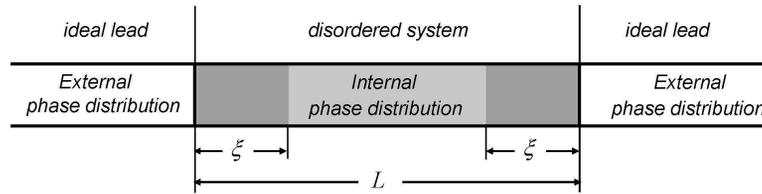


Рис. 2. Внешнее и внутреннее распределение фаз

Сравним ситуацию при $\mathcal{E} > 0$ и $\mathcal{E} < 0$: при достаточно большой раздвижке по энергии различие между двумя типами матриц может быть сделано сколь угодно большим, и оно не может быть перекрыто при добавлении в систему слабого беспорядка. Поэтому граница между истинными и псевдо-трансфер-матрицами может лишь сдвигаться, но не может исчезнуть²⁾. Фактически это проявляется в появлении у фазы ψ мнимой части при энергиях $\mathcal{E} < \mathcal{E}_0$ [17].

Формальные утверждения работы [17] сводятся к следующему. Прежде всего, нужно различать «внешнее» и «внутреннее» распределение фаз (рис. 2). Внутреннее распределение возникает в глубине достаточно длинной неупорядоченной системы и не зависит от граничных условий. При рассмотрении системы со стороны идеальных контактов наблюдается «внешнее» распределение фаз, определяемое граничными условиями; именно такие фазы входят в трансфер-матрицу. Влияние границ раздела существенно на масштабе порядка длины локализации ξ , что определяет переходную область, в которой внутреннее распределение фаз постепенно трансформируется к внешнему. В пределе больших L распределение $P(\rho)$ определяется внутренним распределением фаз, что обеспечивает его неза-

висимость от граничных условий: последнее можно утверждать на формальном уровне [15, 17]. Однако в уравнения эволюции входит именно внешнее распределение фаз, и нужно понять, почему это не влияет на предельное распределение $P(\rho)$. Второй вопрос, связанный с первым, состоит в следующем: каким образом можно найти внутреннее распределение фаз, если оно не входит в уравнения?

Поставленные вопросы разрешаются следующим образом. Фаза ψ оказывается «плохой» переменной, а «правильной» переменной является

$$w = -\text{ctg } \psi/2. \quad (11)$$

Форма стационарного распределения $P(w)$ определяется внутренними свойствами системы и не зависит от граничных условий. Изменение граничных условий приводят к трем эффектам: масштабному преобразованию $w \rightarrow sw$ и трансляциям $w \rightarrow w + w_0$ и $\psi \rightarrow \psi + \psi_0$. Соответствующее изменение распределения $P(\psi)$ является легко предсказуемым [17] и может наблюдаться во внешнем распределении фаз. Уравнения эволюции инвариантны относительно трансляции $\psi \rightarrow \psi + \psi_0$ и внутреннее распределение фаз может обсуждаться при некотором фиксированном выборе начала отсчета. Инвариантность предельного распределения $P(\rho)$ относительно преобразований $w \rightarrow sw$ и $w \rightarrow w + w_0$ реализуется динамически. Аналогично аperiодическим осцилляциям $P(\rho)$ [21, 22], в области $L \lesssim \xi$ масштабный фактор s и трансляционный сдвиг w_0 испытывают осцилляции при изменении L , которые затухают при $L \rightarrow \infty$. При этом s и w_0 стремятся к некоторым «правильным» значениям, которые обеспечивают правильные значения D и v в предельном распределении (10). Указанные «правильные» значения³⁾ соответствуют внутреннему распределению

²⁾ Конечно, можно возразить, что при наличии случайного потенциала нарушается пространственная однородность, и сдвиг этой границы будет зависеть от положения пробного рассеивателя, что приведет к размытию фазового перехода. Физически именно это и происходит, обеспечивая регулярность ландауэровского сопротивления ρ . Однако такие флуктуации дна зоны учитываются пространственными флуктуациями фазы ψ . Ключевой момент состоит в том, что распределение $P(\psi)$ является стационарным и вдали от границ системы обладает пространственной однородностью: оно определяется некоторым набором параметров, которые не зависят от координаты. Поэтому для распределения ψ в целом граница между истинными и псевдо-трансфер-матрицами находится при строго определенной энергии. Стационарное распределение $P(\psi)$ оказывается одним и тем же как при изменении координаты для конкретной реализации потенциала, так и изменении его реализации: фактически это обычная эргодичность, поскольку координата x (разд. 6) играет роль времени.

³⁾ Смысл этих значений s и w_0 состоит в том, что распределение $P(\psi)$ становится стационарным лишь при некоторых «правильных» граничных условиях, которые автоматически формируются на расстоянии порядка ξ от границ системы. Если «правильные» граничные условия (определяющие s и

фаз и последнее может быть найдено при возвращении к переменной ψ . При этом оказывается, что при $\mathcal{E} < \mathcal{E}_0$ трансляционный сдвиг w_0 оказывается комплексным, что означает появление мнимой части у фазы ψ . Это изменение носит качественный характер, указывая на существование фазового перехода.

Точка \mathcal{E}_0 не является особой для сопротивления системы ρ , так что функция распределения $P(\rho)$ проходит через нее совершенно гладким образом (рис. 1 б). Поэтому в рамках физики конденсированного состояния описанный фазовый переход выглядит ненаблюдаемым. Однако в оптике он имеет наблюдаемые проявления в виде корневых сингулярностей в частотных зависимостях (разд. 6.2, 6.3).

4. УРАВНЕНИЕ ЭВОЛЮЦИИ ДЛЯ $P(\chi)$

Согласно [17], изменение трансфер-матрицы $T^{(n)}$ при изменении числа рассеивателей n на единицу определяется рекуррентным соотношением

$$T^{(n+1)} = T^{(n)} T_\delta T_{\epsilon_n}, \quad (12)$$

где матрицы $T^{(n)}$ и T_{ϵ_n} статистически независимы, а T_δ постоянна. При этом можно считать, что

$$T_{\epsilon_n} = \begin{pmatrix} 1 - i\epsilon_n & \epsilon_n e^{i\gamma} \\ \epsilon_n e^{-i\gamma} & 1 + i\epsilon_n \end{pmatrix}, \quad (13)$$

$$T_\delta = \begin{pmatrix} \mathcal{A} & \mathcal{B} \\ \mathcal{B}^* & \mathcal{A}^* \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sqrt{1 + \Delta^2} e^{i\alpha} & \Delta e^{i\beta} \\ \Delta e^{-i\beta} & \sqrt{1 + \Delta^2} e^{-i\alpha} \end{pmatrix}, \quad (14)$$

где величина ϵ_n пропорциональна амплитуде n -го рассеивателя (причем $\langle \epsilon_n \rangle = 0$, $\langle \epsilon_n^2 \rangle \equiv \epsilon^2$), а T_δ определяется параметром δ , пропорциональным расстоянию между рассеивателями⁴⁾ (при этом $\Delta \sim \alpha \sim \delta$ [17]). В дальнейшем рассматриваем предел

$$\delta \rightarrow 0, \quad \epsilon \rightarrow 0, \quad \delta/\epsilon^2 = \text{const} \quad (15)$$

w_0) выбрать на границе системы с идеальными контактами, то переходная область порядка ξ исчезает и стационарное распределение формируется на очень малых масштабах, так что различие между «внешним» и «внутренним» распределением фаз (рис. 2) практически исчезает. Это и дает способ определения «внутреннего» распределения фаз, которое в уравнения не входит, через «внешнее» распределение фаз, входящее в уравнения.

⁴⁾ Постоянство T_δ имеет место, если расстояние между рассеивателями одинаково. Так в одномерной модели Андерсона рассеиватели находятся в каждом узле решетки: в этом случае число рассеивателей n совпадает с длиной системы L в единицах постоянной решетки.

и сохраняем члены первого порядка по δ и второго по ϵ .

Принимая для $T^{(n)}$ параметризацию (2) и обозначая параметры матрицы $T^{(n+1)}$ как $\tilde{\rho}$, $\tilde{\varphi}$, $\tilde{\theta}$, имеем

$$\begin{aligned} \sqrt{1 + \tilde{\rho}} e^{i\tilde{\varphi}} &= \sqrt{1 + \rho} e^{i\varphi} (\mathcal{A} + \epsilon \mathcal{C}) + \sqrt{\rho} e^{i\theta} (\mathcal{B}^* + \epsilon \mathcal{D}^*), \\ \sqrt{\tilde{\rho}} e^{i\tilde{\theta}} &= \sqrt{1 + \rho} e^{i\varphi} (\mathcal{B} + \epsilon \mathcal{D}) + \sqrt{\rho} e^{i\theta} (\mathcal{A}^* + \epsilon \mathcal{C}^*), \end{aligned} \quad (16)$$

где мы положили

$$\mathcal{C} = \mathcal{B} e^{-i\gamma} - i\mathcal{A}, \quad \mathcal{D} = \mathcal{A} e^{i\gamma} + i\mathcal{B}. \quad (17)$$

Возводя по модулю в квадрат одно из уравнений (16), получим (опуская индекс у ϵ_n)

$$\tilde{\rho} = \rho + \mathcal{K} \sqrt{\rho(1 + \rho)} + \epsilon^2(1 + 2\rho), \quad (18)$$

где

$$\mathcal{K} = 2\Delta \cos(\psi - \beta) + 2\epsilon \cos(\psi - \gamma) - 2\epsilon^2 \sin(\psi - \gamma). \quad (19)$$

Беря произведение второго уравнения (16) с комплексно сопряженным первым и исключая $\tilde{\rho}$ с помощью уравнения (18), получим связь $\tilde{\psi}$ и ψ [17]:

$$\begin{aligned} \tilde{\psi} &= \psi + 2(\epsilon - \alpha) + (R^2/2 - 1)\epsilon^2 \sin 2(\psi - \gamma) - \\ &- R [\Delta \sin(\psi - \beta) + \epsilon \sin(\psi - \gamma) + \epsilon^2 \cos(\psi - \gamma)], \end{aligned} \quad (20)$$

где

$$R = \frac{1 + 2\rho}{\sqrt{\rho(1 + \rho)}}. \quad (21)$$

Соотношения (18) и (20) позволяют вывести уравнение эволюции для $P(\rho, \psi)$ [17]. Теперь возьмем произведение двух уравнений (16)

$$\begin{aligned} \sqrt{\tilde{\rho}(1 + \tilde{\rho})} e^{i\tilde{\chi} - i\chi} &= \sqrt{\rho(1 + \rho)} (1 + 2\epsilon^2) + \\ &+ \Delta [e^{i(\beta - \psi)} + 2\rho \cos(\beta - \psi)] \\ &+ \epsilon [e^{i(\gamma - \psi)} + 2\rho \cos(\gamma - \psi)] - \\ &- \epsilon^2 [ie^{i(\gamma - \psi)} - 2\rho \sin(\gamma - \psi)] \end{aligned} \quad (22)$$

и, исключая $\tilde{\rho}$, получим

$$\tilde{\chi} = \chi - f(\rho, \psi), \quad (23)$$

$$\begin{aligned} f(\rho, \psi) &= \\ &= \frac{\Delta \sin(\psi - \beta) + \epsilon \sin(\psi - \gamma) + \epsilon^2 \cos(\psi - \gamma)}{\sqrt{\rho(1 + \rho)}} - \\ &- \frac{\epsilon^2(1 + 2\rho) \sin 2(\psi - \gamma)}{2\rho(1 + \rho)}. \end{aligned}$$

Составляя уравнение эволюции для $P(\chi)$,

$$P_{n+1}(\tilde{\chi}) = \int \delta(\tilde{\chi} - \chi + f(\rho, \psi)) P_n(\chi) \times P_n(\rho, \psi) P_n(\epsilon) d\chi d\rho d\psi d\epsilon, \quad (24)$$

и проводя тривиальное интегрирование по χ , имеем

$$P_{n+1}(\chi) = \langle P_n(\chi + f(\rho, \psi)) \rangle, \quad (25)$$

где усреднение происходит по ρ, ψ, ϵ . Разложение по малой величине $f(\rho, \psi)$ дает

$$P_{n+1}(\chi) - P_n(\chi) = \langle f(\rho, \psi) \rangle \frac{dP_n}{d\chi} + \frac{1}{2} \langle f(\rho, \psi)^2 \rangle \frac{d^2 P_n}{d\chi^2}, \quad (26)$$

что приводит к искомому уравнению

$$\frac{\partial P}{\partial L} = -v^* P'_\chi + D^* P''_{\chi\chi}, \quad (27)$$

которое имеет вид обычного уравнения диффузии с переменными коэффициентами

$$v^* = \left\langle \frac{-\Delta \sin(\psi - \beta) + \epsilon^2 \cos(\psi - \gamma) [R \sin(\psi - \gamma) - 1]}{\sqrt{\rho(1 + \rho)}} \right\rangle, \quad (28)$$

$$D^* = \left\langle \frac{\epsilon^2 \sin^2(\psi - \gamma)}{2\rho(1 + \rho)} \right\rangle,$$

определяемыми средними по распределению $P(\rho, \psi)$.

5. ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ В РАСПРЕДЕЛЕНИИ $P(\chi)$

При больших L типичные значения ρ велики, и в (28) можно ограничиться главным порядком по $1/\rho$. Кроме того, распределение $P(\rho, \psi)$ факторизуется, и усреднение по ρ и ψ происходит независимо:

$$v^* = \langle -\Delta \sin(\psi - \beta) - \epsilon^2 \cos(\psi - \gamma) + \epsilon^2 \sin 2(\psi - \gamma) \rangle \times \langle \rho^{-1} \rangle, \quad (29)$$

$$D^* = \frac{1}{2} \langle \epsilon^2 \sin^2(\psi - \gamma) \rangle \langle \rho^{-2} \rangle.$$

Моменты $\langle \rho^m \rangle$ для логнормального распределения (10) имеют экспоненциальное поведение

$$\langle \rho^m \rangle \propto \exp(\kappa_m L) \quad (30)$$

с показателями

$$\kappa_m = \begin{cases} vm + Dm^2, & m > -v/2D \\ -v^2/4D, & m < -v/2D \end{cases} \quad (31a)$$

$$(31b)$$

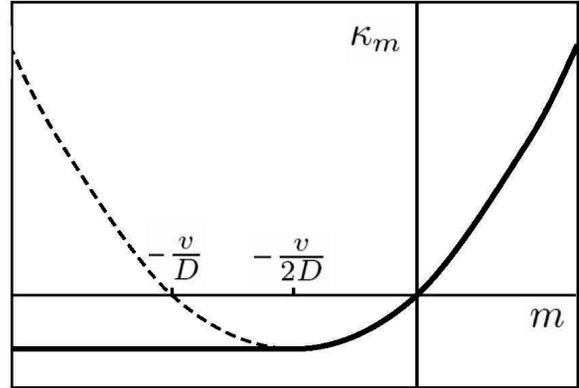


Рис. 3. Показатель κ_m в формуле (30) как функция m . Сплошная кривая — при учете ограничения $\rho \gtrsim 1$ для логнормального распределения (10), штриховая кривая — при отсутствии такого ограничения

При вычислении $\langle \rho^m \rangle$ нужно учитывать, что логнормальное распределение (10) справедливо не для произвольных ρ , а лишь для $\rho \gtrsim 1$; в первом случае результат (31a) был бы справедлив без ограничений⁵⁾ (рис. 3).

Параметр κ_m отрицателен при $m < 0$, и удобно положить для наглядности

$$\kappa_{-m} = -\tilde{\kappa}_m, \quad m > 0. \quad (32)$$

Ввиду стационарности распределения $P(\psi)$ средние по ψ в выражениях (29) сводятся к константам, так что уравнение для $P(\chi)$ принимает вид

$$\frac{\partial P}{\partial L} = c_1 e^{-\tilde{\kappa}_1 L} P'_\chi + c_2 e^{-\tilde{\kappa}_2 L} P''_{\chi\chi} \quad (33)$$

и при больших L решается итерационным способом:

$$P_L(\chi) = P_\infty(\chi) - \frac{c_1}{\tilde{\kappa}_1} e^{-\tilde{\kappa}_1 L} P'_\infty(\chi) - \frac{c_2}{\tilde{\kappa}_2} e^{-\tilde{\kappa}_2 L} P''_\infty(\chi), \quad (34)$$

где $P_\infty(\chi)$ — предельное распределение при $L \rightarrow \infty$.

На рис. 1 б отмечены точки $\tilde{\mathcal{E}}_1$ и $\tilde{\mathcal{E}}_2$, соответствующие условиям $v = 2D$ и $v = 4D$. Если бы логнормальное распределение (10) было справедливо при

⁵⁾ Подынтегральная функция $\rho^m P(\rho)$ после замены $x = \ln \rho$ имеет гауссовскую форму, справедливую лишь при $x \gtrsim 1$. Для $m > -v/2D$ гауссовская функция сильно локализована вблизи максимума, находящегося при больших положительных x , так что ограничение $x \gtrsim 1$ для нее несущественно. Для $m < -v/2D$ максимум гауссовской функции уходит в большие отрицательные x , и интеграл определяется ее хвостом в области $x \gtrsim 1$; коэффициент пропорциональности в (30) зависит от деталей распределения при $\rho \lesssim 1$, но показатель κ_m от них не зависит.

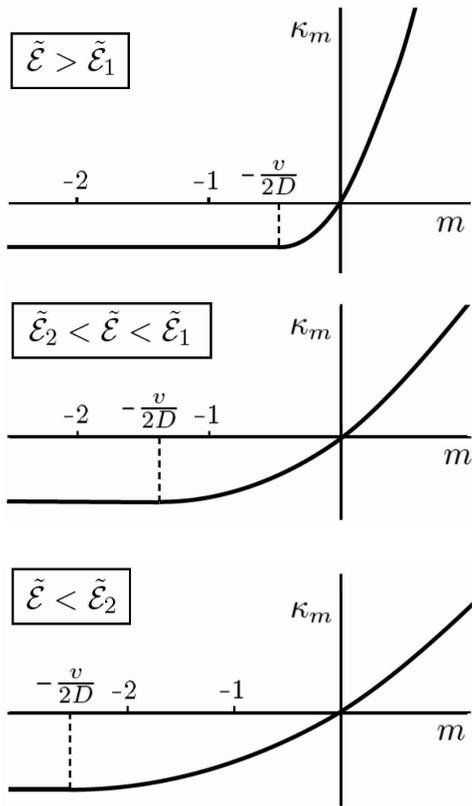


Рис. 4. Взаимное расположение точек $-v/2D$, -1 и -2 при $\tilde{\mathcal{E}} > \tilde{\mathcal{E}}_1$, $\tilde{\mathcal{E}}_2 < \tilde{\mathcal{E}} < \tilde{\mathcal{E}}_1$ и $\tilde{\mathcal{E}} < \tilde{\mathcal{E}}_2$

произвольных ρ , то в точке $\tilde{\mathcal{E}}_1$ происходил бы эффективный фазовый переход, связанный с изменением знака $\tilde{\kappa}_2$ (точка $-v/D$ на рис. 3 при $\tilde{\mathcal{E}} = \tilde{\mathcal{E}}_1$ сравнивается с -2 , так что $\tilde{\kappa}_2 > 0$ при $\tilde{\mathcal{E}} < \tilde{\mathcal{E}}_1$ и $\tilde{\kappa}_2 < 0$ при $\tilde{\mathcal{E}} > \tilde{\mathcal{E}}_1$): эффективный коэффициент диффузии в уравнении (33) возрастал бы с ростом L при $\tilde{\mathcal{E}} > \tilde{\mathcal{E}}_1$ и убывал при $\tilde{\mathcal{E}} < \tilde{\mathcal{E}}_1$. При больших L распределение $P(\chi)$ было бы с высокой точностью однородным при $\tilde{\mathcal{E}} > \tilde{\mathcal{E}}_1$, тогда как при $\tilde{\mathcal{E}} < \tilde{\mathcal{E}}_1$ стабилизировалось бы некоторое нетривиальное распределение $P_\infty(\chi)$, определяемое ранней стадией эволюции и не обладающее никакой универсальностью.

При наличии ограничения $\rho \gtrsim 1$ такой эффективный фазовый переход не реализуется⁶⁾, но в точке $\tilde{\mathcal{E}}_1$ сохраняется некоторая сингулярность; аналогичная сингулярность имеется в точке $\tilde{\mathcal{E}}_2$. Как ясно из рис. 4, точка $-v/2D$, соответствующая сшивке параболы и константы, при $\tilde{\mathcal{E}} > \tilde{\mathcal{E}}_1$ находится правее

точки -1 , так что

$$\tilde{\kappa}_1 = \tilde{\kappa}_2 \quad \text{при} \quad \tilde{\mathcal{E}} > \tilde{\mathcal{E}}_1. \quad (35)$$

При $\tilde{\mathcal{E}}_2 < \tilde{\mathcal{E}} < \tilde{\mathcal{E}}_1$ точка $-v/2D$ находится между значениями -2 и -1 , а при $\tilde{\mathcal{E}} < \tilde{\mathcal{E}}_2$ — левее точки -2 . Нетрудно видеть, что $\tilde{\kappa}_1$ имеет скачок второй производной при $\tilde{\mathcal{E}} = \tilde{\mathcal{E}}_1$, а $\tilde{\kappa}_2$ — аналогичный скачок при $\tilde{\mathcal{E}} = \tilde{\mathcal{E}}_2$. Такие скачки могут быть легко обнаружены при использовании уравнения (34): для этого достаточно найти предельное распределение $P_\infty(\chi)$ и обработать $P_L(\chi)$ на зависимость $P_\infty + aP'_\infty + bP''_\infty$: это линейная схема обработки, реализуемая стандартными программами [23]. Условие (15) соответствует большой концентрации слабых примесей: в этом случае коэффициенты в уравнении (27) меняются медленно, что приводит к формированию для $P(\chi)$ гауссовского распределения с переменными параметрами⁷⁾. Оно определяется первыми двумя моментами, что существенно упрощает обработку.

Заметим, что в точке $\tilde{\mathcal{E}}_1$ происходит качественное изменение, состоящее в нарушении равенства (35), тогда как в точке $\tilde{\mathcal{E}}_2$ имеется просто сингулярность.

6. ВОЗМОЖНОСТИ ИЗМЕРЕНИЙ В ОДНОМODOVЫХ ВОЛНОВОДАХ

6.1. Аналогия с оптикой

Локализация классических волн обсуждалась во многих работах [10, 11, 24–30], что включает рассмотрение слабой [25] и сильной [26, 27] локализации, поглощение вблизи порога подвижности фотонов [24], ближнеполевое исследование интенсивности оптических мод в неупорядоченных волноводах [29], и множество других аспектов (см. обзор [28]). Использование трансфер-матриц в этом контексте обсуждалось в работах [10, 11, 30]. В применении к оптике соответствующий анализ сводится к нескольким простым соотношениям.

Распространение электромагнитной волны в однородной диэлектрической среде описывается волновым уравнением

$$c^2 \Delta \Psi - n^2 \frac{\partial^2 \Psi}{\partial t^2} = 0, \quad (36)$$

где Ψ — любая компонента электрического или маг-

⁶⁾ Не исключено, что при некоторых специальных условиях логнормальное распределение может распространяться в область малых ρ и этот вывод может быть пересмотрен.

⁷⁾ Сказанное справедливо в случае достаточно сильной локализации распределения $P(\chi)$; в общем случае оно имеет вид суммы гауссовских функций, центры которых разнесены на 2π , что обеспечивает 2π -периодичность решения.

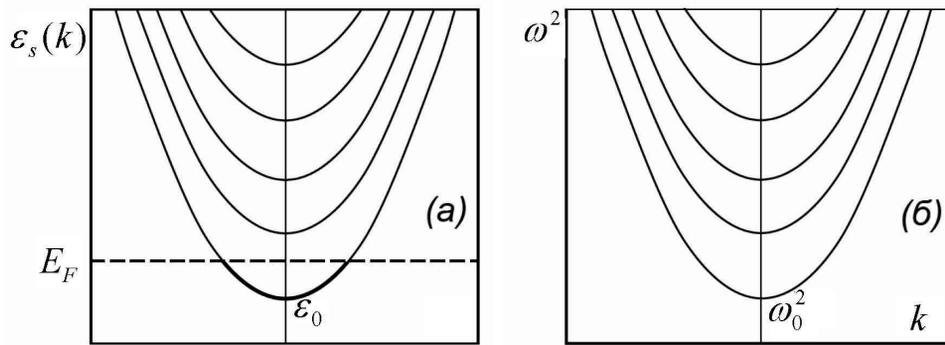


Рис. 5. Спектры электронов в металлической проволоке (а) и волн в металлическом волноводе (б)

нитного поля. В пространственно-неоднородной системе показатель преломления n флуктуирует при изменении координаты x , т. е.

$$n^2(x) = n_0^2 + \delta n^2(x), \quad (37)$$

что для монохроматической волны $\Psi \sim e^{i\omega t}$ приводит к уравнению

$$\tilde{c}^2 \Delta \Psi + \left[\omega^2 + \omega^2 \frac{\delta n^2(x)}{n_0^2} \right] \Psi = 0, \quad \tilde{c} = c/n_0, \quad (38)$$

структура которого соответствует уравнению Шредингера для электрона с энергией \mathcal{E} и массой m в случайном потенциале $V(x)$. При этом имеет место соответствие

$$\mathcal{E} \iff \omega^2, \quad \frac{1}{2m} \iff \tilde{c}^2, \quad V(x) \iff -\omega^2 \frac{\delta n^2(x)}{n_0^2}. \quad (39)$$

Некоторое отличие от физики конденсированного состояния связано с зависимостью $V(x)$ от ω (а следовательно, от \mathcal{E}), что не играет существенной роли, если ограничиться небольшим интервалом частот в непрерывном спектре.

Спектр волн в металлическом волноводе аналогичен спектру электронов в металлической проволоке. В последнем случае поперечное движение заковано, что дает набор дискретных уровней ϵ_s . С учетом продольного движения эти уровни превращаются в одномерные зоны с законами дисперсии (рис. 5 а)

$$\epsilon_s(k) = \epsilon_s + k^2/2m. \quad (40)$$

Для получения строго одномерной системы уровень Ферми должен быть достаточно мал, чтобы была заполнена только нижняя зона. При наличии примесей нижняя граница спектра ϵ_0 размывается за счет появления флуктуационных состояний при $\mathcal{E} < \epsilon_0$.

Зависимости на рис. 1 соответствуют энергии \mathcal{E} , отсчитанной от ϵ_0 .

Аналогично, в металлическом волноводе квантование поперечного движения дает набор дискретных частот ω_s , таких что $\omega_s = \tilde{c}\kappa_s$, где $-\kappa_s^2$ есть собственное значение двумерного оператора Лапласа с соответствующими граничными условиями [31]. Нулевое собственное значение возможно лишь в случае, когда поперечное сечение волновода является многосвязным (как в коаксиальном кабеле). Для односвязного сечения минимальное значение ω_0 конечно [31], и с учетом продольного движения имеем следующие ветви спектра (рис. 5 б)

$$\omega_s^2(k) = \omega_s^2 + \tilde{c}^2 k^2. \quad (41)$$

Для реализации одномодового режима нужно работать вблизи нижней границы спектра ω_0 . При наличии беспорядка нижняя граница ω_0 размывается за счет появления флуктуационных состояний. Таким образом, все эффекты, которые имеют место в электронной системе при изменении уровня Ферми, могут наблюдаться в одномодовом волноводе при изменении частоты ω в окрестности ω_0 .

Спектр на рис. 5 б справедлив для металлического волновода, представляющего собой полую металлическую трубу, которая может быть заполнена непоглощающим диэлектриком. Последний случай (диэлектрический волновод с металлическим покрытием) представляет основной интерес для наших целей ввиду возможности внесения примесей, обеспечивающих достаточно сильное упругое рассеяние. Толщина металлического покрытия должна быть порядка глубины скин-слоя, чтобы обеспечить частичную прозрачность для электрического поля (разд. 6.4). В металлическом волноводе поперечное движение ограничено потенциальной ямой с беско-

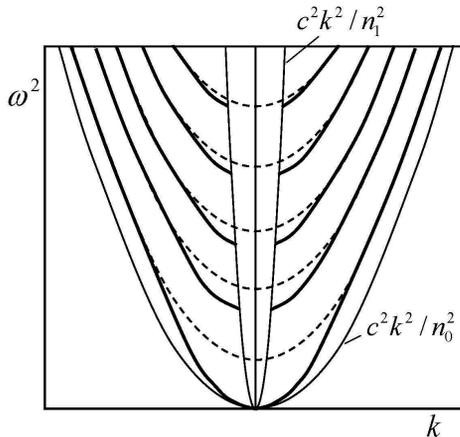


Рис. 6. Спектр волн в диэлектрическом волноводе с показателем преломления n_0 внутри волновода и n_1 в окружающем пространстве. При больших ω спектр такой же, как в металлическом волноводе (стенки потенциальной ямы почти бесконечны); при уменьшении ω возникают отклонения от параболической зависимости, показанной пунктиром. Ограничение снизу для разрешенных значений продольного импульса k возникает из-за нарушения при малых k условий для полного внутреннего отражения. Исчезновение граничной частоты ω_0 связано с тем, что величина κ_0^2 ограничена сверху глубиной потенциальной ямы, пропорциональной ω^2

нечными стенками, так что множитель ω^2 в (39) не имеет значения и параметры κ_s являются константами, зависящими лишь от формы поперечного сечения волновода; соответственно, спектр на рис. 5 б является строго параболическим.

При отсутствии металлического покрытия (чисто диэлектрический волновод) поперечное движение ограничено потенциальной ямой с конечными стенками, поэтому зависимость эффективного потенциала $V(x)$ от частоты (см. (39)) становится существенной. Параметры κ_s перестают быть постоянными и приобретают зависимость от ω , что приводит к отклонениям от параболической зависимости в координатах (ω^2, k) . В частности, величина κ_0^2 ограничена глубиной потенциальной ямы, пропорциональной ω^2 , что приводит к исчезновению граничной частоты ω_0 (рис. 6). Кроме того, возникают ограничения снизу на разрешенные значения продольного импульса k , связанные с нарушением при малых k условий для полного внутреннего отражения. В обычном уравнении Шредингера связанные состояния в потенциальной яме $V(x)$ лежат в энергетическом интервале $V_{min} < \mathcal{E} < V_\infty$, где V_{min} — минимальное значение потенциала $V(x)$, а V_∞ — его предельное (постоянное) значение на бесконечности.

В диэлектрическом волноводе аналогичное условие имеет вид $n_1^2 \omega^2 < c^2 k^2 < n_0^2 \omega^2$, где n_0 и n_1 — показатели преломления внутри волновода и в окружающем пространстве: в результате спектр волн в волноводе ограничен двумя параболой (рис. 6). Нетрудно видеть, что в случае чисто диэлектрического волновода аналогия с электронными системами нарушена: отсутствует все, что соответствует запрещенной зоне, и некоторые отличия возникают вблизи края зоны. Однако разрешенная зона остается доступной для исследования⁸⁾: в частности, фазовый переход в распределении $P(\psi)$ находится в разрешенной зоне (рис. 1 б) и может сохраняться в диэлектрическом волноводе (хотя это нельзя утверждать на формальном уровне). Его сохранение вероятно, если беспорядок достаточно сильный и ожидаемый переход попадает в область, где отличие реального спектра от параболического не слишком велико.

6.2. Регистрация фазового перехода в распределении $P(\psi)$

Пусть слева на волновод падает волна единичной амплитуды, которая с амплитудой t проходит через весь волновод, и с амплитудой r отражается (рис. 7). Если в волноводе есть точечные рассеиватели, то на каждом из них происходит частичное отражение. Поэтому в произвольной точке x волновода мы имеем суперпозицию двух волн, движущихся в

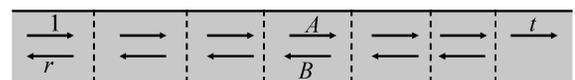


Рис. 7. Распространение волны в волноводе с точечными рассеивателями

противоположных направлениях; электрическое поле $E(x, t)$ определяется ее действительной частью:

$$E(x, t) = \text{Re} [Ae^{ikx+i\omega t} + Be^{-ikx+i\omega t}] . \quad (42)$$

Если трансфер-матрица T определяется согласно (1), (2), то амплитуды волн в суперпозиции (42) определяются соотношением

$$\begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix} = T \begin{pmatrix} t \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} |t|\sqrt{\rho+1}e^{i\varphi-i\varphi_0} \\ |t|\sqrt{\rho}e^{-i\theta-i\varphi_0} \end{pmatrix} , \quad (43)$$

⁸⁾ В экспериментальном плане чисто диэлектрический волновод имеет преимущества, связанные с отсутствием омических потерь в металлическом покрытии.

где ρ , φ , θ зависят от x и принято $t = |t|e^{-i\varphi_0}$. Если амплитуда $|t|$ достаточно мала, то величина ρ велика почти во всем волноводе (за исключением окрестности правого края). Тогда $|A| \approx |B|$, и в этом приближении (42) дает

$$E(x, t) = \text{Re} [|A| e^{ikx+i\omega t+i\varphi-i\varphi_0} + |B| e^{-ikx+i\omega t-i\theta-i\varphi_0}] \approx \approx 2|A| \cos(kx + \chi/2) \cos(\omega t - \psi/2 - \varphi_0), \quad (44)$$

так что фаза χ определяет координатную, а фаза ψ — временную зависимость. Фазы ψ и χ остаются постоянными в промежутках между рассеивателями и изменяются скачком при прохождении через рассеиватель. При большой концентрации примесей их координатная зависимость становится практически непрерывной и соответствует случайным флуктуациям на масштабе длины рассеяния.

Поскольку поле $E(x, t)$ в принципе измеримо, то обе фазы χ и ψ теоретически наблюдаемы. В этом принципиальное отличие от физики конденсированного состояния, где суперпозиция волн относится к волновой функции, и для перехода к наблюдаемым величинам должна возводиться по модулю в квадрат: при этом фаза ψ оказывается не наблюдаемой в принципе. Однако фаза ψ становится ненаблюдаемой и в оптике, если измеряется только средняя интенсивность, т. е. если (44) возводится в квадрат и усредняется по времени. Нетрудно проверить, что этот вывод сохраняется и при условии $|A| \neq |B|$.

Тем не менее, появление мнимой части ψ возможно зарегистрировать и в этом случае. Полагая

$$\varphi = \varphi' + i\varphi'', \quad \theta = \theta' + i\theta'', \quad (45)$$

имеем для амплитуд в линейной комбинации (42)

$$|A| = |t|\sqrt{\rho+1}e^{-\varphi''}, \quad |B| = |t|\sqrt{\rho}e^{\theta''}. \quad (46)$$

Для сохранения потока⁹⁾ должно выполняться условие $|A|^2 = |B|^2 + |t|^2$, которое сводится к

$$(\rho+1)e^{-\varphi''} = \rho e^{\theta''} + 1 \quad (47)$$

и при больших ρ дает $\theta'' = -\varphi''$. Нетрудно видеть, что мнимая часть отсутствует у фазы χ , но является

⁹⁾ Рассеяние предполагается чисто упругим. Неизбежные омические потери в металлическом покрытии волновода считаются достаточно слабыми для доминирования локализационных эффектов. Достаточно сильное упругое рассеяние в принципе может быть обеспечено: так в случае оптоволокна считается установленным, что рассеяние на примесях является главным для не слишком чистых волокон [32].

допустимой для фазы ψ ; при этом $\psi'' = 2\theta'' = -2\varphi''$, и в частности

$$|A| = |t|\sqrt{\rho+1}e^{\psi''/2}. \quad (48)$$

Критическое поведение мнимой части ψ может быть установлено из общих соображений. Пусть имеется уравнение $F(x) = 0$, где функция $F(x)$ регулярным образом зависит от некоторого внешнего параметра ϵ . Если при пересечении точки $\epsilon = 0$ два действительных корня становятся комплексными, то при $\epsilon = 0$ имеется кратный корень $x = p$, в окрестности которого (в предположении конечности первой производной по ϵ) уравнение имеет вид

$$(x - p)^2 - a\epsilon = 0, \quad (49)$$

что при $a\epsilon > 0$ дает корни $p \pm \sqrt{a\epsilon}$, а при $a\epsilon < 0$ корни $p \pm i\sqrt{|a\epsilon|}$. Таким образом, появление мнимой части x связано с корневой сингулярностью. Согласно разд. 3, мнимая часть ψ возникает в результате подбора параметров s и w_0 , обеспечивающих правильные значения v и D в логнормальном распределении (10). Тем самым s и w_0 определяются решением некоторых уравнений, численный анализ которых показывает [17], что появление мнимой части w_0 связано со слиянием двух действительных корней и последующим их переходом в комплексную плоскость¹⁰⁾. Поэтому приведенные выше соображения имеют прямое отношение к делу: если мнимая часть ψ появляется при $\omega < \omega_c$, то она имеет поведение¹¹⁾

$$\psi'' \sim \sqrt{\omega_c - \omega} \Theta(\omega_c - \omega). \quad (50)$$

Согласно [17], распределение $P(\rho)$ не имеет сингулярности при $\omega = \omega_c$ (рис. 1 б). Это относится к значению ρ в любой точке волновода, и в частности к ее значению на полной длине L , которое связано с t соотношением $|t| = (1 + \rho)^{-1/2}$. Поэтому сингулярность в (48) всецело определяется величиной ψ'' и имеет корневой характер. Корневые сингулярности в точке \mathcal{E}_0 визуальны различимы на рисунках 8 и 11 работы [17], хотя и получены в результате численного анализа.

Общая картина представляется следующим образом. Модуль A меняется внутри волновода в основном по экспоненциальному закону $|A| \sim e^{-\alpha x}$, но

¹⁰⁾ Второй действительный корень соответствует нефизической ветви и потому не обсуждался в [17].

¹¹⁾ Обычно в теории фазовых переходов корневое поведение параметра порядка соответствует теории среднего поля, тогда как учет флуктуаций приводит к формированию нетривиального критического индекса β , меньшего, чем 1/2. В настоящее время мы не видим никаких оснований для реализации такого сценария.

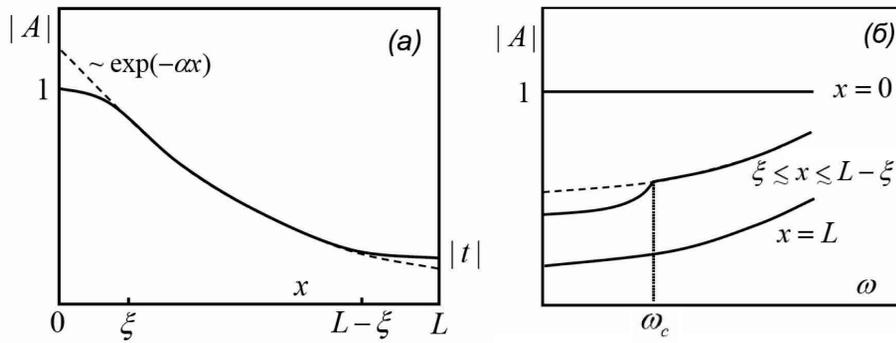


Рис. 8. (а) Зависимость амплитуды A проходящей волны от координаты x внутри волновода. (б) Зависимость $|A|$ от частоты в окрестности фазового перехода

от него имеются отклонения на расстоянии порядка ξ от краев системы, связанные с влиянием граничных условий (рис. 8 а); при этом $|A| = 1$ для $x = 0$ и $|A| = |t|$ для $x = L$. Последняя величина связана с ρ и потому регулярна по ω . Однако вдали от краев волновода величина $|A|$ имеет корневую сингулярность (рис. 8 б), которая может быть зафиксирована уже при измерении средней интенсивности. Такая сингулярность является наблюдаемой в конкретной точке системы для конкретной реализации потенциала, поскольку переход от истинной к псевдо-трансфер-матрице происходит при энергии, соответствующей перенормированному краю зоны, сдвинутого за счет случайного потенциала¹²⁾. Этот сдвиг меняется от точки к точке (см. примечание 2), но для функции распределения в целом соответствует строго определенной энергии. Поэтому и моменты распределения фазы также имеют корневую сингулярность (см. конец разд. 6.3).

Согласно [17], точка перехода \mathcal{E}_0 находится в разрешенной зоне на расстоянии порядка $W^{4/3}$ от края зоны (рис. 1 б). Соответственно, в оптике точка ω_c оказывается больше граничной частоты ω_0 , а расстояние между ними определяется степенью беспорядка.

6.3. Наблюдаемость фаз ψ и χ

Измерение временной зависимости на оптических частотах, как правило, невозможно. Однако

¹²⁾ В этом случае корневая сингулярность может быть получена тривиально из поведения истинной и псевдо-трансфер-матрицы для точечного рассеивателя при приближении к краю исходной зоны (см. работу [15]) с учетом его флуктуационного сдвига.

наблюдаемость фазы ψ может быть обеспечена с помощью гетеродинной техники, когда к измеряемому полю $E(x, t)$ добавляется вспомогательное поле $E_s(x, t)$, частота которого сдвинута на малую величину Ω :

$$E + E_s = \text{Re} \left\{ |E| e^{i\omega t + i\varphi_E} + |E_s| e^{i(\omega + \Omega)t + i\varphi_s} \right\}. \quad (51)$$

Переходя к интенсивности и усредняя быстрые осцилляции по времени, имеем

$$\begin{aligned} \overline{2(E + E_s)^2} &= \\ &= |E|^2 + |E_s|^2 + 2|E||E_s| \cos(\Omega t + \varphi_s - \varphi_E), \quad (52) \end{aligned}$$

так что фаза φ_E входит в комбинации с Ωt , что обеспечивает возможность ее измерения. Для поля $E(x, t)$, соответствующего результату (44), получим

$$\begin{aligned} \overline{2(E + E_s)^2} &= \{4|A|^2 \cos^2(kx + \chi/2) + |E_s|^2\} + \\ &+ 2|A| \cos(kx + \chi/2) \times \\ &\times 2|E_s| \cos(\Omega t + \psi/2 + \varphi_0 + \varphi_s), \quad (53) \end{aligned}$$

так что обе фазы χ и ψ оказываются наблюдаемыми, и могут быть извлечены из эксперимента путем следующей обработки.

Стационарный первый член в правой части (53) и осциллирующий по времени второй член можно разделить путем Фурье-анализа. Постоянный вклад $|E_s|^2$ легко отделяется, так как минимальное значение первого члена в фигурной скобке равно нулю. Поскольку косинус меняется регулярным образом и меняет знак при каждом прохождении через ноль, то квадратный корень из первого члена в фигурной

скобке может быть извлечен с точностью до несущественного общего знака. В результате известны по отдельности две комбинации

$$|A| \cos(kx + \chi/2) \text{ и } |E_s| \cos(\Omega t + \psi/2 + \varphi_0 + \varphi_s). \quad (54)$$

Множитель $|E_s|$ во второй комбинации определяется по амплитуде осцилляций по времени¹³⁾, после чего зависимость этой комбинации от x может быть приписана фазе ψ .

Обработка первой комбинации в (54) осложняется тем, что $|A(x)|$ не следует строго экспоненциальной зависимости $\exp(-\alpha x)$, но имеет существенные флуктуации вокруг нее, определяясь логнормальным распределением (10). Правильная обработка представляется следующим образом.

1. Определить k по среднему периоду осцилляций.

2. Найти значения χ в дискретных точках — максимумах, минимумах и нулях осциллирующей зависимости — по отклонению их положения от чистого косинуса. Если значение k выбрано правильно, то получаемые значения χ будут флуктуировать вблизи постоянного уровня и не будут иметь систематического роста. Это определяет массив данных для анализа распределения χ .

3. Определить значения $|A(x)|$ в точках максимумов и минимумов. Это позволяет набрать статистику для проверки логнормального распределения и выявления систематических отклонений от экспоненциальной зависимости на краях волновода.

Наблюдаемость фазы ψ дает дополнительные возможности для регистрации фазового перехода в распределении $P(\psi)$. Если от ψ перейти к переменной w , определенной в (11), то моменты распределения $P(w)$ (в частности $\langle w \rangle$) будут иметь сингулярности $\sqrt{\omega - \omega_c}$ в области $\omega > \omega_c$. Фаза χ не влияет на эволюцию распределения сопротивлений и потому не изучалась в работах [16, 17]. Однако ее наблюдаемость в оптике делает такие исследования актуальными.

6.4. Возможные схемы измерений

Измерение электрического поля внутри волновода возможно с помощью сканирующего оптического микроскопа ближнего поля [33–35]. Есть две разновидности такого микроскопа — детектирующий

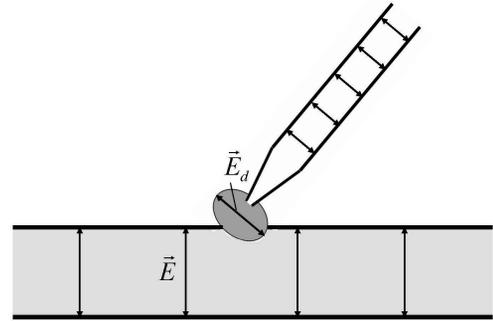


Рис. 9. Измерение поля в волноводе с помощью сканирующего оптического микроскопа ближнего поля

и рассеивающий: в зависимости от этого возможны две различные схемы измерений. Сопоставление этих двух схем приводит к комбинированному варианту, в котором проблема детектирования сводится к атомно-силовой [36, 37] или туннельной [38] микроскопии.

Детектирующий режим. В этом случае игла оптического микроскопа (отрезок оптоволокна с металлическим покрытием) представляет собой волновод с сужением на конце и отверстием диаметра d , меньшим длины волны (рис. 9). Создаваемое им поле в ближней зоне можно представлять в виде «облака» конечного объема $V_d \sim d^3$ (см. рис. 4 в работе [35]), электрическое поле \mathbf{E}_d в котором приблизительно постоянно и ориентировано параллельно полю внутри иглы. Пусть игла микроскопа имеет определенный наклон и приближается к поверхности изучаемого волновода, так что некоторый объем V «облака» проникает внутрь волновода (рис. 9). Если \mathbf{E} — электрическое поле внутри волновода, то изменение энергии за счет проникновения «облака» определяется выражением

$$[(\mathbf{E} + \mathbf{E}_d)^2 - \mathbf{E}^2 - \mathbf{E}_d^2] V = 2\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}_d V. \quad (55)$$

При малых смещениях иглы x изменение объема пропорционально смещению, $\delta V = Sx$, где S — площадь пересечения «облака» с поверхностью волновода. Поэтому сила, действующая на иглу микроскопа, определяется выражением (55) с заменой V на S и зависит от измеряемого поля. Она может быть преобразована в смещение иглы или изменение напряжения, удерживающего иглу в неизменном положении. В реальности поле \mathbf{E}_d зависит от координат и вместо (55) нужно писать

$$\int 2\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}_d(\mathbf{r}) d^3 r \quad (56)$$

¹³⁾ Другой способ обработки состоит в том, чтобы провести измерения при нескольких значениях $|E_s|$ и обработать (53) на зависимость $\alpha + \beta|E_s| + \gamma|E_s|^2$.

с интегрированием по объему волновода, что в результате грубой оценки интеграла возвращает к (55).

Считая, что $E \sim E_d$ и вводя атомные единицы напряженности поля и силы

$$E_0 = \frac{e}{a^2} \sim 10^9 \text{ В/см}, \quad F_0 = \frac{e^2}{a^2} \sim 10^{-2} \text{ дин}, \quad (57)$$

получим оценку силы, действующей на иглу

$$F \sim F_0 \left(\frac{E}{E_0} \right)^2 \left(\frac{d}{a} \right)^2. \quad (58)$$

Поскольку размер отверстия d ограничен условием $d \lesssim \lambda \sim 10^4 a$, то можно считать, что

$$F \sim 10^6 \left(\frac{E}{E_0} \right)^2 \text{ дин}. \quad (59)$$

Максимальное значение поля ограничено полем пробоя диэлектрика порядка 10^7 В/см . Если в качестве предела чувствительности принять величину $F \sim 10^{-8} \text{ дин}$, характерную для туннельной микроскопии [38], то имеется широкий интервал полей

$$10^{-7} E_0 \lesssim E \lesssim 10^{-2} E_0, \quad (60)$$

для которых изложенная схема является реалистичной.

Если в качестве E_d используется поле E_s со сдвинутой частотой (см. (51)), то сила, действующая на иглу, определяется величиной

$$F \sim S|A||E_s| \times \cos(kx + \chi/2) \cos(\Omega t + \psi/2 + \varphi_0 + \varphi_s), \quad (61)$$

обработка которой даже проще, чем выражения (53). Выше мы не учитывали наличие полупроницаемого металлического покрытия (разд. 6.1) и отличие от единицы диэлектрической проницаемости внутри волновода. Учет этих факторов приводит к добавлению в правой части (61) аддитивного слагаемого порядка E_s^2 , не зависящего от измеряемого поля и легко отделяемого при обработке.

Общая схема измерений представляется следующим образом (рис. 10). Луч от лазера расщепляется на две части, одна из которых направляется в волновод. Вторая часть падает на осциллирующее зеркало, что приводит к сдвигу частоты на величину Ω за счет эффекта Доплера. Поскольку скорость зеркала является переменной, то это приводит к переменной Ω . Эту проблему можно решить, регистрируя временную зависимость в дискретных точках,

отстоящих на период колебаний зеркала; другая возможность состоит в реализации не гармонического, а пилообразного режима колебаний. От зеркала луч направляется в иглу микроскопа, на конце которой возникает поле $E + E_s$, что позволяет измерять координатную зависимость поля E в результате сканирования поверхности волновода.

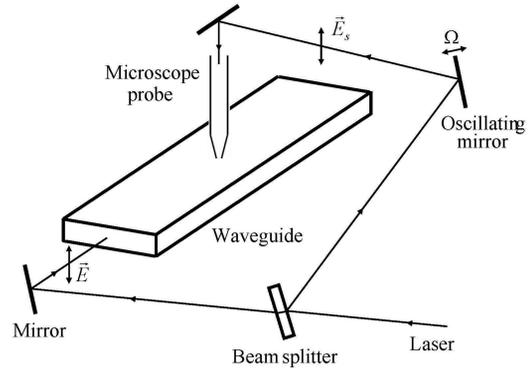


Рис. 10. Общая схема измерений в детектирующем режиме оптического микроскопа ближнего поля

Рассеивающий режим. В этом случае игла оптического микроскопа используется не для непосредственного детектирования, а лишь как источник рассеяния¹⁴. Распространяющаяся в волноводе волна за счет туннельного эффекта частично выходит за пределы волновода и может рассеиваться на кончике иглы, находящемся близко к поверхности. Рассеяние можно считать рэлеевским, и электрическое поле в рассеянной волне оказывается пропорциональным полю $E(x, t)$ в волноводе¹⁵ в точке рассеяния x .

Общая схема измерений выглядит следующим образом (рис. 11). Луч от лазера расщепляется на две части, одна из которых направляется в волновод и рассеивается на игле микроскопа. Рассеянный свет собирается параболическим зеркалом и направляется на смеситель. Вторая часть лазерного луча падает на осциллирующее зеркало и приобретает сдвиг

¹⁴ Ее можно заменить иглой туннельного микроскопа, что при наличии металлического покрытия (разд. 6.1) позволяет использовать все преимущества сканирующей туннельной микроскопии [38].

¹⁵ При рэлеевском рассеянии поле рассеянной волны в главном приближении определяется электрическим полем падающей волны и не зависит от волнового вектора последней [31]. Поэтому две волны, входящие в суперпозицию (42), рассеиваются одинаково, и суммарное поле рассеянной волны пропорционально полю в волноводе.

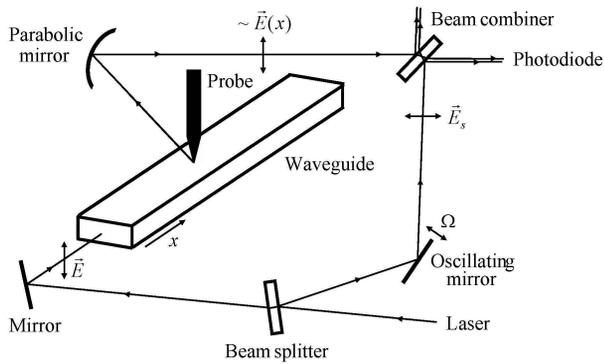


Рис. 11. Схема измерений электрического поля в волноводе для рассеивающего режима оптического микроскопа ближнего поля

частоты Ω за счет эффекта Доплера. От зеркала луч направляется на смеситель, где соединяется с первым лучом и направляется на фотодиод для измерения интенсивности. Изложенная схема практически реализована в работе [39], где можно найти недостающие экспериментальные детали.

Комбинированная схема отличается от рис. 10 тем, что второй луч от зеркала идет не в иглу микроскопа, а направляется к волноводу, просвечивая его в поперечном направлении вблизи поверхности (рис. 12). Поскольку поле \mathbf{E} за счет туннельного эффекта выходит за пределы волновода, то вблизи его поверхности имеется поле $\mathbf{E} + \mathbf{E}_s$, энергия которого изменяется при приближении иглы микроскопа за счет диэлектрической поляризуемости последней. В результате сила, действующая на иглу, пропорциональна интенсивности поля $\mathbf{E} + \mathbf{E}_s$ и проблема ее измерения сводится к атомно-силовой [36, 37] или туннельной [38] микроскопии.

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выше показано, что все результаты, полученные для электронов в одномерных неупорядоченных системах, непосредственно применимы к рассеянию волн, распространяющихся в одномерных волноводах. Современные оптические методы позволяют измерять все параметры ρ , ψ , χ , входящие в трансфер-матрицу. В результате становится возможным наблюдение фазового перехода в распределении фазы ψ , который выглядит ненаблюдаемым в контексте физики конденсированного состояния.

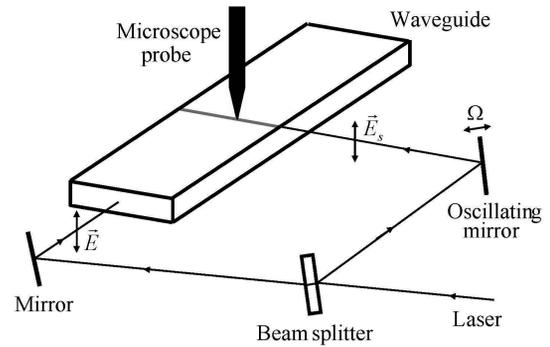


Рис. 12. Измерение электрического поля в волноводе с помощью атомно-силового или туннельного микроскопа

Наблюдаемость фазы χ делает актуальным вывод уравнения для эволюции ее распределения, которое не изучалось в предыдущих работах. При больших L распределение χ имеет сингулярности, состоящие в скачках второй производной для показателей экспонент, описывающих релаксацию $P_L(\chi)$ к предельному распределению $P_\infty(\chi)$.

Как указано выше, одна из измерительных схем, описанных в разд. 6.4 была реализована в работе [39]. В отличие от экспериментов [40, 41], где измерялась только матрица передачи, в работе [39] предложен подход, позволяющий измерять распределение фаз внутри волновода. Однако проведенные в [39] измерения не связаны с распространением света в неупорядоченных системах, а лишь с исследованием регулярных мод в однородных волноводах.

Существенно новые эксперименты требуются для проверки справедливости утверждений, сделанных в настоящей работе. Прежде всего, в таких экспериментах должен использоваться перестраиваемый лазер, позволяющий изменять частоту излучения, а его частотный диапазон должен покрывать положение ожидаемого фазового перехода. Последнее требует установить наиболее подходящую конфигурацию волновода и его размеры. Требуется разработать эффективный метод для внесения в волновод большой концентрации примесей. Необходим подробный анализ для нахождения области параметров, в которой упругое рассеяние доминирует над поглощением внутри волновода и радиационными потерями через его стенки. Последняя проблема несколько смягчается при использовании чисто диэлектрического волновода, но в этом случае аналогия с электронными

неупорядоченными системами становится неполной (разд. 6.1).

Можно надеяться, что полученные результаты будут стимулировать экспериментальные исследования в этой области и приведут к более глубокому пониманию эффектов локализации как в электронных, так и оптических системах.

Благодарности. Автор признателен С. И. Божевольному за обсуждение оптических аспектов работы.

ПРИЛОЖЕНИЕ.

УРАВНЕНИЕ ЭВОЛЮЦИИ ДЛЯ $P(\rho, \psi, \chi)$

Приводимый ниже вывод уравнения эволюции отличается от такового в работах [16, 17]: он приводит к более длинным выкладкам, но является более систематическим, гарантируя получение результата в условиях, когда его характер заранее неизвестен. Более компактный способ вывода, приведенный в [16, 17], может быть найден лишь при наличии некоторой информации о структуре результата.

Как ясно уже на уровне соотношений (18), (19), (20), (22), величина ψ входит в уравнения эволюции в виде двух комбинаций $\psi - \gamma$ и $\psi - \beta$, так что сдвигом $\psi \rightarrow \psi + \psi_0$ параметр γ может быть приведен к значению $-\pi/2$, соответствующему резкой границе раздела [17]; для упрощения формул мы ограничимся этим случаем. Соотношения (12)–(14) в низшем порядке по δ дают

$$T_{11}^{(n+1)} = (1 + i\alpha - i\epsilon_n)T_{11}^{(n)} + (\delta_1 - i\delta_2 + i\epsilon_n)T_{12}^{(n)},$$

$$T_{12}^{(n+1)} = (\delta_1 + i\delta_2 - i\epsilon_n)T_{11}^{(n)} + (1 - i\alpha + i\epsilon_n)T_{12}^{(n)} \quad (A.1)$$

и аналогичные уравнения для $T_{21}^{(n)}$ и $T_{22}^{(n)}$, получаемые комплексным сопряжением; здесь $\delta_1 = \Delta \cos \beta$, $\delta_2 = \Delta \sin \beta$. Полагая

$$T_{11}^{(n)} = x_n + iy_n, \quad T_{12}^{(n)} = z_n + iw_n, \quad (A.2)$$

имеем

$$x_{n+1} = x_n - (\alpha - \epsilon_n)y_n + \delta_1 z_n + (\delta_2 - \epsilon_n)w_n,$$

$$y_{n+1} = (\alpha - \epsilon_n)x_n + y_n - (\delta_2 - \epsilon_n)z_n + \delta_1 w_n,$$

$$z_{n+1} = \delta_1 x_n - (\delta_2 - \epsilon_n)y_n + z_n + (\alpha - \epsilon_n)w_n, \quad (A.3)$$

$$w_{n+1} = (\delta_2 - \epsilon_n)x_n + \delta_1 y_n - (\alpha - \epsilon_n)z_n + w_n,$$

что при записи в матричной форме дает матрицу с единичным детерминантом. Если распределение

$P_n(x_n, y_n, z_n, w_n)$ на n -м шаге известно, то аналогичное распределение на $(n+1)$ -м шаге составляется по правилу

$$P_{n+1}(\tilde{x}_{n+1}, \tilde{y}_{n+1}, \tilde{z}_{n+1}, \tilde{w}_{n+1}) = \int d\epsilon_n dx_n dy_n dz_n dw_n \times$$

$$\times P(\epsilon_n) P_n(x_n, y_n, z_n, w_n) \delta(\tilde{x}_{n+1} - x_{n+1}) \times \quad (A.4)$$

$$\times \delta(\tilde{y}_{n+1} - y_{n+1}) \delta(\tilde{z}_{n+1} - z_{n+1}) \delta(\tilde{w}_{n+1} - w_{n+1}),$$

где $x_{n+1}, y_{n+1}, z_{n+1}, w_{n+1}$ выражаются через x_n, y_n, z_n, w_n по формуле (A.3). Обратим соотношение (A.3) и перейдем к интегрированию по $x_{n+1}, y_{n+1}, z_{n+1}, w_{n+1}$; учитывая, что якобиан преобразования равен единице, а δ -функции тривиально снимаются, получим

$$P_{n+1}(x_{n+1}, y_{n+1}, z_{n+1}, w_{n+1}) =$$

$$= \int d\epsilon_n P(\epsilon_n) P_n(x_n, y_n, z_n, w_n), \quad (A.5)$$

где x_n, y_n, z_n, w_n выражаются через $x_{n+1}, y_{n+1}, z_{n+1}, w_{n+1}$ соотношением, обратным (A.3). Раскладываясь по отклонениям $x_{n+1} - x_n, y_{n+1} - y_n, \dots$ и сохраняя члены первого порядка по α, Δ и второго по ϵ , получим

$$\frac{\partial P}{\partial n} = \alpha \left[y \frac{\partial P}{\partial x} - x \frac{\partial P}{\partial y} - w \frac{\partial P}{\partial z} + z \frac{\partial P}{\partial w} \right] -$$

$$- \delta_1 \left[z \frac{\partial P}{\partial x} + w \frac{\partial P}{\partial y} + x \frac{\partial P}{\partial z} + y \frac{\partial P}{\partial w} \right] +$$

$$+ \delta_2 \left[-w \frac{\partial P}{\partial x} + z \frac{\partial P}{\partial y} + y \frac{\partial P}{\partial z} - x \frac{\partial P}{\partial w} \right] +$$

$$+ \frac{1}{2} \epsilon^2 (w-y)^2 \left[\frac{\partial^2 P}{\partial x^2} + 2 \frac{\partial^2 P}{\partial x \partial z} + \frac{\partial^2 P}{\partial z^2} \right] + \quad (A.6)$$

$$+ \frac{1}{2} \epsilon^2 (x-z)^2 \left[\frac{\partial^2 P}{\partial y^2} + 2 \frac{\partial^2 P}{\partial y \partial w} + \frac{\partial^2 P}{\partial w^2} \right] +$$

$$+ \epsilon^2 (x-z)(w-y) \left[\frac{\partial^2 P}{\partial x \partial y} + \frac{\partial^2 P}{\partial x \partial w} + \frac{\partial^2 P}{\partial z \partial y} + \frac{\partial^2 P}{\partial z \partial w} \right].$$

Переходя к полярным координатам

$$x = r_1 \cos \varphi, \quad y = r_1 \sin \varphi,$$

$$z = r_2 \cos \theta, \quad w = r_2 \sin \theta, \quad (A.7)$$

получим

$$\frac{\partial P}{\partial n} = \alpha \left[-P'_\varphi + P'_\theta \right] - \Delta \cos(\theta - \varphi - \beta) \left[r_2 P'_{r_1} + r_1 P'_{r_2} \right] +$$

$$+ \Delta \sin(\theta - \varphi - \beta) \left[\frac{r_1}{r_2} P'_\theta - \frac{r_2}{r_1} P'_\varphi \right] +$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{1}{2} \epsilon^2 \left\{ \sin^2(\theta - \varphi) \left[r_2^2 P''_{r_1 r_1} + 2r_1 r_2 P''_{r_1 r_2} + r_1^2 P''_{r_2 r_2} \right] + \right. \\
& + 2 \sin(\theta - \varphi) \left[r_1 - r_2 \cos(\theta - \varphi) \right] \left[\frac{r_2}{r_1} P''_{r_1 \varphi} + P''_{r_2 \varphi} - \frac{r_2}{r_1^2} P'_\varphi \right] + \\
& + 2 \sin(\theta - \varphi) \left[r_1 \cos(\theta - \varphi) - r_2 \right] \left[\frac{r_1}{r_2} P''_{r_2 \theta} + P''_{r_1 \theta} - \frac{r_1}{r_2^2} P'_\theta \right] + \\
& + \left[r_1 - r_2 \cos(\theta - \varphi) \right]^2 \left[\frac{1}{r_1^2} P''_{\varphi \varphi} + \frac{1}{r_1} P'_{r_1} \right] + \\
& + \left[r_1 \cos(\theta - \varphi) - r_2 \right]^2 \left[\frac{1}{r_2^2} P''_{\theta \theta} + \frac{1}{r_2} P'_{r_2} \right] + \quad (A.8) \\
& \left. + 2 \left[r_1 - r_2 \cos(\theta - \varphi) \right] \left[r_1 \cos(\theta - \varphi) - r_2 \right] \frac{1}{r_1 r_2} P''_{\varphi \theta} \right\}.
\end{aligned}$$

Теперь перейдем от r_1, r_2 к переменным ρ, ξ :

$$r_1^2 + r_2^2 = 1 + 2\rho, \quad r_1^2 - r_2^2 = \xi. \quad (A.9)$$

Нетрудно проверить, что при этом сокращаются все члены с производными по ξ ; следовательно величина ξ остается постоянной в процессе эволюции, и из физических соображений можно положить $\xi = 1$. Тогда

$$r_1 = \sqrt{1 + \rho}, \quad r_2 = \sqrt{\rho} \quad (A.10)$$

в соответствии с каноническим представлением (2).

При этом уравнение эволюции примет вид

$$\begin{aligned}
\frac{\partial P}{\partial n} &= \alpha \left[-P'_\varphi + P'_\theta \right] - \Delta \cos(\theta - \varphi - \beta) 2r_1 r_2 P'_\rho + \\
& + \Delta \sin(\theta - \varphi - \beta) \left[\frac{r_1}{r_2} P'_\theta - \frac{r_2}{r_1} P'_\varphi \right] + \\
& + \frac{1}{2} \epsilon^2 \left\{ 4r_1^2 r_2^2 \sin^2(\theta - \varphi) P''_{\rho\rho} + \right. \\
& + [2r_1^2 + 2r_2^2 - 4r_1 r_2 \cos(\theta - \varphi)] P'_\rho + \\
& + 4r_2 \sin(\theta - \varphi) \left[r_1 - r_2 \cos(\theta - \varphi) \right] P''_{\rho\varphi} + \\
& + 4r_1 \sin(\theta - \varphi) \left[r_1 \cos(\theta - \varphi) - r_2 \right] P''_{\rho\theta} - \\
& - 2 \sin(\theta - \varphi) \frac{r_2 \left[r_1 - r_2 \cos(\theta - \varphi) \right]}{r_1^2} P'_\varphi - \quad (A.11) \\
& - 2 \sin(\theta - \varphi) \frac{r_1 \left[r_1 \cos(\theta - \varphi) - r_2 \right]}{r_2^2} P'_\theta + \\
& + \left[\frac{r_1 - r_2 \cos(\theta - \varphi)}{r_1} \right]^2 P''_{\varphi\varphi} + \left[\frac{r_1 \cos(\theta - \varphi) - r_2}{r_2} \right]^2 P''_{\theta\theta} + \\
& \left. + 2 \left[\frac{r_1 - r_2 \cos(\theta - \varphi)}{r_1} \right] \left[\frac{r_1 \cos(\theta - \varphi) - r_2}{r_2} \right] P''_{\varphi\theta} \right\}.
\end{aligned}$$

При заменах (A.7) и (A.9) мы не производили перенормировку вероятности; однако, в результате двух замен имеем

$$4P(x, y, z, w) dx dy dz dw =$$

$$= P(\rho, \xi, \varphi, \theta) d\rho d\xi d\varphi d\theta, \quad (A.12)$$

и указанная перенормировка сводится к постоянно-му множителю, несущественному ввиду линейности уравнения эволюции. Вводя комбинированные фазы (3), имеем

$$\begin{aligned}
\frac{\partial P}{\partial n} &= 2\alpha P'_\psi - \Delta \cos(\psi - \beta) 2r_1 r_2 P'_\rho + \\
& + \Delta \sin(\psi - \beta) \left[\left(\frac{r_1}{r_2} + \frac{r_2}{r_1} \right) P'_\psi + \left(\frac{r_1}{r_2} - \frac{r_2}{r_1} \right) P'_\chi \right] + \\
& + \frac{1}{2} \epsilon^2 \left\{ 4r_1^2 r_2^2 \sin^2 \psi P''_{\rho\rho} + [2r_1^2 + 2r_2^2 - 4r_1 r_2 \cos \psi] P'_\rho + \right. \\
& + 4 \sin \psi (r_1 r_2 - r_2^2 \cos \psi) (-P''_{\rho\psi} + P''_{\rho\chi}) + \\
& + 4 \sin \psi (r_1^2 \cos \psi - r_1 r_2) (P''_{\rho\psi} + P''_{\rho\chi}) - \\
& - 2 \sin \psi \left(\frac{r_2}{r_1} - \frac{r_2^2}{r_1^2} \cos \psi \right) (-P'_\psi + P'_\chi) - \quad (A.13) \\
& - 2 \sin \psi \left(\frac{r_1^2}{r_2^2} \cos \psi - \frac{r_1}{r_2} \right) (P'_\psi + P'_\chi) + \\
& + \left(\frac{r_1 - r_2 \cos \psi}{r_1} \right)^2 (P''_{\psi\psi} - 2P''_{\psi\chi} + P''_{\chi\chi}) + \\
& + \left(\frac{r_1 \cos \psi - r_2}{r_2} \right)^2 (P''_{\psi\psi} + 2P''_{\psi\chi} + P''_{\chi\chi}) + \\
& \left. + \left(\frac{r_1 - r_2 \cos \psi}{r_1} \right) \left(\frac{r_1 \cos \psi - r_2}{r_2} \right) (-P''_{\psi\psi} + P''_{\chi\chi}) \right\}.
\end{aligned}$$

Подставляя (A.10) и приводя правую часть к сумме полных производных, имеем окончательное уравнение эволюции, имеющее структуру (4):

$$\begin{aligned}
\frac{\partial P}{\partial n} &= \\
& = \left\{ -2\Delta \cos(\psi - \beta) \sqrt{\rho(1 + \rho)} P + 2\epsilon^2 \sin^2 \psi \rho(1 + \rho) P'_\rho + \right. \\
& + \epsilon^2 \left[(1 - 2 \sin^2 \psi)(1 + 2\rho) - 2 \cos \psi \sqrt{\rho(1 + \rho)} \right] P + \\
& + 2\epsilon^2 \sin \psi \left[\cos \psi(1 + 2\rho) - 2\sqrt{\rho(1 + \rho)} \right] P'_\psi \left. \right\}'_\rho + \\
& + \left\{ [2\alpha + R\Delta \sin(\psi - \beta)] P + \epsilon^2 \sin \psi (R - 2 \cos \psi) P + \right. \\
& + \frac{1}{2} \epsilon^2 (2 - R \cos \psi)^2 P'_\psi \left. \right\}'_\psi + \quad (A.14) \\
& + \left\{ \frac{\Delta \sin(\psi - \beta) + \epsilon^2 \sin \psi (1 - R \cos \psi)}{\sqrt{\rho(1 + \rho)}} P + \right. \\
& + \frac{\epsilon^2 \cos \psi (R \cos \psi - 2)}{\sqrt{\rho(1 + \rho)}} P'_\psi + \frac{\epsilon^2 \cos^2 \psi}{2\rho(1 + \rho)} P'_\chi \left. \right\}'_\chi.
\end{aligned}$$

Интегрирование по χ приводит к уравнению эволюции для $P(\rho, \psi)$, полученному в [16, 17], а интегрирование по ρ и ψ — к уравнению (27) для $P(\chi)$.

ЛИТЕРАТУРА

1. P. W. Anderson, D. J. Thouless, E. Abrahams, and D. S. Fisher, *Phys. Rev. B* **22**, 3519 (1980).
2. R. Landauer, *IBM J. Res. Dev.* **1**, 2 (1957); *Phil. Mag.* **21**, 863 (1970).
3. В. И. Мельников, *ФТТ*, 782 (1981).
4. A. A. Abrikosov, *Sol. St. Comm.* **37**, 997 (1981).
5. N. Kumar, *Phys. Rev. B* **31**, 5513 (1985).
6. B. Shapiro, *Phys. Rev. B* **34**, 4394 (1986).
7. P. Mello, *Phys. Rev. B* **35**, 1082 (1987).
8. B. Shapiro, *Phil. Mag.* **56**, 1031 (1987).
9. И. М. Лифшиц, С. А. Гредескул, Л. А. Пастур, *Введение в теорию неупорядоченных систем*, Наука, Москва (1982).
10. C. W. J. Beenakker, *Rev. Mod. Phys.* **69**, 731 (1997).
11. X. Chang, X. Ma, M. Yezpez, A. Z. Genack, Москва, P. A. Mello, *Phys. Rev. B* **96**, 180203 (2017).
12. L. I. Deych, D. Zaslavsky, and A. A. Lisyansky, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5390 (1998).
13. L. I. Deych, A. A. Lisyansky, and B. L. Altshuler, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2678 (2000); *Phys. Rev. B* **64**, 224202 (2001).
14. L. I. Deych, M. V. Erementchouk, and A. A. Lisyansky, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 126601 (2001).
15. И. М. Суслов, *ЖЭТФ* **156**, 950 (2019).
16. I. M. Suslov, *Phil. Mag. Lett.* **102**, 255 (2022).
17. И. М. Суслов, *ЖЭТФ* **162**, 750 (2022).
18. S. I. Bozhevolnyi and I. M. Suslov, *Phys. Scr.* **98**, 065024 (2023).
19. I. M. Suslov, *Adv. Theor. Comp. Phys.* **6**, 77 (2023).
20. Н. Мотт, Э. Дэвис, *Электронные процессы в некристаллических веществах*, Мир, Москва (1982).
21. V. V. Brazhkin and I. M. Suslov, *J. Phys. Cond. Matt.* **32**, 35LT02 (2020).
22. И. М. Суслов, *ЖЭТФ* **158**, 911 (2020).
23. W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, and W. T. Wetterling, *Numerical Recipes in Fortran*, Cambridge University Press (1992).
24. S. John, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 2169 (1984).
25. P. Van Albada and A. Lagendijk, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2692 (1985).
26. P. W. Anderson, *Philos. Mag. B* **52**, 505 (1985).
27. S. John, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2486 (1987).
28. D. S. Wiersma, *Nature Photon.* **7**, 188 (2013).
29. S. I. Bozhevolnyi, V. S. Volkov, and K. Leosson, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 186801 (2002).
30. Zh. Shi, M. Davy, and A. Z. Genack, *Opt. Express* **23**, 12293 (2015).
31. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, Москва (1982).
32. Ч. К. Као, *Нобелевская лекция по физике*, УФН **180**, 1350 (2010).
33. D. W. Pohl, W. Denk, and M. Lanz, *Appl. Phys. Lett.* **44**, 651 (1984).
34. D. W. Pohl and L. Novotny, *J. Vac. Sci. Technol. B* **12**, 1441 (1994).
35. A. L. Lereu, A. Passian, and Ph. Dumas, *Int. J. Nanotechnol.* **9**, 488 (2012).
36. G. Binning, C. F. Quate, and C. Gerber, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 930 (1986).
37. E. Meyer, *Progress in Surface Science* **41**, 3 (1992).
38. G. Binning and H. Rohrer, *Helv. Phys. Acta.* **55**, 726 (1982).
39. S. I. Bozhevolnyi, V. A. Zenin, R. Malreanu, I. P. Radko, and A. V. Lavrinenko, *Opt. Express* **24**, 4582 (2016).
40. I. M. Vellekoop and A. P. Mosk, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 120601 (2008).
41. S. M. Popoff, G. Lerosey, R. Carminati, M. Fink, A. C. Boccarda, and S. Gigan, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 100601 (2010).

МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ ВОЗБУЖДЕНИЕ РЕЗОНАНСНЫХ ПЕРЕХОДОВ В ЭЛЕКТРОННОЙ СПИНОВОЙ СИСТЕМЕ ПРИМЕСНЫХ ИОНОВ ^{167}Er В ОРТОСИЛИКАТЕ ИТТРИЯ (Y_2SiO_5)

В. Ф. Тарасов^{a}, Н. К. Соловаров^a, А. А. Суханов^a, Ю. Д. Заварцев^b*

*^a Казанский физико-технический институт им. Е. К. Завойского
ФИЦ Казанский научный центр Российской академии наук
420029, Казань, Россия*

*^b Институт общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 15 июня 2023 г.,
после переработки 20 октября 2023 г.
Принята к публикации 21 октября 2023 г.

При исследовании стационарных спектров ЭПР примесных ионов эрбия в ортосиликате иттрия Y_2SiO_5 на спектрометре ELEXSYS с диэлектрическим резонатором обнаружена аномальная зависимость формы резонансных линий от интенсивности микроволнового возбуждения. При относительно большой интенсивности и частичном насыщении резонансного перехода форма линии представляет суперпозицию обычной линии, соответствующей производной контура резонансного поглощения, и линии аномальной формы, соответствующей собственно контуру линии поглощения. Предполагается, что появление аномальной компоненты линии связано с одновременным возбуждением магнитных дипольных и электрических квадрупольных переходов в связанной системе магнитных дипольных и электрических квадрупольных осцилляторов электронной спиновой системы ионов эрбия.

DOI: 10.31857/S004445102402010X

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время примесные редкоземельные (РЗ) элементы в диэлектрических кристаллах рассматриваются в качестве перспективной материальной основы для создания твердотельных устройств квантовой памяти [1, 2]. Нечетные РЗ-изотопы с ненулевым ядерным спином позволяют реализовать обратимый перенос когерентности из оптического диапазона на электронно-ядерные спиновые состояния, обладающие большим временем жизни когерентности [3–6]. Для увеличения времени жизни когерентности таких состояний применяются специальные методики динамического развязывания (dynamical decoupling), при которых на спиновую систему воздействуют специальными импульсными последовательностями, возбуждающими резонанс-

ные переходы между электронно-ядерными спиновыми уровнями [7, 8]. Поэтому большой интерес представляет изучение особенностей спиновой динамики примесных РЗ-ионов при их взаимодействии с внешними и внутрикристаллическими магнитными и электрическими полями. Динамика спиновых систем со спином $S = 1/2$ во внешнем магнитном поле описывается феноменологическими уравнениями Блоха [9, 10]. Эти уравнения линейны по компонентам магнитного дипольного момента (или спина). Однако известно, что для адекватного описания спиновой динамики высокоспиновых систем ($S > 1/2$) необходимо рассматривать и более высокие спиновые мультипольные моменты [11–14]. Поэтому экспериментальное изучение особенностей динамики таких систем представляется очень важной задачей. При этом надо иметь в виду, что существует правило, гласящее, что для квантовых систем, находящихся в низших (основных) состояниях, мультиполи попеременно запрещены. Например, разрешенными являются электрический моно-

* E-mail: tarasov@kfti.knc.ru

поль (заряд), магнитный диполь и электрический квадруполь [15].

Электронный парамагнитный резонанс (ЭПР) представляет уникальные возможности для определения структуры примесных парамагнитных центров в кристаллах и изучения особенностей спиновой динамики их электронно-ядерных уровней [16–26]. В частности, большое внимание привлекают ионы ^{167}Er в ортосиликате иттрия (Y_2SiO_5) [27–31].

В данной работе исследованы особенности формы линии стационарных спектров ЭПР примесного иона ^{167}Er в монокристалле Y_2SiO_5 (YSO), записанных в стандартной методике с модуляцией магнитного поля на спектрометре ЭПР ELEXSYS E680 с диэлектрическим резонатором. При этом обнаружена аномальная зависимость формы линии резонансных сигналов от уровня микроволновой мощности в резонаторе. Обсуждается возможная природа возникновения резонансных линий аномальной формы, связанная с резонансным возбуждением электрических квадрупольных переходов между электронно-ядерными уровнями ионов ^{167}Er .

2. СВОЙСТВА ОБРАЗЦА И УСЛОВИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

Кристаллическая структура YSO характеризуется моноклинной симметрией $I2/a$, имеет одну ось симметрии второго порядка b и перпендикулярную ей плоскость скользящего отражения. В этой установке параметры элементарной ячейки $a = 1.04$ нм, $b = 0.67$ нм, $c = 1.25$ нм [32]. Примесные ионы эрбия могут замещать иттрий в двух структурно неэквивалентных позициях с точечной группой симметрии C_1 , обозначаемых Y1 и Y2 [32], или Site1 и Site2 [33] соответственно. Каждая из этих позиций имеет по две магнитно-неэквивалентные позиции, которые становятся эквивалентными, если внешнее магнитное поле направлено параллельно или перпендикулярно оси b . Мы исследовали образцы YSO, моноизотопно легированные трехвалентными ионами ^{167}Er , которые были выращены в слабоокислительной атмосфере методом Чохральского на промышленной установке «Кристалл-3М» из расплава с относительной концентрацией эрбия 0.005 ат. %. Степень обогащения изотопом ^{167}Er составляла 96.3 ат. %. При этом использовался изотопически чистый ^{28}Si , не обладающий собственным ядерным моментом. Исследуемые образцы имели форму параллелепипедов с размерами $2.5 \times 2.5 \times 2.5$ мм³ и $3 \times 3 \times 10$ мм³ для измерений с диэлектрическим и металлическим резонаторами

соответственно. Грани параллелепипедов были перпендикулярны кристаллографическим осям D_1 , D_2 , b [34] с точностью $\pm 1^\circ$.

Измерения спектров ЭПР проводились в X -диапазоне в стационарном режиме с модуляцией магнитного поля на частоте 100 кГц. Использовались два спектрометра производства фирмы Брукер ELEXSYS E680 с цилиндрическим диэлектрическим резонатором ER4118MD5-W1 и EMXplus с цилиндрическим металлическим резонатором ER4122SHQ. Оба резонатора работали в TE₀₁₁-моды, когда магнитная компонента микроволнового поля B_1 сосредоточена вдоль центральной оси цилиндра, а силовые линии электрического поля проходят по круговым траекториям, перпендикулярным оси цилиндра. Металлический и диэлектрический резонаторы имеют принципиально различное распределение электрической и магнитной компонент микроволнового поля внутри резонатора. Размеры внутренней полости металлического резонатора сравнимы с длиной волны X -диапазона (3 см). Поэтому пучности магнитного и электрического полей внутри резонатора пространственно разделены [35]. Исследуемый образец имеет небольшие размеры и располагается на продольной оси резонатора. Поэтому на него действует только магнитная компонента микроволнового поля. Диэлектрический резонатор представляет собой сапфировый цилиндр с внутренним и внешним диаметрами 5 и 10 мм соответственно и высотой 13 мм, что значительно меньше длины волны. В таком резонаторе вихревое электрическое поле равно нулю на оси резонатора, но имеет значительную интенсивность вблизи стенок диэлектрического цилиндра [36]. Исследуемый образец занимает значительную часть внутренней полости резонатора, поэтому он находится под воздействием как магнитной, так и электрической компонент микроволнового поля.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Ион Er^{3+} имеет электронную конфигурацию $4f^{11}$ с основным мультиплетом $^4I_{15/2}$. Основное состояние является крамерсовым дублетом. Энергия первого возбужденного дублета $W_{ex} = 39$ см⁻¹ [37]. Ядерный спин изотопа ^{167}Er $I = 7/2$. Поэтому спектры ЭПР этого изотопа содержат $(2I + 1) = 8$ «разрешенных» резонансных переходов, происходящих без изменения проекции ядерного спина на ось квантования ($\Delta m = 0$). Кроме этого, в спектрах регистрируются «запрещенные» переходы с $\Delta m = 1$

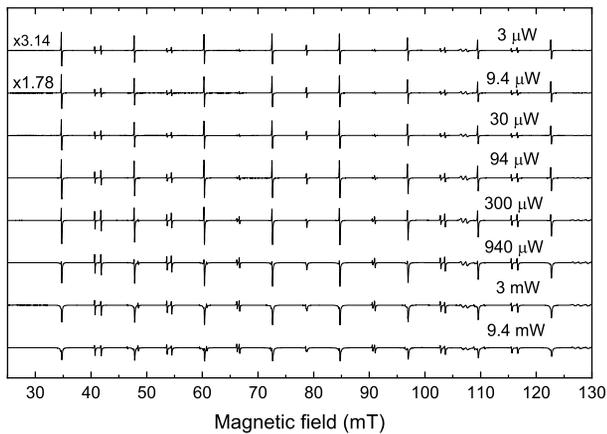


Рис. 1. Экспериментальные спектры $^{167}\text{Er}^{3+}$ в YSO, записанные на спектрометре ELEXSYS с диэлектрическим резонатором при различной мощности микроволнового генератора P , указанной в правой части спектров. Цифры в левой части показывают относительное увеличение масштаба спектра

и $\Delta m = 2$. Ориентационные зависимости спектров хорошо описываются использованным в [26] эффективным спиновым гамильтонианом, учитывающим зеемановскую энергию электронных и ядерных спинов во внешнем магнитном поле и энергию сверхтонкого взаимодействия электронного спина с ядерным спином и с ядерным электрическим квадрупольным моментом. На рис. 1 представлены спектры ЭПР иона $^{167}\text{Er}^{3+}$ в кристаллографической позиции Site 1 монокристалла YSO, записанные на спектрометре ELEXSYS при ориентации внешнего магнитного поля B вдоль кристаллографической оси b . Магнитная компонента микроволнового поля была направлена вдоль оси D_1 .

На спектрах присутствуют 8 интенсивных одиночных линий, соответствующих «разрешенным» переходам. Между ними имеются более слабые линии, соответствующие «запрещенным» переходам с $\Delta m = 1$. Дублетная структура «запрещенных» переходов обязана вкладу электрических квадрупольных взаимодействий [26]. Видно, что форма линий на спектрах существенно зависит от мощности P . При $P < 100$ мкВт форма линии соответствует нормальной для стационарных спектров ЭПР производной контура линии поглощения. При $P = 300$ мкВт форма линии «разрешенных» переходов становится асимметричной, а при $P > 1$ мВт появляется заметный вклад линии аномальной формы, характерной для собственно контура линии резонансного поглощения. Для «запрещенных» переходов форма линии также изменяет свою форму при несколько большей мощности. Анализ формы линии показал, что экспериментально наблюдаемая форма линии может

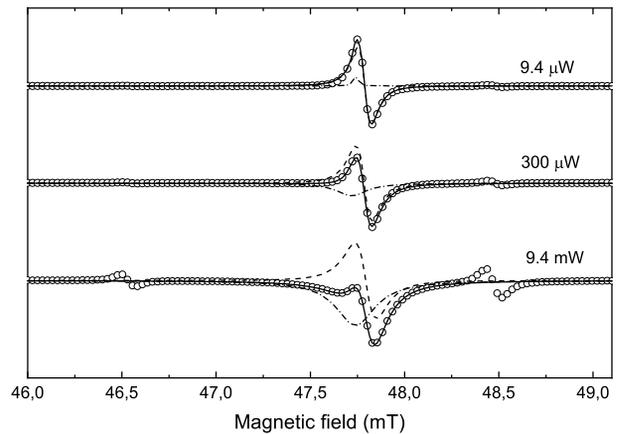


Рис. 2. Форма линии «разрешенного» резонансного перехода иона $^{167}\text{Er}^{3+}$ при измерении на спектрометре ELEXSYS с различной микроволновой мощностью, показанной в правой части спектров. Кружки — эксперимент, штриховая и штрихпунктирная линии — вклад нормальной и аномальной компонент соответственно. Сплошная линия — сумма двух компонент

быть аппроксимирована суммой двух линий: нормальной для стационарного ЭПР производной линии поглощения и аномальной линии, представляющей инвертированную линию поглощения. Примеры такого разложения резонансной линии на две компоненты, выполненного с использованием программного пакета EasySpin [38], для одного «разрешенного» перехода представлены на рис. 2. При этом спектры были нормированы по амплитуде обычной компоненты резонансных линий. Оказалось, что нормальная и аномальная компоненты линий имеют форму, близкую к лоренцевой. При большой микроволновой мощности амплитуда линии «разрешенного» резонансного перехода уменьшается вследствие насыщения, и на спектрах рядом с «разрешенными» переходами становятся видны «запрещенные» переходы с $\Delta m = 2$. Вероятность этих «запрещенных» переходов невелика, поэтому для них форма линии не зависит от микроволновой мощности.

При измерении спектров ЭПР этого образца при тех же условиях на спектрометре EMXplus с металлическим резонатором форма резонансных линий не зависела от микроволновой мощности. На рис. 3 приведены зависимости от микроволновой мощности амплитуд нормальной и аномальной компонент резонансных линий для одного «разрешенного» перехода в магнитном поле 47.8 мТл при измерении на спектрометре ELEXSYS и амплитуда нормального сигнала при измерении на спектрометре EMXplus.

Результаты измерений на двух спектрометрах нормированы по максимуму теоретических зависимостей. Видно, что при небольшой мощности P

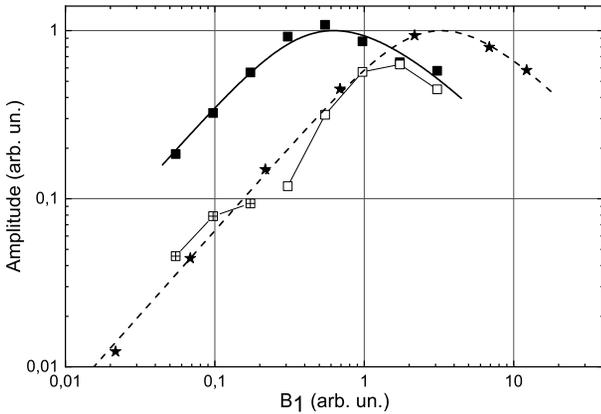


Рис. 3. Зависимость амплитуды резонансных линий от амплитуды микроволнового поля. Заполненные квадраты соответствуют нормальной компоненте «разрешенного» перехода, измеренного на спектрометре ELEXSYS. Пустые квадраты соответствуют аномальной компоненте этого перехода. Перечеркнутые пустые квадраты соответствуют аномальной линии положительного знака. Звездочки соответствуют интенсивности резонансного перехода, измеренного на спектрометре EMXplus. Толстые линии — расчет с учетом частичного насыщения резонансного перехода. Тонкие линии соединяют экспериментальные точки между собой

наблюдается линейная зависимость амплитуды линий обычной формы от мощности в логарифмическом масштабе. Это типично для резонансного поглощения в отсутствие насыщения. При увеличении P резонансный переход насыщается, разность населенностей между двумя зеемановскими уровнями уменьшается, и зависимость амплитуды линии от величины P становится нелинейной. Такие зависимости характерны для насыщения неоднородно уширенного резонансного перехода с учетом процессов спектральной диффузии [39]. Для расчета этих зависимостей мы модифицировали выражение (2.12) в [39] для того, чтобы выделить зависимость амплитуды сигнала от величины микроволнового поля, выраженной в относительных единицах $B_1 = \sqrt{P}$:

$$A = K_1 \frac{K_2 B_1}{\sqrt{1 + (K_2 B_1)^2 + \beta (K_2 B_1)^2}} \quad (1)$$

Величина K_1 определяется параметрами спиновой системы. Зависимость амплитуды резонансной линии от величины B_1 при постоянной температуре определяется только параметром

$$K_2 = \alpha \frac{(g\mu_B S_x)/\hbar}{\omega_1 + \omega_D}, \quad (2)$$

где α определяет соотношение между микроволновой мощностью и величиной B_1 , g — фактор спек-

Таблица

Спектрометр	K_1	K_2	β
ELEXSYS	1.6124	2.0559	0.3712
EMXplus	2.2929	0.3005	0.7348

троскопического расщепления, μ_B — магнетон Бора, S_x — матричный элемент резонансного перехода между двумя уровнями спиновой системы с произвольным спином [40, 41], ω_1 — скорость спин-решеточной релаксации, ω_D — скорость спектральной диффузии. Величина β отражает роль спектральной диффузии в процессах спиновой динамики. В отсутствие спектральной диффузии $\beta = 0$. Оптимальные значения коэффициентов для наилучшего описания экспериментальных данных приведены в таблице. Толстые линии на рис. 3 представляют теоретический расчет зависимости амплитуды нормальных компонент линии от микроволновой мощности при данных коэффициентах.

В рамках данной статьи мы не обсуждаем величину и физическую природу параметров в (1) и (2). Отметим только, что влияние процессов спектральной диффузии на процессы насыщения резонансных переходов значительно сильнее при измерениях на спектрометре EMXplus. Маленькая величина параметра K_2 при измерениях на спектрометре EMXplus является следствием значительно меньшей величины магнитной компоненты микроволнового поля в металлическом резонаторе при той же микроволновой мощности по сравнению с диэлектрическим резонатором.

4. ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 2 видно, что форма резонансных линий представляет сумму двух компонент. Это обычная для стационарного ЭПР линия, представляющая производную от резонансного поглощения по магнитному полю, и аномальная компонента, представляющая собственно линию резонансного поглощения. При малой микроволновой мощности в разложении формы экспериментальной линии присутствует небольшая аномальная компонента положительного знака. Мы полагаем, что появление этой компоненты вызвано небольшой асимметрией формы линии резонансного перехода. Амплитуда этой линии примерно пропорциональна амплитуде обычной компоненты резонансной линии. Появление интенсивных резонансных линий аномальной формы при большой микроволновой мощности мы связываем с возбуждением в спиновой системе электриче-

ских квадрупольных переходов. Эти переходы возбуждаются осциллирующим градиентом электрической компоненты микроволнового поля, всегда присутствующим в диэлектрическом резонаторе спектрометра ЭПР [36].

Это явление впервые было обнаружено нами при изучении спектров ЭПР примесных парамагнитных центров Ho^{3+} в синтетическом форстерите [42, 43]. Позже резонансные линии были обнаружены в спектрах ЭПР примесных ионов Yb^{3+} в Mg_2SiO_4 [44] при измерениях на спектрометре ЭПР с диэлектрическим резонатором. Мы полагаем, что наблюдаемые изменения формы резонансных линий являются спектроскопическим проявлением взаимодействия между магнитной дипольной и электрической квадрупольной подсистемами высокоспиновой системы. Доказательства того, что наблюдаемые изменения формы линии спектров ЭПР действительно обязаны резонансному возбуждению электрических квадрупольных переходов, приведены в работе [43]. Данная статья посвящена, главным образом, новой трактовке природы физических взаимодействий, приводящих к наблюдаемому эффекту.

В работах [42, 43] было установлено следующее.

1. Электрические квадрупольные переходы возбуждаются градиентом электрической компоненты микроволнового поля в диэлектрическом резонаторе.

2. Имеется сильная зависимость амплитуды аномальной составляющей спектра линии ЭПР от мощности микроволнового излучения в резонаторе, которая имеет пороговый характер.

3. Порог мощности, при котором появляется аномальная составляющая, уменьшается с уменьшением температуры.

4. Фаза аномальной компоненты сдвинута по отношению к фазе нормальной компоненты, совпадающей с фазой модуляции магнитного поля.

5. Аномальный сигнал имеет разную фазу для резонансных переходов с разным знаком производной зависимости резонансной частоты от магнитного поля.

Для того чтобы объяснить появление в спектрах ЭПР линий аномальной формы, мы должны рассмотреть алгоритм работы приемного тракта спектрометра ЭПР в режиме с модуляцией магнитного поля. Он заключается в том, что в каждый полупериод модуляции сигнал, поступающий с микроволнового детектора спектрометра, интегрируется, и выходной сигнал представляет разность интегралов

двух полупериодов. Если амплитуда модуляции магнитного поля много меньше, чем ширина линии резонансного перехода, форма линии на спектрах ЭПР представляет производную линии резонансного поглощения по магнитному полю.

Формально, для получения аномальной формы сигнала ЭПР необходимо в алгоритме работы приемного тракта спектрометра ЭПР заменить разность интегралов сигнала поглощения для двух полупериодов модуляции, их суммой. Эквивалентная операция состоит в инверсии знака интеграла в одном из двух полупериодов модуляции магнитного поля. Для резонансных переходов в ЭПР-спектроскопии это может быть при синхронных с модуляцией магнитного поля осцилляциях резонансного поглощения и резонансного излучения электромагнитного поля. В физических системах такая ситуация реализуется для осциллятора, совершающего колебания на собственной частоте ω_0 и находящегося под действием модулируемой по частоте внешней периодической силы $\omega = \omega_0 \sin(\omega_m \cdot t)$, где ω_m — частота модуляции. В полупериод модуляции, когда $\omega > \omega_0$, фаза внешней силы будет опережать фазу осциллятора, и энергия внешней силы будет поглощаться осциллятором. В другой полупериод фаза внешней силы будет отставать от фазы осциллятора, и энергия осциллятора будет излучаться [15]. Таким образом, синхронно с частотой модуляции магнитного поля будет происходить осцилляция знака S_y компоненты спинов во вращающейся системе координат. В работах [42, 43] мы полагали, что эти два связанных осциллятора являются магнитным дипольным и существующим электрическим квадрупольным моментами электронной оболочки примесного иона, которые одновременно возбуждаются магнитной и электрической компонентами микроволнового поля в резонаторе спектрометра ЭПР.

При этом не было дано убедительного объяснения пороговому характеру появления резонансных линий аномальной формы и зависимости величины этого порога от температуры. Это может быть сделано на основе результатов работы [41], где на примере электронного спина $S = 1$ было показано, что селективное возбуждение одного резонансного перехода в трехуровневой спиновой системе приводит к обратимому преобразованию компонент магнитного дипольного момента в компоненты электрического квадрупольного момента. Это приводит к изменению абсолютной величины дипольного момента спиновой системы и связанному с ним преобразованию дипольной поляризации спиновой системы в квадрупольное выстраивание.

При этом градиент электрической компоненты микроволнового поля взаимодействует с образовавшимся динамическим квадрупольным моментом. В этом случае магнитный дипольный и электрический квадрупольный моменты связаны отношением ведущий–ведомый. Когда при модуляции магнитного поля происходит его увеличение, фаза прецессии поперечных компонент магнитного дипольного момента опережает фазу прецессии поперечных компонент электрического квадрупольного момента, а при уменьшении магнитного поля фаза поперечных компонент магнитного дипольного момента отстает от фазы электрического квадрупольного момента. В результате появляется осциллирующий знакопеременный сдвиг фаз между поперечными компонентами магнитного дипольного и электрического квадрупольного моментов. Знак этого сдвига меняется дважды за период модуляции, и обмен энергией между этими двумя осцилляторами осциллирует с частотой модуляции магнитного поля. В результате сигнал на выходе приемного тракта спектрометра ЭПР принимает форму линии резонансного поглощения, а не его производной.

Скорость преобразования дипольного момента в квадрупольный определяется частотой «нутаии» S_z -компоненты дипольного момента во вращающейся системе координат при резонансном возбуждении. Эта скорость пропорциональна амплитуде магнитной компоненты микроволнового поля B_1 . Величина создаваемого квадрупольного момента зависит от соотношения двух конкурирующих процессов: нутаии спинов при резонансном возбуждении и релаксационных процессов, стремящихся вернуть спиновую систему в равновесное состояние. О степени преобразования дипольного момента в квадрупольный можно судить по отклонению величины S_z -компоненты дипольного момента от равновесного значения при заданной температуре в отсутствие резонансного возбуждения. Здесь есть полная аналогия с хорошо известным явлением насыщения резонансного перехода, где также существует пороговое значение микроволновой мощности, при котором интенсивность резонансной линии перестает линейно зависеть от микроволновой мощности вследствие уменьшения величины S_z . Пороговое значение интенсивности микроволнового излучения в обоих случаях определяется равенством скорости изменения S_z -компоненты дипольного момента при резонансном возбуждении и скорости релаксации спиновой системы к невозмущенному состоянию. В соответствии с (2) пороговое значение B_1 зависит от скорости спин-решеточной релаксации, которая для

ионов Er^{3+} в YSO быстро растет с повышением температуры [45]. Поэтому величина порогового значения микроволновой мощности, при котором появляется аномальная форма линии, как было отмечено в [42, 43], также растет с повышением температуры. На рис. 3 видно, что аномальная линия в спектрах ЭПР и эффект насыщения появляются при примерно одинаковой микроволновой мощности.

Отметим, что электрические квадрупольные переходы, вызванные резонансным взаимодействием осциллирующего градиента электрического поля с квадрупольным моментом электронных и ядерных спинов, ранее уже наблюдались. В работе [46] электрические квадрупольные переходы возбуждались бегущей электромагнитной волной в магнитно-упорядоченной спиновой системе $\text{Sr}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$. Электрические квадрупольные переходы с изменением проекции ядерного спина на ось квантования $\Delta I_z = \pm 2$, запрещенные правилами отбора для дипольных переходов, наблюдались в осциллирующем электрическом поле конденсатора для ядерных спинов ^{75}As , ^{69}Ga и ^{71}Ga в монокристалле GaAs [47]. При совместном возбуждении магнитных дипольных и электрических квадрупольных переходов на ядрах ^{75}As , ^{69}Ga и ^{71}Ga наблюдалось влияние электрических квадрупольных переходов на интенсивность резонансных линий магнитных дипольных переходов [48]. В работе [49] для создания осциллирующего градиента электрического поля на ядерных спинах ^{23}Na в NaCl возбуждались интенсивные акустические колебания. В работах [50, 51] на ядерных спинах ^{127}I в CsI были зарегистрированы сигналы ядерного спинового эха, возбуждаемые комбинацией резонансных электромагнитных и акустических импульсов. Причем электромагнитные импульсы возбуждали магнитные дипольные, а акустические — электрические квадрупольные переходы.

5. ВЫВОДЫ

При стандартной методике исследования стационарных спектров ЭПР примесных ионов $^{167}\text{Er}^{3+}$ в монокристалле Y_2SiO_5 на спектрометре ЭПР ELEXYS E680 с диэлектрическим резонатором обнаружена аномальная зависимость формы резонансных линий от микроволновой мощности. При небольшой микроволновой мощности резонансные линии на спектрах имеют обычную форму производной линии резонансного поглощения. При увеличении микроволновой мощности и частичном насыщении резонансного перехода форма линий изменяется и представляет собой суперпозицию

обычной производной линии резонансного поглощения и аномальной линии, имеющей форму собственно резонансного поглощения. Появление линии аномальной формы при интенсивном резонансном воздействии на высокоспиновую систему объясняется преобразованием магнитного дипольного момента электронной спиновой системы в электрический квадрупольный момент и образованием системы связанных магнитного дипольного и электрического квадрупольного осцилляторов. Мы полагаем, что в диэлектрическом резонаторе спектрометра ЭПР микроволновое электромагнитное поле одновременно возбуждает два типа резонансных переходов. Магнитная компонента возбуждает магнитные дипольные переходы, а градиент электрической компоненты возбуждает электрические квадрупольные переходы в динамической квадрупольной подсистеме, создаваемой интенсивным резонансным возбуждением. Аномальная компонента резонансной линии является следствием возникающего при этом осциллирующего с частотой модуляции магнитного поля знакопеременного сдвига фазы между когерентностями дипольной и квадрупольной подсистем. Возможность возбуждения электрических квадрупольных переходов в высокоспиновых системах необходимо принимать во внимание при исследовании и интерпретации спектров ЭПР таких систем на спектрометрах с диэлектрическим резонатором.

Благодарности. Авторы выражают признательность В. А. Шустову за рентгенографические исследования образца.

Финансирование. Работа выполнена в рамках гос. задания ФИЦ КазНЦ РАН с использованием научного оборудования Коллективного спектро-аналитического центра физико-химических исследований строения, свойств и состава веществ и материалов ФИЦ КазНЦ РАН.

ЛИТЕРАТУРА

1. C. W. Thiel, T. Böttger, and R. L. Cone, *J. Lumin.* **131**, 353 (2011).
2. J. J. L. Morton and P. Bertet, *J. Magn. Reson.* **287**, 128 (2018).
3. M. Businger, A. Tiranov, K. T. Kaczmarek et al., *Phys. Rev. Lett.* **124**, 053606 (2020).
4. A. Ortu, A. Tiranov, S. Welinski et al., *Nature Materials* **17**, 671 (2018).
5. A. Ortu, A. Tiranov, S. Welinski, J. J. Longdell, E. Fraval, M. J. Sellars et al., *Phys. Rev. Lett.* **95**, 063601 (2005).
6. E. Fraval, M. J. Sellars, and J. J. Longdell, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 077601 (2004).
7. G. A. Álvarez, A. Ajoy, X. Peng, and D. Suter, *Phys. Rev. A* **82**, 042306 (2010).
8. M. A. A. Ahmed, G. A. Álvarez, and D. Sute, *Phys. Rev. A* **87**, 042309 (2013).
9. F. Bloch, *Phys. Rev.* **70**, 460 (1946)
10. А. Абрагам, Б. Блини, *Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов*, Мир, Москва (1972), т. 1 [A. Abragam, B. Bleaney, *Electron Paramagnetic Resonance of Transition ions*, Clarendon Press, Oxford (1970).
11. U. Fano, *Phys. Rev.* **133**, B828 (1964).
12. R. C. Hilborn, L. R. Hunter, K. Johnson et al., *Phys. Rev. A* **50**, 2467 (1994).
13. R. Wieser, *Phys. Rev. B* **84**, 054411 (2011).
14. H.-J. Stöckmann and D. Dubbers, *New J. Phys.* **16**, 053050 (2014).
15. J. D. Macomber, *The Dynamics of Spectroscopic Transitions*, Wiley, New York, London, Sydney, Toronto (1976), ch. 3.
16. G. Wolfowicz, H. Maier-Flaig, R. Marino et al., *Phys. Rev. Lett.* **114**, 170503 (2015).
17. S. Welinski, A. Ferrier, M. Afzelius et al., *Phys. Rev. B* **94**, 155116 (2016).
18. H.-J. Lim, S. Welinski, A. Ferrier et al., *Phys. Rev.* **97**, 064409 (2018).
19. G. Dold, C. W. Zollitsch, J. O'Sullivan et al., *Phys. Rev. Applied* **11**, 054082 (2019).
20. M. N. Popova, S. A. Klimin, S. A. Moiseev et al., *Phys. Rev. B* **99**, 235151 (2019).
21. A. A. Sukhanov, V. F. Tarasov, R. M. Eremina et al., *Appl. Magn. Reson.* **48**, 589 (2017).
22. А. А. Суханов, В. Ф. Тарасов, Ю. Д. Заварцев и др., *Письма в ЖЭТФ* **108**, 211 (2018).
23. R. M. Eremina, V. F. Tarasov, K. B. Konov et al., *Appl. Magn. Reson.* **49**, 53 (2018).
24. R. F. Likerov, V. F. Tarasov, A. A. Sukhanov et al., *Optical Materials* **85**, 414 (2018).
25. R. F. Likerov, V. F. Tarasov, A. A. Sukhanov et al., *Magn. Reson. Solids* **22**, 20201(2020).
26. O. Guillot-Noël, Ph. Goldner, and Y. Le Du, *Phys. Rev. B* **74**, 214409 (2006).

27. O. Guillot-Noël, H. Vezin, Ph. Goldner et al., *Phys. Rev. B* **76**, 180408 (2007).
28. S. Welinski, C. W. Thiel, J. Dajczgewand et al., *Optical Materials* **63**, 69 (2017).
29. S. Welinski, Ph. J. T. Woodburn, N. Lauk et al., *Phys. Rev. Lett.* **122**, 247401 (2019).
30. Y.-H. Chen, X. Frnandez-Gonzalvo, S. P. Horvath et al., *Phys. Rev. B* **97**, 024419 (2018).
31. J.-Y. Huang, P. Y. Li, Z.-Q. Zhou et al., *Phys. Rev. B* **105**, 245134 (2022).
32. Максимов, Ю. А. Харитонов, В. В. Илюхин и др., *ДАН* **183**, 1072 (1968).
33. S. Campos, A. Denoyer, S. Jandl et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **16**, 4579 (2004).
34. Y. Sun, T. Böttger, C. W. Thiel et al., *Phys. Rev. B* **77**, 085124 (2008).
35. E. Reijerse, A. Savitsky, in *EPR Spectroscopy: Fundamentals and Methods*, ed. by D. Goldfarb and S. Stoll, Wiley and Sons, Chichester, West Sussex, UK (2018), p. 235.
36. J. L. Harthoorn and J. Smidt, *Appl. Sci. Res.* **20**, 148 (1969).
37. N. L. Jobbitt, J.-P. R. Wells, M. F. Reid et al., *Phys. Rev. B* **104**, 155121 (2021).
38. S. Stoll and A. Schweiger, *J. Magn. Reson.* **178**, 42 (2006).
39. E. L. Wolf, *Phys. Rev.* **142**, 555 (1966).
40. A. V. Astashkin and A. Schweiger, *Chem. Phys. Letters* **174**, 595 (1990).
41. К. М. Салихов, *ЖЭТФ* **162**, 630 (2022).
42. В. Ф. Тарасов, Р. Б. Зарипов, Н. К. Соловаров и др., *Письма в ЖЭТФ* **93**, 312 (2011).
43. V. F. Tarasov, R. B. Zaripov, N. K. Solovarov et al., *Appl. Magn. Reson.* **45**, 239 (2014).
44. В. Ф. Тарасов, А. А. Суханов, В. Б. Дудникова и др., *Письма в ЖЭТФ* **106**, 78 (2017).
45. I. N. Kurkin and K. P. Chernov, *Physica B+C* **101**, 233 (1980).
46. M. Akaki, D. Yoshizawa, A. Okutani et al., *Phys. Rev. B* **96**, 214406 (2017).
47. И. И. Садыков, Е. П. Хаймович. *Письма в ЖЭТФ* **34**, 441 (1981).
48. N. E. Brun, R. J. Mahler, H. Mahon, and W. L. Pierce, *Phys. Rev.* **129**, 1965 (1963).
49. W. G. Proctor, W. A. Robinson, *Phys. Rev.* **104**, 1344 (1956).
50. В. А. Голенищев-Кутузов, Н. К. Соловаров, В. Ф. Тарасов, *Письма в ЖЭТФ* **22**, 266 (1975).
51. В. А. Голенищев-Кутузов, А. И. Сиразиев, Н. К. Соловаров, В. Ф. Тарасов, *ЖЭТФ* **71**, 1074 (1976).

КОЛЛАПС МАЛОЙ ПЕТЛИ МАГНИТНОГО ГИСТЕРЕЗИСА ГРАНУЛЯРНОГО ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО СВЕРХПРОВОДНИКА $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

Д. А. Балаев, С. В. Семёнов, Д. М. Гохфельд, М. И. Петров*

*Институт физики им. Л. В. Киренского
Красноярского научного центра Сибирского отделения Российской академии наук
660036, Красноярск, Россия*

Поступила в редакцию 12 сентября 2023 г.,
после переработки 13 октября 2023 г.
Принята к публикации 16 октября 2023 г.

Работа посвящена экспериментальному изучению эволюции формы петель магнитного гистерезиса гранулярного высокотемпературного сверхпроводника $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ при варьировании максимального внешнего приложенного поля H_{max} . В диапазоне слабых полей (до ~ 10 Э при температуре 78 К) наблюдается гистерезис (далее — малый гистерезис), связанный с диамагнетизмом и проникновением поля в виде джозефсоновских вихрей в подсистему межгранулярных границ, являющейся джозефсоновской средой. С дальнейшим ростом H_{max} появляется гистерезис намагниченности, связанный с проникновением вихрей в сверхпроводящие гранулы. При анализе экспериментальных данных обнаружен нетривиальный факт — магнитный отклик от подсистемы межгранулярных границ становится менее заметным при увеличении H_{max} , а при определенном значении максимального поля этот отклик вообще исчезает, хотя по абсолютной величине намагниченности (при малых значениях H_{max}) малый гистерезис сопоставим с откликом от сверхпроводящих гранул. Описанная эволюция магнитного гистерезиса объяснена в рамках концепции эффективного поля в межгранулярной среде, в которой суммарное поле в подсистеме межгранулярных границ определяется не только внешним полем, но и полями рассеяния от магнитных моментов сверхпроводящих гранул. Иными словами, взаимодействие между сверхпроводящими подсистемами гранул и межгранулярных границ приводит к существованию малого гистерезиса в достаточно малых полях и к его полному исчезновению при увеличении модуля намагниченности сверхпроводящих гранул.

DOI: 10.31857/S0044451024020111

1. ВВЕДЕНИЕ

Параметры петли магнитного гистерезиса являются одной из основных характеристик сверхпроводников как для практических применений, так и для понимания фундаментальных процессов проникновения, распределения и закрепления (пиннинга) вихрей Абрикосова. Многообразие типов сверхпроводящих материалов [1–6] и необходимость контролируемого управления пиннингом вихрей [7, 8] требует понимания физических механизмов формирования петель гистерезиса намагниченности, что обуславливает многочисленные исследования [9–24]. За почти 60 лет, прошедших после появления модели критического состояния Бина [25], появилось

немало ее дальнейших модификаций, усовершенствований и изменений, см., например, [26], в том числе учитывающих гранулярность сверхпроводящего материала [27–31].

Гранулярная структура высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) и их малая длина когерентности обуславливают то, что перенос сверхпроводящего тока через межгранулярные границы происходит благодаря эффекту Джозефсона. Сама подсистема межгранулярных границ представляет собой сеть переходов джозефсоновского типа и является отдельной «слабой» сверхпроводящей подсистемой, связанной с другой уже «сильной» сверхпроводящей подсистемой — ВТСП-гранулами. В итоге в гранулярных ВТСП-материалах формируется двухуровневое сверхпроводящее состояние [27], что проявляется в их магнитотранспортных свойствах, таких как двухступенчатый переход в сверхпроводящее состояние, наблюдаемый на зависимостях сопротивления от температуры во внешнем поле, либо двух-

* E-mail: dabalaev@iph.krasn.ru

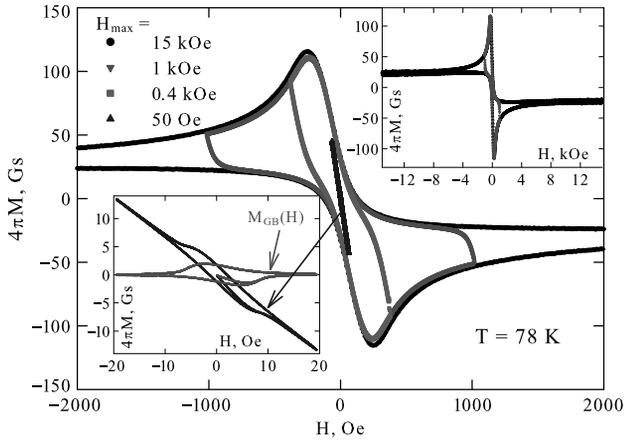


Рис. 1. Петли магнитного гистерезиса $M(H)$ исследованного образца $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ в различных диапазонах внешнего поля. Легенда соответствует и основному рисунку, и вставкам. На нижней вставке показан вклад от подсистемы межгранульных границ $M_{GB}(H)$, полученный после вычета линейного по полю диамагнитного вклада от сверхпроводящих гранул

ступенчатый характер магнитосопротивления (при постоянной температуре). Подсистемы межгранульных границ и гранул характеризуются также наличием гистерезиса в различных диапазонах магнитных полей [32–35]. Следует отметить, что в подавляющем большинстве исследований рассматривается гистерезис намагниченности в умеренных и сильных магнитных полях, где магнитный отклик в основном определяется сверхпроводящими гранулами. В то же время гистерезисному поведению намагниченности, связанному с подсистемой межгранульных границ (далее — малый гистерезис), уделялось мало внимания, и упомянутые выше статьи [32–35] являются весьма репрезентативным списком работ по этой теме. В данной работе мы задались целью подробно исследовать эволюцию формы магнитного гистерезиса гранулярного ВТСП системы $\text{Y}-\text{Ba}-\text{Cu}-\text{O}$ при увеличении внешнего поля и выявить особенности взаимодействия и взаимовлияния подсистем межгранульных границ и сверхпроводящих гранул.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Образец ВТСП $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ был приготовлен методом твердофазного синтеза в воздушной атмосфере из соответствующих оксидов с тремя промежуточными помолами. На конечной стадии приготовления принимались специальные меры по оптимизации отжига (50 ч при температур 940 °C с последующей выдержкой при 350 °C в течение 10 ч).

На дифрактограмме присутствовали только рефлексы, соответствующие структуре 1–2–3. Средний размер гранул по данным сканирующей электронной микроскопии составлял примерно 10 мкм. Температура перехода в сверхпроводящее состояние по данным магнитных и транспортных (начало перехода) измерений составила 93 К, величина критического тока при температуре жидкого азота — 150 А/см².

Магнитные измерения проводились на вибрационном магнитометре LakeShore VSM 8604. Для измерений образец был изготовлен в форме шара диаметром около 3 мм. Петли магнитного гистерезиса измерены при температуре 78 К. Скорость изменения поля составляла 0.1–10 Э/с (для диапазонов малых и больших полей соответственно). Экспериментальные данные (величина внешнего поля) были скорректированы с учетом размагничивающего фактора образца.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Общий вид зависимостей $M(H)$ в диапазоне полей до ± 15 кЭ, а также до ± 1 кЭ показан на верхней вставке рис. 1. Асимметричная форма зависимостей $M(H)$ относительно оси абсцисс типична для гранулярных ВТСП при достаточно высоких температурах. Такая асимметрия объясняется наличием поверхностного слоя в гранулах, в котором пиннинг абрикосовских вихрей ослаблен [30, 31, 36–38]. Взаимное расположение зависимостей $M(H)$, измеренных до различных величин максимального приложенного поля, включая $H_{max} = \pm 50$ Э, показано на рис. 1 (основной рисунок). Отметим, что все зависимости, приведенные на рис. 1, измерены после охлаждения в нулевом внешнем поле. Поведение зависимости $M(H)$, измеренной в диапазоне малых полей (± 50 Э), в окрестности начала координат показано на нижней вставке рис. 1. Из этих данных следует, что в диапазоне полей примерно до 12 Э на зависимости $M(H)$ присутствует гистерезис, в то время как далее, при увеличении внешнего поля, намагниченность ведет себя практически обратимым образом и зависимость $M(H)$ линейна по полю.

Описанный малый гистерезис, отчетливо видимый на нижней вставке рис. 1, и есть отклик от подсистемы межгранульных границ, о чем говорилось во Введении и наблюдалось в цитированных выше работах [32–35]. Здесь также необходимо отметить, что на перетертых (из таблеток) в порошок образцах ВТСП малый гистерезис не наблюдается. Диамагнитный отклик от сверхпроводящих гранул наблю-

дается как линейное по полю и практически обратимое поведение зависимости $M(H)$ в полях более примерно $10\ \text{Э}$. При вычете из экспериментальной зависимости $M(H)$ данный линейный вклад χH (где $\chi < 0$) можно получить петлю гистерезиса намагниченности $M_{GB}(H)$ от подсистемы межгранульных границ:

$$M_{GB}(H) = M(H) - \chi H.$$

Полученная таким образом гистерезисная зависимость $M_{GB}(H)$ приведена на нижней вставке рис. 1. Она подобна петлям гистерезиса намагниченности сверхпроводников второго рода (подсистема межгранульных границ, т. е. джозефсоновская среда, является сверхпроводником второго рода [39, 40]).

Модель критического состояния [25] устанавливает связь намагниченности и плотности критического тока J_C , что позволяет определять J_C из магнитных измерений. Для бесконечно длинного цилиндра с диаметром d [31]

$$J_C(\text{А/см}^2) = 30 \Delta M[\text{ед. СГСМ/см}^3]/d[\text{см}], \quad (1)$$

здесь ΔM — высота петли гистерезиса намагниченности, $\Delta M(H) = M_{dec}(H) - M_{inc}(H)$, $M_{inc}(H)$ и $M_{dec}(H)$ — ветви гистерезиса для возрастающего и убывающего внешнего поля соответственно. Для образца в форме шара такое простое аналитическое выражение (формула Бина) дает лишь примерное значение. Более точное приближение для оценки J_C в образце шарообразной формы может быть получено при замене d на эффективное значение $d_{eff} = \pi d_{circle}/4$, где d_{circle} — диаметр шара. Значение ΔM при $H \approx 0$ составляет 0.24 ед. СГСМ/см³ и $d_{eff} = 0.131$ см, что дает $J_{CGB} = 55$ А/см². Как известно, формула Бина дает заниженные значения критического тока вблизи $H = 0$ [41–44]. Действительно, величина критического тока, определенная из транспортных измерений четырехзондовым методом, несколько выше (~ 150 А/см²).

Для петли магнитного гистерезиса, измеренной до полей больших $1\ \text{кЭ}$, в выражение (1) необходимо подставлять не размер образца, а средний размер гранул [45], так как межгранульные токи подавляются в больших полях. Для большой петли получаем величину внутригранульного критического тока $J_{CG} \sim 2 \cdot 10^5$ А/см² при $d \sim 10$ мкм. Описанная разница в несколько порядков в величинах J_{CGB} и J_{CG} является характерным признаком гранулярных ВТСП. В свете сказанного выше, для полной петли магнитного гистерезиса $M_{total}(H)$ (ниже будем использовать обозначение $M(H)$, $M_{total}(H) \equiv M(H)$)

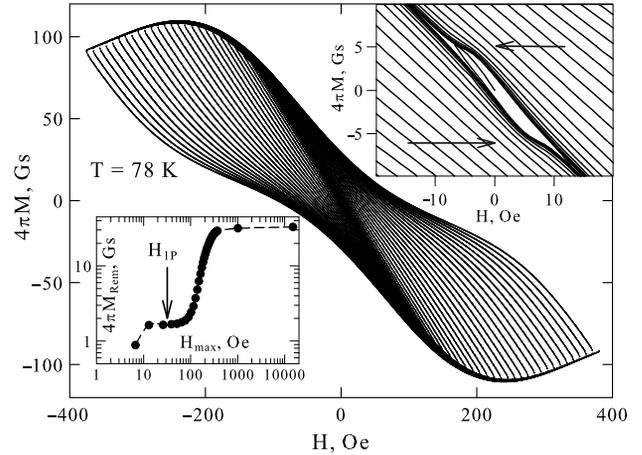


Рис. 2. Петли гистерезиса намагниченности, полученные при различных величинах максимального приложенного поля $\pm H_{max}$ с последовательным увеличением величины H_{max} . На верхней вставке показаны те же петли в окрестности начала координат в увеличенном масштабе; стрелки указывают на обсуждаемую аркообразную особенность. На нижней вставке — зависимость остаточной намагниченности $M_{Rem}(H_{dec} = 0)$ от H_{max} в двойном логарифмическом масштабе

гранулярного сверхпроводника можно записать следующее выражение:

$$M(H) = M_{GB}(H) + M_G(H), \quad (2)$$

здесь $M_G(H)$ — отклик от сверхпроводящих гранул. Аддитивный вклад от двух вкладов в общую намагниченность гранулярного образца подразумевался в ряде цитированных выше работ. Однако в выражении (2) отсутствует взаимосвязь между подсистемами межгранульных границ и гранул. Для выяснения такой взаимосвязи были измерены частные петли гистерезиса намагниченности с последовательным увеличением максимального приложенного поля $\pm H_{max}$. Эти данные приведены на рис. 2. Шаг по увеличивающемуся максимальному значению поля составлял (с учетом размагничивающегося фактора образца) $10\text{--}13\ \text{Э}$.

Остановимся сначала на поведении остаточной намагниченности M_{Rem} как функции H_{max} , показанном на нижней вставке рис. 2 (использована двойная логарифмическая шкала). Эта зависимость имеет двухступенчатый характер, в котором есть промежуточное насыщение (в полях, превышающих примерно $10\ \text{Э}$) и другое (основное) насыщение в больших полях. Отход от примерно постоянного значения при промежуточном насыщении происходит в поле около $35\text{--}40\ \text{Э}$, как указано (стрелкой) на нижней вставке рис. 2. Очевидно, что в этом интер-

вале внешних полей начинается проникновение вихрей Абрикосова внутрь гранул, и это поле называют полем первого проникновения H_{1P} [34, 35, 46, 47]. Следовательно, при $H_{max} \geq H_{1P}$ мы имеем дело с суперпозицией двух гистерезисных намагниченностей от двух подсистем (межгранульные границы и гранулы), согласно выражению (2).

В форме частных петель гистерезиса в области начала координат привлекают к себе внимание аркообразные особенности (изломы), отчетливо видимые в увеличенном масштабе на верхней вставке рис. 2 (отмечено горизонтальными стрелками). Указанные изломы зависимостей $M(H_{inc})$ и $M(H_{dec})$ наблюдаются в окрестности поля около ± 5 Э, и они связаны с вкладом от малого гистерезиса (наличием экстремумов зависимости $M_{GB}(H)$, см. нижнюю вставку рис. 1). В то же время из данных, приведенных на верхней вставке рис. 2, можно заключить, что при достаточно больших значениях H_{max} описываемая особенность становится либо слабо выраженной, либо отсутствует. Иными словами, в некотором диапазоне значений H_{max} сохраняется влияние малого гистерезиса, а при достаточно больших значениях H_{max} вклад от магнитного гистерезиса становится несущественным. Более подробно описываемое поведение проиллюстрировано на рис. 3а, на котором приведены участки зависимостей $M(H)$ при изменении внешнего поля от $+H_{max}$ до $-H_{max}$ для значений H_{max} в диапазоне от 13 до 184 Э. Форма обсуждаемой особенности на зависимости $M(H)$ в виде арки подразумевает две поочередные смены знака кривизны при изменении поля; поле, при котором изменяется знак кривизны, указано на рис. 3а стрелками. При отсутствии аркообразной особенности смена знака кривизны не происходит и зависимость $M(H)$ является в первом приближении линейной функцией (на рис. 3а для сопоставления с экспериментальными данными при $H_{max} = 162, 173$ и 184 Э проведены прямые линии). Рисунки 3б,с иллюстрируют производные dM/dH . При достаточно малых значениях H_{max} производные dM/dH демонстрируют два отчетливых экстремума, которые становятся слабовыраженными при увеличении H_{max} . Из анализа данных на рис. 3б,с можно заключить, что при $H_{max} = 173$ Э на производных dM/dH нет экстремумов, а зависимости $M(H)$ в диапазоне $+20$ до -20 Э являются практически линейными по полю функциями (см. рис. 3а). Таким образом, при значениях максимального приложенного поля около 173 Э и больших значениях H_{max} малый гистерезис намагниченности не проявляется в области малых полей.

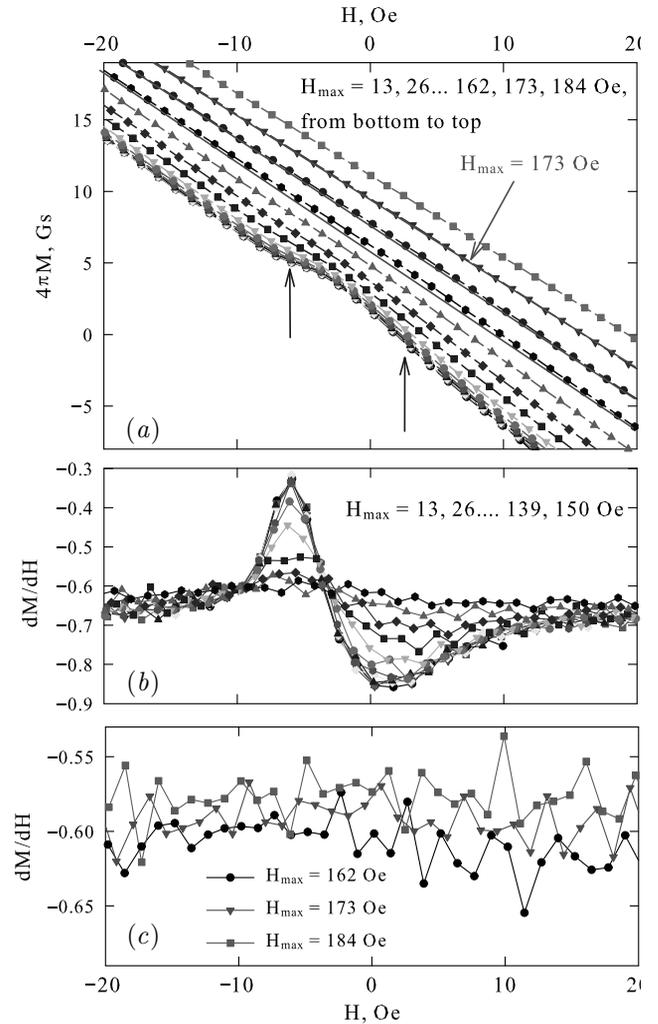


Рис. 3. а — участки зависимостей $M(H)$ (из данных рис. 2) в диапазоне ± 20 Э при изменении внешнего поля H от $+H_{max}$ до $-H_{max}$ (символы); прямые линии — аппроксимация линейной функцией, б, с — производные dM/dH для данных, показанных на рис. а

Диапазон изменения намагниченности ΔM_{GB} малого гистерезиса (зависимости $M_{GB}(H)$) в диапазоне ± 10 Э составляет около 2 Гс (см. нижнюю вставку рис. 1), в то время как величина полной намагниченности при $H_{max} = 173$ Э в окрестности ± 10 Э варьируется в пределах 5–15 Гс (рис. 3а). Таким образом, ΔM_{GB} и $M(H = \pm 10$ Э) — это сопоставимые величины. Отсутствие проявления экстремума от малого гистерезиса на зависимости $M(H)$ при достаточно больших значениях H_{max} означает, что вклад от малого гистерезиса не всегда является аддитивным вкладом от сверхпроводящих гранул. Обнаруженный факт, фактически коллапс малой петли магнитного гистерезиса, насколько нам известно, не был выявлен в ранних исследованиях [32–35]. Для объяснения поведения малой петли необходимо

учитывать взаимодействие подсистем гранул и межгранульных границ. Вместо выражения (2) можно формально записать

$$M(H) = M_{GB}(H, M_G(H)) + M_G(H), \quad (3)$$

подразумевая, что M_{GB} уменьшается как с ростом H , так и при увеличении M_G . Иными словами, межгранульная среда находится не только во внешнем поле, но и в поле, индуцированном магнитными моментами сверхпроводящих гранул. Взаимосвязь между намагненностью сверхпроводящих гранул и величиной суммарного поля в межгранульной среде была выявлена в серии работ по изучению магнитотранспортных эффектов в гранулярных сверхпроводниках [48–58]. Далее применим концепцию эффективного поля в межгранульной среде гранулярного сверхпроводника.

При возрастании внешнего поля мейснеровские токи циркулируют как через межгранульные границы (токи \mathbf{J}_{MGB}) по всему объему гранулярного образца, так и внутри каждой сверхпроводящей гранулы (токи \mathbf{J}_{MG}). Они создают диамагнитные отклики, соответственно, от подсистемы межгранульных границ и от подсистемы гранул, см. схематичное представление на рис. 4. В подсистему межгранульных границ внешнее поле проникает при достаточно малых величинах внешнего поля (доли эрстед) в виде джозефсоновских вихрей [39]. Для нашего случая в поле более примерно 12 Э высота петли гистерезиса ΔM_{GB} становится малой, диамагнитного отклика от подсистемы межгранульных границ уже практически нет, и для диапазона полей $H > 10$ Э следует, видимо, говорить либо о течении джозефсоновских вихрей, либо просто о магнитном потоке. В меньших полях можно оперировать магнитным моментом от подсистемы межгранульных границ \mathbf{M}_{GB} , линии магнитной индукции (штриховые линии на рис. 4) от которого замыкаются снаружи образца. Магнитные моменты гранул \mathbf{M}_{GR} в полях $H < H_{IP}$ определяются только мейснеровскими токами \mathbf{J}_{MG} . При $H > H_{IP}$ вихри Абрикосова могут пронизывать множество гранул, располагаясь преимущественно вдоль направления \mathbf{H} ; вихри дают положительный вклад в общую намагненность сверхпроводника. При этом можно считать, что модуль векторов \mathbf{M}_{GR} уменьшается из-за вклада вихрей. Линии магнитной индукции от магнитных моментов \mathbf{M}_{GR} (штриховые линии на рис. 4) должны замыкаться не только снаружи образца, а также и через межгранульные границы, как показано на рис. 4.

Исходя из описанной картины, в межгранульной среде реализуется суперпозиция внешнего поля \mathbf{H} и

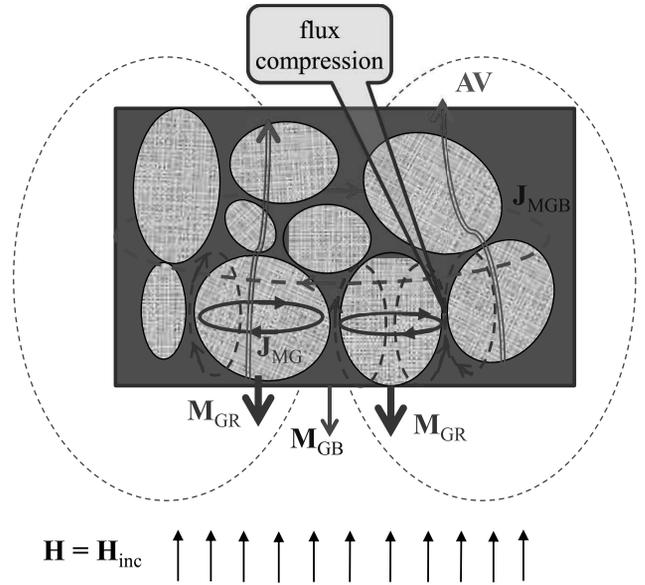


Рис. 4. Схематическое представление взаимного расположения векторов внешнего поля \mathbf{H} (возрастающего), мейснеровских токов \mathbf{J}_{MGB} , \mathbf{J}_{MG} , магнитных моментов \mathbf{M}_{GB} , \mathbf{M}_{GR} от подсистемы межгранульных границ (индексы «MGB» и «GB») и гранул (индексы «MG» и «GR»). Показаны (штриховыми линиями и выделены цветом) линии магнитной индукции от \mathbf{M}_{GB} и \mathbf{M}_{GR} . Также схематично представлено расположение вихрей Абрикосова (AV)

поля \mathbf{V}_{ind} , индуцированного магнитными моментами \mathbf{M}_{GR} . Применительно к подсистеме межгранульных границ можно оперировать с усредненным или эффективным полем \mathbf{V}_{eff} , причем, $\mathbf{V}_{eff} = \mathbf{H} + \mathbf{V}_{ind}$. Ясно, что \mathbf{V}_{ind} зависит от \mathbf{M}_{GR} , а поскольку намагненность подсистемы сверхпроводящих гранул \mathbf{M}_G является суммой \mathbf{M}_{GR} от всех гранул, эта связь может быть записана как

$$\mathbf{V}_{ind} = \alpha \mathbf{M}_G$$

или

$$\mathbf{V}_{ind}(H) = \alpha \mathbf{M}_G(H).$$

Здесь усредненный коэффициент пропорциональности α включает в себя как влияние размагничивающих факторов гранул, так и эффект сильного сжатия магнитного потока в межгранульной среде [51, 53–58]. При взаимном расположении векторов $\mathbf{H}(H = H_{inc})$ и \mathbf{M}_{GR} , приведенном на рис. 4, можно записать выражение для скалярной величины эффективного поля в виде

$$V_{eff} = H - \alpha M_G,$$

и в итоге, уже оперируя с намагненностью гранул

$M_G(H)$, можно записать следующее выражение:

$$B_{eff}(H) = H - \alpha M_G(H). \quad (4)$$

Выражение (4) было использовано для анализа левого гистерезиса магнитосопротивления и критического тока, и на основании многочисленных экспериментов было показано, что безразмерный параметр α имеет достаточно большую величину, $\alpha \sim 10-20$ (при этом M_G измеряется в Гс) [51, 53–58], что является признаком сгущения магнитного потока в межгранульной среде.

Применительно к малому гистерезису намагниченности (нижняя вставка рис. 1) описанная концепция эффективного поля в межгранульной среде подразумевает, что зависимость $M_{GB}(H)$ является функцией B_{eff} , т. е. $M_{GB}(B_{eff}) = f(H - \alpha M_G(H))$. Из этого следует, что не только внешнее поле, но и магнитные моменты гранул являются причиной уменьшения высоты петли гистерезиса $M_{GB}(H)$. Из данных рис. 1 (нижняя вставка) и рис. 2 (верхняя вставка) можно заключить, что во внешнем поле $H_{inc} = (12 \pm 1) \text{ Э}$ величина ΔM_{GB} (при $H_{inc} = H_{dec}$) становится очень малой. Величина эффективного поля B_{eff} при $H_{inc} \approx 12 \text{ Э}$ равна $B_{eff} \approx 12 \text{ Э} - \alpha \cdot (-8 \text{ Гс})$. С другой стороны, выше было установлено, что при $H_{max} = 173 \text{ Э}$ малый гистерезис не проявляется в слабых полях (диапазон $\pm 5 \text{ Э}$). Для оценки эффективного поля по выражению (4) в указанном диапазоне поля возьмем величину $M = M_{Rem}(H_{max} = 173 \text{ Э})$ равную примерно 9 Гс и тогда получим $B_{eff} \approx 0 - \alpha \cdot 9 \text{ Гс}$. Сравнивая модули эффективного поля для рассмотренных случаев, получаем

$$|12 \text{ Э} - \alpha \cdot (-8 \text{ Гс})| \approx |0 \text{ Э} - \alpha \cdot 9 \text{ Гс}|.$$

Из этого выражения получаем $\alpha \approx 12$. Однако здесь важен не сам факт подтверждения большой величины параметра α , а то, что в полученном равенстве внешнее поле играет весьма слабую роль. Иными словами, не внешнее поле, проникшее в подсистему межгранульных границ, а поле, наведенное магнитными моментами сверхпроводящих гранул, в основном способствует уменьшению магнитного отклика от подсистемы межгранульных границ.

Таким образом, с учетом того, что подсистема межгранульных границ находится в поле B_{eff} , для полной намагниченности гранулярного сверхпроводника вместо выражений (2) и (3) можно записать

$$M(H) = M_{GB}(H - \alpha M_G(H)) + M_G(H), \quad (5)$$

где параметр α достаточно большой ($\alpha > 10$).

Исчезновение аркообразной особенности зависимости $M(H)$ в диапазоне малых полей при определенном значении максимального приложенного поля (рис. 3а) и коллапс малой петли магнитного гистерезиса адекватно объясняются в рамках выражения (5).

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Детальное исследование магнитного гистерезиса гранулярного ВТСП иттриевой системы в различных диапазонах внешних полей позволило выявить особенности исчезновения малой петли гистерезиса. Аркообразная особенность в области слабых полей, являющаяся характерной чертой зависимости $M(H)$ гранулярных ВТСП, по мере увеличения максимального внешнего приложенного поля H_{max} становится менее выраженной, а при $H_{max} \approx 170 \text{ Э}$ ($T = 78 \text{ К}$) исчезает. При этом можно говорить о коллапсе малого магнитного гистерезиса. Обнаруженное поведение объясняется взаимодействием между сверхпроводящими подсистемами гранулярного ВТСП: гранулами и межгранульными границами. Магнитный гистерезис в слабых (до $\approx 12 \text{ Э}$ при $T = 78 \text{ К}$) полях является откликом от подсистемы межгранульных границ, и эта подсистема находится в эффективном поле, являющемся суперпозицией внешнего поля, и поля, наведенного сверхпроводящими гранулами. Таким образом, поведение малой петли гистерезиса объясняется в рамках модели сжатия потока в межгранульной среде. Подсистема межгранульных границ, являющаяся джозефсоновской средой (и ответственна за наблюдаемый малый гистерезис), образована сверхпроводящими гранулами. В то же время влияние магнитных моментов сверхпроводящих гранул на межгранульную среду приводит к достаточно скорому (при увеличении внешнего поля) исчезновению малого магнитного гистерезиса в определенных условиях. Можно сказать, что подсистема гранул как порождает, так и убивает магнитный отклик от подсистемы межгранульных границ.

Финансирование. Исследование выполнено в рамках госзадания ИФ СО РАН. Магнитные измерения проведены на оборудовании Центра коллективного пользования ФИЦ КНЦ СО РАН.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ch. Yao and Y. Ma, Science **24**, 102541 (2021).
2. Д. М. Гохфельд, М. Р. Коблишка, А. Коблишка-Венева, ФММ **121**, 1026 (2020).

3. G. Wang, M. J. Raine, and D. P. Hampshire, *Supercond. Sci. Technol.* **31**, 024001 (2018).
4. J. Huang and H. Wang, *Supercond. Sci. Technol.* **30**, 114004 (2017).
5. J. Zhang, H. Wu, G. Zhao, L. Han, and Jun Zhang, *Nanomaterials* **12**, 4000 (2022).
6. A. P. Menushenkov, A. A. Ivanov, O. V. Chernysheva, I. A. Rudnev, M. A. Osipov, A. R. Kaul, V. N. Chepikov, O. Mathon, V. Monteseguro, and F. d'Acapito, *Supercond. Sci. Technol.* **35**, 065006 (2022).
7. S. Eley, A. Glatz, and R. Willa, *J. Appl. Phys.* **130**, 050901 (2021).
8. Y. Yeshurun, A. P. Malozemoff, and A. Shaulov, *Rev. Mod. Phys.* **68**, 911 (1996).
9. А. М. Балагуров, Л. Г. Мамсурова, И. А. Бобриков, То Тхань Доан, В. Ю. Помякушин, К. С. Пигальский, Н. Г. Трусевич, А. А. Вишнёв, *ЖЭТФ* **141**, 1144 (2012).
10. Н. Г. Трусевич, С. Ю. Гаврилкин, Л. И. Трахтенберг, *ЖЭТФ* **164**, 413 (2023).
11. Т. В. Сухарева, В. А. Финкель, *Письма в ЖЭТФ* **108**, 249 (2018).
12. В. А. Кашурников, А. Н. Максимова, И. А. Руднев, А. Н. Мороз, *ФММ* **122**, 466 (2021).
13. M. R. Koblishka, S. P. Kumar Naik, A. Koblishkaveneva, D. M. Gokhfeld, and M. Murakami, *Supercond. Sci. Technol.* **33**, 044008 (2020).
14. Д. М. Гохфельд, Н. Е. Савицкая, С. И. Попков, Н. Д. Кузьмичев, М. А. Васютин, Д. А. Балаев, *ЖЭТФ* **161**, 833 (2022).
15. Д. А. Балаев, Д. М. Гохфельд, С. И. Попков, К. А. Шайхутдинов, Л. А. Клинова, Л. Н. Жерихина, А. М. Цховребов, *ЖЭТФ* **145**, 120 (2014).
16. Д. А. Балаев, А. А. Дубровский, С. И. Попков, К. А. Шайхутдинов, О. Н. Мартъянов, М. И. Петров, *ЖЭТФ* **137**, 664 (2010).
17. Т. В. Сухарева, В. А. Финкель, *ЖТФ* **80**, 68 (2010).
18. Т. В. Сухарева, В. А. Финкель, *ФТТ* **52**, 424 (2010).
19. Л. Г. Мамсурова, Н. Г. Трусевич, К. С. Пигальский, А. А. Вишнёв, С. Х. Гаджимагомедов, Ж. Х. Мурлиева, Д. К. Палчаев, А. С. Бугаев, *Хим. Физика* **37**, 58 (2018).
20. A. A. Lepeshev, G. S. Patrin, G. Y. Yurkin, A. D. Vasiliev, I. V. Nemtsev, D. M. Gokhfeld, A. D. Балаев, V. G. Demin, E. P. Bachurina, I. V. Karpov, A. V. Ushakov, L. Y. Fedorov, L. A. Irtyugo, and M. I. Petrov, *J. Supercond. Nov. Magn.* **31**, 3841 (2018).
21. И. А. Руднев, А. И. Подливаев, Д. А. Абин, С. В. Покровский, А. С. Стариковский, Р. Г. Батулин, П. А. Федин, К. Е. Прянишников, Т. В. Кулевой, *ФТТ* **65** 388 (2023).
22. А. Н. Максимова, И. А. Руднев, В. А. Кашурников, А. Н. Мороз, *ФТТ* **65**, 531 (2023).
23. D. M. Gokhfeld, S. V. Semenov, I. V. Nemtsev, I. S. Yakimov, and D. A. Balaev, *J. Supercond. Nov. Magn.* **35**, 2679 (2022).
24. E. Taylan Koparan, A. Surdu, A. Awawdeh, A. Sidorenko, and E. Yanmaz, *J. Supercond. Nov. Magn.* **25**, 1761 (2012).
25. C. P. Bean, *Rev. Mod. Phys.* **36**, 31 (1964).
26. C. Navau, N. Del-Valle, and A. Sanchez, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **23**, 8201023 (2013).
27. L. Ji, M. S. Rzchowski, N. Anand, and M. Tinkham, *Phys. Rev. B* **47**, 470 (1993).
28. M. Mahel' and J. Pivarc, *Physica C* **308**, 147 (1998).
29. В. В. Вальков, Б. П. Хрусталева, *ЖЭТФ* **107**, 1221 (1995).
30. E. V. Blinov, Yu. P. Stepanov, K. B. Traito, L. S. Vlasenko, R. Laiho, and E. Lahderanta, *ЖЭТФ* **106**, 790 (1994).
31. Д. М. Гохфельд, *ФТТ* **56**, 2298 (2014).
32. G. E. Gough, M. S. Colclough, D. A. O'Connor, E. Wellhoffer, N. McN. Alford, and T. W. Button, *Cryogenics* **31**, 119 (1991).
33. J. Jung, M.-K. Mohamed, S. C. Cheng, and J. P. Franck, *Phys. Rev. B* **42**, 6181 (1990).
34. F. Perez, X. Obradors, J. Fontcuberta, X. Bozec, and A. Fert, *Supercond. Sci. Technol.* **9**, 161 (1996).
35. B. Andrzejewski, E. Guilmeau, and C. Simon, *Supercond. Sci. Technol.* **14**, 904 (2001).
36. L. Burlachkov, A. E. Koshelev, and V. M. Vinokur, *Phys. Rev. B* **54**, 6750 (1996).
37. Ф. Ф. Терновский, Л. Н. Шехата, *ЖЭТФ* **62**, 2297 (1972).
38. А. А. Елистратов, И. Л. Максимов, *ФТТ* **42**, 196 (2000).

39. Э. Б. Сонин, Письма в ЖЭТФ **47**, 415 (1988).
40. J. Paasi, A. Tuohimaa, and J.-T. Eriksson, *Physica C* **259**, 10 (1996).
41. G. Ravikumar and P. Chaddah, *Phys. Rev. B.* **39**, 4704 (1989).
42. P. Chaddah, K. V. Bhagwat, and G. Ravikumar, *Physica C* **159** 570 (1989).
43. M. Zehetmayer, *Phys. Rev. B.* **80**, 104512 (2009).
44. R. Lal, *Physica C.* **470**, 281 (2010).
45. D. M. Gokhfeld, *J. Supercond. Nov. Magn.* **36**, 1089 (2023).
46. C. Böhmer, G. Brandstätter, and H. W. Weber, *Supercond. Sci. Technol.* **10**, A1 (1997).
47. R. Liang, P. Dosanjh, D. A. Bonn, and W. N. Hardy, A. J. Berlinsky, *Phys. Rev. B* **50**, 4212 (1994).
48. D. Daghero, P. Mazzetti, A. Stepanescu, and P. Tura, *Phys. Rev. B* **66**, 11478 (2002).
49. Д. А. Балаев, Д. М. Гохфельд, А. А. Дубровский, С. И. Попков, К. А. Шайхутдинов, М. И. Петров, *ЖЭТФ* **132**, 1340 (2007).
50. Д. А. Балаев, А. А. Дубровский, К. А. Шайхутдинов, С. И. Попков, Д. М. Гохфельд, Ю. С. Гохфельд, М. И. Петров, *ЖЭТФ* **135**, 271 (2009).
51. D. A. Balaev, S. I. Popkov, E. I. Sabitova, S. V. Semenov, K. A. Shaykhutdinov, A. V. Shabanov, and M. I. Petrov, *J. Appl. Phys.* **110**, 093918 (2011).
52. A. Altinkok, K. Kilic, M. Olutas, and A. Kilic, *J. Supercond. Nov. Magn.* **26**, 3085 (2013).
53. D. A. Balaev, S. V. Semenov, and M. A. Pochekutov, *J. Appl. Phys.* **122**, 123902 (2017).
54. S. V. Semenov and D. A. Balaev, *Physica C* **550**, 19 (2018).
55. S. V. Semenov and D. A. Balaev, *J. Supercond. Nov. Magn.* **32**, 2409 (2019).
56. S. V. Semenov, A. D. Balaev, and D. A. Balaev, *J. Appl. Phys.* **125**, 033903 (2019).
57. С. В. Семёнов, Д. А. Балаев, *ФТТ* **62**, 1008 (2020).
58. С. В. Семёнов, Д. А. Балаев, М. И. Петров, *ФТТ* **63**, 854 (2021).

СИЛЬНОЕ ОТРИЦАТЕЛЬНОЕ МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЕ И ПРЫЖКОВЫЙ ТРАНСПОРТ В ГРАФЕНИЗИРОВАННЫХ НЕМАТИЧЕСКИХ АЭРОГЕЛЯХ

В. И. Цebro^{a,b*}, Е. Г. Николаев^{b**}, М. С. Кутузов^c, А. В. Садаков^a, О. А. Соболевский^a

^a Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия

^b Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук
119334, Москва, Россия

^c Metallurg Engineering Ltd.
11415, Tallinn, Estonia

Поступила в редакцию 25 октября 2023 г.,
после переработки 25 октября 2023 г.
Принята к публикации 10 ноября 2023 г.

Исследованы транспортные свойства нематических аэрогелей, состоящих из покрытых графеновой оболочкой ориентированных нановолокон муллита. Показано, что магнитосопротивление этой системы хорошо аппроксимируется двумя вкладками - отрицательным, описываемым формулой для систем со слабой локализацией, и положительным, линейным по полю и ненасыщающимся в больших магнитных полях. Характер температурной зависимости длины сбоя фазы, полученной из анализа отрицательного вклада, указывает на главную роль электрон-электронного взаимодействия в разрушении фазовой когерентности и, предположительно, на переход при низких температурах от двумерного режима слабой локализации к одномерному. Положительный линейный вклад в магнитосопротивление, по-видимому, обусловлен неоднородным распределением в токопроводящей среде локальной плотности носителей. Установлено также, что температурную зависимость сопротивления графенизированных аэрогелей для образцов с малым содержанием углерода, когда графеновое покрытие, по-видимому, является неполным, можно представить в виде суммы двух вкладов, один из которых характерен для слабой локализации, а второй описывается прыжковым механизмом, соответствующим закону Эфроса – Шкловского в случае гранулярной проводящей среды. Для образцов с большим содержанием углерода второй вклад отсутствует.

DOI: 10.31857/S0044451024020123

1. ВВЕДЕНИЕ

Графенизация методом химического осаждения из газовой фазы (chemical vapor deposition, CVD) нематического аэрогеля на основе γ - Al_2O_3 (нафен) или на основе силиката алюминия $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$ (муллит), в процессе которой его нановолокна покрываются одним или несколькими слоями графена с большим количеством дефектов [1–3], делает аэрогель проводящим с весьма интересными свойствами.

В работе [4] нами была проведена характеристика образцов графенизированного муллита, в частности, исследовано их строение с помощью сканирующей электронной микроскопии, определено содержание углерода методом рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (XPS) для оценки толщины графенового покрытия, а также получены спектры комбинационного рассеяния, что позволило качественно оценить степень дефектности и размер зерен углеродного покрытия. В результате измерений транспортных свойств объемных образцов аэрогеля была определена удельное сопротивление и его анизотропия. Также было показано, что температурные зависимости электросопротивления как объемных, так и компактных образцов графенизированного муллита в диапазоне 9–40 К можно опи-

* E-mail: v.tsebro@mail.ru

** E-mail: nikolaev@kapitza.ras.ru

сать формулой (1) для прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка (VRH), в которой показатель степени α меняется от 0.4 до 0.9 при уменьшении числа слоев в графеновой оболочке нановолокон от 4–6 до 1–2.

$$R(T) = R(0) \exp \left[\left(\frac{T_0}{T} \right)^\alpha \right]. \quad (1)$$

Измеренное в [4] магнитосопротивление при 4.2 К в магнитном поле до 2.3 Тл оказалось отрицательным, значительным по величине ($MR = (R(B) - R(0))/R(0) \approx -0.1$ в поле 2 Тл) и возрастающим по мере уменьшения толщины графеновой оболочки. Аппроксимация полевой зависимости магнитосопротивления соответствующим выражением для слабой локализации носителей в двумерном случае (2D-WL) позволило определить значения длины фазовой когерентности (13–15 нм), которые находятся в разумном соотношении с размером графеновых зёрен в оболочке нановолокон аэрогеля. Таким образом оказалось, что эта система проявляет свойства, характерные как для сильной локализации (прыжковая проводимость), так и для слабой локализации (отрицательное магнитосопротивление). Это обстоятельство, а также ограниченный диапазон температур, в котором выполнялся закон (1), и в особенности полученные низкие значения T_0 (ниже 30К) указывали на необходимость более подробного исследования транспортных свойств графенизированного нематического аэрогеля в широком диапазоне температур и магнитных полей.

В настоящей работе исследованы зависимости сопротивления графенизированного муллита в магнитных полях до 16 Тл и в области температур от 3 до 300 К. Было установлено, что магнитосопротивление можно представить в виде суммы двух вкладов: отрицательного ($MR^- < 0$) и положительного ($MR^+ > 0$). Для образцов с малым числом слоев в графеновой оболочке нановолокон отрицательный вклад при температурах вблизи гелиевых может достигать величины ≈ -0.5 в магнитном поле 16 Тл. Оказалось также, что отрицательный вклад MR^- во всей области магнитных полей и температур с хорошей точностью описывается выражением для случая 2D-слабой локализации [5, 6]. Положительный вклад, который является линейным и ненасыщающимся, по-видимому, обусловлен существенной неоднородностью токопроводящей среды [7–13]. Анализ температурной зависимости сопротивления в нулевом поле показал, что у образцов аэрогелей с минимальным числом слоев (1–3)

в графеновой оболочке нановолокон $R(T)$ содержит два вклада: (а) связанный со слабой локализацией в условиях диффузионного транспорта носителей вклад $R_{WL} \propto 1/\ln T$ и (б) обусловленный прыжковым механизмом вклад R_{hop} согласно формуле (1). При этом, независимо от толщины графенового покрытия, величина α в (1) равна 1/2 (закон Эфроса–Шкловского), а $T_0 = 210 - 260$ К. Для образцов с большей толщиной графеновой оболочки прыжковый вклад отсутствует.

2. ОБРАЗЦЫ АЭРОГЕЛЕЙ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ДЕТАЛИ

Как и ранее [4], исследовались образцы с содержанием углерода: 14 ат. % (AG-14), 20 ат. % (AG-20), 31 ат. % (AG-31) и 44 ат. % (AG-44). Как было отмечено в этой работе, если, исходя из данных по содержанию в образцах углерода и среднего диаметра нановолокон, оценить толщину графеновой оболочки, то получается, что она составляет 1–2 графеновых слоя для образцов с минимальным содержанием углерода (AG-14) и 4–6 слоев для образцов с максимальным содержанием (AG-44).

Измерения магнитосопротивления проводились стандартным четырехконтактным методом на отдельных фрагментах аэрогеля с большим отношением длины к его поперечному размеру. Поперечное сечение таких фрагментов было порядка 0,05 мм² при длине 6–8 мм. На рис. 1 приведено электронно-микроскопическое изображение торца одного из та-

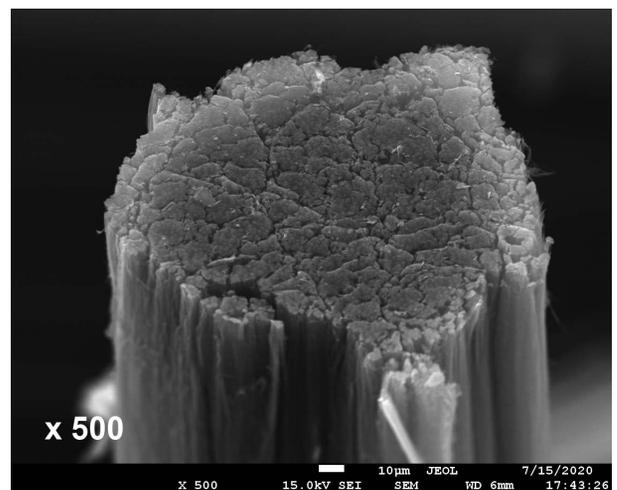


Рис. 1. Электронно-микроскопическое изображение торца фрагмента аэрогеля AG-44 с поперечным размером порядка 0.2 мм

ких фрагментов с поперечным размером порядка 0.2 мм. Для каждого образца изготавливался отдельный специальный держатель (рис. 2) из натянутых под малым углом к плоскости основания держателя луженых медных проволок диаметром 0,06 мм, которые служили подводами к токовым и потенциальным контактам к образцу. После помещения образца в пространство между контактными проволоками и плоскостью основания держателя, с обратной стороны контактных проволок в месте контакта наносилась малая капля проводящей самотвердеющей серебряной пасты для образования стабильного контакта. Понятно, что в такой геометрии измеряемая величина электросопротивления определяется, главным образом, продольной (вдоль направления нановолокон) его компонентой, а при направлении вектора магнитного поля по нормали к оси образца, измеряемое магнитосопротивление будет поперечным.

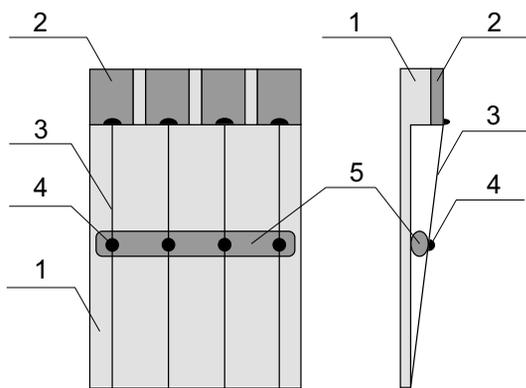


Рис. 2. Конструкция держателя образцов аэрогеля в форме нановолоконного фрагмента. 1 — основание держателя (стеклотекстолит); 2 — контактные площадки (медь); 3 — контактные провода (медная проволока); 4 — самотвердеющая проводящая серебряная паста; 5 — нановолоконный фрагмент аэрогеля

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Магнитосопротивление

На рис. 3 представлены измеренные при разных температурах зависимости $MR(B)$ для образца AG-14 с наименьшим содержанием углерода (числом графеновых слоев в оболочке нановолокон 1–2), а на рис. 4 зависимости $MR(B)$ для образцов AG-31 и AG-44 с вдвое–втрое большей толщиной графеновой оболочки.

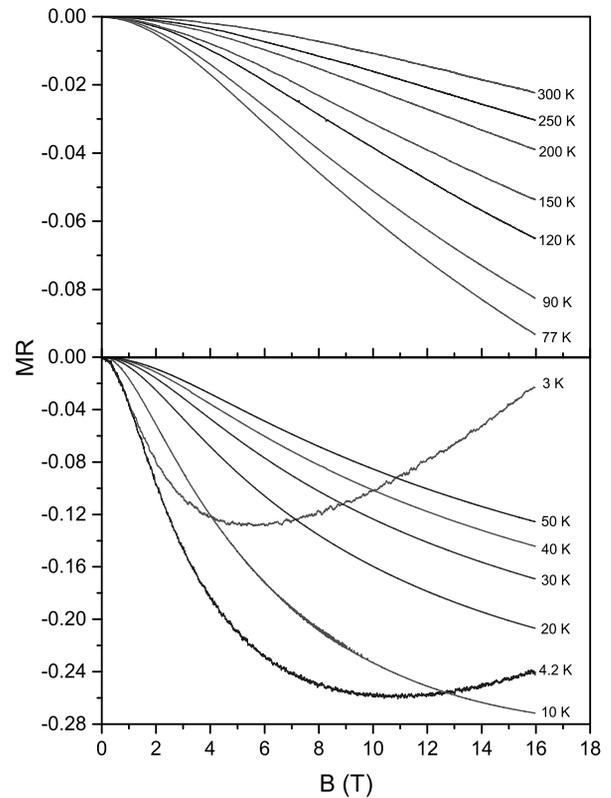


Рис. 3. Магнитосопротивление образца AG-14 при температурах от 3 до 300 К

Видно, что при всех температурах магнитосопротивление отрицательное, значительное по величине, и уменьшается всего лишь на порядок при изменении температуры от гелиевой до комнатной. Видно также, что при низких температурах проявляется заметный положительный вклад в магнитосопротивление, приводящий к сильной деформации зависимостей $MR(B)$ при температурах 3–5 К.

При обработке экспериментальных данных оказалось, что при всех температурах полевые зависимости MR с хорошей точностью разделяются на два вклада — отрицательный $MR^- < 0$ и меньший по величине положительный $MR^+ > 0$, который, как выяснилось, строго линеен по магнитному полю в полях, больших 1 Тл, и квадратичен по полю при $B \rightarrow 0$. При этом отрицательный вклад при всех температурах может быть описан с помощью известного выражения для магнитокондуктанса MC в случае 2D-WL [5, 6, 20] следующим образом:

$$MR^-(B, T) = \frac{1}{MC(B, T) + 1} - 1, \quad (2)$$

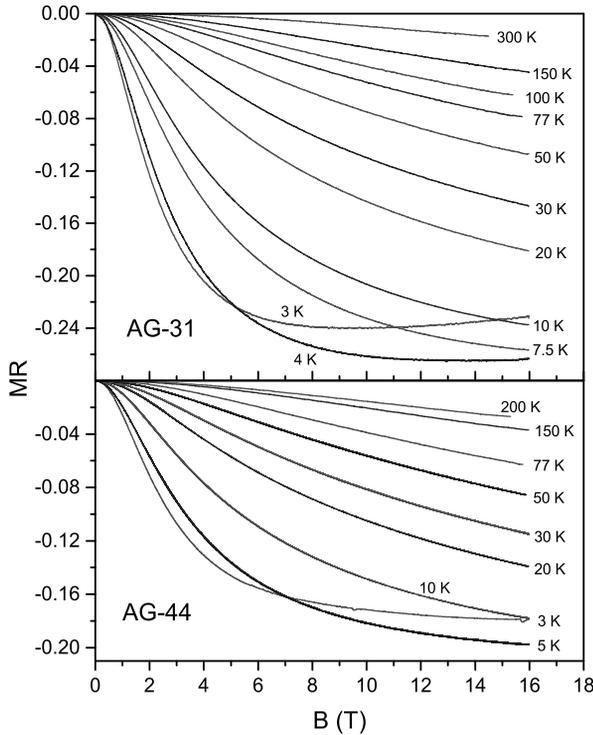


Рис. 4. Магнитосопротивление образцов AG-31 и AG-44 при разных температурах

где

$$MC(B, T) = \frac{G(B, T) - G(0, T)}{G(0, T)} = A(T) \left[\Psi \left(\frac{1}{2} + \frac{B_\phi(T)}{B} \right) + \ln \left(\frac{B}{B_\phi(T)} \right) \right]. \quad (3)$$

Здесь кондактанс

$$G(B, T) = \frac{1}{R(B, T)},$$

$A(T)$ — зависящая от температуры константа, определяемая параметрами системы, Ψ — дигамма-функция,

$$B_\phi(T) = \frac{\hbar}{4eL_\phi^2},$$

L_ϕ — длина фазовой когерентности.

Процедура обработки экспериментальных данных для разделения вкладов MR^- и MR^+ проводилась в два этапа и сводилась к следующему. Сначала проводилась аппроксимация измеренных при данной температуре зависимостей магнитосопротивления от магнитного поля в интервале полей от 1 до 16 Тл суммой

$$MR(B, T) = MR^-(B, T) + MR^+(B, T) \quad (4)$$

с тремя зависящими от температуры параметрами: A, B_ϕ из (3), и коэффициентом C положительного линейного вклада в магнитных полях выше 1 Тл. То есть в этой сумме MR^- выражается формулами (2), (3), а MR^+ — формулой

$$MR^+(B, T) = C(T)B. \quad (5)$$

При этом, поскольку графеновые зерна в оболочке нановолокон аэрогеля располагаются под разными углами к направлению магнитного поля, а разрушение связанного со слабой локализацией вклада в магнитосопротивление происходит за счет перпендикулярной к графеновой плоскости компоненты магнитного поля, при аппроксимации проводилось усреднение по всем возможным углам согласно выражению

$$\left[\frac{\Delta R(B)}{R(0)} \right] = \frac{1}{\pi} \int_{-\pi/2}^{\pi/2} \left[\frac{\Delta R(B \cos \theta)}{R(0)} \right] d\theta$$

так, как это делалось, например, в работе [21] для высокопроводящих волокон из углеродных нанотрубок.

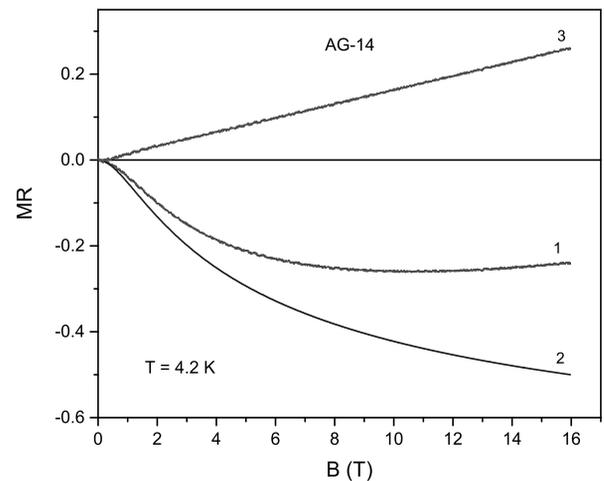


Рис. 5. Пример разделения вкладов в магнитосопротивление для образца AG-14 при $T = 4.2$ К. Показаны: 1 — экспериментальная зависимость магнитосопротивления от магнитного поля, 2 — зависимость от B отрицательного вклада MR^- согласно формулам (2,3) и 3 — зависимость от B положительного вклада MR^+

На втором этапе, из разницы экспериментальных значений MR и значений MR^- , рассчитанных по формулам (2), (3) с параметрами A и B_ϕ , полученными на первом этапе обработки, определялся

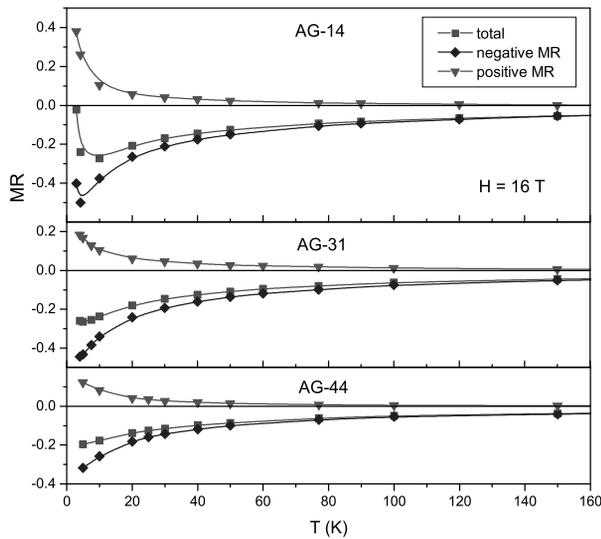


Рис. 6. Температурные зависимости экспериментальных значений магнитосопротивления и соответствующих величин отрицательного и положительного вкладов в магнитном поле 16 Тл для образцов AG-14, AG-31 и AG-44

вид зависимости от магнитного поля положительного вклада MR^+ . На рис. 5 в качестве примера показан итог разделения вкладов в магнитосопротивление для образца AG-14 при $T = 4.2$ К. Видно, что оба вклада, отрицательный и положительный, отличаются в больших полях по абсолютной величине примерно в два раза так, что в максимальном магнитном поле 16 Тл при отсутствии положительного вклада магнитосопротивление данного образца достигало бы величины приблизительно -0.5 .

Соотношение величин отрицательного и положительного вкладов в магнитосопротивление при разных температурах в максимальном поле 16 Тл для образцов трех составов иллюстрирует рис. 6. Видно, что по мере увеличения содержания углерода (толщины графеновой оболочки) величины обоих вкладов уменьшаются, и в отличие от отрицательного вклада, положительный вклад при увеличении температуры становится несущественным при $T \gtrsim 100$ К.

3.1.1. Параметры отрицательного вклада в магнитосопротивление

Температурные зависимости параметра B_ϕ в формуле (3) для образцов всех составов группируются вокруг единой зависимости, которая линейна при $T > 20$ К (см. рис. 7). Так как длина фазовой

когерентности L_ϕ связана с B_ϕ соотношением

$$L_\phi = \sqrt{\frac{\hbar}{4eB_\phi}},$$

величина $L_\phi^{-2}(T)$ также изменяется в этой области температур линейным образом (см. рис. 7, правая шкала).

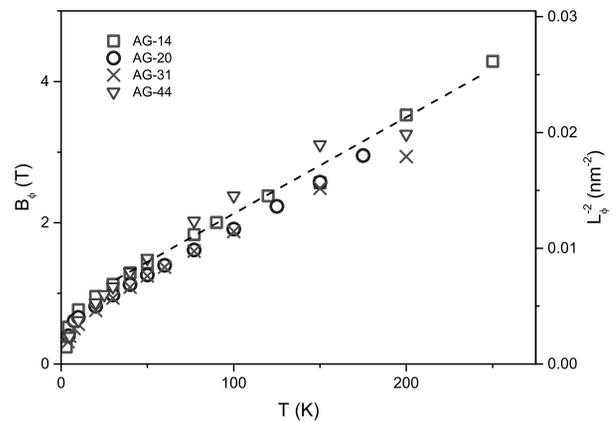


Рис. 7. Температурные зависимости значений параметра $B_\phi(T)$. На правой оси представлены соответствующие значения L_ϕ^{-2}

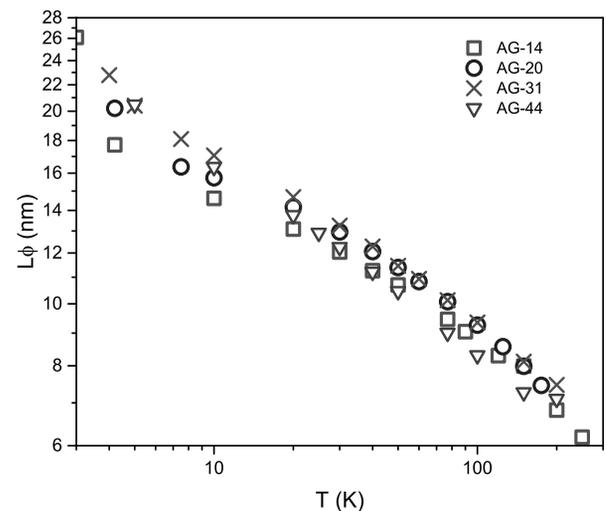


Рис. 8. Температурные зависимости длины фазовой когерентности $L_\phi(T)$, вычисленной из значений параметра $B_\phi(T)$

Длина фазовой когерентности определяется формулой

$$L_\phi = \sqrt{D\tau_\phi},$$

D — коэффициент диффузии, τ_ϕ — время сбой фазы. Как известно, при слабой локализации сбой фазы движения носителей при неупругих взаимодействиях может происходить не только (а, в случае графена из-за слабого электрон-фононного взаимодействия, и не столько) из-за рассеяния на фононах, но и прежде всего за счет электрон-электронного рассеяния [22]. При этом выражение для температурной зависимости τ_ϕ^{-1} в 2D-системе можно записать в виде [20]

$$\frac{1}{\tau_\phi} = \frac{k_B T}{\hbar} \frac{R_\square e^2}{2\pi\hbar} \ln\left(\frac{\pi\hbar}{R_\square e^2}\right), \quad (6)$$

где R_\square — сопротивление на квадрат. В этом случае L_ϕ^{-2} должна линейно зависеть от температуры, что и наблюдается на образцах всех четырех составов, начиная от 20 К и, практически, вплоть до комнатных температур (см. рис. 7).

Отметим, что столь большое отрицательное магнитосопротивление (до 50% при гелиевых температурах и порядка 2% при комнатной температуре) для всех образцов, в совокупности с линейной зависимостью $L_\phi^{-2}(T)$, простирающейся до столь же высоких температур, наблюдается в сильно дефектной графеновой системе, по-видимому, впервые. Основной причиной таких больших значений магнитосопротивления является, по-видимому, очень высокая степень дефектности графенового покрытия нановолокон аэрогеля. Коэффициент

$$A = \frac{R_\square e^2}{2\pi\hbar}$$

в формуле (3) достигает значения единицы для AG-14 при 4.2 К. Соответственно, это дает оценку $R_\square \approx 8.1 \cdot 10^4$ Ом.

Экстраполяция линейного участка зависимости $L_\phi^{-2}(T)$ к нулевой температуре указывает на то, что наряду с температурно-зависимым вкладом, имеется еще и независимый от температуры вклад в длину фазовой когерентности. Вместе с тем поведение зависимости $L_\phi^{-2}(T)$ (или, соответственно, $\tau_\phi^{-1}(T)$) при низких температурах на наших образцах сильно отличается от наблюдаемой ранее на образцах CVD- и эпитаксиального графена размерами несколько десятков микрон [23, 24] или на образцах графена микронных размеров, приготовленных методом механического отслаивания [25, 26]. Во всех этих работах значения $\tau_\phi^{-1}(T)$ при низких температурах выходят на насыщение, приближаясь к величине независимого от температуры вклада $\tau_{\phi 0}^{-1}$. В работах [23, 24] предполагается, что этот вклад связан с «spin-floor»

рассеянием на локальных магнитных моментах, которыми могут обладать некоторые структурные дефекты или примеси. В работе [25] показано, что выход на насыщение происходит, когда величина L_ϕ сравнивается с размером образца. Также возможной причиной может быть пространственная неоднородность плотности носителей [24, 26]. Во всех этих работах по слабой локализации в графене значения $L_{\phi 0}$ находились в интервале 0.6–2 мкм. Однако похожее поведение $L_\phi^{-2}(T)$ при $T \rightarrow 0$ наблюдалось и в работах по исследованию магнитотранспорта в разупорядоченных многослойных углеродных нанотрубках [21, 27] при много меньших значениях $L_{\phi 0}$ (порядка 20–40 нм).

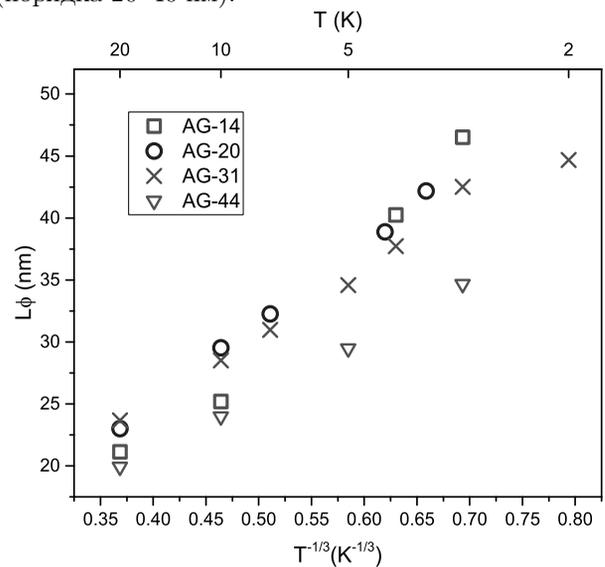


Рис. 9. Зависимости $L_\phi(T)$ от $T^{-1/3}$ по результатам аппроксимации полевых зависимостей магнитокондуктанта в одномерной модели

В отличие от вышеупомянутых работ в нашем случае показанная рис. 7 зависимость $L_\phi^{-2}(T)$ при понижении температуры не только не выходит на насыщение, но, напротив, становится более сильной. Подобное поведение наблюдалось в [28], где исследовалась узкая полоска достаточно совершенного графена, полученная методом механического отслаивания. Из приведенных в этой работе данных видно, что ниже 40 К происходит более быстрое уменьшение величины τ_ϕ^{-1} , пропорциональной L_ϕ^{-2} . Следует отметить, что такой характер температурной зависимости авторы наблюдали только при малом числе носителей и в условиях сильной антилокализации. Как видно из рис. 7 нашей работы, такое поведение L_ϕ имеет место при температурах, когда величина L_ϕ становится порядка среднего диаметра

нитей аэрогеля (15 нм) [4]. Разумно предположить, что при понижении температуры ниже 15–20 К начинается происходить постепенная смена режима проводимости от двумерного к одномерному (переход 2D → 1D).

В одномерном случае выражение для температурной зависимости τ_ϕ^{-1} имеет вид [20]

$$\frac{1}{\tau_\phi} = \left(\frac{k_B T e^2 \sqrt{\hbar D}}{\hbar \sigma_1} \right)^{2/3}, \quad (7)$$

где σ_1 — проводимость единицы длины одномерного проводника, а квантовая поправка к проводимости описывается следующим выражением

$$\delta\sigma_{1D} = -\frac{e^2 L_\phi}{\pi \hbar} \frac{1}{[-\ln \text{Ai}(\tau_\phi/\tau_B)]'}, \quad (8)$$

где Ai — функция Эйри,

$$\tau_B = 3\hbar^2/D(eBa)^2,$$

a — поперечный размер одномерного проводника.

Оказалось, что измеренные нами при низких температурах (2–20 К) зависимости магнитондактанса от магнитного поля допускают аппроксимацию по формулам данной одномерной модели. При этом полученные из этой аппроксимации значения $L_\phi(T)$ пропорциональны $T^{-1/3}$ в соответствии с выражением (7) (см. рис. 9) и превосходят соответствующие результаты модели 2D-WL (при 10 К примерно в два раза, см. рис. 8 и 9). Это можно считать вполне удовлетворительным согласием, принимая во внимание, что в переходной области ни одна из моделей, строго говоря, не работает. Качественно переход к более быстрому росту L_ϕ с понижением температуры при переходе 2D → 1D можно объяснить тем, что при этом происходит уменьшение числа возможных состояний, в которые может рассеиваться электрон, не только за счет уменьшения ширины интервала $k_B T$, но и за счет того, что выбывают из игры состояния вблизи направлений импульса, перпендикулярных оси нити. Что касается температурно независимого вклада $L_{\phi 0}^{-2}$, то, как видно из рис. 7, он существенно уменьшается (а $L_{\phi 0}$, соответственно, растет), если делать экстраполяцию по точкам ниже 20 К. Связано ли это с переходом 2D → 1D, остается под вопросом.

3.1.2. Положительный вклад в магнитосопротивление

На рис. 10 приведена температурная зависимость коэффициента C в формуле (5), который характеризует линейный положительный вклад в магнитосопротивление, ненасыщающийся в полях до

16 Тл. Этот вклад проявляет себя прежде всего при низких температурах (см. рис. 5) и становится несущественным при $T \gtrsim 100$ К (см. рис. 6).

Линейное ненасыщающееся магнитосопротивление (linear nonsaturating magnetoresistance, LNMR) в системах с сильной неоднородностью является в последнее время предметом многих публикаций (см., например, [7–13]). Внимание к эффекту LNMR было привлечено после экспериментальных работ [29, 30] по LNMR на халькогенидах серебра, а также теоретических работ [31, 32]. В последних методом численного моделирования на двухмерной сетке случайных по величине четырехтерминальных сопротивлений (random resistor network, RRN) было показано, что учет холловского вклада в распределение потенциалов на сетке приводит к эффекту LNMR в перпендикулярном плоскости сетки магнитном поле. Данный результат был предложен в качестве объяснения результатов работ [29, 30], и это объяснение было принято авторами многих последующих экспериментальных работ, в которых эффект LNMR наблюдался для самых разных объектов, включая однослойный CVD графен [8], двухслойный мозаичный графен [12], многослойный эпитаксиальный графен [11], и таких объектов, как, например, слоистые соединения дихалькогенидов переходных металлов [10, 13].

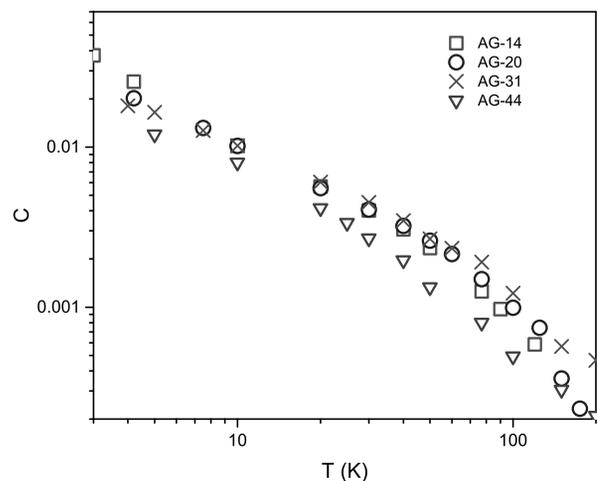


Рис. 10. Температурные зависимости коэффициента C в формуле (5) положительного линейного вклада в магнитосопротивление

Другой подход к объяснению LNMR (так называемая теория эффективной среды) был предложен в работе [33], где показано, что этот эффект в неоднородном проводнике должен наблю-

даться в том случае, когда он состоит из разных по объему областей электронов и дырок с однородной проводимостью. Эквивалентность моделей эффективной среды и RRN продемонстрировано в работе [7] на примере данных нескольких экспериментальных работ для разных объектов. Обе эти модели приводят к одинаковым результатам и наряду с линейной зависимостью магнитосопротивления в сильных полях предсказывают квадратичную зависимость при $H \rightarrow 0$.

В нашем случае, учитывая то обстоятельство, что проводящая среда графенизированных образцов нематического аэрогеля, а именно, связанная, сильно вытянутая вдоль одного направления, хаотичная по размерам ячеек сетка графеновых оболочек нитей муллита, никоим образом не является однородной средой, вышеприведенное объяснение линейного вклада в магнитосопротивление представляется вполне оправданным. Следует отметить, что этот вклад в отличие от других механизмов магнитосопротивления не связан с каким-либо определенным типом проводимости, например, диффузионным или прыжковым. При этом можно отметить, что характерный размер неоднородностей, связанных с данным вкладом, значительно больше характерных размеров, существенных для того или иного типа проводимости (длина свободного пробега, длина локализации), т.е. имеет мезоскопический порядок величины.

3.2. Температурная зависимость сопротивления. Прыжковая проводимость

На рис. 11 показаны измеренные в нулевом магнитном поле зависимости сопротивления от температуры для образцов аэрогелей всех составов в той области температур ($T < 100$ К), где сопротивление изменяется наиболее существенно. Показаны зависимости нормированного к величине при $T = 273$ К сопротивления, что исключает геометрический фактор и позволяет сравнивать относительные значения удельного сопротивления в зависимости от состава и температуры. Из приведенных данных видно, что диапазон изменения сопротивления существенно отличается для образцов с минимальной толщиной графеновой оболочки (AG-14, AG-20) и образцов с большей толщиной (AG-31, AG-44).

Предполагая, что (а) в основном проводимость сильно дефектных графеновых оболочек нановолокон определяется диффузионным транспортом по графеновым зернам в условиях слабой локализа-

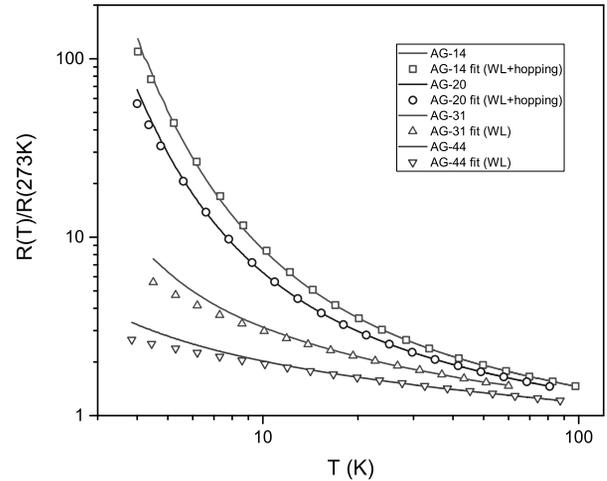


Рис. 11. Нормированные температурные зависимости сопротивления образцов аэрогелей всех составов. Символами показаны результаты аппроксимации согласно выражению (9)

ции, когда проводимость $\sigma(T) \propto \ln T$, и (б) при малых толщинах непрерывность графенового покрытия может нарушаться и возникнет прыжковая проводимость между отдельными фрагментами графеновой оболочки, для образцов AG-14 и AG-20 была проведена аппроксимация экспериментальных зависимостей $R(T)$ суммой двух вкладов с четырьмя подгоночными параметрами a, b, c и T_0

$$\frac{R(T)}{R(273\text{K})} = R_{\text{WL}}(T) + R_{\text{hop}}(T), \quad (9)$$

где

$$R_{\text{WL}}(T) = \frac{1}{a + b \ln T},$$

$$R_{\text{hop}}(T) = c \exp \left[\left(\frac{T_0}{T} \right)^{1/2} \right].$$

Итоги такой аппроксимации показаны символами на рис. 11.

Выбор $\alpha = 1/2$ для прыжкового вклада в выражении (9) при процедуре аппроксимации экспериментальных зависимостей $R(T)$ для образцов AG-14 и AG-20 обусловлен тем, этот закон характерен для гранулированных проводников [16, 17], а также для механизма прыжковой проводимости между нанопроволоками в матрице изолятора, рассмотренного в работах [18, 19]. Полученные для образцов AG-14 и AG-20 в результате аппроксимации $R(T)$ значения параметра T_0 равны 260 и 210 К, соответственно.

Для образцов AG-31 и AG-44 с большей толщиной графеновой оболочки нановолокон графеновое покрытие, по-видимому, является сплошным. Для этих образцов относительное изменение сопротивления при $T < 100$ К невелико, и для его описания, как оказалось, достаточно одного вклада R_{WL} в выражении (9). Принимая во внимание то обстоятельство, что ниже 15–20 К начинается переход 2D → 1D, аппроксимация экспериментальных зависимостей $R(T)$ первым членом суммы (9) проводилась от 15 К и выше, при этом ниже этой температуры, как видно из рис.11, отклонение экспериментальных кривых вверх от аппроксимационных значений коррелирует с высказанным ранее предположением о смене при понижении температуры режима проводимости от двухмерного к одномерному. Для образцов AG-14 и AG-20 такого отклонения не видно на фоне сильного прыжкового вклада.

Таким образом прыжковый транспорт в исследованных графенизированных аэрогелях с величиной $\alpha = 1/2$ в формуле (1) в явном виде проявляет себя только для образцов с минимальной толщиной графеновой оболочки нановолокон аэрогеля.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом в настоящей работе в диапазоне температур от 3 до 300 К и магнитных полях до 16 Тл исследованы магнитотранспортные свойства нематических аэрогелей, состоящих из покрытых графеновой оболочкой нановолокон $Al_2O_3 \cdot SiO_2$. Показано, что измеренное магнитосопротивление достаточно хорошо аппроксимируется суммой двух вкладов — отрицательного, описываемого в рамках 2D-модели слабой локализации, и линейного по полю положительного, ненасыщающегося в сильных магнитных полях.

Установлено, что для всех исследованных образцов полученная в результате анализа отрицательного магнитосопротивления величина L_ϕ^{-2} выше 20 К линейно зависит от температуры, что указывает на электрон-электронное рассеяние как основной механизм расфазировки. При более низких температурах L_ϕ^{-2} уменьшается быстрее чем линейно. Так как в этой области температур длина сбоя фазы L_ϕ становится сравнимой с диаметром нановолокон, можно полагать, что такое поведение связано с началом перехода ниже 20 К от двумерного режима локализации к одномерному, при котором L_ϕ^{-2} пропорциональна $T^{2/3}$. Аппроксимация магнитосопротивления ниже 20 К с помощью формулы для слабой

1D-локализации дает величины L_ϕ всего вдвое превышающие соответствующие значения, полученные в рамках 2D-модели.

Отметим большую величину отрицательного магнитосопротивления (до 50% при гелиевых температурах и порядка 2% при комнатной температуре) в совокупности с линейной зависимостью $L_\phi^{-2}(T)$, простирающейся до самых высоких температур. В сильно дефектной графеновой системе, по-видимому, это наблюдается впервые. Причиной этого является, по-видимому, очень высокая степень дефектности графенового покрытия нановолокон аэрогеля.

Линейный положительный вклад в магнитосопротивление можно объяснить неоднородным распределением в системе локальной плотности носителей заряда, которая приводит к примешиванию холловской компоненты к продольной составляющей объемного тензора сопротивления.

Температурную зависимость сопротивления нематических аэрогелей в нулевом поле также можно представить в виде суммы двух вкладов, один из которых соответствует областям с диффузионным характером транспорта и описывается выражением для случая слабой 2D-локализации. Для второго вклада использована формула для прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка с показателем степени в экспоненте, равным 1/2 (закон Эфроса – Шкловского). Для образцов с большим содержанием углерода второй вклад пренебрежимо мал и ниже 10 К наблюдается существенное отклонение от теоретической зависимости, что также подтверждает предположение о переходе ниже этой температуры к одномерному режиму слабой локализации.

Благодарности. Авторы выражают благодарность Б. И. Шкловскому за полезные обсуждения особенностей прыжкового транспорта в исследованной системе.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант № 21-72-20050).

ЛИТЕРАТУРА

1. I. Hussainova, R. Ivanov, S. N. Stamatina et al., *Carbon* **88**, 157 (2015).
2. R. Ivanov, V. Mikli, J. Kübarsepp and I. Hussainova, *Key Engin. Mater.* **674**, 77 (2016).

3. V. S. Solodovnichenko, M. M. Simunin, D. V. Lebedev et al., *Thermochim. Acta* **675**, 164 (2019).
4. В. И. Цебро, Е. Г. Николаев, Л. Б. Луганский и др., *ЖЭТФ* **161**, 266 (2022).
5. S. Hikami, A.I. Larkin and Y. Nagaoka, *Prog. of Theor. Phys.* **63**, 707 (1980).
6. P. A. Lee and T. V. Ramakrishnan, *Rev. Mod. Phys.* **57**, 287 (1985).
7. N. Ramakrishnan, Y. T. Lai, S. Lara et al., *Phys. Rev. B* **96**, 224203 (2017).
8. J. Ping, I. Yudhistira, N. Ramakrishnan et al., *Phys. Rev. Lett.* **113**, 047206 (2014).
9. A. Narayanan, M. D. Watson, S. F. Blake et al., *Phys. Rev. Lett.* **114**, 117201 (2015).
10. W. L. Zhu, Y. Cao, P. J. Guo et al., *Phys. Rev. B* **105**, 125116 (2022).
11. A. L. Friedman, J. L. Tedesco, P. M. Campbell et al., *Nano Lett.* **10**, 3962, (2010).
12. F. Kisslinger, C. Ott, C. Heide et al., *Nat. Phys.* **11**, 650 (2015).
13. S. Gu, K. Fan, Y. Yang et al., *Phys. Rev. B* **104**, 115203 (2021).
14. Б. И. Шкловский, А. Л. Эфрос, *Электронные свойства легированных полупроводников*, Наука, Москва (1979).
15. B. I. Shklovskii and A. L. Efros, in *Electronic Properties of Doped Semiconductors*, Vol. 45 of Springer Series in Solid-State Sciences, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg GmbH (1984).
16. J. Zhang and B. I. Shklovskii, *Phys. Rev. B* **70**, 115317 (2004).
17. I. S. Beloborodov, A. V. Lopatin, V. M. Vinokur, and K. B. Efetov, *Rev. Mod. Phys.* **79** 469 (2007).
18. T. Hu and B. I. Shklovskii, *Phys. Rev. B* **74**, 054205 (2006).
19. T. Hu and B. I. Shklovskii, *Phys. Rev. B* **74**, 174201 (2006).
20. I. L. Aleiner, B. L. Altshuler, and M. E. Gershenson, *Waves in Random Media* **9**, 201 (1999).
21. L. Piraux, F. Abreu Araujo, T. N. Bui et al., *Phys. Rev. B* **92**, 085428 (2015).
22. B. L. Altshuler, A. G. Aronov, and D. E. Khmel'nitsky, *J. Phys. C: Sol. St. Phys.* **15**, 7367 (1982).
23. S. Lara-Avila, A. Tzalenchuk, S. Kubatkin et al., *Phys. Rev. Lett.* **107**, 166602 (2011).
24. A. M. R. Baker, J. A. Alexander-Webber, T. Altbauer et al., *Phys. Rev. B* **86**, 235441 (2012).
25. F. V. Tikhonenko, D. W. Horsell, R. V. Gorbachev, and A. K. Savchenko, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 056802 (2008).
26. D.-K. Ki, D. Jeong, J.-H. Choi et al., *Phys. Rev. B* **78**, 125409 (2008).
27. R. Tarkiainen, M. Ahlskog, A. Zyuzin et al., *Phys. Rev. B* **69** 033402 (2004).
28. F. V. Tikhonenko, A. A. Kozikov, A. K. Savchenko, and R. V. Gorbachev, *Phys. Rev. Lett.* **103** 226801 (2009).
29. R. Xu, A. Husmann, T. F. Rosenbaum et al., *Nature* **390** 57 (1997).
30. A. Husmann, J. B. Betts, G. S. Boebinger et al., *Nature* **417**, 421 (2002).
31. M. M. Parish and P. B. Littlewood, *Nature* **426**, 162 (2003).
32. M. M. Parish and P. B. Littlewood, *Phys. Rev. B* **72**, 094417 (2005).
33. V. Guttal and D. Stroud, *Phys. Rev. B* **71**, 201304 (2005).

ЭКРАНИРОВАННОЕ И ВАН-ДЕР-ВААЛЬСОВСКОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ В ПЫЛЕВОЙ ПЛАЗМЕ И ЭЛЕКТРОЛИТАХ

А. В. Филиппов ^{a,b*}

^a ГНЦ РФ Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований
108840, Троицк, Москва, Россия

^b Объединенный институт высоких температур Российской академии наук
125412, Москва, Россия

Поступила в редакцию 1 сентября 2023 г.,
после переработки 20 сентября 2023 г.
Принята к публикации 20 сентября 2023 г.

Рассмотрено экранированное электростатическое взаимодействие и взаимодействие Ван-дер-Ваальса нано- и микроразмерных частиц в пылевой плазме. Электростатическое взаимодействие рассмотрено на основе линеаризованного уравнения Пуассона–Больцмана для частиц как с фиксированными зарядами, равномерно распределенным по их поверхностям, так и с фиксированными электрическими потенциалами поверхности. Найденное решение задачи позволяет исследовать взаимодействие как частиц сравнимого радиуса, так и частиц сильно отличающихся размеров. В силе взаимодействия учтена осмотическая составляющая, которая в случае постоянных зарядов приводит к восстановлению равенства сил, действующих на первую и вторую частицы. Для взаимодействия Ван-дер-Ваальса учтено экранирование статических флуктуаций и запаздывание электромагнитных полей для дисперсионной части взаимодействия. На основе анализа различных выражений для геометрического фактора с учетом запаздывания электромагнитного поля предложена численно устойчивая методика расчета этого фактора. Рассчитана полная энергия взаимодействия двух заряженных пылевых частиц при характерных для пылевой плазмы параметрах плазмы: концентрации электронов и ионов от 10^8 до 10^{12} см⁻³, радиусе частиц от 10 нм до 1 мкм и зарядах частиц от 10 до 10^3 элементарных зарядов на микрон радиуса частиц.

DOI: 10.31857/S0044451024020135

1. ВВЕДЕНИЕ

Силы взаимодействия между заряженными поверхностями, коллоидными частицами, ионами и органическими молекулами, растворенными в водном электролите, играют важную роль в коллоидной физике [1], биофизике [2], в процессах электро- и фото-катализа [3], в геохимии окружающей среды [4]. Эти силы определяют стабильность коллоидных систем, динамические свойства и явления типа самосборки в них [5–7], адсорбцию ионов на поверхностях [8], адгезию частиц на границе жидкость–твердое тело [9] и многие другие свойства.

Исследования сил взаимодействия на малых расстояниях важны также в физике пылевой плазмы [10–22]. Особенно важную роль эти силы играют в процессе коагуляции частиц [23, 24]. Ее изучение имеет важное значение также для развития ряда приложений, например, индустрии производства наночастиц [25–29] и формирования из них тонких защитных пленок или пленок с уникальными физическими и химическими свойствами [30–33], при точном выделении ван-дер-ваальсовского взаимодействия на малых расстояниях [34–38], при изучении адгезии заряженных частиц [39], моделировании процесса удаления мелких пылевых частиц из воздуха с использованием различных типов газового разряда [40] и т. д.

Для описания взаимодействия микро- и наночастиц в настоящее время в основном используются приближенные подходы (см., например, обзор [41]), в которых силы электростатического и ван-дер-ваальсовского взаимодействия вычисляются

* E-mail: fav@triniti.ru

на основе приближения Дерягина [42]. Электростатическое экранированное взаимодействие при этом описывается теорией Дерягина–Ландау–Фервея–Овербика (ДЛФО) [43]. В ряде работ электростатическое взаимодействие рассматривалось более точно на основе решения линеаризованного уравнения Пуассона–Больцмана [44–53], в других развиты весьма точные методы расчета силы ван-дер-ваальсовского взаимодействия (см., например, [54]). Ниже представлено точное решение задачи электростатического взаимодействия между наночастицами на основе линеаризованного уравнения Пуассона–Больцмана, которое дополнено описанием методики расчета силы взаимодействия Ван дер Ваальса. На основе развитых подходов рассчитана полная энергия взаимодействия нано- и микрочастиц. В настоящей работе не рассматриваются силы взаимодействия, связанные с конечным размером молекул электролита, современное описание которых можно найти в работах [55–57].

Настоящая работа является продолжением работ [58, 59], в которых особое внимание было уделено случаю постоянных потенциалов поверхности частиц и их взаимодействию в электролитах при достаточно высоких концентрациях ионов и, соответственно, высоких значениях постоянной экранирования. В настоящей работе будет проведено тестирование разработанных методов вычисления силы взаимодействия с учетом экранирования плазмой путем сравнения с решением задачи о взаимодействии в вакууме [60–64]. Особое внимание будет уделено взаимодействию частиц в пылевой плазме.

2. ЭКРАНИРОВАННОЕ ЭЛЕКТРОСТАТИЧЕСКОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ

Геометрия задачи о взаимодействии частиц в плазме с учетом эффектов экранирования приведена на рис. 1. Как и в работах [46–49], электростатическое взаимодействие в электролите будем рассматривать в рамках линеаризованной модели Пуассона–Больцмана [65]:

$$\Delta\phi = k_D^2\phi, \tag{1}$$

где ϕ — самосогласованный потенциал электрического поля, k_D — дебаевская постоянная экранирования:

$$k_D^2 = \frac{4\pi e^2}{\varepsilon} \left(\frac{n_e}{T_e} + \frac{n_i z_i^2}{T_i} \right), \tag{2}$$

e — заряд протона, ε — статическая диэлектрическая проницаемость среды, n_e — концентрация элект-

тронов или отрицательных ионов, n_i, z_i — концентрация и зарядовое число положительных ионов, соответственно, T_e, T_i — температура электронов или отрицательных ионов и положительных ионов в энергетических единицах.

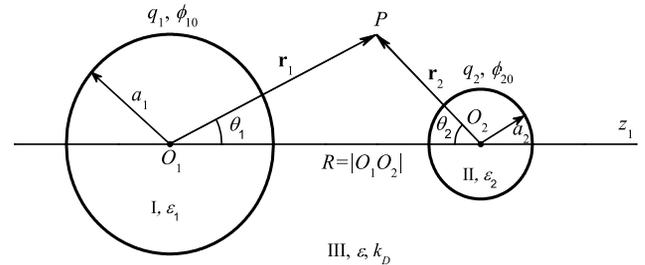


Рис. 1. Геометрия задачи о взаимодействии частиц в плазме с учетом эффектов экранирования. Здесь $q_i, \phi_{i0}, a_i, \varepsilon_i$ — заряд, потенциал поверхности, радиус и диэлектрическая проницаемость i -й частицы, соответственно, $i = 1, 2$, r_i — радиус-вектор точки наблюдения P , проведенный из центра i -й частицы O_i , θ_i — зенитный угол в сферической системе координат с полюсом в центре i -й частицы и осью, направленной к центру другой частицы, R — межчастичное расстояние, ε — диэлектрическая проницаемость электролита, k_D — обратная длина экранирования (постоянная экранирования) плазмы (электролита)

Общее решение уравнения Гельмгольца (1) для потенциала системы зарядов, связанных с k -й частицей в сферической системе координат с полюсом в центре этой частицы определяется выражением (см., например, [66]):

$$\phi_k = \sum_{n=0}^{\infty} A_{k,n} k_n(k_D r_k) P_n(\cos\theta_k), \tag{3}$$

где $A_{k,n}$ — коэффициенты разложения, k_n — модифицированные сферические функции Бесселя 3-го рода:

$$k_n(x) = \sqrt{\frac{\pi}{2x}} K_{n+1/2}(x), \tag{4}$$

$K_{n+1/2}$ — модифицированные функции Бесселя 3-го рода (функции Макдональда) [67]. Для нахождения коэффициентов $A_{k,n}$ из граничных условий нужно найти коэффициенты переразложения потенциала i -й частицы, записанного через полиномы Лежандра с полюсом в центре этой частицы, по полиномам Лежандра с полюсом в центре другой k -й макроча-

стицы, для чего воспользуемся формулой сложения [44, 68]:

$$k_n(\tilde{r}_i) P_n(\cos \theta_i) = \sum_{m=0}^{\infty} (2m+1) L_{nm}(\tilde{R}) i_m(\tilde{r}_k) P_m(\cos \theta_k), \quad (5)$$

где $\tilde{r}_i = k_D r_i$, $\tilde{r}_k = k_D r_k$, $\tilde{R} = k_D R$, R — расстояние между центрами макрочастиц, $i = 1, 2$, $k = 3 - i$, $i_n(x)$ — модифицированные сферические функции Бесселя 1-го рода:

$$i_n(x) = \sqrt{\frac{\pi}{2x}} I_{n+1/2}(x), \quad (6)$$

$I_{n+1/2}$ — модифицированные функции Бесселя 1-го рода (функции Инфельда) [67], зависящие от R коэффициенты L_{mn} определены суммой

$$L_{nm}(\tilde{R}) = \sum_{\ell=0}^{\min\{n,m\}} k_{n+m-2\ell}(\tilde{R}) G_{nm}^{\ell}, \quad (7)$$

$$G_{nm}^{\ell} = \frac{(n+m-\ell)!(n+m-2\ell+1/2)}{\ell!(n-\ell)!(m-\ell)!} \times \frac{1}{\pi} \frac{\Gamma(n-\ell+1/2)\Gamma(m-\ell+1/2)\Gamma(\ell+1/2)}{\Gamma(m+n-\ell+3/2)}, \quad (8)$$

где $\Gamma(x)$ — гамма-функция:

$$\Gamma(n+1/2) = \sqrt{\pi} \frac{(2n-1)!!}{2^n}, \quad (9)$$

$(2n-1)!! = 1 \cdot 3 \cdot \dots \cdot (2n-1)$. В выражении (7) и ниже с тильдой отмечены приведенные к дебаевскому радиусу величины: $\tilde{R} = k_D R$. Отметим, что $G_{nm}^{\ell} = G_{mn}^{\ell}$ и, следовательно, $L_{nm} = L_{mn}$. (По поводу вычисления коэффициентов G_{nm}^{ℓ} см. Приложение А.

Окончательно, для потенциала i -й частицы получим выражение через полиномы Лежандра с полюсом в центре k -й макрочастицы ($i = 1, 2$, $k = 3 - i$):

$$\phi_i(\tilde{r}_k, \theta_k) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} A_{i,m} b_{nm}(\tilde{r}_k, \tilde{R}) P_n(\cos \theta_k), \quad (10)$$

где коэффициенты b_{nm} определяются выражением:

$$b_{nm}(\tilde{r}_k, \tilde{R}) = (2n+1) i_n(\tilde{r}_k) L_{mn}(\tilde{R}). \quad (11)$$

В работах [46–49] коэффициенты b_{nm} определялись в виде двойных сумм от произведений модифицированных функций Бесселя 1-го и 3-го родов,

а выражение (11) содержит только однократное суммирование при вычислении L_{mn} . Численные расчеты показали, что коэффициенты b_{nm} , вычисленные по (11) и формулам, приведенным в [46–49], совпадают в пределах ошибок вычислений с двойной точностью на компьютере.

В плазме или электролите в зависимости от параметров плазмы и частиц конденсированной дисперсной фазы может реализоваться либо режим постоянства потенциалов поверхности макрочастиц, либо режим постоянства их зарядов (подробное обсуждение данного вопроса для электролитов см. в работе [49]). Для макрочастиц радиусом 1 мкм и более и при достаточно высокой концентрации плазмы $n_i > 10^9$ см⁻³ при изменении межчастичного расстояния с тепловой скоростью макрочастиц оказывается постоянным потенциал их поверхности $\phi_{i,0}$, который совпадает с плавающим потенциалом плазмы. Для наночастиц радиусом около 100 нм и меньше и при достаточно низкой концентрации плазмы $n_i < 10^9$ см⁻³ реализуется режим постоянных зарядов. Поэтому в настоящей работе рассмотрим оба режима сближения нано или макрочастиц.

2.1. Режим постоянных зарядов

Граничные условия у поверхности частиц в этом случае имеют вид [69, 70]

$$\begin{aligned} \phi_I|_{r_1=a_1} &= (\phi_1 + \phi_2)|_{r_1=a_1}, \\ \phi_{II}|_{r_2=a_2} &= (\phi_1 + \phi_2)|_{r_2=a_2}, \end{aligned} \quad (12)$$

$$\begin{aligned} \varepsilon_1 \frac{\partial \phi_I}{\partial r_1} \Big|_{r_1=a_1-0} - \varepsilon \frac{\partial (\phi_1 + \phi_2)}{\partial r_1} \Big|_{r_1=a_1+0} &= 4\pi\sigma_1, \\ \varepsilon_2 \frac{\partial \phi_{II}}{\partial r_2} \Big|_{r_2=a_2-0} - \varepsilon \frac{\partial (\phi_1 + \phi_2)}{\partial r_2} \Big|_{r_2=a_2+0} &= 4\pi\sigma_2, \end{aligned} \quad (13)$$

где ϕ_I , ϕ_{II} — потенциалы электрического поля внутри 1-й и 2-й частиц, соответственно, ε_1 , ε_2 — их диэлектрические проницаемости, σ_1 и σ_2 — распределения плотности заряда по их поверхностям.

Общее решение уравнения Лапласа внутри однородного диэлектрика с учетом требования конечности потенциала внутри наночастиц можно записать в виде [69, 70]

$$\begin{aligned} \phi_I(r_1, \theta_1) &= \sum_{n=0}^{\infty} C_n P_n(\cos \theta_1) \tilde{r}_1^n, \\ \phi_{II}(r_2, \theta_2) &= \sum_{n=0}^{\infty} D_n P_n(\cos \theta_2) \tilde{r}_2^n, \end{aligned} \quad (14)$$

где C_n , D_n — коэффициенты разложения.

Используя выражения (10) и (14), из граничных условий (12) и (13) для коэффициентов разложения потенциалов ϕ_1 и ϕ_2 получим систему уравнений ($n = 0, 1, \dots$)

$$\begin{aligned} \alpha_{1,n} A_{1,n} + \sum_{m=0}^{\infty} \beta_{1,nm} A_{2,m} &= \frac{4\pi}{k_D} \sigma_{1,n}, \\ \alpha_{2,n} A_{2,n} + \sum_{m=0}^{\infty} \beta_{2,nm} A_{1,m} &= \frac{4\pi}{k_D} \sigma_{2,n}, \end{aligned} \quad (15)$$

где коэффициенты $\alpha_{i,n}$ и $\beta_{i,nm}$, $i = 1, 2$, определены соотношениями

$$\begin{aligned} \alpha_{i,n} &= \varepsilon k_{n+1}(\tilde{a}_i) + \frac{n(\varepsilon_i - \varepsilon)}{\tilde{a}_i} k_n(\tilde{a}_i), \\ \beta_{i,nm} &= \frac{n\varepsilon_i}{\tilde{a}_i} b_{nm}(\tilde{a}_i, \tilde{R}) - \varepsilon \frac{\partial b_{nm}(\tilde{a}_i, \tilde{R})}{\partial \tilde{a}_i}, \end{aligned} \quad (16)$$

$\sigma_{i,n}$ — коэффициенты разложения плотности поверхностного заряда по полиномам Лежандра:

$$\sigma_{i,n} = \frac{2n+1}{2} \int_{-1}^1 P_n(\mu_i) \sigma_i(\mu_i) d\mu_i. \quad (17)$$

Здесь учтено, что в настоящей работе мы рассматриваем распределение поверхностного заряда, аксиально-симметричное относительно оси z . В случае равномерного распределения свободных зарядов будет отличным от нуля только член с $n = 0$:

$$\sigma_{i,0} = \frac{q_i}{4\pi a_i^2}, \quad i = 1, 2. \quad (18)$$

Перепишем систему (15), исключив из первого уравнения коэффициенты $A_{2,m}$ с помощью второго уравнения. В итоге получим

$$\begin{aligned} A_{1,n} - \sum_{k=0}^{\infty} A_{1,k} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{\beta_{1,nm} \beta_{2,mk}}{\alpha_{1,n} \alpha_{2,m}} &= \frac{\sigma_{1,n}}{\alpha_{1,n}} - \\ - \sum_{m=0}^{\infty} \frac{\beta_{1,nm}}{\alpha_{1,n} \alpha_{2,m}} \sigma_{2,m}, \quad n &= 0, 1, \dots \end{aligned} \quad (19)$$

Система уравнений (19) позволяет определить коэффициенты разложения потенциала первой частицы и, используя второе уравнение системы (15), определить коэффициенты разложения потенциала второй частицы.

Из (7), (11) и (16) видно, что величины $\beta_{i,nm}$ являются суммой, каждый член которой содержит сферическую функцию Макдональда, а именно $k_{n+m-2\ell}(\tilde{R})$, $\ell = 0, 1, \dots, \max\{n, m\}$, поэтому

имеют общий множитель $\exp(-\tilde{R})$. Следовательно, произведение $\beta_{1,nm} \beta_{2,mk}$ включает общий множитель $\exp(-2\tilde{R})$. Теперь, пренебрегая членами, содержащими $\exp(-2\tilde{R})$ и более высокие степени, из (19) и аналогичного уравнения для 2-й частицы в случае равномерной зарядки частиц можно найти

$$A_{i,n} \approx \frac{4\pi}{k_D \alpha_{i,n}} \sigma_{i,n} \delta_{n,0} - \frac{4\pi}{k_D} \frac{\beta_{i,n0}}{\alpha_{i,n} \alpha_{3-i,0}} \sigma_{3-i,0}. \quad (20)$$

Из (11) при $m = 0$ имеем

$$b_{n0}(\tilde{r}_k, \tilde{R}) = (2n+1) i_n(\tilde{r}_k) k_n(\tilde{R}). \quad (21)$$

Теперь, используя определения (16), получаем (см. [71])

$$\begin{aligned} A_{i,n} &\approx \frac{4\pi \sigma_{i,0}}{\varepsilon k_D k_1(\tilde{a}_i)} \delta_{n,0} - \\ - \frac{4\pi \sigma_{3-i,0}}{\varepsilon k_D k_1(\tilde{a}_{3-i})} (2n+1) k_n(\tilde{R}) M_n(\tilde{a}_i, \varepsilon, \varepsilon_i), \end{aligned} \quad (22)$$

где M_n — функции, определенные соотношением (см. [71])

$$M_n(\tilde{a}_i, \varepsilon, \varepsilon_i) = \frac{n(\varepsilon_i - \varepsilon) i_n(\tilde{a}_i) - \varepsilon \tilde{a}_i i_{n+1}(\tilde{a}_i)}{\varepsilon \tilde{a}_i k_{n+1}(\tilde{a}_i) + n(\varepsilon_i - \varepsilon) k_n(\tilde{a}_i)}. \quad (23)$$

При $a_2 = 0$ это решение переходит в решение задачи о взаимодействии точечного заряда с диэлектрическим шаром в плазме (см. [71]). С ростом номера n значение функций i_n растут, а k_n — падают, а значение произведения $i_n(x) k_n(x)$ убывает очень медленно. О скорости убывания можно судить по соотношению [67]

$$k_n(x) i_{n+1}(x) + k_{n+1}(x) i_n(x) = \frac{\pi}{2x^2}. \quad (24)$$

Поэтому вычисление коэффициентов $A_{i,n}$ с приемлемой точностью требует учета большого числа членов. Ниже приближенное решение (22) будет использовано для определения числа учитываемых членов разложения потенциалов.

2.2. Режим постоянных потенциалов поверхности

В случае, когда характерное время зарядки частиц значительно превышает характерное время изменения расстояния между ними, реализуется режим постоянных потенциалов поверхности, которые определяются плавающим потенциалом плазмы. Отметим, что в случае проводящих частиц потенциал поверхности также является постоянным в

том смысле, что не зависит от угловых переменных, но при постоянном заряде меняется при изменении межчастичного расстояния. В режиме постоянных, не зависящих от межчастичного расстояния потенциалов поверхности частиц $\phi_{i,0}$, $i = 1, 2$, решение рассматриваемой здесь задачи заметно упрощается и для нахождения коэффициентов разложения из условия непрерывности потенциала на границе раздела диэлектрических сред [69] получим систему уравнений ($n = 0, 1, \dots$):

$$\begin{aligned} k_n(\tilde{a}_1) A_{1,n} + \sum_{m=0}^{\infty} b_{nm}(\tilde{a}_1, \tilde{R}) A_{2,m} &= \phi_{1,0} \delta_{n0}, \\ k_n(\tilde{a}_2) A_{2,n} + \sum_{m=0}^{\infty} b_{nm}(\tilde{a}_2, \tilde{R}) A_{1,m} &= \phi_{2,0} \delta_{n0}. \end{aligned} \quad (25)$$

Исключив $A_{2,n}$ из первого уровня с помощью второго, после перемены порядка суммирования получим

$$\begin{aligned} A_{1,n} - \sum_{k=0}^{\infty} A_{1,k} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{b_{nm}(\tilde{a}_1, \tilde{R}) b_{mk}(\tilde{a}_2, \tilde{R})}{k_n(\tilde{a}_1) k_m(\tilde{a}_2)} &= \\ = \phi_{1,0} \frac{\delta_{n0}}{k_n(\tilde{a}_1)} - \phi_{2,0} \frac{(2n+1) i_n(\tilde{a}_1) k_n(\tilde{R})}{k_0(\tilde{a}_2) k_n(\tilde{a}_1)}. \end{aligned} \quad (26)$$

Если пренебречь членами, содержащими $\exp(-2\tilde{R})$ и более высокие степени, то из (26) находим

$$\begin{aligned} A_{i,n} &\approx \frac{\phi_{i,0}}{k_0(\tilde{a}_i)} \delta_{n0} - \\ &- (2n+1) \frac{i_n(\tilde{a}_i) k_n(\tilde{R})}{k_n(\tilde{a}_i) k_0(\tilde{a}_{3-i})} \phi_{3-i,0}. \end{aligned} \quad (27)$$

Заряды частиц в режиме постоянных потенциалов становятся функциями межчастичного расстояния. Из граничного условия непрерывности электрической индукции (13) для определения зарядов получим выражения

$$\begin{aligned} q_i &= \varepsilon a_i \tilde{a}_i \left[k_1(\tilde{a}_i) A_{i,0} - \right. \\ &\left. - i_1(\tilde{a}_i) \sum_{m=0}^{\infty} k_m(\tilde{R}) A_{3-i,m} \right], \quad i = 1, 2. \end{aligned} \quad (28)$$

После простых преобразований с использованием (25) и соотношения (24), из (28) следует

$$\begin{aligned} q_i &= \frac{\varepsilon a_i}{\sinh(\tilde{a}_i)} \left\{ \frac{\pi}{2} A_{i,0} - \right. \\ &\left. - [\tilde{a}_i \cosh(\tilde{a}_i) - \sinh(\tilde{a}_i)] \phi_{i,0} \right\}. \end{aligned} \quad (29)$$

Из (28) можно получить и другое выражение для определения заряда:

$$q_i = q_{i,\infty} - \varepsilon a_i e^{\tilde{a}_i} \sum_{m=0}^{\infty} k_m(\tilde{R}) A_{3-i,m}, \quad (30)$$

которое явно содержит связь заряда с потенциалом уединенной частицы:

$$q_{i,\infty} = \varepsilon a_i \phi_{i,0} (1 + \tilde{a}_i), \quad (31)$$

так как для частиц, удаленных друг от друга на большое расстояние, $R \rightarrow \infty$, их влияние друг на друга пренебрежимо мало. В этом случае из (27) следует

$$A_{i,0}^{\infty} = \frac{\phi_{i,0}}{k_0(\tilde{a}_i)} = \frac{2}{\pi} \phi_{i,0} \tilde{a}_i e^{\tilde{a}_i}, \quad i = 1, 2. \quad (32)$$

Соотношение (31) можно получить и из сравнения выражений (27) и (32), которые при $R \rightarrow \infty$ должны совпадать.

2.3. Определение силы взаимодействия

В работах [46, 47] для нахождения силы использовался максвеллов тензор натяжений

$$T_{\mathbf{n},i} = \frac{\varepsilon}{4\pi} \left(E_n \mathbf{E} - \frac{1}{2} \mathbf{n} E^2 \right) \Big|_{r=a_i}, \quad (33)$$

где $\mathbf{E} = -\nabla\phi$, \mathbf{n} — вектор внешней нормали к поверхности i -й частицы, $E_n = \mathbf{E} \cdot \mathbf{n}$. В результате интегрирования по углам для z -составляющей силы, действующей на i -ую частицу, было получено выражение

$$\begin{aligned} F_{i,z} &= \varepsilon \sum_{n=1}^{\infty} \frac{n}{(2n-1)(2n+1)} \left[\Xi_{i,n-1} - \right. \\ &\left. - (n-1) \Psi_{i,n-1} \right] \left[\Xi_{i,n} + (n+1) \Psi_{i,n} \right], \end{aligned} \quad (34)$$

где

$$\begin{aligned} \Xi_{i,n} &= A_{i,n} [n k_n(\tilde{a}_i) - \tilde{a}_i k_{n+1}(\tilde{a}_i)] + \\ &+ \sum_{m=0}^{\infty} A_{3-i,m} \tilde{a}_i \frac{\partial b_{nm}(\tilde{a}_i, \tilde{R})}{\partial \tilde{a}_i}, \end{aligned} \quad (35)$$

$$\Psi_{i,n} = A_{i,n} k_n(\tilde{a}_i) + \sum_{m=0}^{\infty} A_{3-i,m} b_{nm}(\tilde{a}_i, \tilde{R}). \quad (36)$$

Отметим, что согласно рис. 1, ось z для второй частицы направлена влево.

В работах [72, 73] было предложено выражение для определения плотности поверхностных сил, связанных с осмотическим давлением на поверхности

частиц, которое в работе [74] было преобразовано в обычный максвелловский тензор натяжения:

$$T_{i,\alpha\beta}^o = -\frac{\varepsilon}{4\pi} k_D^2 \phi^2|_{r=a_i} \delta_{\alpha\beta}, \quad (37)$$

где $\alpha, \beta = x, y, z$. Для рассматриваемой в настоящей работе задачи существенна только z -компонента максвелловского тензора натяжения:

$$T_{i,rz}^o = -\frac{\varepsilon}{4\pi} k_D^2 \phi^2|_{r=a_i} \cos \theta. \quad (38)$$

Таким образом, для осмотической составляющей силы находим

$$\begin{aligned} F_{i,z}^o &= \int_S T_{i,rz}^o dS_i = -\frac{\varepsilon}{2} a_i^2 k_D^2 \int_0^\pi \phi^2|_{r=a_i} \cos \theta \sin \theta d\theta = \\ &= -\varepsilon \tilde{a}_i^2 \sum_{n=1}^\infty \frac{n \Psi_{i,n-1} \Psi_{i,n}}{(2n-1)(2n+1)}, \end{aligned} \quad (39)$$

где величина $\Psi_{i,n}$ определена выражением (36).

2.3.1. Постоянные заряды частиц

В случае постоянных зарядов частиц осмотическая составляющая силы отлична от нуля, поэтому складывая $F_{i,z}$ и $F_{i,z}^o$, для полной силы взаимодействия из (34) и (39) получим

$$\begin{aligned} F_{i,z}^t &= \varepsilon \sum_{n=1}^\infty \frac{n}{(2n-1)(2n+1)} \left\{ [\Xi_{i,n-1} - \right. \\ &\quad \left. - (n-1) \Psi_{i,n-1}] [\Xi_{i,n} + (n+1) \Psi_{i,n}] - \right. \\ &\quad \left. - \tilde{a}_1^2 \Psi_{i,n-1} \Psi_{i,n} \right\}. \end{aligned} \quad (40)$$

Исключим производную $\partial b_{nm} / \partial \tilde{a}_i$ в выражении (35) для $\Xi_{i,n}$ с помощью уравнений (15) и после несложных преобразований находим

$$\Xi_{i,n} = -\frac{4\pi a_i}{\varepsilon} \sigma_{i,n} + \frac{n\varepsilon_i}{\varepsilon} \Psi_{i,n}. \quad (41)$$

В итоге из (40) получим

$$\begin{aligned} F_{1,z}^t &= -\frac{q_1}{a_1} \frac{\varepsilon_1 + 2\varepsilon}{3\varepsilon} \Psi_1 + \\ &+ \sum_{n=1}^\infty \frac{(n-1)(\varepsilon_1 - \varepsilon) [n\varepsilon_1 + \varepsilon(n+1)] - \varepsilon^2 \tilde{a}_1^2}{\varepsilon(2n-1)(2n+1)} \times \\ &\quad \times n \Psi_{n-1} \Psi_n. \end{aligned} \quad (42)$$

Далее получим выражение для силы взаимодействия при $k_D R \gg 1$, пренебрегая членами, содержащими $\exp(-2\tilde{R})$ и более высокие степени. Используя (20) или (22), из (34) находим

Используя (20) или (22), из (34) находим

$$\begin{aligned} F_{1,z} &= -\frac{q_1 q_2}{\varepsilon R^2} \frac{1 + \tilde{R}}{(1 + \tilde{a}_1)(1 + \tilde{a}_2)} e^{-k_D L} \times \\ &\quad \times \left(1 + \frac{\varepsilon}{\varepsilon_1 + 2\varepsilon} \frac{\tilde{a}_1^2}{1 + \tilde{a}_1} \right)^{-1}. \end{aligned} \quad (43)$$

Из этого выражения видно неравенство сил: $F_{1,z} \neq F_{2,z}$, на что обращалось внимание в работах [46, 47]. При этом для осмотической составляющей силы (39) с той же точностью находим

$$\begin{aligned} F_{1,z}^o &= -\frac{q_1 q_2}{R^2} e^{-k_D L} \frac{(1 + \tilde{R})}{(1 + \tilde{a}_1)(1 + \tilde{a}_2)} \times \\ &\quad \times \frac{\tilde{a}_1^2}{(\varepsilon_1 + 2\varepsilon)(1 + \tilde{a}_1) + \varepsilon \tilde{a}_1^2}. \end{aligned} \quad (44)$$

Суммируя (43) и (44), для полной силы находим симметричное относительно перестановки частиц, хорошо известное выражение в приближении Дрягина [43]:

$$F_z^D = -\frac{q_1 q_2}{\varepsilon R^2} \frac{1 + \tilde{R}}{(1 + \tilde{a}_1)(1 + \tilde{a}_2)} e^{-k_D L}. \quad (45)$$

Это выражение можно получить и напрямую из (42).

2.3.2. Постоянные потенциалы поверхности частиц

В случае постоянных потенциалов поверхности частиц, используя выражение (25), из (36) находим

$$\Psi_{i,0} = \phi_{i,0}, \quad \Psi_{i,n} = 0, \quad n \geq 1. \quad (46)$$

В этом случае осмотическая составляющая силы исчезает и для определения силы в случае постоянных потенциалов поверхности частиц из выражения (34) следует

$$F_{i,z} = \varepsilon \sum_{n=1}^\infty \frac{n \Xi_{i,n-1} \Xi_{i,n}}{(2n-1)(2n+1)}. \quad (47)$$

Для величины Ξ_n , используя свойства модифицированных сферических функций Бесселя [67] и первое уравнение системы (25), можно получить

$$\Xi_n = \tilde{a}_1 \frac{i_{n+1}(\tilde{a}_1)}{i_n(\tilde{a}_1)} \phi_{10} \delta_{n0} - \frac{\pi}{2\tilde{a}_1 i_n(\tilde{a}_1)} A_{1,n}. \quad (48)$$

В итоге, выражение для силы (47) принимает вид

$$F_{i,z} = -\varepsilon \frac{\pi}{6} \frac{A_{1,1}}{i_0(\tilde{a}_1)} \phi_{1,0} + \varepsilon \left(\frac{\pi}{2\tilde{a}_1} \right)^2 \times \sum_{n=1}^{\infty} \frac{n}{(2n-1)(2n+1)} \frac{A_{1,n-1}A_{1,n}}{i_{n-1}(\tilde{a}_1)i_n(\tilde{a}_1)}. \quad (49)$$

На больших расстояниях при выполнении условия $k_D R \gg 1$, пренебрегая членами, содержащими $\exp(-2\tilde{R})$ и более высокие степени, используя (27), из (49) находим хорошо известное выражение для силы в приближении Дерягина [43]:

$$F_{DLVO} = -\varepsilon \phi_{1,0} \phi_{2,0} \frac{\pi}{2} \frac{k_1(\tilde{R})}{k_0(\tilde{a}_1)k_0(\tilde{a}_2)} \equiv -\varepsilon \phi_{1,0} \phi_{2,0} \frac{a_1 a_2}{R^2} (1 + k_D R) e^{-k_D L}, \quad (50)$$

где $L = R - a_1 - a_2$.

На рис. 2 проводится сравнение силы взаимодействия двух частиц одного (*a*) и разных радиусов (*b*) при различных плотностях плазмы от $n_e = n_i = 10^8$ до 10^{12} см⁻³ с силой взаимодействия в вакууме ($\varepsilon = 1$). Видно, что при малой плотности плазмы на малых расстояниях эффекты экранирования пренебрежимо малы и сила электростатического взаимодействия в плазме практически не отличается от силы электростатического взаимодействия в вакууме. По мере увеличения плотности плазмы эффект экранирования возрастает и проявляется уже на малых расстояниях между поверхностями частиц.

2.4. Потенциал электростатического взаимодействия частиц

После интегрирования (50) и (45) получим хорошо известные выражения для электростатического потенциала в приближении Дерягина [43]:

$$U_D = \varepsilon \phi_{1,0} \phi_{2,0} \frac{a_1 a_2}{R} e^{-\tilde{L}} = \frac{q_1 q_2}{\varepsilon R} \frac{e^{-k_D L}}{(1 + \tilde{a}_1)(1 + \tilde{a}_2)}. \quad (51)$$

Переход от одной формулы к другой легко осуществляется с помощью соотношения (31).

В работе [72] на основе термодинамических соображений было предложено выражение для свободной энергии или потенциала взаимодействия частиц:

$$U(R) + U_{\infty} = \int_{S_1 + S_2} \left[Q_s(\phi_s, r_s) - \frac{1}{2} \phi_s \sigma_s(\phi_s, r_s) \right] dS, \quad (52)$$

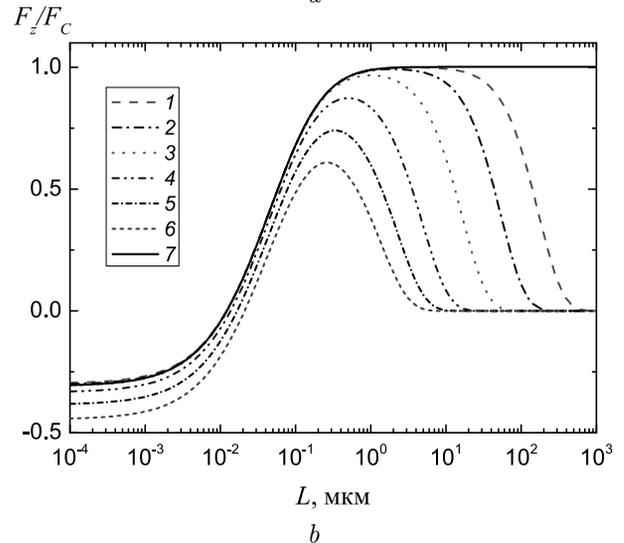
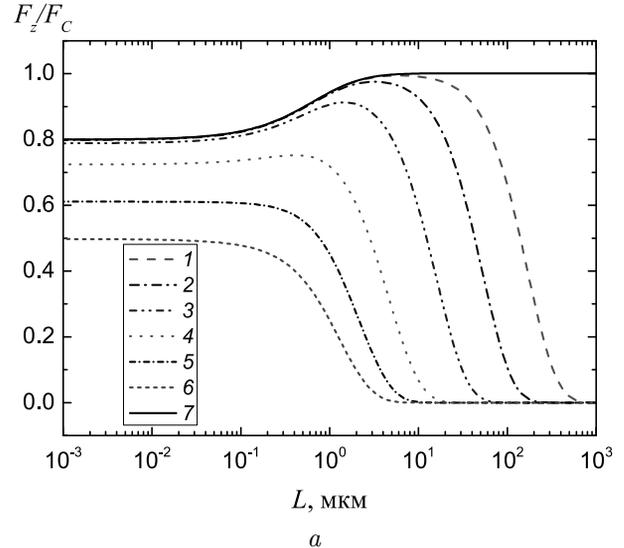


Рис. 2. Зависимости приведенной к кулоновской $F_C = q_1 q_2 / R^2$ силы взаимодействия F_z двух частиц при $T_e = T_i = 300$ К, $a_1 = a_2 = 1$ мкм, $q_1 = q_2 = 100e$ (*a*) и $a_1 = 1$ мкм, $a_2 = 100$ нм, $q_1 = 100e$, $q_2 = 10e$ (*b*) при разных концентрациях электронов и ионов в плазме (в скобках указан дебаевский радиус $R_D = 1/k_D$ в мкм): 1 — $n_e = 10^8$ (84.6), 2 — 10^9 (26.7), 3 — 10^{10} (8.46), 4 — 10^{11} (2.67), 5 — $4 \cdot 10^{11}$ (1.34), 6 — 10^{12} см⁻³ (0.85), 7 — в вакууме

где ϕ_s — потенциал поверхности частиц, в общем случае зависящий от угловых переменных сферической системы координат с полюсом в центре частицы: $\phi_s = \phi_s(\theta, \varphi)$, r_s — радиальная координата поверхности частиц, σ_s — плотность поверхностного заряда: $\sigma_s = \sigma_s(\theta, \varphi)$, U_{∞} — обеспечивает обнуление потенциала взаимодействия при R_{∞} , Q_s — функци-

ональный интеграл:

$$Q_s(\phi_s, r_s) = \int^{\phi_s} d\phi'_s \sigma_s(\phi'_s, r_s). \quad (53)$$

Интегрирование в (52) ведется по поверхности первой S_1 и второй частиц S_2 .

2.4.1. Постоянные заряды частиц

В случае равномерной и фиксированной плотности свободного поверхностного заряда интегрирование (53) дает $Q_s = \phi_s \sigma_s$ и из (52) следует

$$U(R) = \frac{1}{2} \left[2\pi a_1^2 \sigma_1 \int_{-1}^1 (\phi_1 + \phi_2)|_{r=a_1} d\mu_1 + 2\pi a_2^2 \sigma_2 \int_{-1}^1 (\phi_1 + \phi_2)|_{r=a_2} d\mu_2 \right] - U_\infty. \quad (54)$$

Отсюда, используя выражения (3) и (10), выраженные в соответствующей каждой из частиц системе координат, получим:

$$U_\sigma(R) = \frac{1}{2} [q_1(\phi_{1,s} - \phi_{1,\infty}) + q_2(\phi_{2,s} - \phi_{2,\infty})], \quad (55)$$

где $\phi_{i,s}$ — усредненный по угловым переменным потенциал поверхности i -й частицы:

$$\phi_{i,s}(R) = k_0(\tilde{a}_i) A_{i,0} + \sum_{m=0}^{\infty} b_{0m}(\tilde{a}_i, \tilde{R}) A_{3-i,m}, \quad (56)$$

$\phi_{i,\infty}$ — потенциал поверхности частицы при бесконечном удалении друг от друга, который определяется выражением, аналогичным соотношению (31):

$$\phi_{i,\infty} = \frac{q_i}{\varepsilon a_i} \frac{1}{(1 + \tilde{a}_i)}. \quad (57)$$

Отметим, что вычисление потенциала взаимодействия из (55) заметно упрощается при использовании соотношения

$$\phi_{i,s}(R) - \phi_{i,\infty} = \frac{A_{i,0} - A_{i,0}^\infty}{i_1(\tilde{a}_i)} \frac{\pi}{2\tilde{a}_i^2}, \quad A_{i,0}^\infty = \frac{2}{\pi k_D \varepsilon} \frac{q_i}{(1 + \tilde{a}_i)} e_i^{\tilde{a}_i}. \quad (58)$$

На больших расстояниях разность (58) выходит на асимптотику ДЛФО-потенциала

$$\phi_{1,s}^D(R) - \phi_{1,\infty} = \frac{q_2}{\varepsilon(1 + \tilde{a}_1)(1 + \tilde{a}_2)} R e^{-\tilde{R} + \tilde{a}_1 + \tilde{a}_2}.$$

2.4.2. Постоянные потенциалы поверхности частиц

В случае постоянных потенциалов поверхности из (53) следует, что $Q_s = 0$ и в этом случае для определения потенциала взаимодействия имеем выражение:

$$U_\phi(R) - U_\infty = -\frac{1}{2} \left[\int_{S_1} \phi_{1,0} \sigma_1 dS_1 + \int_{S_2} \phi_{2,0} \sigma_2 dS_2 \right]. \quad (59)$$

Интегрирование (59) приводит к следующему выражению для определения электростатического потенциала взаимодействия в случае постоянных потенциалов поверхности частиц:

$$U_\phi(R) = -\frac{1}{2} \left\{ \phi_{1,0} [q_1(R) - q_{1\infty}] + \phi_{2,0} [q_2(R) - q_{2\infty}] \right\}, \quad (60)$$

где $q_{1,\infty}, q_{2,\infty}$ — заряды частиц при $R = \infty$ [см. выражение (31)].

Численные расчеты показали, что значения потенциала электростатического взаимодействия, определенные из выражений (58) или (60) и найденные путем интегрирования зависимости силы взаимодействия от расстояния между частицами, отличаются не более чем точность решения уравнений (15) или (25) методом LU-разложения [75].

3. ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ВАН-ДЕР-ВААЛЬСА

Теория взаимодействия твердых тел за счет флуктуаций электрического поля начала развиваться с работы [76], в которой путем суммирования ван-дер-ваальсовского парного взаимодействия всех атомов, составляющих тела, было получено выражение для потенциала взаимодействия твердых тел. В работе [77] были найдены потенциалы взаимодействия атома с идеально проводящей стенкой и с другим атомом с учетом запаздывания электромагнитного поля. В работе [78] была построена более точная теория взаимодействия двух бесконечных плоских диэлектриков, разделенных вакуумом, а в работе [79] — разделенных жидкостью. Общая теория ван-дер-ваальсовского взаимодействия изложена во многих работах (см., например, работы [80–82]).

Сегодня, ввиду сложности теории в общем случае, для определения постоянной Гамакера для вза-

имодействия 1-й диэлектрик–жидкость (вакуум)–2-й диэлектрик используется выражение

$$A_{132} = \frac{3\hbar}{4\pi} \int_0^\infty \frac{(\varepsilon_1 - \varepsilon_3)(\varepsilon_2 - \varepsilon_3)}{(\varepsilon_1 + \varepsilon_3)(\varepsilon_2 + \varepsilon_3)} d\xi, \quad (61)$$

полученное в работе [79] и справедливое при пренебрежимо малых расстояниях между диэлектриками. Здесь $\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3$ — диэлектрические проницаемости тел и жидкой (газовой) среды, частотные зависимости которых берутся при мнимой частоте $i\xi$.

Потенциал ван-дер-ваальского взаимодействия в диэлектрической жидкости двух диэлектрических частиц сферической формы без учета эффектов запаздывания методом, близким к использованному в работе [78], был получен в работе [83] для случая $L \ll a_1, a_2$:

$$U_{vdW} = -\frac{2\pi a_1 a_2 L}{(a_1 + a_2)} \frac{A_{131}}{12\pi L^2}, \quad (62)$$

где A_{131} — постоянная Гамакера, определенная соотношением (61). В работе [83] получен и следующий член приближения, который требует расчета аналога постоянной Гамакера по отличной от (61) формуле.

В настоящей работе потенциал взаимодействия Ван-дер-Ваальса определялся согласно работе [54] по формуле

$$U_{vdW} = -\frac{1}{12} (A_0 f_{sh} F_H + A_1 F_g), \quad (63)$$

где A_0 — вклад нулевых колебаний в постоянную Гамакера, который экранируется, но не испытывает эффектов запаздывания, A_1 — дисперсионный вклад в постоянную Гамакера, который запаздывает, но не экранируется, f_{sh} — экранирующий фактор, F_H — геометрический фактор Гамакера, F_g — геометрический фактор с учетом запаздывания флуктуирующего электромагнитного поля. Вклад нулевых колебаний (константа A_0) и дисперсионный вклад (константа A_1) в константу Гамакера вычислялись согласно работам [54, 84]:

$$A_0 = \frac{3}{4} k_B T \left[\frac{\varepsilon_1(0) - \varepsilon_2(0)}{\varepsilon_1(0) + \varepsilon_2(0)} \right]^2, \quad (64)$$

$$A_1 = \frac{3\hbar \sqrt{\omega_1 \omega_2}}{64} \frac{1}{n_m^{7/2}} \times \frac{X^2 n_m^2 + 2X \Delta \epsilon_0 n_m + \Delta \epsilon_0^2 (3 + 2Y)}{(\sqrt{Y - \sqrt{Y^2 - 1}} + \sqrt{Y + \sqrt{Y^2 - 1}})^3}, \quad (65)$$

где \hbar — постоянная Планка, $\varepsilon_1(0)$ и $\varepsilon_2(0)$ — статические диэлектрические проницаемости сред 1 и 2, n_{01} и n_{02} — коэффициенты преломления, ω_1 и ω_2 — частоты поглощения, величины $n_m, \Delta \epsilon_0, X$ и Y определены соотношениями

$$n_m^2 = \frac{1}{2} (n_{01}^2 + n_{02}^2), \quad \Delta \epsilon_0 = n_{01}^2 - n_{02}^2, \quad (66)$$

$$X = \frac{\omega_1}{\omega_2} (n_{01}^2 - 1) - \frac{\omega_2}{\omega_1} (n_{02}^2 - 1),$$

$$Y = \frac{1}{4\sqrt{n_m}} \left[\frac{\omega_1}{\omega_2} (n_{01}^2 + 1) + \frac{\omega_2}{\omega_1} (n_{02}^2 + 1) \right]. \quad (67)$$

Экранирующий фактор в (63) определялся выражением [54]

$$f_{sc} = (1 + 2k_D L) \exp(-2k_D L). \quad (68)$$

Геометрический фактор Гамакера в выражении (63) вычислялся согласно выражению [76]

$$F_H = \left[4a_1 a_2 \left(\frac{1}{D_1} + \frac{1}{D_2} \right) + 2 \ln \frac{D_1}{D_2} \right]. \quad (69)$$

Вычислению геометрического фактора с учетом запаздывания посвящено ряд работ, среди которых остановимся на следующих. Все они базируются на тех или иных аппроксимациях вклада эффектов запаздывания в потенциал взаимодействия атомов, построенные на основе работы [77]. В работе [85] была предложена аппроксимация в виде

$$0 < p \leq 3, \quad f(p) = 1.01 - 0.14p, \\ p \geq 3, \quad f(p) = \frac{2.45}{p} - \frac{2.04}{p^2}, \quad (70)$$

где $p = 2\pi r/\lambda_0$, r — расстояние между атомами. На основе этой аппроксимации в работе [86] были предложены следующие формулы для расчета геометрического фактора с учетом запаздывания:

$$F_{g,s} = 2a_s \left[2a_1 a_2 \left(\frac{1}{D_1} + \frac{1}{D_2} \right) + \ln \frac{D_1}{D_2} \right] + \frac{2b_s}{R} \left[8a_1 a_2 + (D_1 + D_2) \ln \frac{D_1}{D_2} \right], \quad L \leq L_s; \quad (71)$$

$$F_{g,L} = \frac{2a_L}{5R} \left[4a_1 a_2 \left(\frac{z_+^2}{D_1^2} + \frac{z_-^2}{D_2^2} \right) - \frac{2(z_+^2 - a_1 a_2)}{D_1} + \frac{2(z_-^2 + a_1 a_2)}{D_2} + \ln \frac{D_2}{D_1} \right] + \frac{2b_L}{15} \left[\frac{1}{D_2} - \frac{1}{D_1} + \frac{2(z_+^2 - a_1 a_2)}{D_1^2} - \frac{2(z_-^2 + a_1 a_2)}{D_2^2} - 8a_1 a_2 \left(\frac{z_+^2}{D_1^3} + \frac{z_-^2}{D_2^3} \right) \right], \quad L > L_s; \quad (72)$$

где $a_s = 1.01$, $b_s = 0.28\pi/\lambda_0$, $a_L = 2.45\lambda_0/2\pi$, $b_L = 2.04(\lambda_0/2\pi)^2$, $z_{\pm} = a_1 \pm a_2$, величины D_1 и D_2 определены выражениями

$$D_1 = R^2 - z_+^2, \quad D_2 = R^2 - z_-^2. \quad (73)$$

Межчастичное расстояние перехода от формулы (71) к (72) в работе [86] предлагалось определять по формуле

$$L_s = 109 - 107 \lg(\sqrt{a_1 a_2}) + 37.5 [\lg(\sqrt{a_1 a_2})]^2 - 4.5 [\lg(\sqrt{a_1 a_2})]^3 \quad (74)$$

где a_1 , a_2 и L_s выражены в нанометрах. Отметим, что из-за зависимости значения L_s от радиусов наночастиц, при переходе от (71) к (72) может происходить небольшой скачок геометрического фактора (см. ниже).

В работе [87] также использовалась аппроксимация (70) и были получены пять различных формул для геометрического фактора для пяти интервалов расстояний в общем случае частиц разного радиуса. Анализ показал, что для крайних интервалов со стороны малых и больших расстояний полученные формулы совпадают с формулами из работы [86], но формулы для внутренних интервалов содержат ошибки, о чем уже отмечалось в работе [54].

В работе [88] использовалась аппроксимация в виде

$$f(p) = \frac{c}{p+c}, \quad c = \frac{3.1\lambda_0}{2\pi}, \quad (75)$$

и было получено достаточно длинное выражение для геометрического фактора с учетом эффектов запаздывания.

В работе [89] использовалась аппроксимация в виде

$$f(p) = \frac{L_b}{\sqrt{r^2 + L_b^2}}, \quad L_b = \frac{23}{3\pi} \frac{\lambda_0}{2\pi}, \quad (76)$$

и было получено выражение для геометрического фактора с учетом эффектов запаздывания для частиц равного размера. Полученное в [89] выражение можно легко обобщить на более точную аппроксимацию запаздывающего фактора, предложенное в этой же работе:

$$f(p) = \frac{\xi_1 L_{b,1}}{\sqrt{r^2 + L_{b,1}^2}} + \frac{\xi_2 L_{b,2}}{\sqrt{r^2 + L_{b,2}^2}},$$

$$\xi_1 = 0.462, \quad L_{b,1} = 0.485 L_b,$$

$$\xi_2 = 0.538, \quad L_{b,2} = 1.443 L_b. \quad (77)$$

(О ряде других форм аппроксимации запаздывающего фактора см. в [90]). Формула для расчета геометрического фактора, полученная в настоящей работе в рамках модели, предложенной в работе [89], приведена в Приложении В.

На рис. 3 проводится сравнение значений геометрического фактора с учетом запаздывания из работ [86, 88] и посчитанных из выражения (86) с фактором запаздывания (77), предложенным в работе [89]. Из анализа представленных данных можно сделать следующие выводы.

1. При малых значениях радиусов частиц (примерно до 100 нм) все три набора данных приводят к практически совпадающим значениям геометрического фактора до $L < 10^3 - 10^4$ нм, при этом относительная ошибка не превышает 15%.

2. Для частиц с радиусом около 1 мкм видно заметное отличие расчетов согласно работе [86] в окрестности точки перехода L_s от одной формулы (71) к другой (72). Из сравнения кривых 6 и 7 видно, что невозможно обеспечить плавный переход с одной формулы на другую. При этом данные согласно работе [88] и полученные из (86) снова практически совпадают и относительная ошибка снова не превышает 15%.

3. После области перехода все три работы приводят к отличающимся не больше чем на 15% значениям геометрического фактора.

4. При больших значениях $L > 10^3 - 10^4$ нм вычисления геометрического фактора согласно работе [88] и из выражения (86) теряют свою точность и неприемлемы для вычислений. Это же происходит и при вычислениях по формулам из работы [86], но при значениях межчастичного расстояния, больших на порядок. Потеря точности вычислений вызвана тем, что геометрический фактор вычисляется как разность нескольких величин, превосходящих искомое значение на много порядков величин. Это может приводить (и приводит, как видно из рис. 3) к неправильному знаку геометрического фактора даже при вычислениях с числами с двойной точностью. Например, выражение (72) содержит члены, убывающие как R^{-3} , а геометрический фактор на больших расстояниях убывает как R^{-7} (см. ниже).

Отметим, что сам подход, использованный в работах [86–89], в котором суммируется взаимодействие каждого атома одной частицы с каждым атомом другой, не позволяет получить точные значения геометрического фактора с учетом запаздывания и ошибка может достигать 15%, о чем можно судить из сравнения факторов запаздывания для взаимо-

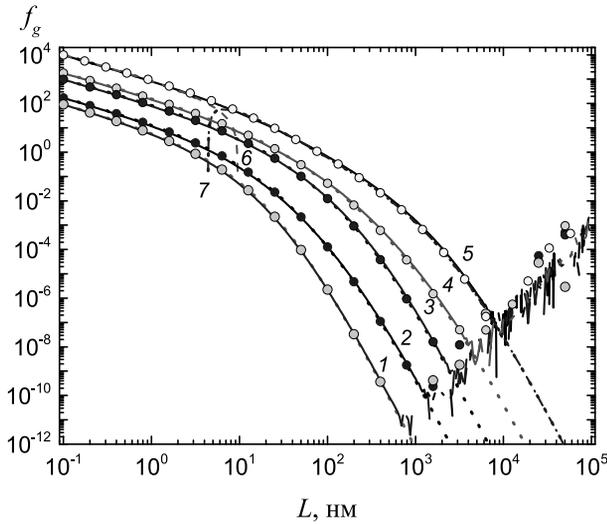


Рис. 3. Зависимости геометрического фактора f_g от L согласно работам [88] (сплошные линии), [86] (точечные линии) и рассчитанных из (86) (черные кружки) при разных размерах частиц: кривая 1 — $a_1 = a_2 = 10$ нм, 2 — $a_1 = 10$ нм, $a_2 = 100$ нм, 3 — $a_1 = a_2 = 100$ нм, 4 — $a_1 = 100$ нм, $a_2 = 1$ мкм, 5 — $a_1 = a_2 = 1$ мкм. Кривая 6 — выражение (71), 7 — (72)

действия атом-атом и атом-плоскость в работе [77] (см. также [85]).

При вычислении геометрического фактора по формуле (72) при выполнении условия $(a_1^2 + a_2^2)/R^2 \ll 1$ возникают отмеченные выше трудности, поэтому представим эту формулу в виде суммы ряда:

$$F_{g,L} = \frac{64a_1^3 a_2^3}{5R^7} \times \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(n+2)(n+3)(2n+5)}{R^{2n}} \left(\frac{a_L}{n+3} - \frac{b_L}{3R} \right) \times \sum_{k=0}^n \frac{(k+1)(n-k+1)(2n+3)!}{(2k+3)!(2n-2k+3)!} a_1^{2k} a_2^{2n-2k}. \quad (78)$$

Из (78) видно, что на больших расстояниях потенциал ван дер Ваальсовского взаимодействия убывает как R^{-7} . Отметим, что при выполнении условия $(a_1^2 + a_2^2)/R^2 \leq 10^{-3}$, первые два члена ряда (78) с $n = 0$ и 1:

$$F_{g,L} \approx \frac{64a_1^3 a_2^3}{3R^7} \left[\left(a_L - \frac{b_L}{R} \right) + \frac{7}{5} \left(3a_L - \frac{4b_L}{R} \right) \left(\frac{a_1^2}{R^2} + \frac{a_2^2}{R^2} \right) \right], \quad (79)$$

обеспечивают относительную точность вычислений на уровне 10^{-6} .

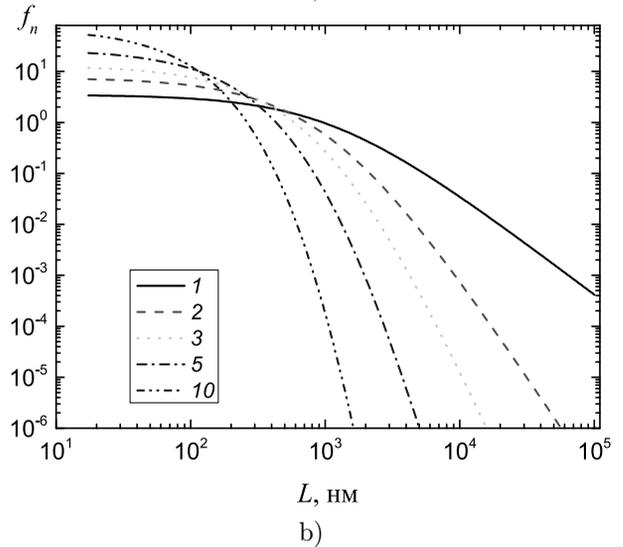
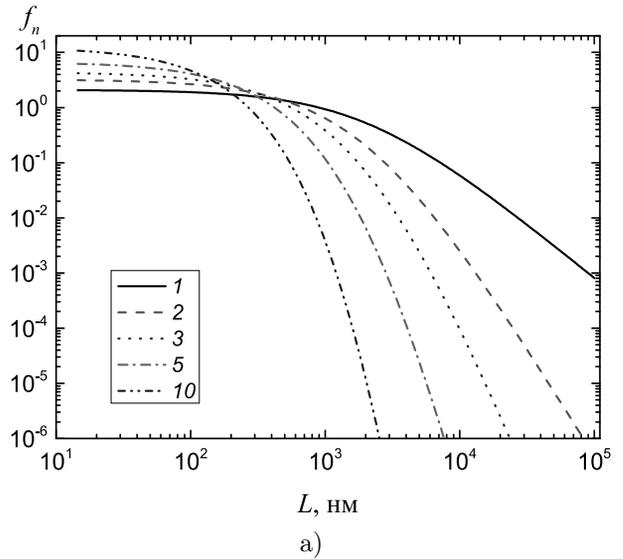


Рис. 4. Отношение слагаемого с номером n к слагаемому с номером $n = 0$ в сумме (78) для $a_1 = a_2 = 1$ мкм (а) и $a_1 = 100$ нм, $a_2 = 1$ мкм (б). Номера кривых соответствуют значению n

На рис. 4 показана зависимость отношения члена ряда (78) с номером n к нулевому члену $n = 0$. Видно, что с ростом межчастичного расстояния члены ряда с высоким номером n быстро убывают.

В свете сказанного в настоящей работе принята следующая процедура вычисления геометрического фактора с учетом запаздывания.

1. При $L \leq L_1 = 3\lambda_0/2\pi$ геометрический фактор с учетом запаздывания вычислялся согласно работе [88].

2. При $L > L_1$ (при этом для любой пары атомов параметр $p > 3$ и справедлива вторая формула

(70)) геометрический фактор с учетом запаздывания вычислялся из выражения (72) с новыми значениями параметров a_L и b_L , определенными из условия непрерывности геометрического фактора и его производной в точке сшиваания $L = L_1$.

3. При $L > L_2$, где

$$L_2 = \frac{\sqrt{a_1^2 + a_2^2}}{\delta} - (a_1 + a_2),$$

геометрический фактор вычислялся по формуле (79). При $L > L_2$ отношение $(a_1^2 + a_2^2)/R^2$ станет меньше δ и отбрасываемый член в ряде (78) будет порядка δ^2 . В настоящей работе задавалось $\delta = 10^{-5}$, чтобы обеспечить хорошую точность и при определении силы взаимодействия.

4. ЧИСЛЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В настоящей работе полагалось, что $\omega_1 \approx \omega_{UV1}$, $\omega_2 \approx \omega_{UV2}$, где ω_{UV1} и ω_{UV2} — границы зон поглощения в ультрафиолетовой области материала наночастиц и жидкости (плазмообразующего газа), в которой наночастицы находятся. В качестве плазмообразующего газа в настоящей работе рассматривается аргон, который широко используется в исследованиях пылевой плазмы [10–22]. Для аргона $\varepsilon_2(0) \approx 1$, $\omega_{UV2} = 1.767 \cdot 10^{16} \text{ с}^{-1}$, $n_{02}^2 = 1.000282$, $\lambda_0 = 106.66 \text{ нм}$ [91]. В основном в настоящей работе будут рассматриваться сферические частицы из полистирола, для которого необходимые данные хорошо известны: при 20°C $\varepsilon_1(0) = 2.557$, $\omega_{UV1} = 1.432 \cdot 10^{16} \text{ с}^{-1}$, $n_{01}^2 = 1.447$ [54]. В экспериментах по исследованию пылевой плазмы и электролитов также используются сферические частицы из полиметилметакрилата (PMMA), для которого при 25°C $\varepsilon_1(0) = 3.6$, $\omega_{UV1} = 6.3 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $n_{01}^2 = 1.492$ и сферические частицы из кварца со свойствами: $\varepsilon_1(0) = 3.81$, $n_{01}^2 = 2.098$, $\omega_{UV1} = 2.033 \cdot 10^{16} \text{ с}^{-1}$.

Система уравнений (19) в случае постоянных зарядов или (26) в случае постоянных потенциалов поверхности частиц решалась численно методом LU-декомпозиции [75]. Учитывалось $n_{\max,1}$ членов разложения потенциала 1-й частицы и $n_{\max,2}$ членов для 2-й частицы, что обеспечивало достижение заданной точности. Необходимое число членов разложения в случае постоянных зарядов определялись

из условия (см. выражения (22) и (23)):

$$(2n + 1) \frac{K_n(\tilde{R})}{k_1(\tilde{a}_{3-i})} M_n(\tilde{a}_i, \varepsilon, \varepsilon_i) \leq \delta$$

при $n \geq n_{\max,i}$, $i = 1, 2$, (80)

а в случае постоянных потенциалов из условий (см. выражение (27))

$$(2n + 1) \frac{i_n(\tilde{a}_i) k_n(\tilde{R})}{k_n(\tilde{a}_i) k_0(\tilde{a}_{3-i})} \leq \delta \text{ for } n \geq n_{\max,i},$$

$i = 1, 2$. (81)

В настоящей работе принято, что $\delta = 10^{-181}$. Процедура вычисления функций Бесселя описана в Приложении С.

На рис. 5 проводится сравнение зависимостей полной энергии взаимодействия $U_t = U_{12} + U_{vdW}$ от расстояния между их поверхностями при разных значениях концентрации электронов и ионов. Видно, что потенциальный барьер является очень высоким и его высота падает с ростом концентрации. На малых расстояниях между частицами преобладает притяжение за счет взаимодействия ван дер Ваальса, при этом электростатическое взаимодействие между одинаковыми частицами с равными зарядами оказывается отталкивательным на всех расстояниях между частицами. В пылевой плазме заряд частиц оказывается примерно на уровне 10^3 зарядов электрона на микрон радиуса частиц [10, 11, 92, 93], поэтому потенциальный барьер в этих условиях будет подавлять коагуляцию частиц одного размера.

На рис. 6 приведены зависимости полной энергии взаимодействия одинаковых частиц при различных значениях их заряда. Хорошо видно, что высота потенциального барьера практически исчезает по мере уменьшения заряда частиц. Как видно из рис. 7, уменьшение радиуса одной из частиц (при пропорциональности заряда радиусу) также приводит к заметному снижению высоты потенциального барьера.

На рис. 8 исследуется вопрос о влиянии отклонения заряда частиц от линейной зависимости от их радиуса. Видно, что при одном и том же значении произведения $q_1 q_2$ нарушение линейной зависимости приводит к появлению электростатического притяжения между частицами, а полное взаимодействие оказывается слабо чувствительным к этому.

На рис. 5–8 зависимости U_{12} от L обозначены штрих-пунктирными линиями.

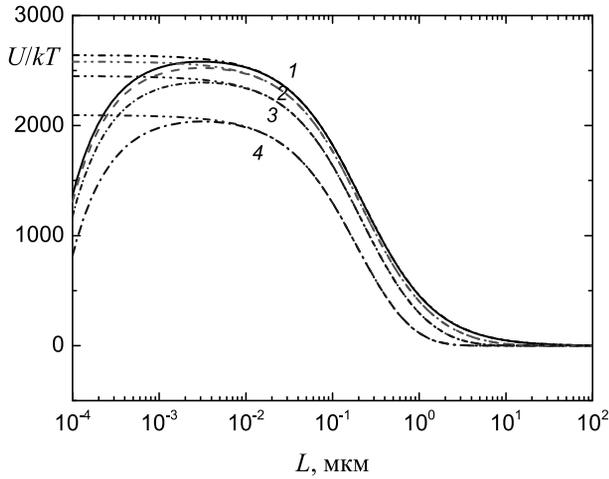


Рис. 5. Полная энергия взаимодействия частиц из полистирола радиусом $a_1 = a_2 = 100$ нм, зарядами $q_1 = q_2 = 100e$ в плазме аргона с разной плотностью заряженных частиц: кривая 1 — $n_e = n_i = 10^8$ см $^{-3}$, 2 — 10^{10} см $^{-3}$, 3 — 10^{11} см $^{-3}$, 4 — 10^{12} см $^{-3}$

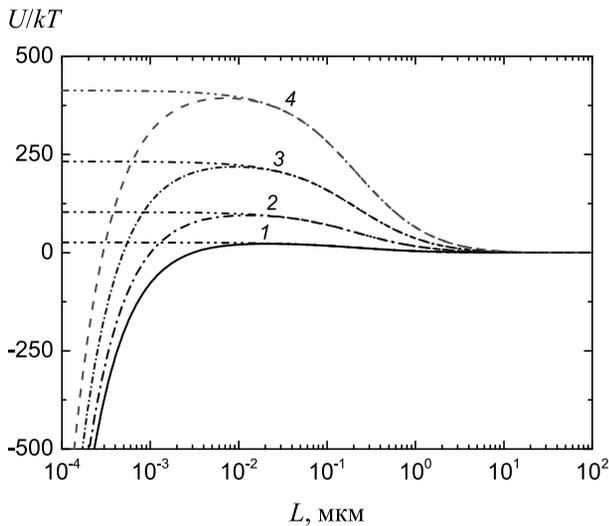


Рис. 6. Полная энергия взаимодействия частиц из полистирола в плазме аргона при $n_e = n_i = 10^{10}$ см $^{-3}$, $a_1 = a_2 = 100$ нм при различных значениях заряда: кривая 1 — $q_1 = q_2 = 10e$, 2 — $q_1 = q_2 = 20e$, 3 — $q_1 = q_2 = 30e$, 4 — $q_1 = q_2 = 40e$

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенное исследование экранированного электростатического взаимодействия и взаимодействия Ван-дер-Ваальса диэлектрических частиц показало, что при характерных для пылевой плазмы зарядах частиц порядка 10^3 зарядов электрона на микрон радиуса частиц суммарный потенциал

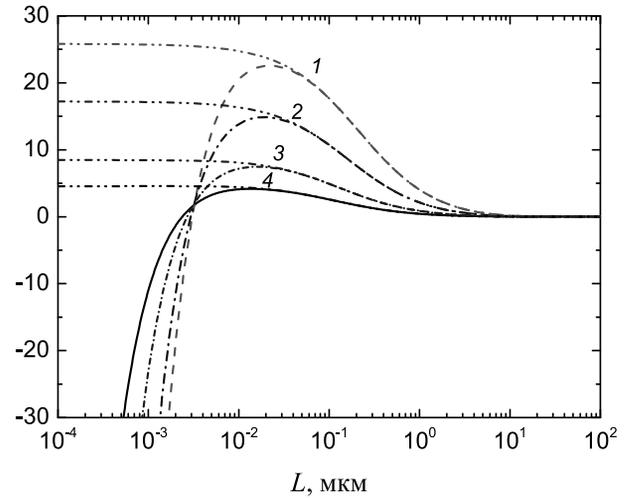


Рис. 7. Полная энергия взаимодействия частиц из полистирола в плазме аргона при $n_e = n_i = 10^{10}$ см $^{-3}$, $a_2 = 100$ нм, $q_2 = 10e$ при различных значениях радиуса и заряда 1-й частицы: кривая 1 — $a_1 = 100$ нм, $q_1 = 10e$, 2 — $a_1 = 50$ нм, $q_1 = 5e$, 3 — $a_1 = 20$ нм, $q_1 = 2e$, 4 — $a_1 = 10$ нм, $q_1 = 1e$

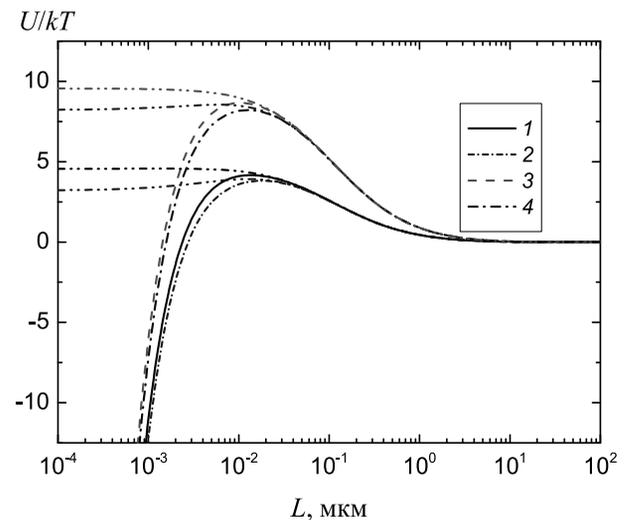


Рис. 8. Полная энергия взаимодействия частиц из полистирола в плазме аргона при $n_e = n_i = 10^{10}$ см $^{-3}$, $a_1 = 10$ нм, $a_2 = 100$ нм, при отклонении от линейной зависимости заряда частиц от их радиуса: кривая 1 — $q_1 = 1e$ нм, $q_2 = 10e$, 2 — $q_1 = 2e$ нм, $q_2 = 5e$, 3 — $q_1 = 1e$ нм, $q_2 = 20e$, 4 — $q_1 = 2e$ нм, $q_2 = 10e$

взаимодействия имеет достаточно высокий барьер, который сильно препятствует сближению и коагуляции частиц сравнимых размеров в пылевой плазме. Уменьшение радиуса одной из частиц в паре приводит к заметному снижению высоты потенциального барьера. Также, нарушение линейной зависимости заряда от радиуса частиц приводит

к некоторому снижению высоты потенциального барьера, что необходимо учитывать при моделировании процессов коагуляции частиц в пылевой плазме. Эти процессы могут оказаться важными при слабых скоростях ионизации газа внешним источником ионизации (например, продуктами процесса радиоактивного распада) и в земной атмосфере, в которой прилипание электронов к молекулам кислорода приводит к заметному снижению их концентрации и к значительному снижению заряда частиц.

Финансирование.

Настоящая работа выполнена при финансовой поддержке РФФ (проект № 22-22-01000).

ПРИЛОЖЕНИЕ А. ВЫЧИСЛЕНИЕ КОЭФФИЦИЕНТОВ G_{nm}^ℓ

Коэффициенты G_{nm}^ℓ можно легко вычислить, используя рекуррентные соотношения:

$$G_{00}^0 = G_{n0}^0 = G_{0m}^0 = 1, \quad n = 1, \infty, m = 1, \infty; \quad (82)$$

$$G_{(n+1)m}^0 = G_{nm}^0 \frac{(n+1/2)(n+m+1)}{(n+1)(n+m+1/2)}, \quad n = 0, \dots, \infty, m = n+1, \infty; \quad (83)$$

$$G_{nm}^{\ell+1} = \frac{(n-\ell)}{(n-\ell-1/2)} \frac{(m-\ell)}{(m-\ell-1/2)} \frac{(\ell+1/2)}{(\ell+1)} \times \frac{(n+m-\ell+1/2)(n+m-2\ell-3/2)}{(n+m-\ell)(n+m-2\ell+1/2)} G_{nm}^\ell, \quad \ell = 1, \dots, \infty, n, m > \ell. \quad (84)$$

Вычисление величин $G_{(n+1)m}^0$ из соотношения (83) сначала проводится для $n = 0$ и $m = 1, 2, \dots$ последовательно, затем для $n = 1$ и $m = 2, 3, \dots$ и т. д., а вычисление $G_{\ell}^{\ell+1}$ из соотношения (84) ведется последовательно для $\ell = 0, 1, \dots$ для всех необходимых значений n и m .

ПРИЛОЖЕНИЕ В. ГЕОМЕТРИЧЕСКИЙ ФАКТОР С ФАКТОРОМ ЗАПАЗДЫВАНИЯ $L_b/\sqrt{L_b^2 + r^2}$

Введем следующие обозначения и функции (аргументы функций a_1 и a_2 не указываем):

$$\begin{aligned} x_1 &= R - a_1 - a_2, \quad x_2 = R + a_1 - a_2, \\ x_3 &= R - a_1 + a_2, \quad x_4 = R + a_1 + a_2; \\ \gamma_i &= \sqrt{L_b^2 + x_i^2}, \quad \zeta_i = L_b + \gamma_i, \quad \tau_i = x_i + \gamma_i, \\ & \quad i = 1, \dots, 4; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} f_{a,1}(R) &= 2a_1^2(a_1 - R) + 2a_2^2(a_2 - R) + R(R^2 - a_1^2 - a_2^2), \\ f_{a,2}(R) &= 4a_1^2 + 4a_2^2 - 3R(a_1 + a_2) - R^2 - 12a_1a_2, \\ f_{b,1}(R) &= 6a_1(3a_1 - 5a_2) + 5x_2(3a_1 - 3a_2 + R), \\ f_{b,2}(R) &= 9(a_1^2 - 5a_2^2 + 5R^2) - 160x_2R, \\ f_{c,1}(R) &= 48x_1x_4 + 29x_1R + 60a_1a_2, \\ f_{c,2}(R) &= 133x_1R - 204x_2x_3 + 36a_1a_2, \\ f_1(R) &= 12a_1^2(23a_1 - 66a_2) + 12a_2^2(54a_1 - 17a_2) + R(17a_1^2 + 337a_2^2 - 426a_1a_2) - R^2(62a_2 + 71R + 222a_1), \\ f_2(R) &= a_1^4(312a_1 - 660a_2 + 275R) - 30a_1^2(a_2 - R)^2(10a_2 + 9R) + 20a_1(a_2 - R)^3(9a_2 + 13R) - (a_2 - R)^4(48a_2 + 77R) + 20a_1^3(21a_2^2 - 22a_2R + R^2). \end{aligned}$$

После суммирования (интегрирования) взаимодействия каждого атома одной частицы с каждым атомом другой для геометрического фактора с фактором запаздывания в форме (76) получим

$$\begin{aligned} f_g(R, L_b) &= \frac{2L_b}{5R} \ln \frac{\tau_2\tau_3}{\tau_1\tau_4} + 2 \ln \frac{x_1\zeta_2}{x_2\zeta_1} + 2 \ln \frac{x_4\zeta_3}{x_3\zeta_4} + \\ &+ \frac{2a_1^3}{15L_bR} \left\{ \frac{\gamma_2}{x_2^4} \left[-2f_{b,1}(R) + \frac{x_2^2}{L_b^2} f_{b,2}(R) \right] + \frac{\gamma_3}{x_3^4} \left[2f_{b,1}(-R) - \frac{x_3^2}{L_b^2} f_{b,2}(-R) \right] \right\} - \\ &- \frac{8a_1^3}{L_b^2R} \left(1 - \frac{3a_1^2}{20L_b^2} - \frac{3R^2 - 3a_2^2}{4L_b^2} \right) \ln \frac{x_2\zeta_3}{x_3\zeta_2} - \\ &- \frac{2}{L_b^2R} \left[f_{a,1}(R) + \frac{3x_1^3}{40L_b^2} f_{a,2}(R) \right] \ln \frac{x_1\zeta_2}{x_2\zeta_1} + \\ &+ \frac{2}{L_b^2R} \left[f_{a,1}(-R) - \frac{3x_4^3}{40L_b^2} f_{a,2}(-R) \right] \ln \frac{x_4\zeta_3}{x_3\zeta_4} + \\ &+ \frac{1}{30L_bR} \left\{ \frac{\gamma_1}{x_1} \left[f_{c,1}(R) + \frac{x_1^2}{2L_b^2} f_{c,2}(R) \right] + \frac{\gamma_4}{x_4} \left[f_{c,1}(-R) + \frac{x_4^2}{2L_b^2} f_{c,2}(-R) \right] \right\} - \\ &- \frac{1}{60L_b^3R} \left[\frac{x_1^2}{x_2^2} \gamma_2 f_1(R) - \frac{x_4^2}{x_3^2} \gamma_3 f_1(-R) \right] + \\ &+ \frac{1}{30L_bR} \left[\frac{\gamma_2}{x_2^4} f_2(R) - \frac{\gamma_3}{x_3^4} f_2(-R) \right]. \quad (85) \end{aligned}$$

Как отмечалось выше, в работе [89] приведено выражение для геометрического фактора с учетом эффектов запаздывания для частиц равного размера (отметим, что в выражении (22) для $g_{a_{i\mu}}$ в этой работе потерян знак минус перед четвертым членом в первом ряду). Расчеты показали, что при равных радиусах выражение (85) дает значения геометрического

фактора, совпадающие с данными расчетов по формулам из работы [89].

С фактором запаздывания в виде (77) геометрический фактор будет определяться выражением

$$f_g(R, L_b) = \xi_1 f_g(R, L_{b,1}) + \xi_2 f_g(R, L_{b,2}). \quad (86)$$

ПРИЛОЖЕНИЕ С. ВЫЧИСЛЕНИЕ МОДИФИЦИРОВАННЫХ СФЕРИЧЕСКИХ ФУНКЦИЙ БЕССЕЛЯ

Модифицированные сферические функции Бесселя при $x = k_D a_i$, $i = 1, 2$, вычислялись с использованием рекуррентных соотношений [67]

$$\begin{aligned} k_{n+1}(x) &= k_{n-1}(x) + \frac{2n+1}{x} k_n(x), \\ i_{n-1}(x) &= i_{n+1}(x) + \frac{2n+1}{x} i_n(x). \end{aligned} \quad (87)$$

На первом шаге по первой формуле (87) вычислялись убывающие с ростом n значения $k_n(x)$ для $n = 1, 2, \dots, n_{\max} + 1$ ($n_{\max} = 1000$), начиная от $k_0(x)$ и $k_1(x)$:

$$\begin{aligned} k_0(x) &= \frac{\pi}{2x} e^{-x}, \\ k_1(x) &= k_0(x) \left(1 + \frac{1}{x} \right). \end{aligned} \quad (88)$$

На втором шаге вычислялось отношение i_{n+1}/i_n для $n = n_{\max}$ на основе непрерывной дроби Гаусса [94]:

$$\frac{i_n(x)}{i_{n-1}(x)} = \frac{x}{2n+1} \frac{1}{1 + \frac{a_1(x)}{1 + \frac{a_2(x)}{1 + \dots}}}, \quad (89)$$

где коэффициенты a_k определены соотношениями:

$$a_k(x) = \frac{x^2}{(2n+2k-1)(2n+2k+1)}, \quad k = 1, 2, \dots \quad (90)$$

Вычисления начинались с $k = 20$, что обеспечивало высокую точность вычисления этого отношения. Затем, используя соотношение (24) и уже вычисленные значения $k_n(x)$ для $n = n_{\max}$ и $n_{\max} + 1$, вычисляем $i_n(x)$ для $n = n_{\max}$ и $n_{\max} + 1$. Окончательно, значения функций $i_n(x)$, убывающих по мере уменьшения n , вычислялись для $n = n_{\max} - 1, \dots, 1$ из второго рекуррентного соотношения (87). Для контроля точности вычислений на последнем шаге вы-

численные значения i_n для $n = 0, 1$ сравнивались с вычисленными из известных соотношений:

$$\begin{aligned} i_0(x) &= \frac{\sinh x}{x}, \\ i_1(x) &= -\frac{\sinh^2 x}{x^2} + \frac{\cosh x}{x}. \end{aligned} \quad (91)$$

Модифицированные сферические функции Бесселя при $x = k_D R$ вычислялись на основе первого рекуррентного соотношения (87) для $n = 0, 1, \dots, n_{\max,2}$.

Здесь также приведем выражения для производных модифицированных сферических функций Бесселя:

$$\begin{aligned} \frac{\partial i_n(z)}{\partial z} &= i_{n+1}(z) + \frac{n}{z} i_n(z), \\ \frac{\partial k_n(x)}{\partial x} &= -k_{n+1}(x) + \frac{n}{x} k_n(x). \end{aligned} \quad (92)$$

ЛИТЕРАТУРА

1. J. N. Israelachvili, *Intermolecular and surface forces*, 3rd ed., Elsevier, Amsterdam (2011), p.191–499.
2. B. Honig and A. Nicholls, *Science* **268**, 1144 (1995).
3. I. Ledezma-Yanez, W. D. Z. Wallace, P. Sebastián-Pascual, V. Climent, J. M. Feliu, and M. T. Koper, *Nat. Energy* **2** (4), 17031 (2017).
4. B. Smit, J. A. Reimer, C. M. Oldenburg, and I. C. Bourg, *Introduction to Carbon Capture and Sequestration*, v.1., World Scientific, Singapore (2014).
5. M. Manciu and E. Ruckenstein, *Langmuir* **17**, 7061 (2001).
6. H. Wennerstrom, E. Vallina Estrada, J. Danielsson, and M. Oliveberg, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **117**, 10113 (2020).
7. S. Su, I. Siretanu, D. van den Ende, B. Mei, G. Mul, and F. Mugele, *Adv. Mater.* **33**, 2106229 (2021).
8. D. F. Parsons, M. Boström, P. L. Nostro, and B. W. Ninham, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13** (27), 12352 (2011).
9. K. Voitchovsky, J. J. Kuna, S. A. Contera, E. Tosatti, and F. Stellacci, *Nat. Nanotechnol.* **5**, 401 (2010).

10. В. Н. Цытович, УФН **167**, 57 (1997).
11. В. Е. Фортов, А. Г. Храпак, С. А. Храпак, В. И. Молотков, О. Ф. Петров, УФН **174**, 495 (2004).
12. В. И. Молотков, О. Ф. Петров, М. Ю. Пустыльник, В. М. Торчинский, В. Е. Фортов, А. Г. Храпак, ТВТ **42**, 821 (2004).
13. S. V. Vladimirov, K. Ostrikov, and A. A. Samarian, *Physics and Applications of Complex Plasmas*, London, Imperial College Press (2005).
14. V. E. Fortov, A. V. Ivlev, S. A. Khrapak, A. G. Khrapak, and G. E. Morfill, Phys. Rep. **421**, 1 (2005).
15. G. E. Morfill and A. V. Ivlev, Rev. Mod. Phys. **81**, 1353 (2009).
16. M. Bonitz, C. Henning, and D. Block, Rep. Prog. Phys. **73**, 066501 (2010).
17. *Комплексная и пылевая плазма: из лаборатории в космос*, под ред. В. Фортова, Г. Морфилла, Наука, Физматлит, Москва (2012).
18. A. Ivlev, H. Lowen, G. Morfill, and C.P. Royall, *Complex Plasmas and Colloidal Dispersions: Particle-Resolved Studies of Classical Liquids and Solids*, Series in Soft Condensed Matter, vol. 5, World Scientific, Singapore (2012).
19. I. Mann, N. Meyer-Vernet, and A. Czechowski, Phys. Rep. **536**, 1 (2014).
20. P. K. Shukla and A. A. Mamun, *Introduction to Dusty Plasma Physics*, CRC Press, Bristol and Philadelphia (2015).
21. А. В. Ивлев, С. А. Храпак, В. И. Молотков, А. Г. Храпак, *Введение в физику пылевой и комплексной плазмы. Учебное пособие*, Издательский дом «Интеллект», Долгопрудный (2017).
22. А. М. Липаев, В. И. Молотков, Д. И. Жуховицкий, В. Н. Наумкин, А. Д. Усачев, А. В. Зобнин, О. Ф. Петров, В. Е. Фортов, ТВТ **58** (4), 485 (2020).
23. I. M. Kennedy and S. J. Harris, J. Colloid. Interface. Sci. **130**, 489 (1989).
24. P. Patra and A. Roy, Phys. Rev. Fluids **7**, 064308 (2022).
25. T. B. Jones and T. B. Jones, *Electromechanics of Particles*, Cambridge University Press, Cambridge (2005).
26. A. Castellanos, Adv. Phys. **54**, 263 (2005).
27. J. Feng, G. Biskos, and A. Schmidt-Ott, Scient. Rep. **5**, 1 (2015).
28. F. Greiner, A. Melzer, B. Tadsen, S. Groth, C. Killer, F. Kirchsclager, F. Wieben, I. Pilch, H. Kruger, D. Block, A. Piel, and S. Wolf, Eur. Phys. J. D **72**, 81 (2018).
29. A. R. Wassel, M. E. El-Naggar, and K. Shoueir, J. Environ. Chem. Eng. **8** 104175, (2020).
30. X. Meng, J. Zhu, and J. Zhang, J. Phys. D **42**, 065201 (2009).
31. V. A. Turek, M. P. Cecchini, J. Paget, A. R. Kucernak, A. A. Kornyshev, and J. B. Edel, ACS Nano **6**, 7789 (2012).
32. P.-P. Fang, S. Chen, H. Deng, M. D. Scanlon, F. Gumy, H. J. Lee, D. Momotenko, V. Amstutz, F. Cortés-Salazar, C. M. Pereira, Z. Yang, and H. H. Girault, ACS Nano **7**, 9241 (2013).
33. J. B. Edel, A. A. Kornyshev, and M. Urbakh, ACS Nano **7**, 9526 (2013).
34. B. Gady, D. Schleef, R. Reifenberger, D. Rimai, and L. P. DeMejo, Phys. Rev. B **53**, 8065 (1996).
35. B. Gady, R. Reifenberger, D. S. Rimai, and L. P. DeMejo, Langmuir **13**, 2533 (1997).
36. Y. Liu, C. Song, G. Lv, N. Chen, H. Zhou, and X. Jing, Appl. Surf. Sci. **433**, 450 (2018).
37. M. C. Stevenson, S. P. Beaudoin, and D. S. Corti, J. Phys. Chem. C **124** 3014 (2020).
38. M.C. Stevenson, S.P. Beaudoin, and D.S. Corti, J. Phys. Chem. C **125** 20003 (2021).
39. H. Zhou, M. Götzinger, and W. Peukert, Powder Technol. **135–136**, 82 (2003).
40. Y. Gao, E. Tian, and J. Mo, ACS ES and Eng. **1**, 1449 (2021).
41. N. M. Kovalchuk, D. Johnson, V. Sobolev, N. Hilal, and V. Starov, Adv. Colloid. Interface. Sci. **272**, 102020 (2019).
42. B. V. Derjaguin, N. V. Churaev, and V. M. Muller, *Surface Forces*, Consultants Bureau, New York (1987).

43. E. J. W. Verwey and J. Th. G. Overbeek, *Theory of the Stability of Lyophobic Colloids*, Elsevier, Amsterdam (1948).
44. A. B. Glendinning and W. B. Russel, *J. Colloid Interface Sci.* **93**, 95 (1983).
45. S. L. Carnie, D. Y. C. Chan, *J. Colloid. Interf. Sci.* **161**, 260 (1993).
46. А. В. Филиппов, И. Н. Дербенев, *ЖЭТФ* **150**, 1262 (2016).
47. I. N. Derbenev, A. V. Filippov, A. J. Stace, and E. Besley, *J. Chem. Phys.* **145**, 084103 (2016).
48. А. В. Филиппов, И. Н. Дербенев, А. А. Паутов, М. М. Родин, *ЖЭТФ*, **152**, 607 (2017).
49. I. N. Derbenev, A. V. Filippov, A. J. Stace, and E. Besley, *Soft Matter* **14**, 5480 (2018).
50. S. V. Siryk, A. Bendandi, A. Diaspro, and W. Rocchia, *J. Chem. Phys.* **155**, 114114 (2021).
51. S. V. Siryk and W. Rocchia, *J. Phys. Chem. B* **126**, 10400 (2022).
52. Y.-K. Yu, *Phys. Rev. E* **102**, 052404 (2020).
53. O. I. Obolensky, T. P. Doerr, and Y.-K. Yu, *Eur. Phys. J. E* **44**, 129 (2021).
54. W. R. Bowen and F. Jenner, *Adv. Colloid Interface Sci.* **56**, 201 (1995).
55. J. I. Kilpatrick, S.-H. Loh, and S. P. Jarvis, *J. Am. Chem. Soc.* **135**, 2628 (2013).
56. S. R. Van Lin, K. K. Grotz, I. Siretanu, N. Schwierz, and F. Mugele, *Langmuir* **35**, 5737 (2019).
57. A. Klaassen, F. Liu, F. Mugele, and I. Siretan, *Langmuir* **38**, 914 (2022).
58. А. В. Филиппов, В. М. Старов, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 604 (2023).
59. A. V. Filippov and V. Starov, *J. Phys. Chem. B* **127**, 6562 (2023).
60. А. В. Филиппов, *ЖЭТФ* **136**, 601 (2009).
61. A. V. Filippov, *Contr. Plasma Phys.* **49**, 433 (2009).
62. В. Р. Муниров, А. В. Филиппов, *ЖЭТФ* **144**, 931 (2013).
63. А. В. Филиппов, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 197 (2022).
64. А. В. Филиппов, *ЖЭТФ* **161**, 691 (2022).
65. P. Debye and E. Hückel, *Phys. Zeitschr.* **24**, 185 (1923).
66. Г. Карслоу, Д. Егер, *Теплопроводность твердых тел*, Наука, Москва (1964) [H. S. Carslaw and J. C. Jaeger, *Conduction of Heat in Solids*, 2nd ed., Clarendon, Oxford (1959); Nauka, Moscow (1964)].
67. Г. Н. Ватсон, *Теория бесселевых функций*, Иностранная литература, Москва (1949), т.1 [G. N. Watson, *A Treatise on the Theory of Bessel Functions*, Cambridge University Press, London (1922)].
68. D. Langbein, *Theory of Van der Waals Attraction*, Springer Tracts in Modern Physics, Vol. 72, ed. by G. Hohler, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York (1974).
69. В. В. Батыгин, И. Н. Топтыгин, *Сборник задач по электродинамике*, Наука, Москва (1970).
70. В. Смайт, *Электростатика и электродинамика*, Издательство иностранной литературы, Москва (1954).
71. В. Р. Муниров, А. В. Филиппов, *ЖЭТФ* **142**, 594 (2012).
72. E. S. Reiner, C. J. Radke, *J. Chem. Soc. Faraday Trans.* **86**, 3901 (1990).
73. M. K. Gilson, M. E. Davis, B. A. Luty, and J. A. McCammon, *J. Phys. Chem.* **97**, 3591 (1993).
74. B. Lu, X. Cheng, T. Hou, and J. A. McCammon, *J. Chem. Phys.* **123**, 084904 (2005).
75. W. H. Press, W. T. Vetterling, S. A. Teukolsky, and B. P. Flannery, *Numerical Recipes Example Book (FORTRAN)*, Cambridge University Press, Cambridge (1992).
76. Н. С. Намакер, *Physica* **4**, 1058 (1937).
77. Н. В. Г. Casimir and D. Polder, *Phys. Rev.* **73**, 360 (1948).
78. Е. М. Лифшиц, *ЖЭТФ* **29**, 94 (1955).
79. И. Е. Дзялошинский, Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *ЖЭТФ* **37**, 229 (1959).

80. Б. В. Дерягин, И. И. Абрикосова, Е. М. Лифшиц, УФН **185**, 981 (2015).
81. Ю. С. Бараш, В. Л. Гинзбург, УФН **143**, 345 (1984).
82. Н. В. Чураев, Успехи химии **73**, 26 (2004).
83. D. J. Mitchell and B. W. Ninham, J. Chem. Phys. **56**, 1117 (1972).
84. R. G. Horn and J. N. Israelachvili, J. Chem. Phys. **75**, 1400 (1981).
85. J. Th. G. Overbeek, in *Colloid Science*, ed. by H. R. Kruyt, Vol. 1, p. 266, Elsevier, Amsterdam (1952).
86. V. Vincent, J. Colloid. Interf. Sci. **42**, 270 (1973).
87. P. Görner and J. Pich, J. Aerosol Sci. **20**, 735 (1989).
88. J. Chen and A. Anandaraajah, J. Colloid. Interf. Sci. **180**, 519 (1996).
89. G. Sh. Boltachev, N. B. Volkov, and K. A. Nagayev, J. Colloid. Interf. Sci. **355**, 417 (2011).
90. S. R. Gomes de Sousa, A. Leonel, and A. J. F. Bombard, Smart Mater. Struct. **29**, 055039 (2020).
91. А. А. Радциг, Б. М. Смирнов, *Справочник по атомной и молекулярной физике*, Атомиздат, Москва (1980).
92. А. В. Филиппов, Н. А. Дятко, А. С. Костенко, ЖЭТФ **146**, 1122–1134 (2014).
93. А. В. Филиппов, В. Н. Бабичев, А. Ф. Паль, А. Н. Старостин, В. Е. Черковец, В. К. Рерих, М. Д. Таран, Физика плазмы **41**, 969 (2015).
94. W. Gautschi and J. Slavik, Math. Comput. **32**, 865 (1978).

НЕУСТОЙЧИВОСТЬ КЕЛЬВИНА – ГЕЛЬМГОЛЬЦА В НЕЛИНЕЙНОЙ ОПТИКЕ

*В. П. Рубан**

*Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау
Российской академии наук
142432, Черногловка, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 16 сентября 2023 г.
после переработки 7 октября 2023 г.
Принята к публикации 8 октября 2023 г.

Рассмотрено параксиальное распространение квазимонохроматической световой волны с двумя круговыми поляризациями в дефокусирующей Керровской среде с аномальной дисперсией внутри волновода кольцевого сечения. В режиме разделения фаз динамика подобна течению несмешивающихся жидкостей. При некоторых начальных условиях с относительным скольжением жидкостей вдоль границы их соприкосновения в системе развивается неустойчивость Кельвина – Гельмгольца в ее «квантовом» варианте. Численное моделирование соответствующих связанных нелинейных уравнений Шредингера показало формирование характерных структур на нелинейной стадии неустойчивости. Подобные структуры известны в теории бинарных бозе-конденсатов, но для оптики они предъявлены впервые.

DOI: 10.31857/S0044451024020147

1. ВВЕДЕНИЕ

Исследование нелинейных волн различной физической природы — это в первую очередь поиск возможных в данной системе когерентных структур. Пожалуй, наиболее известны такие долгоживущие объекты, как солитоны и вихри (см., например, [1–7]). Большой интерес представляют также структуры, образующиеся в результате развития разного рода неустойчивостей. Ярким примером является неустойчивость Кельвина – Гельмгольца (НКГ), имеющая место в жидких системах при наличии тангенциального разрыва в поле скорости. Относительно недавно был обнаружен квантовый аналог этой неустойчивости в сверхтекучем ^3He [8–11]. НКГ также известна для двухкомпонентных ультрахолодных газов (бозе-конденсатов) в режиме пространственного разделения фаз [12–14], где она теоретически изучалась наряду с другими аналогами классических гидродинамических неустойчивостей [15–20]. Пример бозе-конденсатов особенно интересен, поскольку в пределе нулевой температуры та-

кие разреженные системы хорошо описываются довольно простой и универсальной математической моделью — связанными нелинейными уравнениями Шредингера [21–27] (в физике холодных бозе-газов они называются уравнениями Гросса-Питаевского). В бинарном бозе-конденсате, помимо темных солитонов и квантованных вихрей в каждой из двух компонент, возможны еще доменные стенки, обусловленные доминированием перекрестного нелинейного взаимодействия. Доменная стенка обладает эффективным поверхностным натяжением [24, 28, 29], которое существенно участвует в динамике границы раздела на всех стадиях развития неустойчивости.

Как известно, связанные нелинейные уравнения Шредингера (НУШ) возникают при исследовании многих физических систем. В частности, они приближенно описывают распространение квазимонохроматической световой волны с двумя круговыми поляризациями в оптической среде с Керровской нелинейностью [30]. Возможная разница с бозе-конденсатами заключается в гиперболическом типе трехмерного дисперсионного оператора в случае нормальной оптической дисперсии. Но для аномальной дисперсии и дефокусирующей нелинейности уравнения параксиальной оптики математически эквивалентны двум связанным уравнениям Гросса – Питаевского, в которых развивается НКГ.

* E-mail: ruban@itp.ac.ru

Более того, при рассмотрении пространственно двумерных решений, как в работах [12–14], тип дисперсии формально не важен, поскольку отсутствует зависимость от соответствующей третьей координаты (если только не интересоваться динамикой малых трехмерных возмущений).

Надо сказать, что в нелинейной оптике также известны доменные стенки, разделяющие области с правой и левой круговыми поляризациями света [31–40], однако НКГ таких поверхностей раздела при наличии относительного сдвигового течения «световых жидкостей» до сих пор не рассматривалась. Подчеркнем, что речь здесь идет не о той первичной модуляционной неустойчивости пространственно однородных двухкомпонентных систем с доминирующим перекрестным отталкиванием [41–43], которая, собственно, и приводит к разделению фаз через формирование доменных стенок, а речь идет о возможной неустойчивости стационарной геометрической конфигурации уже имеющейся доменной стенки (аналог — неустойчивость темных солитонов в однокомпонентном НУШ [44, 45]). В этом смысле НКГ в системе связанных НУШ можно назвать вторичной. Целью настоящей работы является численная демонстрация развития такой неустойчивости в рамках модели, приближенно соответствующей параксиальному распространению нелинейной оптической волны в достаточно широком волноводе кольцевого сечения.

2. ОПИСАНИЕ МОДЕЛИ

Заметим сразу же, что эволюционной переменной вместо времени t в оптике служит дистанция ζ вдоль оси волновода, а роль третьей «пространственной» координаты играет «запаздывающее» время

$$\tau = t - \zeta/v_{\text{gr}},$$

где v_{gr} — групповая скорость света в среде на заданной несущей частоте ω_0 . При сравнении с бозеконденсатами следует вместо ζ иметь в виду t , а вместо τ подразумевать z . В безразмерных переменных нелинейные уравнения Шредингера для медленных комплексных огибающих $A_{1,2}(x, y, \tau, \zeta)$ левой и правой круговых поляризаций световой волны имеют вид (см. [30–38])

$$i \frac{\partial A_{1,2}}{\partial \zeta} = \left[-\frac{1}{2} \Delta + U(x, y) + |A_{1,2}|^2 + g_{12} |A_{2,1}|^2 \right] A_{1,2}, \quad (1)$$

где

$$\Delta = \partial_x^2 + \partial_y^2 + \partial_\tau^2$$

— трехмерный оператор Лапласа в «координатном» пространстве (x, y, τ) . В случае нормальной дисперсии знак перед ∂_τ^2 меняется на противоположный. Потенциал $U(x, y)$ определяется профилем диэлектрической проницаемости в поперечном сечении волновода. Параметр перекрестной фазовой модуляции g_{12} в типичном случае примерно равен 2, что соответствует режиму разделения фаз.

Напомним, на каких предположениях основана модель (1). Эта система выводится для слабонеоднородной среды, в которой фоновая диэлектрическая проницаемость является функцией частоты $\varepsilon(\omega)$, так что соответствующий закон дисперсии имеет вид

$$k(\omega) = \sqrt{\varepsilon(\omega)} \omega / c.$$

Интересующий нас диапазон аномальной дисперсии групповой скорости (где $k''(\omega) < 0$) находится обычно вблизи низкочастотного края окна прозрачности (в реальных веществах это часто инфракрасная область спектра; см., например, [46–48]). Из уравнений Максвелла следует, что в оптической волне электрическое поле \mathbf{E} и поле электрической индукции \mathbf{D} связаны уравнением

$$\text{rot rot } \mathbf{E} = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2}. \quad (2)$$

Медленные комплексные огибающие \mathbf{E} и \mathbf{D} вводятся заменами

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &\approx \text{Re}[\mathbf{E} \exp(ik_0 \zeta - i\omega_0 t)], \\ \mathbf{D} &\approx \text{Re}[\mathbf{D} \exp(ik_0 \zeta - i\omega_0 t)], \end{aligned}$$

где $k_0 = k(\omega_0)$ — несущее волновое число. Предполагается слабонелинейная материальная зависимость Керровского типа

$$\begin{aligned} \mathbf{D} &\approx \varepsilon(\omega_0 + i\partial_t) \mathbf{E} + \tilde{\varepsilon}(x, y) \mathbf{E} \\ &+ \alpha(\omega_0) |\mathbf{E}|^2 \mathbf{E} + \beta(\omega_0) (\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}) \mathbf{E}^*, \end{aligned} \quad (3)$$

с оператором $\varepsilon(\omega_0 + i\partial_t)$, с пространственной неоднородностью $\tilde{\varepsilon}(x, y)$ и с отрицательными функциями α и β в дефокусирующем случае. Далее производится подстановка в (2), причем малая дивергенция электрического поля не учитывается. Возникающий в ходе преобразований линейный оператор $[k_0 - i\partial_\zeta]^2 - [k(\omega_0 + i\partial_t)]^2$ представляется в виде произведения суммы и разности, после чего разложение по степеням оператора ∂_t приводит к уравнению вида

$$2k_0[-i\partial_\zeta - ik_0' \partial_t + k_0'' \partial_t^2 / 2] \mathbf{E} = s \{ \mathbf{E} \}, \quad (4)$$

с правой частью, которая включает в себя поперечный лапласиан, нелинейность и пространственную

неоднородность. В конце вывода для перехода к скалярным функциям $A_{1,2}$ делается замена

$$\mathbf{E} \approx [(\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y)A_1 + (\mathbf{e}_x - i\mathbf{e}_y)A_2]/\sqrt{2}. \quad (5)$$

Масштабом для поперечных координат выбирается некоторый большой параметр R_0 . Пусть он будет порядка нескольких десятков длин волн, т.е. до одной сотни микрометров. Тогда на ширину доменной стенки с нормалью поперек пучка при интересующих нас интенсивностях волны $I_{1,2} \lesssim 10$ будет приходиться не менее десятка длин волн. Естественным масштабом для переменной τ является комбинация $k_0 R_0 \delta / \omega_0$, где безразмерный параметр

$$\delta = \omega_0 \sqrt{|k_0''|/k_0}$$

характеризует относительную величину дисперсии групповой скорости. С этой комбинацией связано условие $k_0 R_0 \delta \gg 2\pi$, обеспечивающее квазиоднохроматичность волны по переменной τ . Данное требование оказывается достаточно обременительным при малых δ , но мы будем предполагать, что, по крайней мере, $\delta \gtrsim 0.3$, и тогда на ширину доменной стенки с нормалью вдоль пучка придется не менее трех периодов волн. Продольная координата ζ измеряется в единицах $k_0 R_0^2$ (несколько сантиметров), а электрическое поле — в единицах

$$\frac{\sqrt{2\varepsilon(\omega_0)/|\alpha(\omega_0)|}}{k_0 R_0}.$$

Внешний потенциал тогда есть

$$U = -\frac{k_0^2 R_0^2 \tilde{\varepsilon}}{2\varepsilon(\omega_0)}.$$

В результате получаются обезразмеренные уравнения (1), причем

$$g_{12} = 1 + 2\frac{\beta(\omega_0)}{\alpha(\omega_0)}.$$

Для численного моделирования здесь использовался хорошо себя зарекомендовавший метод Фурье с расщепленным шагом по переменной ζ (split-step Fourier method) второго порядка аппроксимации. На предварительном этапе нежелательные жесткие степени свободы были «погашены» диссипативной процедурой «распространения в мнимом времени» (imaginary time propagation). Подробности такого подхода описаны в работах [38–40]. Вычислительная

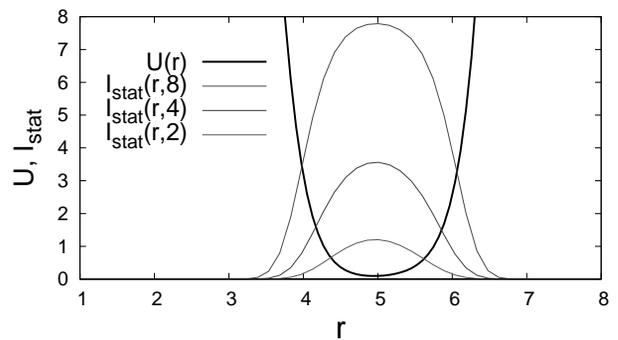


Рис. 1. Удобный для численного моделирования гладкий потенциал $U(r)$, примерно соответствующий волноводу кольцевого сечения с плоским дном и резкими стенками. Также показаны равновесные профили интенсивности волны для значений «химического потенциала» $\mu = 2, 4, 8$

область имела размеры $(6\pi) \times (6\pi) \times T_\tau$, с периодическими граничными условиями, причем период T_τ по переменной τ брался равным 24π либо 48π для разных численных экспериментов.

3. ГЕОМЕТРИЯ ЗАДАЧИ

Обратимся теперь к геометрическим характеристикам модели. В отличие от недавней работы [38], где рассматривались параболические потенциалы

$$U = (x^2 + \kappa^2 y^2)/2,$$

здесь мы сосредоточимся на волноводах кольцевого сечения с «плоским» дном и резкими стенками. Такие волноводы легче изготовить на практике, поскольку среда в них однородна. Но для численного моделирования выбранным методом (при разумном пространственном шаге решетки) годятся только достаточно гладкие потенциалы; поэтому мы будем аппроксимировать соответствующую глубокую прямоугольную яму лишь в качественном смысле, используя следующее выражение (см. соответствующий график на рис. 1):

$$U(r) = 27[2 + \text{th}(1.5(r^2/9 - 5.0)) - \text{th}(2.4(r^2/9 - 1.2))]. \quad (6)$$

Большой общий множитель здесь взят достаточно произвольно, лишь бы только он не требовал слишком мелкого шага по переменной ζ . В результате указанного выбора средний радиус волновода

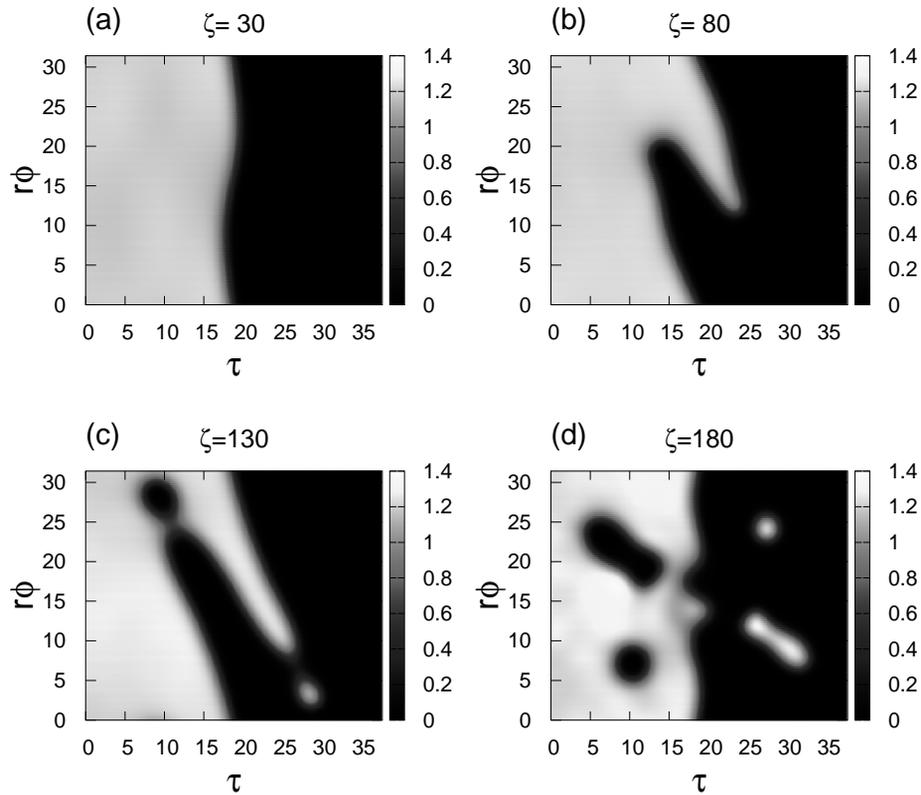


Рис. 2. Пример развития неустойчивости Кельвина–Гельмгольца при $Q = 2$ и небольшом уровне нелинейности $\mu = 2$. Показана интенсивность первой компоненты I_1 на цилиндре радиуса $r = 5$ для нескольких значений переменной ζ

примерно соответствует $r = 5.0$. Это значение будет в дальнейшем использоваться для визуализации волновой картины на «серединой» цилиндрической поверхности в пространстве (x, y, τ) при различных значениях дистанции распространения ζ .

Начальные условия в наших численных экспериментах задавали расположение доменной стенки примерно поперек оси волновода (ее нормаль — примерно вдоль оси). При этом «течения» обеих поляризаций имели азимутальный характер (с координатными множителями $\exp(iQ_{1,2}\phi)$, где ϕ — азимутальный угол, Q_1 и $Q_2 \neq Q_1$ — целые «квантовые» числа). Таким образом, система трехмерна, и потому аномальность дисперсии принципиально важна. Но разница внешнего $r + a/2$ и внутреннего $r - a/2$ радиусов волновода относительно мала (эффективно $a/r \approx 0.2-0.4$ в зависимости от «химического потенциала» волны, как это видно из профилей интенсивности на рис. 1). В такой геометрии система ведет себя примерно как пространственно двумерная (на цилиндре). Это способствует проявлению неустойчивости рассматриваемого типа, а так-

же немаловажно для визуализации численных результатов (см. рис. 2–6).

Надо сказать, что у системы (1) существуют также решения, не зависящие от τ , и там течение происходит в плоскости (x, y) . Нормаль к доменной стенке также лежит в указанной плоскости. С одной стороны, эти решения привлекательны тем, что для таких стационарных в физическом пространстве конфигураций снимается требование аномальности дисперсии. И вполне возможно, что трехмерные возмущения не проявили бы себя на достаточно длинной дистанции распространения. Но, с другой стороны, при конечных поперечных размерах образца возникает необходимость как-то зациклить оба стационарных течения, и тогда может встать проблема появления дополнительных поперечных неустойчивостей, обусловленных взаимодействием с поперечными границами. Существует и третий вариант стационарных течений со сдвигом вдоль границы соприкосновения световых «жидкостей» — когда движение с различными скоростями происходит вдоль оси волновода. Этот вариант описывается множителями

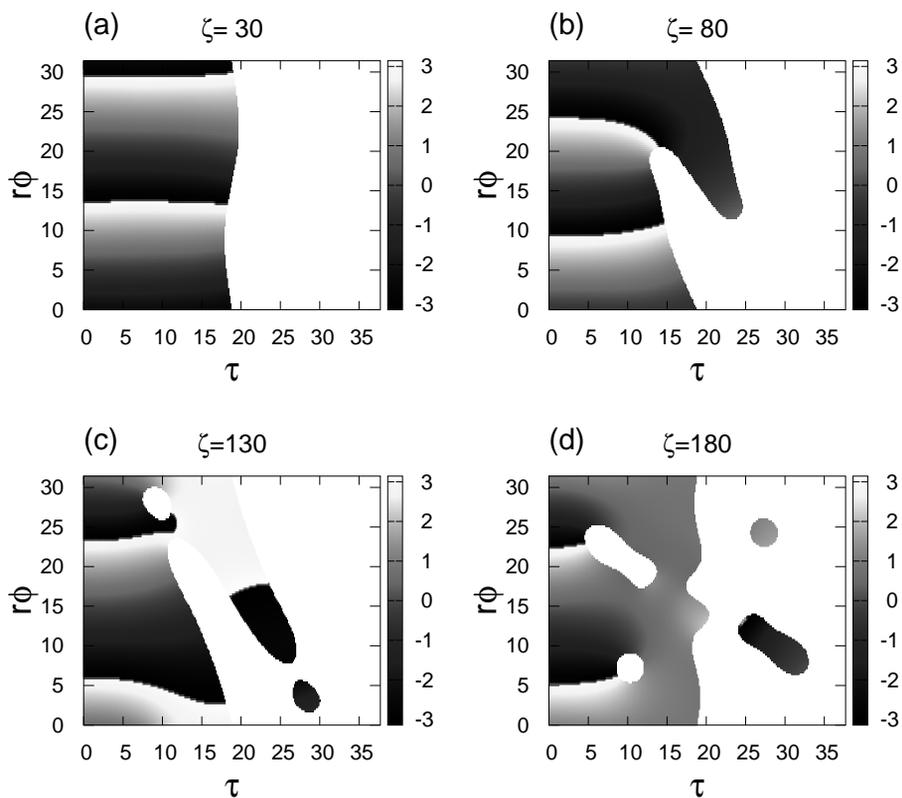


Рис. 3. Фаза Θ_1 первой компоненты на цилиндре радиуса $r = 5$, соответствующая рисунку 2. На каждой панели показана только та часть развертки цилиндра, где $I_1 > 0.4$

$\exp(iv_{1,2}\tau)$ и, таким образом, соответствует некоторой разнице в средней частоте левой и правой поляризации. Для этой конфигурации сечение волновода не обязательно должно быть кольцевым. Первый и третий варианты представляются равно перспективными. В данной работе мы сосредоточимся на азимутальных течениях.

Классическая формула гласит, что инкремент неустойчивости Кельвина–Гельмгольца равен

$$\Gamma(k) = k \sqrt{\frac{v^2}{4} - k \frac{\sigma}{2\rho}},$$

где k — волновое число, σ — коэффициент поверхностного натяжения, ρ — плотность жидкости, одинаковая по обе стороны от границы раздела, v — разница скоростей для невозмущенного течения. Из этой формулы можно извлечь полезную информацию и для нашего случая. Действительно, при достаточно больших значениях «химического потенциала» μ плотность «жидкостей» $\rho = I \approx \mu$, эффективный коэффициент поверхностного натяжения доменной стенки можно оценить как $\sigma \propto \mu^{3/2}$ [28], скорость относительного дви-

жения $v \approx (Q_1 - Q_2)/r$, а основное волновое число $k = 1/r$. В результате имеем оценочную формулу

$$\Gamma \approx \frac{1}{r} \sqrt{\frac{(Q_1 - Q_2)^2}{4r^2} - C \frac{\sqrt{\mu}}{r}}, \quad (7)$$

где C — коэффициент порядка единицы. Применимость этой формулы требует также малости относительной скорости v по сравнению со «скоростью звука» $s \sim \sqrt{\mu}$. При соблюдении данного условия развитие неустойчивости должно происходить по сценарию, определяемому отношением двух слагаемых под знаком корня (подразумевается достаточно большой продольный интервал $T_\tau/2$ между соседними доменными стенками). Из формулы (7), в частности, следует, что при фиксированных r и $(Q_1 - Q_2)$ существенное увеличение интенсивности волны должно приводить к полному подавлению неустойчивости. Такой эффект действительно наблюдался в численных экспериментах. Например, с $Q_1 = -Q_2 = 2$ при $\mu = 8$ и $\mu = 10$ неустойчивость развивалась, тогда как при $\mu = 12$ она уже отсутствовала.

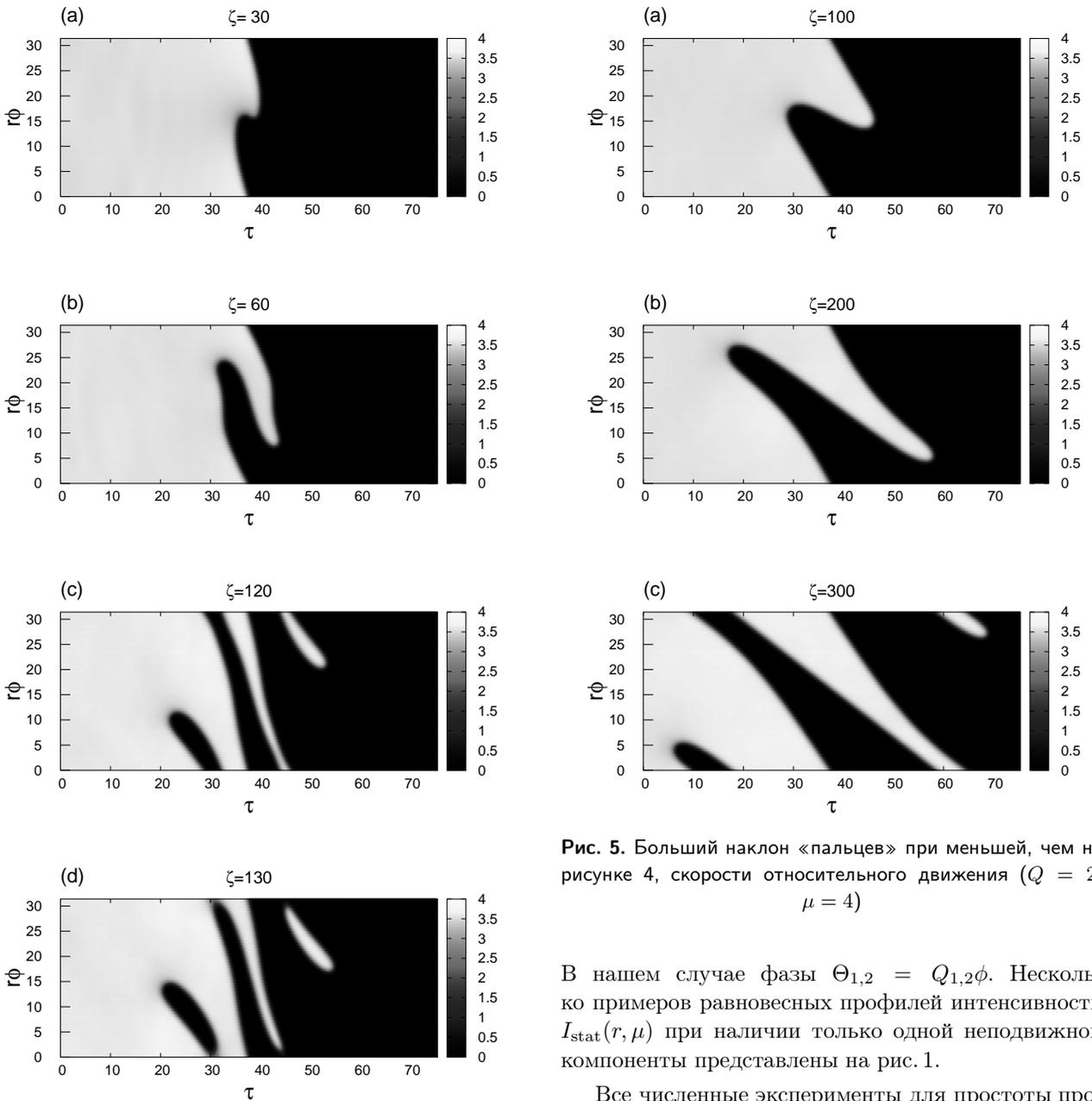


Рис. 4. Формирование длинных «пальцев» на промежуточной стадии неустойчивости при $Q = 3, \mu = 4$.

4. ЧИСЛЕННЫЕ ПРИМЕРЫ

Надо сказать, что каждая стационарная по переменной ζ конфигурация характеризуется двумя «химическими потенциалами», μ_1 и μ_2 . При этом

$$A_{1,2} = \sqrt{I_{1,2}(x, y, \tau)} \exp(i\Theta_{1,2}(x, y, \tau) - i\mu_{1,2}\zeta).$$

Рис. 5. Большой наклон «пальцев» при меньшей, чем на рисунке 4, скорости относительного движения ($Q = 2, \mu = 4$)

В нашем случае фазы $\Theta_{1,2} = Q_{1,2}\phi$. Несколько примеров равновесных профилей интенсивности $I_{\text{stat}}(r, \mu)$ при наличии только одной неподвижной компоненты представлены на рис. 1.

Все численные эксперименты для простоты проводились с симметричными начальными условиями, так что $Q_1 = -Q_2 = Q$, а $\mu_1 = \mu_2 = \mu$. Поэтому на каждой панели из рис. 2-6 представлена только половина развертки цилиндра. В частности, на рис. 2 показано, как при $Q = 2, \mu = 2$ небольшое синусоидальное возмущение границы раздела в результате неустойчивости трансформируется в структуру, по форме напоминающую силуэт человеческого пальца. Затем от кончика «пальца» отделяется капля, внутри которой «сидит» вихрь противоположной компоненты, как это следует из рис. 3, на котором показаны соответствующие распределения фазы. Еще далее в каждой компоненте отделяется

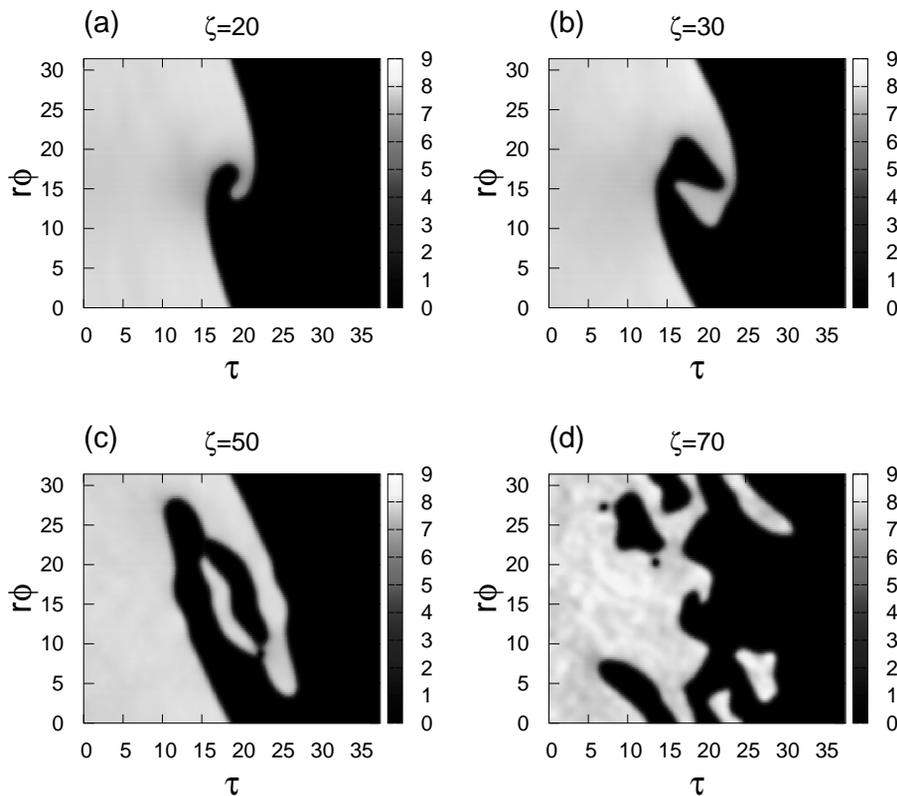


Рис. 6. Пример развития неустойчивости Кельвина–Гельмгольца с образованием спиральной структуры на промежуточной стадии при $Q = 5$, $\mu = 8$

и вторая подобная капля. Рисунок 4 демонстрирует, что «палец» может вытягиваться довольно сильно, прежде чем произойдет его разрыв и отделение капли. Угол наклона таких «пальцев» на цилиндре по отношению к азимутальному направлению тем больше, чем меньше относительная скорость (параметр Q), как это видно из сравнения рис. 5 с рис. 4. Наконец, рис. 6 показывает, что при большой относительной скорости ($Q = 5$) и интенсивности волны ($\mu = 8$) в начале нелинейной стадии неустойчивости граница как бы стремится закрутиться в спиральную структуру, то есть неустойчивость развивается по почти классическому сценарию. Но при достижении пространственного масштаба порядка толщины доменной стенки $w \sim 1/\sqrt{\mu}$ динамика переходит в «квантовый» режим с отделением капель и квантованных вихрей.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в данной работе теоретически обоснована принципиальная возможность наблюдения неустойчивости Кельвина–Гельмгольца в дефокусирующей Керровской оптической среде с ано-

мальной дисперсией групповой скорости. Проведенное трехмерное численное моделирование дало конфигурации, качественно похожие на двумерные структуры, полученные в работах [12–14] для идеализированной модели бинарного бозе-конденсата в безграничном пространстве. Очевидно, что наши трехмерные результаты в равной мере относятся и к бозе-конденсатам, помещенным в цилиндрический удерживающий потенциал с глубоким минимумом на конечном значении радиальной координаты. Но для холодных газов подобные потенциалы пока что остаются малореалистичными, тогда как с точки зрения оптики нет ничего необычного в протяженном по времени пучке света, распространяющемся по волноводу заданного сечения. С практической точки зрения преимущество рассмотренных здесь оптических структур является также их не столь малые пространственные размеры в сравнении с бозе-конденсатами, не говоря уже об отсутствии экстремальных температурных ограничений.

Нами была использована простейшая модель, в которой не учитываются дисперсионные поправки более высоких порядков. В реальности параметр δ

может быть настолько малым, что (при не слишком больших значениях произведения $k_0 R_0$) отклонения от квадратичной дисперсии окажут заметное влияние. Однако, как показали дополнительные численные эксперименты (их результаты здесь не представлены), учет относительно малой дисперсии третьего порядка хоть и несколько искажает картину развития неустойчивости, но в качественном отношении не портит ее на достаточно большой дистанции.

Финансирование. Работа выполнена в рамках госзадания 0029-2021-0003.

ЛИТЕРАТУРА

1. Y. Kivshar and G. P. Agrawal, *Optical Solitons: From Fibers to Photonic Crystals*, 1st ed., Academic Press, California, USA (2003).
2. B. A. Malomed, *Multidimensional Solitons*, AIP Publishing (online), Melville, N. Y. (2022), <https://doi.org/10.1063/9780735425118>
3. F. Baronio, S. Wabnitz, and Yu. Kodama, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 173901 (2016).
4. P. G. Kevrekidis, D. J. Frantzeskakis, and R. Carretero-González, *The Defocusing Nonlinear Schrödinger Equation: From Dark Solitons to Vortices and Vortex Rings*, SIAM, Philadelphia (2015).
5. V. N. Serkin and A. Hasegawa, *JETP Lett.* **72**, 89 (2000).
6. С. К. Турицын, Н. Н. Розанов, И. А. Яруткина, А. Е. Беднякова, С. В. Фёдоров, О. В. Штырина, М. П. Федорук, *УФН* **186**, 713 (2016).
7. Н. А. Веретенков, Н. Н. Розанов, С. В. Федоров, *УФН* **192**, 143 (2022).
8. R. Blaauwgeers, V. Eltsov, G. Eska, A. Finne, R. P. Haley, M. Krusius, J. Ruohio, L. Skrbek, and G. Volovik, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 155301 (2002).
9. G.E. Volovik, *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **75**, 491 (2002) [*JETP Lett.* **75**, 418 (2002)].
10. A. Finne, V. Eltsov, R. Hänninen, N. Kopnin, J. Kopu, M. Krusius, M. Tsubota, and G. Volovik, *Rep. Progr. Phys.* **69**, 3157 (2006).
11. V. Eltsov, A. Gordeev, and M. Krusius, *Phys. Rev. B* **99**, 054104 (2019).
12. H. Takeuchi, N. Suzuki, K. Kasamatsu, H. Saito, and M. Tsubota, *Phys. Rev. B* **81**, 094517 (2010).
13. N. Suzuki, H. Takeuchi, K. Kasamatsu, M. Tsubota, and H. Saito, *Phys. Rev. A* **82**, 063604 (2010).
14. H. Kokubo, K. Kasamatsu, and H. Takeuchi, *Phys. Rev. A* **104**, 023312 (2021).
15. K. Sasaki, N. Suzuki, D. Akamatsu, and H. Saito, *Phys. Rev. A* **80**, 063611 (2009).
16. S. Gautam and D. Angom, *Phys. Rev. A* **81**, 053616 (2010).
17. T. Kadokura, T. Aioi, K. Sasaki, T. Kishimoto, and H. Saito, *Phys. Rev. A* **85**, 013602 (2012).
18. K. Sasaki, N. Suzuki, and H. Saito, *Phys. Rev. A* **83**, 053606 (2011).
19. D. Kobayakov, V. Bychkov, E. Lundh, A. Bezett, and M. Marklund, *Phys. Rev. A* **86**, 023614 (2012).
20. D. K. Maity, K. Mukherjee, S. I. Mistakidis, S. Das, P. G. Kevrekidis, S. Majumder, and P. Schmelcher, *Phys. Rev. A* **102**, 033320 (2020).
21. Tin-Lun Ho and V. B. Shenoy, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3276 (1996).
22. H. Pu and N. P. Bigelow, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1130 (1998).
23. B. P. Anderson, P. C. Haljan, C. E. Wieman, and E. A. Cornell, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2857 (2000).
24. S. Coen and M. Haelterman, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 140401 (2001).
25. G. Modugno, M. Modugno, F. Riboli, G. Roati, and M. Inguscio, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 190404 (2002).
26. E. Timmermans, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5718 (1998).
27. P. Ao and S. T. Chui, *Phys. Rev. A* **58**, 4836 (1998).
28. B. Van Schaeybroeck, *Phys. Rev. A* **78**, 023624 (2008).
29. K. Sasaki, N. Suzuki, and H. Saito, *Phys. Rev. A* **83**, 033602 (2011).
30. А. Л. Берхоер, В. Е. Захаров, *ЖЭТФ* **58**, 903 (1970).
31. M. Haelterman and A. P. Sheppard, *Phys. Rev. E* **49**, 3389 (1994).

32. M. Haelterman and A. P. Sheppard, *Phys. Rev. E* **49**, 4512 (1994).
33. A. P. Sheppard and M. Haelterman, *Opt. Lett.* **19**, 859 (1994).
34. Yu. S. Kivshar and B. Luther-Davies, *Phys. Rep.* **298**, 81 (1998).
35. N. Dror, B. A. Malomed, and J. Zeng, *Phys. Rev. E* **84**, 046602 (2011).
36. A. H. Carlsson, J. N. Malmberg, D. Anderson, M. Lisak, E. A. Ostrovskaya, T. J. Alexander, and Yu. S. Kivshar, *Opt. Lett.* **25**, 660 (2000).
37. A. S. Desyatnikov, L. Torner, and Yu. S. Kivshar, *Progress in Optics* **47**, 291 (2005).
38. В. П. Рубан, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 292 (2023).
39. В. П. Рубан, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 590 (2023).
40. В. П. Рубан, *ЖЭТФ* **164**, 863 (2023).
41. G. P. Agrawal, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 880 (1987).
42. Yu. S. Kivshar and D. E. Pelinovsky, *Phys. Rep.* **331**, 117 (2000).
43. Е. Е. Серебрянников, С. О. Коноров, А. А. Иванов, М. В. Федоров, М. В. Алфимов, А. М. Желтиков, *ЖЭТФ* **129**, 808 (2006).
44. Е. А. Кунецов, С. К. Турицын, *ЖЭТФ* **94**, 119 (1988).
45. В. А. Миронов, А. И. Смирнов, Л. А. Смирнов, *ЖЭТФ* **139**, 55 (2011).
46. X. Liu, B. Zhou, H. Guo, and M. Vache, *Opt. Lett.* **40**, 3798 (2015).
47. X. Liu and M. Vache, *Opt. Lett.* **40**, 4257 (2015).
48. Е. Д. Залозная, А. Е. Дормидонов, В. О. Компанец, С. В. Чекалин, В. П. Кандидов, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 817 (2021).

К СВЕДЕНИЮ АВТОРОВ

В ЖЭТФ публикуются статьи, содержащие изложение оригинальных научных результатов, не опубликованных и не предназначенных к публикации в другом месте. В отдельных случаях по заказу редколлегии публикуются актуальные статьи обзорного характера.

Редакция ЖЭТФ принимает статьи как на русском, так и на английском языках.

Редакция рекомендует направлять статьи в электронном виде по электронной почте или загружать их в режиме «on-line» через сайт журнала <http://jetp.ras.ru/>

Издательство требует от авторов при публикации статьи заключения договора о передаче авторских прав. Заполненные и подписанные договоры (форма договоров отправляется авторам **ВМЕСТЕ С КОРРЕКТУРОЙ**) могут быть представлены лично или по электронной почте в отсканированном виде (PDF файлы).

По всем вопросам можно обращаться в редакцию.

Адрес: 117334, Москва, ул. Косыгина, д. 2, Редакция ЖЭТФ

E-mail: jetp@kapitza.ras.ru Телефон: +7 (499) 137 56 22

Главный редактор *А. И. СМЕРНОВ*

Редколлегия:

д-р физ.-мат. наук С. О. АЛЕКСЕЕВ, канд. физ.-мат. наук Ю. С. БАРАШ,
д-р физ.-мат. наук И. Г. ЗУБАРЕВ,
д-р физ.-мат. наук Е. И. КАЦ (зам. гл. редактора, представительство ЖЭТФ во Франции),
д-р физ.-мат. наук В. П. КРАЙНОВ, д-р физ.-мат. наук А. С. МЕЛЬНИКОВ
д-р физ.-мат. наук М. С. ПШИРКОВ акад. М. В. САДОВСКИЙ,
канд. физ.-мат. наук С. С. СОСИН, член-корр. РАН С. В. ТРОИЦКИЙ (зам. гл. редактора),
д-р физ.-мат. наук А. В. ФИЛИППОВ, член-корр. РАН И. А. ФОМИН (зам. гл. редактора),

Редакционный совет:

член-корр. РАН В. В. ЛЕБЕДЕВ, д-р физ.-мат. наук В. С. ПОПОВ

Зав. редакцией Н. Г. Церевитинова
Редакторы: Л. Б. Кульчицкая, Т. Г. Орехова, Т. Н. Смирнова