



ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
и
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ
ФИЗИКИ



РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

ОСНОВАН В МАРТЕ 1873 ГОДА

ТОМ 166, ВЫПУСК 3 (9)

ВЫХОДИТ 12 РАЗ В ГОД

СЕНТЯБРЬ 2024

МОСКВА

РАН

ЖУРНАЛ ИЗДАЕТСЯ ПОД РУКОВОДСТВОМ ОТДЕЛЕНИЯ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК РАН

СОДЕРЖАНИЕ

АТОМЫ, МОЛЕКУЛЫ, ОПТИКА

- Дифференцирование и интегрирование огибающей фемтосекундного импульса при помощи одномерных фотонных структур с искусственной формой фотонной запрещенной зоны Емельянцеv П. С., Свяховский С. Е. 295
- Двухфотонная конверсия гравитона на связанных атомных состояниях Залялютдинов Т. А., Дубрович В. К., Соловьев Д. А. 306
- Интерференционная поправка к оптическому кондактансу магнитоактивной среды с рассеивающими неоднородностями Городничев Е. Е., Рогозкин Д. Б. 316

ЯДРА, ЧАСТИЦЫ, ПОЛЯ, ГРАВИТАЦИЯ И АСТРОФИЗИКА

- Частотно-временной анализ изменений радоновых выбросов в подземной лаборатории LNGS, измеренных детектором LVD Якушев В. Ф., Агафонова Н. Ю., Ашихмин В. В., Добрынина Е. А., Еникеев Р. И., Филимонова Н. А., Шакирьянова И. Р., от имени Коллаборации LVD 330
- Моделирование зарядовых корреляций адронов в соударениях тяжелых ионов при энергиях NICA Забродин Е. Е., Коротких В. Л., Лохтин И. П., Петрушанко С. В., Снигирев А. М., Чернышов А. С., Эйюбова Г. Х. 340

ТВЕРДЫЕ ТЕЛА И ЖИДКОСТИ

- Точечные дефекты в шпинелях FeMe_2O_4 (Me = Fe, Cr): исследование в рамках метода DFT+U Чичеватов Г. Д., Стегайлов В. В. 347

© Российская академия наук, 2024

© Редакция журнала ЖЭТФ (составитель), 2024

**ПОРЯДОК, БЕСПОРЯДОК И ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ
В КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕДАХ**

Спиновая поляризация электронов в туннельных контактах $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}/\text{MgO}/\text{InSb}$	
Виглин Н. А., Цвелиховская В. М., Шориков А. О., Павлов Т. Н., Проглядо В. В.	374
Происхождение линии ЭПР ($g \approx 4$) в магнитных нанокompозитах — проявление двухквантовых переходов в ферромагнитных гранулах	
Дровосеков А. Б., Дмитриева М. Ю., Ситников А. В., Николаев С. Н., Рыльков В. В.	383

ЭЛЕКТРОННЫЕ СВОЙСТВА ТВЕРДЫХ ТЕЛ

Влияние магнитного поля на проводимость туннельной структуры сверхпроводник–изолятор–нормальный металл	
Ермаков А. Б., Тарасов М. А., Эдельман В. С.	391
Формирование полупроводникового состояния в оксисульфостибнитах RSbS_2O при $R = \text{Dy, Ho, Er}$	
Байдак С. Т., Лукоянов А. В.	403
Особенности τ -приближения для хаотических электронных траекторий на сложных поверхностях Ферми	
Мальцев А. Я.	409

**СТАТИСТИЧЕСКАЯ И НЕЛИНЕЙНАЯ ФИЗИКА,
ФИЗИКА «МЯГКОЙ» МАТЕРИИ**

Ионосферные плазменно-пылевые облака: влияние неустойчивости Рэля–Тейлора	
Резниченко Ю. С., Дубинский А. Ю., Попель С. И.	422
Эволюция излучения плазмы барьерного разряда в неоне низкого давления. Атомный спектр	
Иванов В. А., Скобло Ю. Э.	434

ДИФФЕРЕНЦИРОВАНИЕ И ИНТЕГРИРОВАНИЕ ОГИБАЮЩЕЙ ФЕМТОСЕКУНДНОГО ИМПУЛЬСА ПРИ ПОМОЩИ ОДНОМЕРНЫХ ФОТОННЫХ СТРУКТУР С ИСКУССТВЕННОЙ ФОРМОЙ ФОТОННОЙ ЗАПРЕЩЕННОЙ ЗОНЫ

*П. С. Емельянцева, С. Е. Связовский**

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

Поступила в редакцию 6 июня 2023 г.,
после переработки 5 апреля 2024 г.
Принята к публикации 8 апреля 2024 г.

Теоретически показана возможность создания многослойных диэлектрических структур (фотонных кристаллов), выполняющих интегрирование и дифференцирование первого и высших порядков огибающей фемтосекундного импульса. Эти фотонные кристаллы имеют полностью искусственный профиль фотонной запрещенной зоны, что было достигнуто путем решения обратной задачи вычисления оптического отклика. Продемонстрирована работоспособность данных оптических устройств в спектральном диапазоне шириной более октавы.

DOI: 10.31857/S0044451024090013

1. ВВЕДЕНИЕ

На сегодняшний день значительная доля информации передается при помощи оптических сигналов, поэтому актуальной задачей является создание устройств обработки оптической информации напрямую без преобразования в электронный сигнал. Над аналоговыми оптическими сигналами могут выполняться математические операции, такие как дифференцирование и интегрирование [1]. Рассмотрим вначале фотонные дифференциаторы, выходной оптический сигнал которых пропорционален производной от входного по времени. Существуют две основные категории оптических дифференциаторов: дифференциаторы поля (ДП) и дифференциаторы интенсивности (ДИ). В ДИ как входные сигналы, так и выходные дифференцированные сигналы переносятся оптической интенсивностью или оптической мощностью независимо от фазы сигнала, что полезно для сверхширокополосной микроволновой связи [2, 3] и кодирования сигнала [4]. ДИ могут быть реализованы посредством нелинейных эффектов в полупроводниковых опти-

ческих усилителях [3, 4] с помощью некогерентных фотонных процессоров [5] оптоволоконна с высокой нелинейностью [2].

С другой стороны, дифференцирование поля означает, что выходное оптическое поле (комплексный сигнал, включающий как амплитуду, так и фазу) представляет собой дифференцированные сигналы входного поля, что потенциально может применяться для генерации сверхкоротких импульсов [6, 7], генерации сигналов Эрмита – Гаусса нечетной симметрии [8], распознавания фронта импульса [9], а также для настраиваемой фильтрации микроволн [10]. На сегодняшний день ДП были реализованы с помощью волоконных брэгговских решеток [11], брэгговских решеток с фазовым сдвигом [12, 13], блоховских волн в одномерных фотонных кристаллах (ФК), длиннопериодных волоконных решеток [8, 14], интерферометров [15], металл-диэлектрических структур [16], полупроводниковых оптических усилителей [7, 10], кремниевых микрорезонаторов [17–19], а также селективных направленных ответвителей [20, 21].

Оптический временной дифференциатор N -го порядка определяется как устройство, которое вычисляет производную N -го порядка по времени комплексной огибающей входного оптического сигнала. Такие устройства способны обеспечить более слож-

* E-mail: sse@shg.ru

ные временные формы сигналов, такие как функции Эрмита – Гаусса [22], поскольку данные функции являются производными N -го порядка от гауссовой функции. Кроме того, оптические сигналы произвольной формы также могут быть составлены из семейства дифференцирований произвольного порядка гауссова импульса.

В спектральном отклике дифференциатора N -го порядка должен быть нуль N -го порядка на центральной частоте импульса, что достигается, как правило, путем подбора параметров спектральных откликов известных структур фотоники. Дифференциаторы высокого порядка были реализованы каскадными [23], наклонными [24] и специально разработанными волоконными брэгговскими решетками [11], с помощью программируемого формирователя импульсов [25], кремниевых брэгговских решеток [26], двухкаскадного кремниевого волновода с автосвязью [27] и т. д.

Стоит также отметить возможность реализации фотонных дифференциаторов на основе интерферометров Маха – Цендера [28, 29]. Такие устройства могут служить как ДИ, так и ДП, в зависимости от относительного сдвига между длиной волны зонда и резонансной меткой.

Фотонный временной интегратор N -го порядка (где $N = 1, 2, 3 \dots$ относится к порядку интегрирования) представляет собой устройство, которое вычисляет N -й кумулятивный интеграл времени входного сигнала. Временные интеграторы являются фундаментальными базовыми блоками во многих представляющих интерес операциях обработки сигналов, например, в вычислительных, управляющих, сенсорных и коммуникационных сетях [30]. По сравнению со своими электронными аналогами фотонные временные интеграторы могут обеспечить гораздо большую рабочую полосу пропускания, т. е. более высокую скорость обработки. Фотонные временные интеграторы первого порядка были предложены для различных приложений, включая сверхбыстрое формирование импульсов [31, 32], полностью оптические запоминающие устройства [33, 34], а также устройства для аналоговых оптических вычислений [35, 36]. Релевантным примером применения этих устройств являются вычислительные системы, предназначенные для решения обыкновенных дифференциальных уравнений (ОДУ). Линейные ОДУ можно решать в режиме реального времени, используя подходящую комбинацию интеграторов первого и высокого порядков, сумматоров и умножителей. Реализация этих операций полностью оптическим образом привела бы к скорости обра-

ботки, совершенно недостижимой современной электронной техникой.

В последние несколько лет широко исследовались различные реализации фотонных временных интеграторов на основе различных технологий, например, с использованием волоконной брэгговской решетки [37, 38], брэгговских решеток с фазовым сдвигом [39], резонансных дифракционных решеток [40], микрокольцевого резонатора [41–43], системы свертки временного спектра [44], активного резонатора Фабри – Перо с полупроводниковым оптическим усилителем в качестве активной среды [45].

Следует отметить, что несмотря на обилие работ в этой области, предлагаемые подходы к решению поставленной проблемы опираются на известные спектральные свойства различных фотонных структур, в том числе и брэгговских. К примеру, для получения дифференциатора N -го порядка в работе [13] используется комбинация из N микрорезонаторных мод брэгговской структуры с дефектами. Однако такой подход имеет существенные ограничения, поскольку спектральный отклик дефектной моды брэгговской структуры имеет фиксированную форму, отличающуюся от степенной, и из комбинации таких откликов можно создать степенную зависимость лишь в некотором приближении.

В этой работе мы используем универсальный метод построения спектрального отклика на основе решения обратной задачи [46]. Необходимый спектральный отклик в виде степенной функции создается искусственно и может иметь произвольную желаемую форму. Предлагаемый метод позволяет реализовать интеграторы и дифференциаторы в любом спектральном диапазоне без ограничения на его ширину. Демонстрируется применимость метода для устройств с широким рабочим диапазоном вплоть до октавы и более.

2. МЕТОДЫ РАСЧЕТА

В работе рассматриваются дифференциаторы и интеграторы поля импульса. Пусть на оптическую среду под нулевым углом падает оптический импульс вида

$$E_i(\mathbf{r}, t) = E_0(t)e^{i(\omega_0 t - \mathbf{k}\mathbf{r})}, \quad (1)$$

где $E_0(t)$ — огибающая импульса, $e^{i(\omega_0 t - \mathbf{k}\mathbf{r})}$ — осциллиция на центральной частоте импульса ω_0 , волновой вектор которой в свободном пространстве $k = \omega_0/c$. Поскольку свет падает под нормалью, поляризация импульса не важна, и задача сводится к одномерной.

Пусть одномерный фотонный кристалл задается в виде зависимости показателя преломления $n(x)$ от длины оптического пути, отсчитываемой от входной грани. Использование оптического пути позволяет автоматически учесть влияние дисперсии показателя преломления, что упрощает расчеты. Комплексный спектр коэффициента отражения $r(\omega)$ этого ФК вычисляется при помощи метода матриц распространения [47], при этом непрерывная зависимость $n(x)$ аппроксимировалась дискретной путем деления среды на слои оптической толщиной 20 нм, что много меньше длины волны и, следовательно, характерного периода модуляции. Корректность этого подхода обсуждалась в [48].

Вид отраженного от кристалла импульса находится путем преобразования Фурье. Спектр огибающей исходного сигнала

$$E_0(\omega - \omega_0) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E_0(t) e^{-i\omega t} dt \quad (2)$$

умножается на спектр коэффициента отражения $r(\omega)$, после чего вычисляется обратное преобразование Фурье:

$$E(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} r(\omega) E_0(\omega - \omega_0) e^{i\omega t} d\omega. \quad (3)$$

Преобразование Фурье выполнялось численно по алгоритму fast Fourier transform, использовалось 8192 точек с шагом по времени 1 фс, шагом по частоте $2.84 \cdot 10^{11}$ Гц.

3. ДИФФЕРЕНЦИАТОР ОГИБАЮЩЕЙ ИМПУЛЬСА

Дифференциатор сигналов может быть реализован при использовании свойства преобразования Фурье для функции $f(t)$ и ее производной:

$$\frac{d^N f(t)}{dt^N} \xrightarrow{\mathcal{F}} (i\omega)^N f(\omega). \quad (4)$$

В случае дифференцирования огибающей оптического импульса $f(t)e^{i\omega_0 t}$, имеем

$$\frac{d^N f(t)}{dt^N} \xrightarrow{\mathcal{F}} (i(\omega - \omega_0))^N f(\omega - \omega_0). \quad (5)$$

Поэтому дифференцирование сигнала может быть выполнено при помощи элемента, спектральный отклик которого равен

$$K_N(\omega) = \alpha(i(\omega - \omega_0))^N.$$

Проектирование и изготовление подобных структур

составляет значительную сложность. В этой работе мы воспользуемся разработанным ранее [46] универсальным методом построения структуры многослойных сред с произвольной формой спектральной зависимости коэффициента отражения. Применительно к задаче построения заданных откликов $K_N(\omega)$ метод состоит в следующем.

Рассмотрим случай $N = 1$. Построим фотонный кристалл, спектр коэффициента отражения которого имеет линейную зависимость от частоты с полюсом первого порядка посередине. Пусть изначально ФК представляет собой сплошную среду толщиной $D = 100$ мкм, показателем преломления $n_0 = 1.5$ и оптической толщиной $L = nd = 100$ мкм. Введем модуляцию показателя преломления

$$n_1(x) = A_1 \cos(k_1 x + \phi_1) + n_0, \quad (6)$$

где k_1 — волновое число, соответствующее частоте ω_1 ; A_1, ϕ_1 — амплитуда и фаза волны. Световая волна с волновым числом $k_1/2$ будет испытывать дифракционное отражение от среды с данной модуляцией. При этом коэффициент отражения $r(\omega_1)$ будет пропорционален амплитуде модуляции A_1 , соответствующие расчеты приведены, например, в [49], и при росте A_1 коэффициент $r(\omega_1)$ достигнет максимального значения 1. Чтобы этого не происходило, амплитуда модуляции должна быть ограничена сверху.

Теперь введем M пространственных гармоник, пусть их частоты ω_j располагаются равномерно в рассматриваемом диапазоне, середина которого приходится на ω_0 . Пусть в некотором требуемом спектральном диапазоне амплитуда и фаза изменяются линейно с номером гармоники j :

$$A_j = \delta n \left(\frac{j}{M} - \frac{1}{2} \right), \quad \phi_j = \begin{cases} -\frac{\pi}{2}, & j < \frac{N}{2}, \\ \frac{\pi}{2}, & j > \frac{N}{2}, \end{cases} \quad (7)$$

где δn — амплитуда модуляции показателя преломления. Просуммируем все гармоники модуляции, в результате чего получим распределение показателя преломления с глубиной ФК следующего вида:

$$n_I(x) = n_0 + \delta n \sum_{j=1}^M \left(\frac{j}{M} - \frac{1}{2} \right) \cos \left(\frac{2\omega_j x}{c} + \phi_j \right). \quad (8)$$

Зависимость $n_I(x)$ полностью задает структуру ФК. График $n(x)$ показан на рис. 1а, он имеет вид суммы гармонических функций с близкими частотами, между которыми наблюдаются биения, максимум биений наблюдается примерно в середине кристалла.

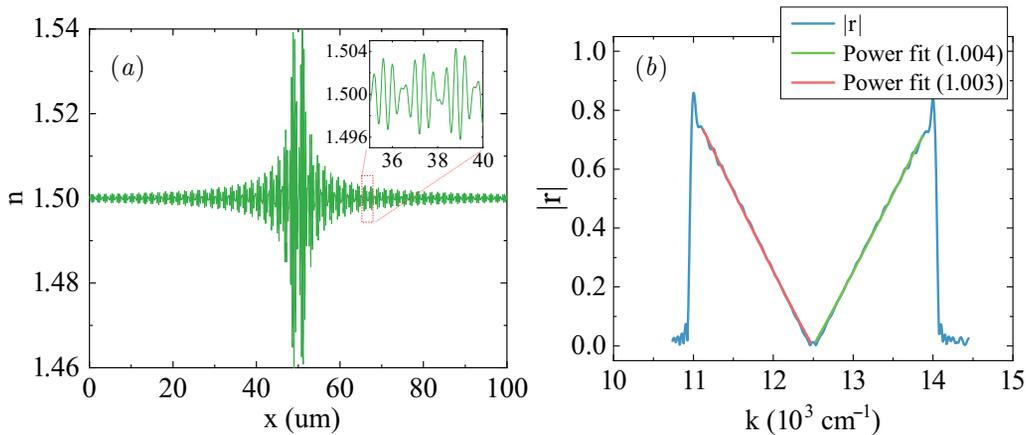


Рис. 1. *a* — Структура ФК в виде пространственного профиля показателя преломления $n_I(x)$, на вставке увеличенный фрагмент 60–63 мкм, *b* — спектр амплитудного коэффициента отражения этого ФК с аппроксимациями частей графика степенными функциями

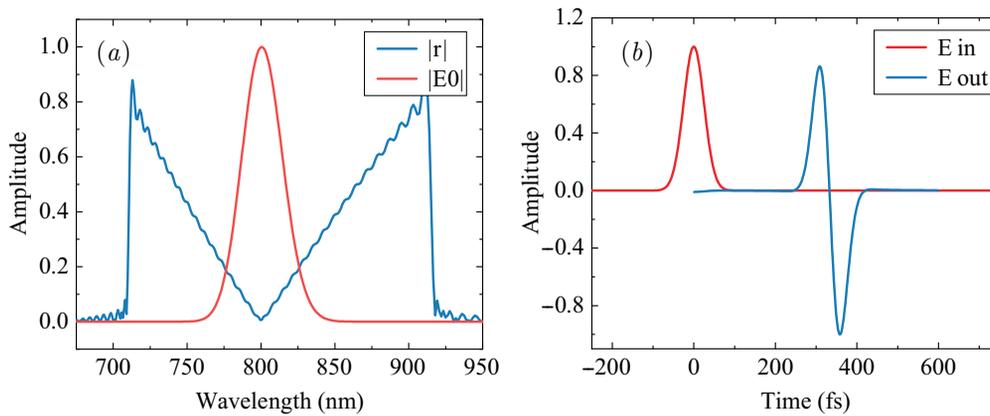


Рис. 2. *a* — Спектр модуля коэффициента отражения в сравнении со спектром падающего импульса, *b* — временные профили действительной части падающего и отраженного от данного ФК импульсов

Построим такой ФК, выбрав $L = 100 \mu\text{м}$, $\delta n = 0.07$, число гармоник $M = 300$, спектральный диапазон от 11 до 14 тыс. обратных сантиметров. Середина диапазона соответствует волновому числу $k_0 = 12500 \text{ см}^{-1}$ или длине волны $\lambda_0 = 800 \text{ нм}$. Спектр коэффициента отражения такого ФК продемонстрирован на рис. 1*b*. Спектр имеет V-образную форму в виде функции $y = |x|$, нуль функции совпадает с серединой спектрального диапазона.

Участки спектра, которые были заданы в виде линейных функций, были аппроксимированы степенной функцией, нуль которой соответствовал волновому числу $k_0 = 12500 \text{ см}^{-1}$. Участок от 11 до 12.4 тыс. см^{-1} аппроксимировался функцией $y = A(k_0 - k)^\alpha$, участок от 12.6 до 14 тыс. см^{-1} — функцией $y = A(k - k_0)^\alpha$. Результаты аппроксимации дают значения показателей степени $\alpha_1 = 1.003$ и $\alpha_2 = 1.004$ соответственно, что очень близко к линейной функции.

Пусть на этот ФК падает импульс света с центральной длиной волны 800 нм и гауссовой огибающей длительностью 50 фс, его спектр показан на рис. 2*a*, а временной профиль на рис. 2*b*. Спектр импульса попадает в рабочую область ФК, центральная частота импульса соответствует нулю коэффициента отражения. Временные профили отраженного и прошедшего сквозь кристалл импульсов показаны на рис. 2*b*.

Огибающая отраженного импульса имеет форму функции Эрмита–Гаусса первого порядка, что соответствует производной гауссовой функции. Центр отраженного импульса выходит из ФК в момент $t = 334 \text{ фс}$, что соответствует прохождению оптического пути $ct = 100 \mu\text{м}$, таким образом импульс отражается приблизительно от середины кристалла.

Для той же структуры $n_I(x)$ рассмотрим примеры дифференцирования других функций. На рис. 3 показаны расчеты отраженных импульсов для раз-

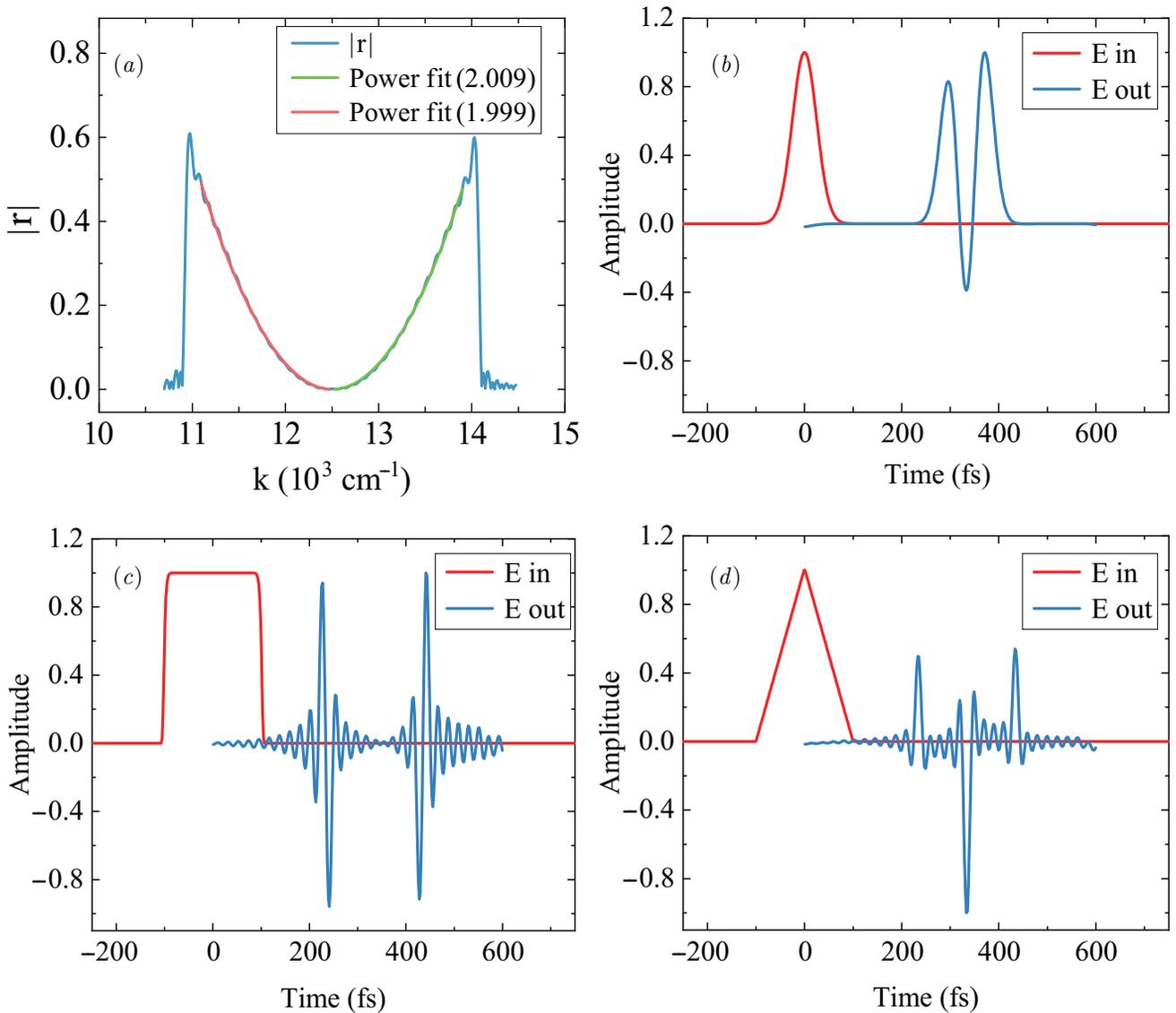


Рис. 3. Временные профили падающих и отраженных импульсов от ФК с линейно модулированной запрещенной зоной. Падающие импульсы: *a* — Эрмита–Гаусса 1 порядка, *b* — Эрмита–Гаусса 5 порядка, *c* — прямоугольный, *d* — треугольный

личной формы падающих. В случае падения импульсов, огибающая которых имеет форму функции Эрмита–Гаусса порядков 1 и 5, отраженные импульсы имеют огибающую, форма которой соответствует функции Эрмита–Гаусса порядков 2 и 6 соответственно. Прямоугольный импульс дифференцируется в виде двух коротких пиков противоположного знака, временная задержка между максимумами соответствует длительности исходного импульса. Треугольный импульс после преобразования имеет вид двух последовательных П-образных импульсов разной полярности с горизонтальными участками, среднее значение амплитуды которых составляет 0.56 и 0.67, при этом отклонения импульсов от средних значений горизонтальных участков не превышают 17%.

4. ДИФФЕРЕНЦИАТОРЫ ВЫСШИХ ПОРЯДКОВ

Рассмотрим дифференциатор второго порядка. Пусть пространственный профиль показателя преломления имеет вид

$$n_{II}(x) = n_0 + \delta n \sum_{j=1}^M \left(\frac{j}{M} - \frac{1}{2} \right)^2 \cos \left(\frac{2\omega_j x}{c} + 2\phi_j \right). \quad (9)$$

Спектр коэффициента отражения такого ФК показан на рис. 4*a*. На участке 11–14 тыс. см⁻¹ он имеет форму квадратичной функции, ветви этой функции были аппроксимированы при помощи степенной функции с нулем в середине диапазона. Результаты аппроксимации показывают степени 2.009 и 1.999,

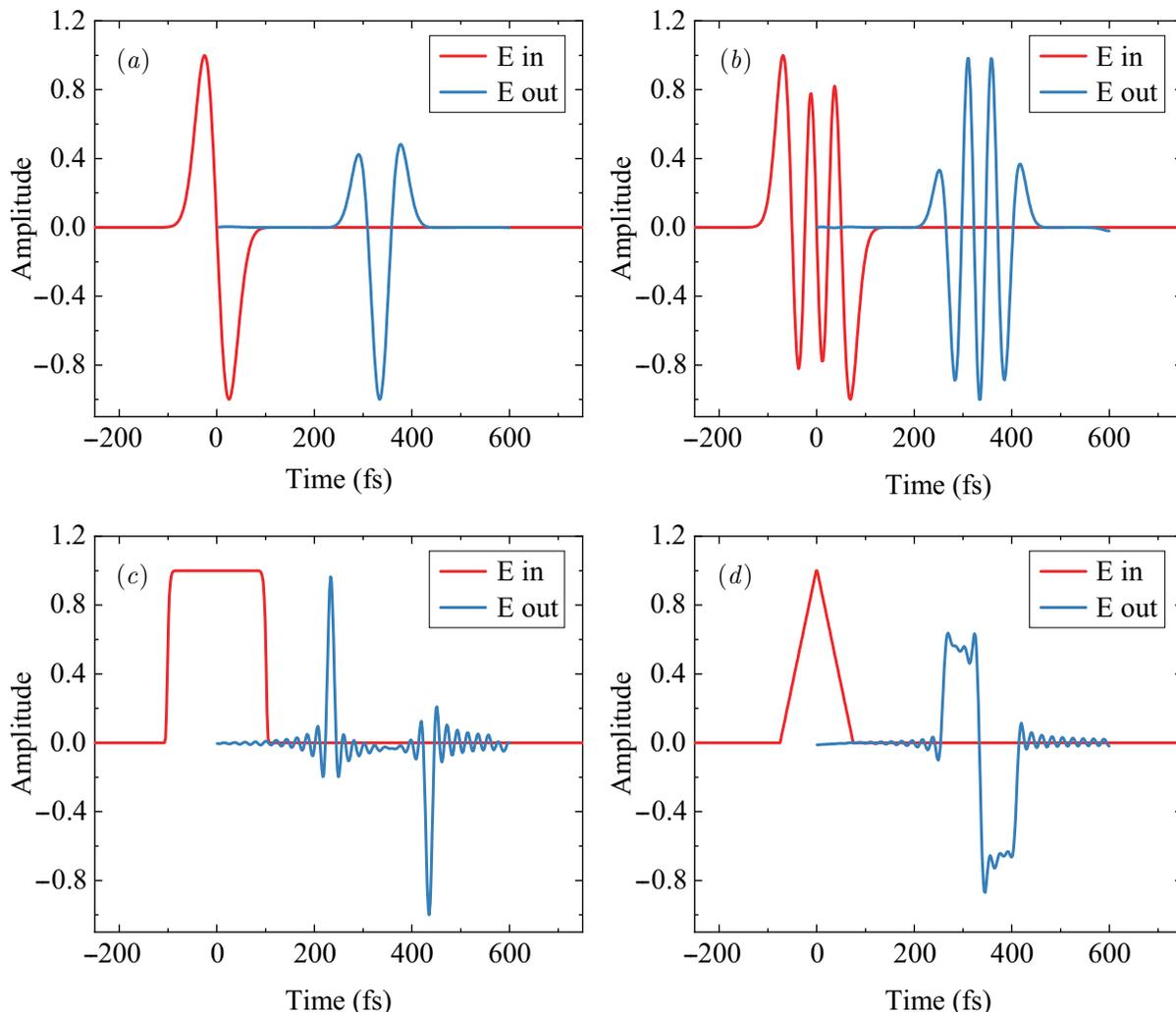


Рис. 4. *a* — Спектр модуля коэффициента отражения ФК n_{II} и аппроксимации частей спектра степенными функциями, *b* — временные профили действительной части падающего и отраженного от данного ФК импульсов в случае падения гауссова импульса, *c* — прямоугольного, *d* — треугольного

что говорит о хорошем воспроизведении заданной квадратичной последовательности.

Вычисленный результат отражения гауссова импульса длительностью 50 фс и центральной длиной волны $800 \text{ нм} = 12500 \text{ см}^{-1}$ показан на рис. 4*b*. Форма отраженного импульса соответствует функции Эрмита–Гаусса 2-го порядка. Как и в случае дифференциатора первого порядка, центр отраженного сигнала также смещен на 330 фс, что соответствует отражению от середины кристалла. В случае прямоугольного импульса (рис. 4*c*) отклик имеет вид четырех резких пиков, соответствующих производной от функции, изображенной на рис. 3*c*. В случае треугольного импульса зависимость отраженного сигнала имеет вид трех пиков, средний из которых имеет обратную полярность и вдвое больше крайних. Это соответствует производной от первой производной треугольной функции (рис. 3*d*).

Дифференциаторы более высоких порядков (N) могут быть получены путем построения структуры фотонного кристалла вида

$$n_N(x) = n_0 + \delta n \sum_{j=1}^M \left(\frac{j}{M} - \frac{1}{2} \right)^N \cos \left(\frac{2\omega_j x}{c} + N\phi_j \right). \quad (10)$$

На рис. 5 показаны примеры построения дифференциаторов высших порядков и соответствующих отраженных импульсов для случая падения импульса гауссовой формы длительности 50 фс. Все профили отраженных импульсов имеют число нулей, соответствующее степени дифференцирования. Однако с ростом этой степени падает величина первого и последнего максимума и форма огибающей отличается от соответствующей функции Эрмита–Гаусса. Поэтому дальнейшее увеличение степени дифференцирования было решено не выполнять.

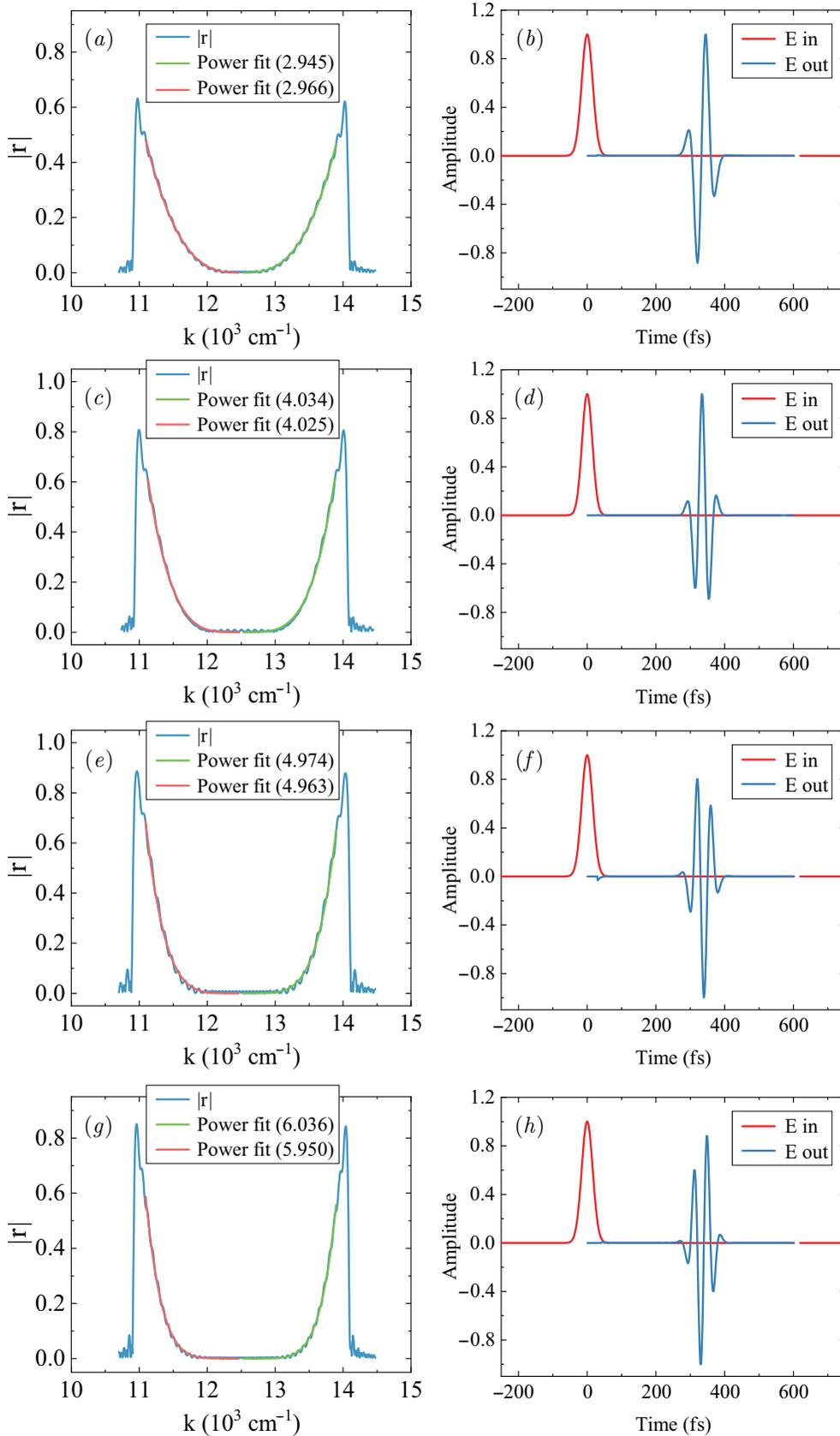


Рис. 5. Спектры модуля коэффициента отражения ФК, аппроксимации частей спектра степенными функциями и временные профили отраженных импульсов, соответствующих порядкам дифференциатора: a, b — 3, c, d — 4, e, f — 5, g, h — 6

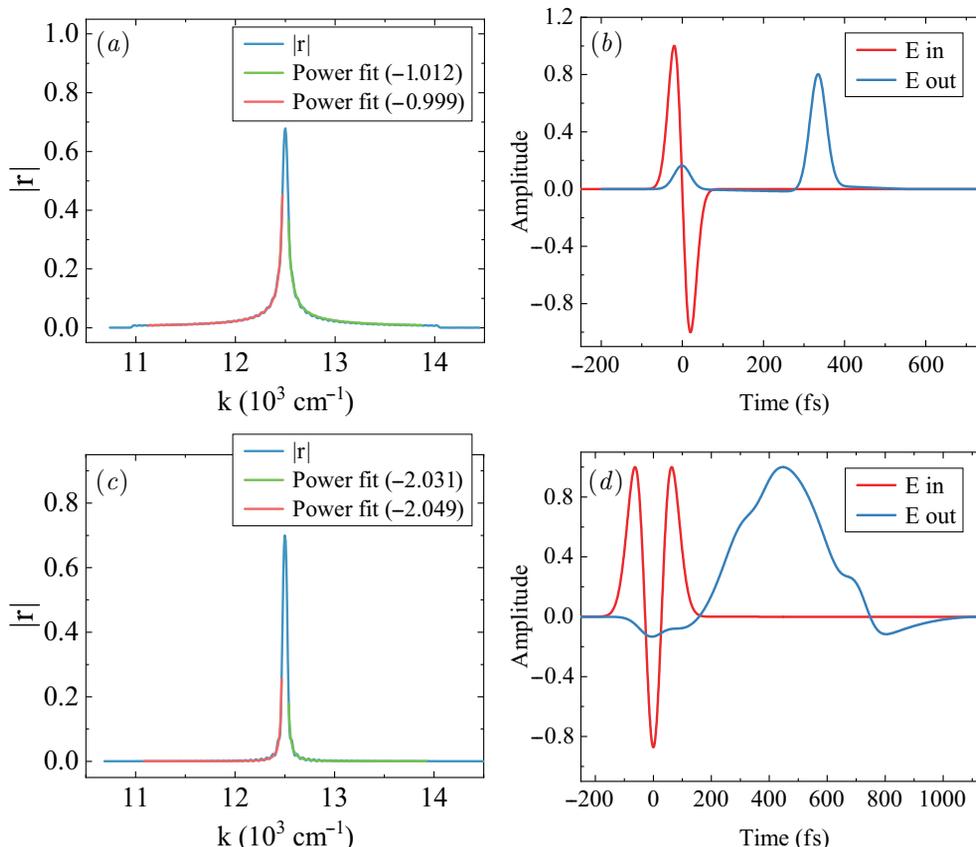


Рис. 6. Спектры модуля коэффициента отражения ФК и аппроксимации частей спектра степенными функциями *a, c* и временные профили отраженных импульсов *b, d*, демонстрирующие интеграторы первого и второго порядков

5. ИНТЕГРАТОР

Согласно свойству преобразования Фурье для первообразной функции $F(t) \xrightarrow{\mathcal{F}} (i\omega)^{-1}f(\omega)$, временной интегратор N -го порядка огибающей оптического импульса, аналогично (5):

$$F^{(N)}(t) \xrightarrow{\mathcal{F}} \frac{1}{(i(\omega - \omega_0))^N} f(\omega - \omega_0) \quad (11)$$

может быть построен на оптическом элементе, спектральный отклик которого имеет полюс N -го порядка. Построим фотонный кристалл с профилем показателя преломления

$$n(x) = n_0 + \delta n \sum_{j=1}^M \left(\frac{i}{M} - \frac{1}{2} \right)^{-N} \cos \left(\frac{2\omega_j x}{c} - N\phi_j \right). \quad (12)$$

Спектр коэффициента отражения этого ФК показан на рис. 6*a*. Спектр ФК с полюсом второго порядка в спектральном отклике показан на рис. 6*c*. Соответствующие аппроксимации степенными функциями приведены на графиках, показатели степени хорошо сходятся с входными данными. В качестве входных импульсов для задач интегриро-

вания были выбраны функции Эрмита–Гаусса первого и второго порядков. Для них ожидается первообразная в виде гауссовой функции. Первообразная первого порядка показана на рис. 6*b*, ее форма хорошо воспроизводит гауссову функцию. Первообразная второго порядка показана на рис. 6*d*. Видно, что функция очень грубо повторяет гауссов импульс, а также имеет место значительное уширение импульса во времени. Поэтому дальнейшее повышение степени первообразной не проводилось.

6. РАБОЧИЙ ДИАПАЗОН

Предлагаемые устройства выполняют преобразование импульсов при помощи спектральной модуляции, поэтому важно выяснить их рабочий спектральный диапазон. Для примера возьмем рассмотренный дифференциатор второго порядка вида $n_{II}(x)$. Пусть на него падают импульсы полной длительностью на половине высоты по полю от 16 до 40 фс. Их спектры в сравнении со спектром ФК показаны на рис. 7*a*, соответствующие временные профили падающих и отраженных импульсов изображены на рис. 7*b*. Для наглядности спектры приведены в нанометрах, поэтому спектр коэффициента

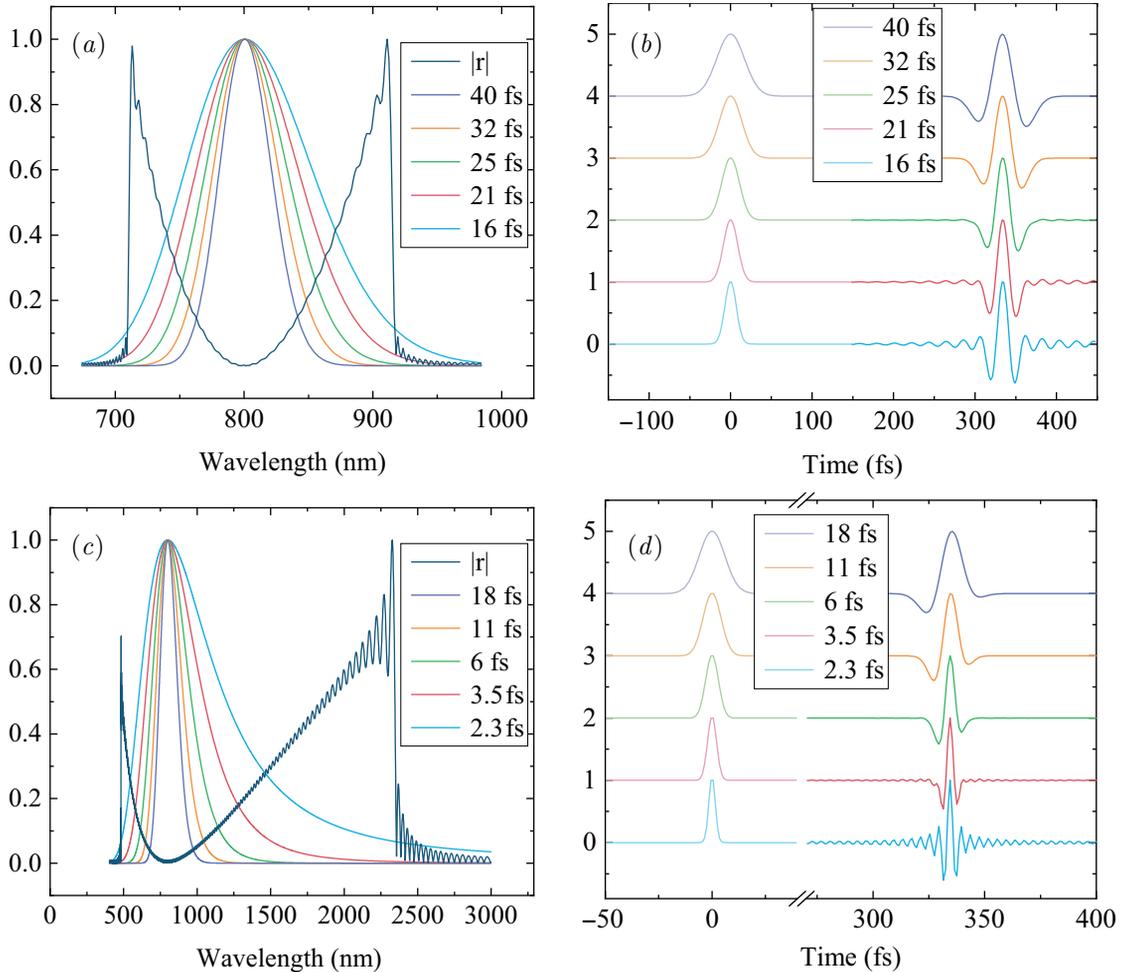


Рис. 7. Спектральные отклики дифференциаторов второго порядка с центральной частотой 12500 см^{-1} и шириной рабочего диапазона 3125 см^{-1} (a) и 16400 см^{-1} (c) и соответствующие им временные профили падающих (b) и отраженных (d) импульсов

отражения, зависящий от волнового числа параболически, выглядит искаженно.

При уменьшении длительности импульса от 40 до 16 фс уширяется спектр импульса, его края выходят за рабочий диапазон ФК. Это приводит к появлению паразитных осцилляций, которые видны на временном профиле отраженного импульса. Длительность импульса 25 фс в данной демонстрации подобрана таким образом, чтобы уровень амплитуды паразитных осцилляций достигал 1% по полю, а длительность 16 фс — 10% по полю и 1% по интенсивности. Эти длительности соответствуют спектральным ширинам импульсов 583 и 890 см^{-1} , таким образом, чтобы избежать паразитных осцилляций, необходимо выбирать рабочий диапазон шире спектра импульса в соответственно 5.3 и 3.5 раза.

Теперь расширим рабочий диапазон до величины 16400 см^{-1} , т.е. диапазон простирается от 4300 до 20700 см^{-1} , что является шире октавы по частоте.

На рис. 7c показан спектр коэффициента отражения при таком диапазоне. Пусть на ФК падают импульсы, длительность которых изменяется от 2.3 до 18 фс (рис. 7d). Паразитные осцилляции появляются при длительности 3.5 фс (ширина спектра 6233 см^{-1}), дальнейшее уменьшение длительности приводит к сильному искажению в расчетах. Это связано с тем, что длительность оптического цикла на длине волны 800 нм составляет 2.67 фс, и уменьшение длительности менее этой величины нарушает предположение о существовании огибающей импульса.

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исходя из приведенных расчетов, для рассмотренных ФК требуется возможность непрерывно варьировать показатель преломления $n(x)$ с пространственным периодом порядка половины длины волны, создавать структуры толщиной до 100 мкм, а также отсутствие значимого поглощения или рас-

сеяния после прохождения через такую толщину. Это может быть реализовано в ФК, изготовленных на основе анодного оксида алюминия и титана, а также двухфотонной лазерной литографии. Известно [50], что ФК на основе окисленного пористого кремния позволяют изготавливать структуры необходимого размера и величины модуляции периода.

В этой работе были теоретически продемонстрированы методы построения фотонных кристаллов, реализующих математические операции дифференцирования с первого по шестой порядки, а также интегрирования первого и второго порядков, выполняемые над огибающими фемтосекундных импульсов во времени. Исследована максимально достижимая ширина спектра импульса и показано, что предлагаемый подход позволяет изготавливать дифференциаторы с шириной диапазона более октавы.

Финансирование. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда, проект 21-72-10103, <https://rscf.ru/project/21-72-10103/>.

ЛИТЕРАТУРА

1. D. Bykov, L. Doskolovich, and V. Soifer, *Journal of Experimental and Theoretical Physics* **114**, 724 (2012).
2. P. Velanas, A. Bogris, A. Argyris, and D. Syvridis, *Journal of Lightwave Technology* **26**(18), 3269 (2008).
3. J. Xu, X. Zhang, J. Dong, D. Liu, and D. Huang, *Opt. Lett.* **32**, 1872 (2007).
4. J. Dong, Y. Yu, Y. Zhang, X. Li, D. Huang, and X. Zhang, *Opt. Express* **19**(11), 10587 (2011).
5. Y. Park, M. H. Asghari, R. Helsten, and J. Azaña, *IEEE Photonics Journal* **2**(6), 1040 (2010).
6. N. Ngo, S. Yu, S. Tjin, and C. Kam, *Optics Communications* **230**(1), 115 (2004).
7. Z. Li and C. Wu, *Opt. Lett.* **34**(6), 830 (2009).
8. R. Slavík, Y. Park, M. Kulishov, R. Morandotti, and J. Azaña, *Opt. Express* **14**(22), 10699 (2006).
9. J. Dong, X. Zhang, S. Fu, J. Xu, P. Shum, and D. Huang, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **14**(3), 770 (2008).
10. X. Li, J. Dong, Y. Yu, and X. Zhang, *IEEE Photonics Technology Letters* **23**(5), 308 (2011).
11. L. M. Rivas, K. Singh, A. Carballar, and J. Azaña, *IEEE Photonics Technology Letters* **19**(16), 1209 (2007).
12. N. K. Berger, B. Levit, B. Fischer, M. Kulishov, D. V. Plant, and J. Azaña, *Optics express* **15**(2), 371 (2007).
13. M. Kulishov and J. Azaña, *Optics Express* **15**(10), 6152 (2007).
14. R. Slavík, Y. Park, M. Kulishov, and J. Azaña, *Opt. Lett.* **34**(20), 3116 (2009).
15. Y. Park, J. Azaña, and R. Slavík, *Opt. Lett.* **32**(6), 710 (2007).
16. L. L. Doskolovich, A. I. Kashapov, E. A. Bezus, and D. A. Bykov, *Photonics and Nanostructures-Fundamentals and Applications* **52**, 101069 (2022).
17. F. Liu, T. Wang, L. Qiang, T. Ye, Z. Zhang, M. Qiu, and Y. Su, *Opt. Express* **16**(20), 15880 (2008).
18. Y. Hu, L. Zhang, X. Xiao, Z.-Y. Li, Y. Li, T. Chu, Y. Su, Y. Yu, and J. Yu, *Journal of Optics* **14** (2012).
19. J. Dong, A. Zheng, D. Gao, S. Liao, L. Lei, D. Huang, and X. Zhang, *Opt. Lett.* **38**(5), 628 (2013).
20. T. L. Huang, A. L. Zheng, J. J. Dong, D. S. Gao, and X. L. Zhang, *Opt. Lett.* **40**(23), 5614 (2015).
21. T.-J. Ahn and J. Azaña, *Opt. Express* **19**(8), 7625 (2011).
22. Y. Park, M. Kulishov, R. Slavík, and J. Azaña, *Opt. Express* **14**(26), 12670 (2006).
23. L. M. Rivas, S. Boudreau, Y. Park, R. Slavík, S. La-Rochelle, A. Carballar, and J. Azaña, *Opt. Lett.* **34**(12), 1792 (2009).
24. M. Li, L.-Y. Shao, J. Albert, and J. Yao, *IEEE Photonics Technology Letters* **23**(4), 251 (2011).
25. Y. Yu, F. Jiang, H. Tang, L. Xu, X. Liu, J. Dong, and X. Zhang, *Opt. Express* **24**(11), 11739 (2016).
26. K. Rutkowska, D. Duchesne, M. Strain, R. Morandotti, M. Sorel, and J. Azaña, *Opt. Express* **19**(20), 19514 (2011).
27. L. Zhang, J. Wu, X. Yin, X. Sun, P. Cao, X. Jiang, and Y. Su, *IEEE Photonics Journal* **6**(2), 1 (2014).

28. J. Dong, A. Zheng, D. Gao, L. Lei, D. Huang, and X. Zhang, *Opt. Express* **21**(6), 7014 (2013).
29. S. Yan, Z. Cheng, L. H. Frandsen, Y. Ding, F. Zhou, J. Dong, and X. Zhang, *Opt. Lett.* **42**(8), 1596 (2017).
30. R. Slavík, Y. Park, N. Ayotte, S. Doucet, T.-J. Ahn, S. LaRochelle, and J. Azaña, *Opt. Express* **16**(22), 18202 (2008).
31. N. Q. Ngo, *Appl. Opt.* **45**(26), 6785 (2006).
32. A. Karimi, A. Zarifkar, and M. Miri, *J. Lightwave Technol.* **38**(8), 2346 (2020).
33. Y. Ding, X. Zhang, X. Zhang, and D. Huang, *Optics Communications* **281**(21), 5315 (2008).
34. M. H. Asghari and J. Azaña, *IEEE Photonics Technology Letters* **23**(4), 209 (2011).
35. Y. Park, T.-J. Ahn, Y. Dai, J. Yao, and J. Azaña, *Opt. Express* **16**, 17817 (2008).
36. J. Azaña, *IEEE Photonics Journal* **2**(3), 359 (2010).
37. A. Mohammad H., W. Chao, Y. Jianping, and J. Azaña, *Opt. Lett.* **35**(8), 1191 (2010).
38. M. H. Asghari, Y. Park, and J. Azaña, *Opt. Express* **19**(2), 425 (2011).
39. N. V. Golovastikov, D. A. Bykov, L. L. Doskolovich, and E. A. Bezus, *Optics Communications* **338**, 457 (2015).
40. D. A. Bykov, L. L. Doskolovich, and V. A. Soifer, *JETP Letters* **95**, 6 (2012).
41. W. Liu, M. Li, R. S. Guzzon, E. J. Norberg, J. S. Parker, L. A. Coldren, and J. Yao, *Journal of Lightwave Technology* **32**(20), 3654 (2014).
42. M. Ferrera, Y. Park, L. Razzari, B. Little, S. Chu, R. Morandotti, D. Moss, and J. Azaña, *Nature communications* **1**, 29 (2010).
43. M. Ferrera, Y. Park, L. Razzari, B. E. Little, S. T. Chu, R. Morandotti, D. J. Moss, and J. Azaña, *Opt. Express* **19**(23), 23153 (2011).
44. A. Malacarne, R. Ashrafi, M. Li, S. LaRochelle, J. Yao, and J. Azaña, *Opt. Lett.* **37**(8), 1355 (2012).
45. N. Huang, M. Li, R. Ashrafi, L. Wang, X. Wang, J. Azaña, and N. Zhu, *Opt. Express* **22**(3), 3105 (2014).
46. P. Emeliantsev, N. Pyshkov, and S. Svyakhovskiy, *JETP Letters* **117**(11), 821 (2023).
47. A. Luce, A. Mahdavi, F. Marquardt, and H. Wankerl, *JOSA A* **39**(6), 1007 (2022).
48. P. Baumeister, *Applied optics* **25**(16), 2644 (1986).
49. S. Svyakhovskiy and N. Pyshkov, *Moscow University Physics Bulletin* **78**(4), 484 (2023).
50. S. Svyakhovskiy and N. Pyshkov, *Optics and Spectroscopy* **131**(8), 1070 (2023).

ДВУХФОТОННАЯ КОНВЕРСИЯ ГРАВИТОНА НА СВЯЗАННЫХ АТОМНЫХ СОСТОЯНИЯХ

Т. А. Залиютдинов^{a,b*}, В. К. Дубрович^c, Д. А. Соловьев^{a,b}

^a Санкт-Петербургский государственный университет
198504, Санкт-Петербург, Россия

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

^c Специальная астрофизическая обсерватория
Санкт-Петербургского отделения Российской академии наук
196140, Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 13 марта 2024 г.,
после переработки 13 марта 2024 г.
Принята к публикации 13 мая 2024 г.

Развивается квантовополевой подход, объединяющий релятивистскую электродинамику и линейризованную квантовую гравитацию в приложении к задаче электромагнитной конверсии гравитонов на связанных атомных состояниях. Используется атом водорода в качестве примера и рассматривается процесс неупругого рассеяния гравитона на атомном электроны с последующим переизлучением двух фотонов. Получены выражения для сечения процесса и угловых корреляций. Обсуждаются перспективы экспериментального обнаружения двухфотонной конверсии гравитонов с применением оптического усиления слабых сигналов.

DOI: 10.31857/S0044451024090025

1. ВВЕДЕНИЕ

Под влиянием основополагающих принципов квантовой теории поля современная гравитационная физика предполагает, что эффекты квантовой гравитации должны быть наблюдаемы при чрезвычайно высоких энергиях и невероятно малых масштабах длины [1, 2]. Эта область, известная как планковский масштаб, включает в себя энергии частиц, достигающие 10^{19} ГэВ, или длины порядка 10^{-35} м. Доступ к этому диапазону представляет значительные трудности, приводя к весьма ограниченной перспективе достижения необходимых технологических решений в ближайшие десятилетия [3]. Текущий уровень достигнутого энергетического диапазона при столкновениях на Большом адронном коллайдере все еще на много порядков ниже энергий, связанных с планковским

масштабом. Тем не менее некоторые гипотезы предполагают потенциально более сильное гравитационное взаимодействие при повышенных энергиях, объясняя это, в частности, наличием дополнительных измерений [4, 5]. Несмотря на продолжающиеся усилия, из-за огромных технологических препятствий, связанных с достижением крайне высоких энергий в ускорителях частиц, убедительных доказательств в пользу таких расширений стандартной модели все еще не найдено. Напротив, при более низких энергиях лабораторные эксперименты с квантовыми системами с массами, значительно превосходящими атомные [6, 7], постепенно становятся доступными в лабораторных условиях [8]. В рамках такого подхода существующие теории предполагают, что гравитация оказывает влияние на динамику квантовых состояний. В последнее время был предложен ряд идей, касающихся проявления различных аспектов квантовой гравитации, таких как суперпозиции гравитационных полей [9], коллапс волновой функции, вызванный гравитацией через самогравитацию, или декогеренция [10], вызванная внешними гравитационными полями.

* E-mail: zalialutdinov@gmail.com, t.zalialutdinov@spbu.ru

Обнадеживающим является и то, что многие из этих предложений кажутся экспериментально и технологически достижимыми в ближайшем будущем.

Другой подход к исследованию квантовых свойств гравитации состоит в астрофизических наблюдениях за Вселенной. В частности, в работе [11] было отмечено, что квантовая природа гравитации может проявляться в γ -всплесках сверхновых. Кроме того, важнейшим аспектом в современной космологии является понимание того, как квантованное гравитационное поле влияет на ранние этапы формирования Вселенной. Несмотря на то что характерные сигнатуры могли исчезнуть во время более позднего расширения Вселенной, обнаружение первичных гравитационных волн могло бы дать представление об эффектах квантовой гравитации вскоре после Большого взрыва [12]. В недавней работе [13] также обсуждалось что специфические особенности космического микроволнового фона могут предоставить дополнительную информацию об этой эпохе. Кроме того, были предложены различные астрофизические тесты, такие как исследование света от далеких квазаров [14, 15]. Однако до сих пор не было обнаружено никаких достоверных признаков квантовой природы гравитации.

Следует отметить, что обнаружение отдельных гравитонов, являющихся ключевым индикатором квантования гравитации, исторически представляло существенные трудности [16–18]. Несмотря на это, исследование инновационных подходов к этой проблеме все еще продолжается [19]. Заметное внимание уделяется изучению элементарных процессов, связанных с рассеянием гравитонов, в частности в приложении к астрофизическим исследованиям ранней Вселенной [20], а также лабораторным методам для детектирования признаков квантовой природы гравитации. В связи с этим чрезвычайно важным становится развитие соответствующих теоретических методов и подходов для исследования данной проблемы.

С учетом актуальности затрагиваемой тематики в современной теоретической физике целью настоящего исследования является применение квантовополевого подхода, объединяющего релятивистскую квантовую электродинамику и линеаризованную квантовую теорию гравитации, к задаче рассеяния гравитонов на связанных атомных состояниях. Используя атом водорода в качестве примера, мы

рассматриваем процесс неупругого рассеяния гравитона на атомном электроны с последующей конверсией в два фотона. Применяя аппарат релятивистской квантовой теории поля для связанных состояний, приводим последовательный вывод выражения для сечения процесса, включая угловые корреляции между налетающими и рассеянными частицами. Обсуждаем перспективы экспериментального обнаружения двухфотонной конверсии гравитонов и оптическое усиления слабых сигналов.

Статья построена следующим образом. В разд. 2 приводится краткий вывод линеаризованных уравнений Эйнштейна, обсуждается их квантование и решение в виде волновых функций гравитона в координатном пространстве. Затем, в разд. 3, в рамках метода контура линии и S -матрицы для связанных состояний дается последовательный вывод сечения неупругого рассеяния гравитона на атоме водорода. Обсуждение полученных выражений в приложении к проблеме обнаружения отдельных гравитонов даны в разд. 4. На протяжении всей статьи используются релятивистские единицы, в которых $\hbar = c = 1$. Гравитационная постоянная G в этих единицах может быть найдена из определения планковской длины

$$l_p = \sqrt{\frac{\hbar G}{c^3}} = 1.616 \cdot 10^{-35} \text{ м.}$$

2. ЛИНЕАРИЗАЦИЯ УРАВНЕНИЙ ЭЙНШТЕЙНА

Простейшая квантовополевая модель гравитации с гравитонами как квантовой частицей со спином 2 может быть получена из рассмотрения линеаризованных уравнений Эйнштейна для гравитации [1]. Следуя стандартному подходу к описанию этой проблемы [21], будем рассматривать малые возмущения $h_{\mu\nu}$ метрического тензора Минковского, $\eta_{\mu\nu} = \text{diag}(1, -1, -1, -1)$:

$$g_{\mu\nu} = \eta_{\mu\nu} + h_{\mu\nu}. \quad (1)$$

Здесь мы предполагаем, что $h_{\mu\nu}$ представляет малые добавки, определяющие гравитационное взаимодействие. В этом приближении тензор Риччи дается выражением

$$R_{\mu\nu} = \frac{1}{2}(\partial_\sigma \partial_\mu h_\nu^\sigma + \partial_\sigma \partial_\nu h_\mu^\sigma - \partial_\mu \partial_\nu h - \square h_{\mu\nu}) + \mathcal{O}(h^2), \quad (2)$$

где введены обозначения $h = \eta^{\mu\nu} h_{\mu\nu}$ и $\square = \eta^{\mu\nu} \partial_\mu \partial_\nu$.

В линеаризованной квантовой теории гравитации калибровка потенциала $h_{\mu\nu}$, удовлетворяющая уравнению

$$\partial_\mu h_\nu^\mu = \frac{1}{2} \partial_\nu h_\rho^\rho, \quad (3)$$

называется гармонической [21] (это аналог калибровки Лоренца $\partial_\mu A^\mu = 0$ для электромагнитного потенциала A^μ). С учетом выражения (3) линеаризованное уравнение Эйнштейна сводится к следующему равенству:

$$\square h_{\mu\nu} = -16\pi G \left(T_{\mu\nu} - \frac{1}{2} \eta_{\mu\nu} T_\rho^\rho \right), \quad (4)$$

где $T_{\mu\nu}$ — тензор энергии-импульса.

Теперь перейдем к обсуждению процедуры вторичного квантования для тензорного поля $h_{\mu\nu}$. Для этого необходимо записать общее решение линеаризованного уравнения движения в отсутствие материи ($T_{\mu\nu} = 0$), которое имеет вид

$$\square h_{\mu\nu} = 0. \quad (5)$$

Решение уравнения (5) представляет собой свободную гравитационную волну. Исходя из этих линейных уравнений движения для метрических возмущений, можно построить согласованную теорию свободного квантового поля для $h_{\mu\nu}$. Принимая во внимание вид уравнения (5), квантование гравитационного поля можно выполнить в полной аналогии с квантованием электромагнитного поля. Это приводит к следующему разложению для потенциала:

$$\hat{h}_{\mu\nu}(x) = \sum_{\lambda_g} \int \frac{d^3 \mathbf{k}_g}{(2\pi)^3} \frac{1}{\sqrt{2|\mathbf{k}|}} \varepsilon_{\mu\nu}^{(\lambda_g)} \times \\ \times \left(\hat{a}_{\mathbf{k}, \lambda_g}^\dagger e^{-ikx} + \hat{a}_{\mathbf{k}, \lambda_g} e^{ikx} \right). \quad (6)$$

Здесь $\hat{a}_{\mathbf{k}, \lambda_g}^\dagger$ и $\hat{a}_{\mathbf{k}, \lambda_g}$ представляют собой операторы рождения и уничтожения соответственно, которые подчиняются каноническим коммутационным соотношениям для бозонов [22]; $k = (k_0, \mathbf{k}_g)$ — четырехмерный вектор импульса гравитона, \mathbf{k}_g — соответствующий трехмерный волновой вектор, $x = (t, \mathbf{r})$ — четырехмерный пространственный вектор, $\varepsilon_{\mu\nu}^{(\lambda_g)}$ — тензор поляризации с $\lambda_g = 0, 1, 2, 3$.

Гармоническое условие, задаваемое уравнением (3), пока еще неоднозначным образом определяет выбор инерциальной системы отсчета. Очевидно, что над полем $h_{\mu\nu}$ можно выполнить новое преобразование координат вида

$$h'_{\mu\nu}(x) = h_{\mu\nu}(x) - \partial_\mu \xi_\nu(x) - \partial_\nu \xi_\mu(x), \quad (7)$$

где параметры $\xi_\nu(x)$ подчиняются условию $\square \xi_\nu = 0$.

Поскольку $h_{\mu\nu}$ есть решение волнового уравнения (5), четырехмерный вектор k удовлетворяет также равенству $k^2 = k_\mu k^\mu = 0$. Тогда гармоническое условие для тензора поляризации, вытекающее из уравнения (3), принимает вид [21]

$$k^\mu \varepsilon_{\mu\nu} = \frac{1}{2} k_\nu \varepsilon_{\mu\mu}. \quad (8)$$

Положив $\xi_\nu(x) = i\xi_\nu e^{-ikx}$ в уравнении (7), можно получить следующее соотношение:

$$\varepsilon'_{\mu\nu} = \varepsilon_{\mu\nu} - k_\mu \xi_\nu - k_\nu \xi_\mu. \quad (9)$$

Оба этих уравнения подразумевают, что компоненты тензора $\varepsilon_{\mu\nu}$ не могут быть произвольными: они должны удовлетворять ограничениям, заданным уравнениями (8) и (9). Чтобы определить, какие поляризации допустимы, рассмотрим гравитационную волну, движущуюся вдоль оси z , т.е. выберем четырехмерный вектор импульса в виде $k = \omega_g(1, 0, 0, 1)$. Тогда, согласно уравнению (9), можно выбрать функцию ξ_μ таким образом, чтобы компоненты тензора поляризации ε_{00} , ε_{13} , ε_{23} и ε_{33} были исключены. Следовательно, останутся только два независимых тензора поляризации для гравитационной волны, которые могут быть записаны в матричной форме следующим образом:

$$\varepsilon^{(1)} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (10)$$

$$\varepsilon^{(2)} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix},$$

где коэффициент $1/\sqrt{2}$ выбран так, чтобы выполнялось условие нормировки

$$\sqrt{\text{Tr}(\varepsilon \cdot \varepsilon^T)} = 1.$$

Представление тензоров поляризации гравитационной волны в форме уравнений (10) соответствует так называемой поперечной бесследовой (Transverse Traceless) калибровке. При таком выборе условие поперечности, заданное уравнением (8), сводится к

$$k^\mu \varepsilon_{\mu\nu} = 0. \quad (11)$$

С учетом того, что времениподобные компоненты тензоров поляризации равны нулю, для (10) допускается параметризация в сферических координатах

$$\varepsilon^{(1)} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \cos^2 \theta \cos^2 \phi - \sin^2 \phi & \cos^2 \theta \sin \phi \cos \phi + \sin \phi \cos \phi & -\sin \theta \cos \theta \cos \phi \\ \cos^2 \theta \sin \phi \cos \phi + \sin \phi \cos \phi & \cos^2 \theta \sin^2 \phi - \cos^2 \phi & -\sin \theta \cos \theta \sin \phi \\ -\sin \theta \cos \theta \cos \phi & -\sin \theta \cos \theta \sin \phi & \sin^2 \theta \end{pmatrix}, \quad (12)$$

$$\varepsilon^{(2)} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} -2 \cos \theta \sin \phi \cos \phi & \cos \theta \cos^2 \phi - \cos \theta \sin^2 \phi & \sin \theta \sin \phi \\ \cos \theta \cos^2 \phi - \cos \theta \sin^2 \phi & 2 \cos \theta \sin \phi \cos \phi & -\sin \theta \cos \phi \\ \sin \theta \sin \phi & -\sin \theta \cos \phi & 0 \end{pmatrix}. \quad (13)$$

Таким образом, в линеаризованной теории все угловые корреляции в процессе рассеяния гравитационной волны полностью определяются матрицами двух возможных поляризаций (12), (13).

3. S-МАТРИЧНЫЙ ПОДХОД ДЛЯ ОПИСАНИЯ РАССЕЯНИЯ ГРАВИТОНА НА СВЯЗАННЫХ СОСТОЯНИЯХ

Выражение для сечения процесса двухфотонной конверсии на связанном электроны может быть получено из рассмотрения элемента S -матрицы, соответствующего процессу возбуждения атомного электрона гравитоном, за которым следует излучение двух фотонов, см. рис. 1. Согласно правилам Фейнмана в импульсном пространстве для линеаризованной теории гравитации, см. [24, 25], соответствующая вершина взаимодействия квантованного гравитационного поля со спинорным полем задается выражением [26, 27]

$$\Gamma^{\mu\nu} = -\frac{i\kappa}{8} [(p_1 + p_2)^\mu \gamma^\nu + \gamma^\mu (p_1 + p_2)^\nu - 2\eta^{\mu\nu} (\not{p}_1 + \not{p}_2 - 2m)]. \quad (14)$$

Здесь $\kappa = \sqrt{32\pi G}$, где G — гравитационная постоянная; $\gamma_\mu = (\gamma_0, \boldsymbol{\gamma})$ — дираковские матрицы; p_1 и p_2 — 4-импульсы входящей и выходящей спинорной

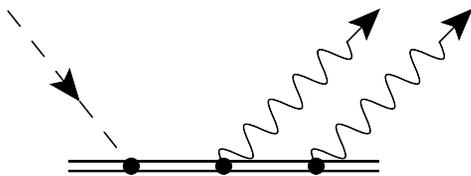


Рис. 1. Диаграмма Фейнмана, описывающая конверсию налетающего гравитона (штриховая линия) в два фотона (волнистые линии) на связанном атомном электроны в картине Фарри (двойная сплошная линия)

тах для произвольного направления вектора \mathbf{k}_g , которое задается сферическими углами θ и ϕ [23]:

частиц соответственно). Взаимодействие спинорно-го и фотонного полей задается стандартной вершиной $-ie\gamma^\mu$. Учитывая закон сохранения $p_2 = p_1 - k_1$ в вершине фермион–гравитон, условие поперечности (11), свойства тензора поляризации гравитона в ТТ-калибровке, соответствующий диаграмме рис. 1 элемент S -матрицы в координатном представлении можно записать в виде

$$\hat{S}_{if}^{(3)} = (-ie)^2 \left(-\frac{ik}{2} \right) \int d^4x_3 d^4x_2 d^4x_1 \bar{\psi}_f(x_3) \times \\ \times \gamma^{\mu_3} A_{\mu_3}^*(x_3) S(x_3, x_2) \gamma^{\mu_2} A_{\mu_2}^*(x_2) S(x_2, x_1) \times \\ \times (-i\partial^{\nu_1}) \psi_i(x_1) \gamma^{\mu_1} h_{\mu_1\nu_1}(x_1). \quad (15)$$

В выражении (15) учтено, что оператор импульса, входящий в $\Gamma^{\mu\nu}$, в координатном представлении переходит в оператор $-i\partial_\mu$; $\psi_a(x) = \psi_a(\mathbf{r})e^{-i\mathcal{E}_a t}$, $\psi_a(\mathbf{r})$ — решение уравнения Дирака для связанного электрона, \mathcal{E}_a — дираковская энергия, $\bar{\psi}$ обозначает дираковское сопряжение, $S(x_1, x_2)$ — электронный пропагатор, $A_\mu(x)$ — волновая функция фотона в координатном представлении [28],

$$A_\mu(x) = \frac{1}{\sqrt{2\omega_\gamma}} \epsilon_\mu^{(\lambda_\gamma)} e^{-ikx}. \quad (16)$$

В уравнении (16) k — 4-вектор импульса фотона $(\omega_\gamma, \mathbf{k}_\gamma)$, \mathbf{k}_γ — волновой вектор фотона, $\omega_\gamma = |\mathbf{k}_\gamma|$ — энергия фотона, x^μ — пространственный 4-вектор. Для компонент 4-вектора поляризации фотона введено обозначение $\epsilon_\mu^{(\lambda_\gamma)}$ ($\lambda_\gamma = 0, 1, 2, 3$), где A_μ соответствует поглощенному фотону, а A_μ^* (комплексно сопряженная функция) — испущенному фотону. В полной аналогии с (16) волновая функция гравитона $h_{\mu\nu}(x)$ в выражении (15) записывается в виде

$$h_{\mu\nu}(x) = \frac{1}{\sqrt{2\omega_g}} \varepsilon_{\mu\nu}^{(\lambda_g)} e^{-ikx}, \quad (17)$$

где $\omega_g = |\mathbf{k}_g|$ — энергия гравитона, $\varepsilon_{\mu\nu}^{(\lambda_g)}$ — компоненты тензора поляризации, см. уравнения (12) и (13). Разложение электронного пропагатора $S(x_1, x_2)$ в уравнении (15) по одноэлектронным собственным состояниям дираковского гамильтониана для атома водорода удобно записать следующим образом [28]:

$$S(x_1, x_2) = \frac{i}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\Omega e^{-i\Omega(t_1-t_2)} \sum_n \frac{\psi_n(\mathbf{r}_1) \bar{\psi}_n(\mathbf{r}_2)}{\Omega - \mathcal{E}_n(1-i0)}, \quad (18)$$

где сумма по n подразумевает суммирование по всему дираковскому спектру для электрона в кулоновском поле ядра, включая континуум.

Описание реальных фотонов также подразумевает условие поперечности $k^\mu \epsilon_\mu = 0$, $k^2 = k_\mu k^\mu = 0$. Тогда для фотонной волны, распространяющейся вдоль оси z , существуют две независимые поляризации:

$$\epsilon^{(1)} = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \epsilon^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (19)$$

Для произвольного направления волнового вектора \mathbf{k}_γ , задаваемого сферическими углами θ и ϕ , пространственная часть этих векторов поляризации может быть найдена путем поворота оси z в направлении \mathbf{k}_γ . Это приводит к следующей параметризации:

$$\epsilon^{(1)} = \begin{pmatrix} \cos\theta \cos\phi \\ \cos\theta \sin\phi \\ -\sin\theta \end{pmatrix}, \quad \epsilon^{(2)} = \begin{pmatrix} -\sin\phi \\ \cos\phi \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (20)$$

Отметим, что два тензора поляризации гравитона, заданные уравнениями (12) и (13), могут быть получены из выражений (20) как линейная комбинация тензорных произведений:

$$\varepsilon^{(1)} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\epsilon^{(1)} \otimes \epsilon^{(1)} - \epsilon^{(2)} \otimes \epsilon^{(2)}), \quad (21)$$

$$\varepsilon^{(2)} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\epsilon^{(1)} \otimes \epsilon^{(2)} + \epsilon^{(2)} \otimes \epsilon^{(1)}). \quad (22)$$

Подставляя выражения (18), (17) и (16) в уравнение (15) и проводя интегрирование по временным переменным и частотам электронных пропагаторов, получаем

$$\hat{S}_{if}^{(3)} = -2\pi i \delta(\mathcal{E}_f - \mathcal{E}_i + \omega_2 + \omega_1 - \omega_g) U_{if}^{(3)}, \quad (23)$$

где введено обозначение для амплитуды процесса

$$U_{if}^{(3)} = \frac{\kappa e^2}{4\sqrt{2}\omega_g\omega_{\gamma_1}\omega_2} \times \sum_{n_1, n_2} \left[\frac{\langle f | \alpha \epsilon_2^{*(\lambda_2)} e^{i\mathbf{k}_2 \mathbf{r}} | n_2 \rangle \langle n_2 | \alpha \epsilon_1^{*(\lambda_1)} e^{i\mathbf{k}_1 \mathbf{r}} | n_1 \rangle}{\mathcal{E}_f + \omega_2 - \mathcal{E}_{n_2}} + \frac{\langle f | \alpha \epsilon_1^{*(\lambda_1)} e^{i\mathbf{k}_1 \mathbf{r}} | n_2 \rangle \langle n_2 | \alpha \epsilon_2^{*(\lambda_2)} e^{i\mathbf{k}_2 \mathbf{r}} | n_1 \rangle}{\mathcal{E}_f + \omega_1 - \mathcal{E}_{n_2}} \right] \times \frac{\langle n_1 | p_i \alpha_j \epsilon_{ij}^{(\lambda_g)} e^{i\mathbf{k}_g \mathbf{r}} | i \rangle}{\mathcal{E}_i + \omega_g - \mathcal{E}_{n_1}}. \quad (24)$$

Здесь мы опустили бесконечно малую часть в знаменателях уравнения (18) для краткости, а индексы $n_{1(2)}$, i и f подразумевают набор всех квантовых чисел, описывающих промежуточные, начальные и конечные атомные состояния соответственно. Второй член в квадратных скобках выражения (24) возникает при учете перестановок фотонных вершин на рис. 1 между собой. Оставшиеся четыре члена, возникающие из полного набора всех шести калибровочно-инвариантных фейнмановских диаграмм и учитывающие также перестановки фотонных вершин с гравитоном, представляют собой малые нерезонансные поправки к амплитуде резонансного рассеяния [28, 29]. Таким образом, амплитуда (24) выписана в резонансном приближении [28, 29].

Если перейти к нерелятивистскому пределу с помощью преобразования Фолди–Вутхайзена, что в первом порядке подразумевает $\psi^+ \alpha \psi \approx \phi^+ \frac{\hat{\mathbf{p}}}{m} \phi$, где ϕ — решение уравнения Шредингера с соответствующим нерелятивистским собственным значением E , и учесть, что $\mathbf{k} \mathbf{r} \ll 1$, то уравнение (24) упрощается до

$$U_{if}^{(3)} = \frac{\kappa e^2}{4\sqrt{2}\omega_g\omega_{\gamma_1}\omega_2} \times \sum_{n_1, n_2} \left[\frac{\langle f | \epsilon_2^{*(\lambda_2)} \mathbf{p} | n_2 \rangle \langle n_2 | \epsilon_1^{*(\lambda_1)} \mathbf{p} | n_1 \rangle}{E_f + \omega_2 - E_{n_2}} + \frac{\langle f | \epsilon_1^{*(\lambda_1)} \mathbf{p} | n_2 \rangle \langle n_2 | \epsilon_2^{*(\lambda_2)} \mathbf{p} | n_1 \rangle}{E_f + \omega_1 - E_{n_2}} \right] \times \frac{\langle n_1 | \epsilon_{ij} p_i p_j | i \rangle}{E_i + \omega_g - E_{n_1}}. \quad (25)$$

Здесь, в отличие от уравнения (24), предполагается, что матричные элементы вычисляются уже с нерелятивистскими волновыми функциями и нерелятивистским спектром энергий.

Поскольку нас интересует конкретный процесс рассеяния

$$1s + g \rightarrow 3d \rightarrow 1s + \gamma_1 + \gamma_2,$$

следует положить $i = f = 1s$ и $n_1 = 3d$. Тогда согласно правилам отбора для матричных элементов дипольного оператора немедленно следует, что разрешены только переходы в промежуточные состояния с $n_2 = np$. Используя известное коммутационное соотношение $p_i = i[H_S, r_i]$ и применяя условие полноты

$$\sum_n |n\rangle\langle n| = 1$$

в матричном элементе, включающем только пространственные компоненты оператора $\epsilon_{ij}p_i p_j$, уравнение (25) можно переписать в «форме длины» следующим образом:

$$U_{if}^{(3)} = \frac{\kappa e^2 \omega_2 \omega_1 \omega_g^2}{4\sqrt{2\omega_g \omega_{\gamma_1} \omega_2}} \mathcal{M}(\omega_1, \omega_2). \quad (26)$$

Здесь и далее используется обозначение для амплитуды процесса:

$$\begin{aligned} \mathcal{M}(\omega_1, \omega_2) = & \sum_{n, m_p, m_d} \times \\ & \times \left[\frac{\langle 1s | \epsilon_2^{*(\lambda_2)} \mathbf{r} | np, m_p \rangle \langle np, m_p | \epsilon_1^{*(\lambda_1)} \mathbf{r} | 3d, m_d \rangle}{E_{1s} + \omega_2 - E_{np}} + \right. \\ & \left. + \frac{\langle 1s | \epsilon_1^{*(\lambda_1)} \mathbf{r} | np, m_p \rangle \langle np, m_p | \epsilon_2^{*(\lambda_2)} \mathbf{r} | 3d, m_d \rangle}{E_{1s} + \omega_1 - E_{np}} \right] \times \\ & \times \frac{\langle 3d, m_d | \epsilon_{ij}^{(\lambda_g)} r_i r_j | 1s \rangle}{E_{1s} + \omega_g - E_{3d} + i\frac{\Gamma_{3d}}{2}}, \quad (27) \end{aligned}$$

где m_p и m_d — магнитные квантовые числа состояний с p - и d -орбитальными моментами соответственно. Важно отметить, что в нерелятивистском выражении (25) вклад, возникающий при суммировании по отрицательному спектру, в точности сокращается при переходе от формы скорости к «форме длины» (27) при использовании упомянутого коммутационного соотношения. Подробное обсуждение соответствующих преобразований можно найти в книге [30] (см. уравнение (29.37) в главе 29.8, а также главу 35) и работах [31, 32].

Дифференциальное сечение рассеяния может быть получено из квадрата модуля амплитуды (23) с последующим его умножением на соответствующие фазовые объемы двух излученных фотонов $\frac{d^3 \mathbf{k}_1}{(2\pi)^3} \frac{d^3 \mathbf{k}_2}{(2\pi)^3}$. Если поляризации частиц в начальных и конечных состояниях считаются неизвестными, то

также необходимо выполнить дополнительное суммирование по всем возможным поляризациям каждой из частиц, участвующих в рассматриваемом процессе. Это приводит к следующему выражению для сечения:

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\omega_1 d\Omega_1 d\Omega_2} = & \frac{\alpha^2 l_p^2}{2\pi^2} (\omega_1 \omega_g)^3 (\omega_g - \omega_1)^3 \times \\ & \times \sum_{\lambda_1, \lambda_2, \lambda_g} |\mathcal{M}(\omega_1, \omega_g - \omega_1)|^2, \quad (28) \end{aligned}$$

где учтено, что $\kappa^2 = 32\pi G = 32\pi l_p^2$ и $e^2 = 4\pi\alpha$.

Если провести суммирование по поляризациям в уравнении (28) и проекциям угловых моментов промежуточных состояний, с использованием теоремы Вигнера – Экарта [33], а также выполнить угловое интегрирование в матричных элементах, то радиальная и угловая зависимости сечения рассеяния факторизуются следующим образом:

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\omega_1 d\Omega_1 d\Omega_2} = & \frac{\alpha^2 l_p^2}{2\pi^2} (\omega_1 \omega_g)^3 (\omega_g - \omega_1)^3 \times \\ & \times \left| \sum_n \left(\frac{D_{1s;np} D_{np;1s}}{E_{1s} + \omega_1 - E_{np}} + \frac{D_{1s;np} D_{np;1s}}{E_{1s} + \omega_g - \omega_1 - E_{np}} \right) \right|^2 \times \\ & \times \frac{Q_{3d;1s}^2}{(E_{3d} - E_{1s} - \omega_g)^2 + \frac{\Gamma_{3d}^2}{4}} A(\theta_1, \phi_1, \theta_2, \phi_2, \theta_g, \phi_g). \quad (29) \end{aligned}$$

Множитель, определяющий корреляцию между направлениями падающего гравитона и излучаемых фотонов, дается выражением

$$\begin{aligned} A(\theta_1, \phi_1, \theta_2, \phi_2, \theta_g, \phi_g) = & \frac{1}{28800} \left[8 \sin^2 \theta_1 \sin^2 \theta_g \times \right. \\ & \times \cos 2(\phi_1 - \phi_g) + 8 \sin 2\theta_1 \sin 2\theta_g \cos(\phi_1 - \phi_g) + \\ & + 3 \cos 2(\theta_1 - \theta_g) + 3 \cos 2(\theta_1 + \theta_g) + \\ & \left. + 2 \cos 2\theta_1 + 2 \cos 2\theta_g + 22 \right] \times \\ & \times \left[8 \sin^2 \theta_2 \sin^2 \theta_g \cos 2(\phi_2 - \phi_g) + \right. \\ & + 8 \sin 2\theta_2 \sin 2\theta_g \cos(\phi_2 - \phi_g) + \\ & \left. + 3 \cos 2(\theta_2 - \theta_g) + 3 \cos 2(\theta_2 + \theta_g) + \right. \\ & \left. + 2 \cos 2\theta_2 + 2 \cos 2\theta_g + 22 \right], \quad (30) \end{aligned}$$

где θ_g, ϕ_g — сферические углы, определяющие направление налетающего на атом гравитона, θ_i, ϕ_i ($i = 1, 2$) — сферические углы, определяющие направление вылета излучаемых фотонов. Суммирование по n в выражении (29) подразумевает как суммирование как по дискретным состояниям, так и интегрирование по импульсу непрерывных состояний радиальных решений уравнения Шредингера

для атома водорода. Дипольные и квадрупольные радиальные матричные элементы в (29) определяются следующим образом:

$$D_{n'l';nl} = \int_0^\infty dr r^3 R_{n'l'}(r)R_{nl}(r), \quad (31)$$

$$Q_{n'l';nl} = \int_0^\infty dr r^4 R_{n'l'}(r)R_{nl}(r). \quad (32)$$

Структура полученного сечения рассеяния гравитона на атоме водорода аналогична структуре сечения рассеяния фотона при поглощении в линии $1s \rightarrow 3d$ с последующим двухфотонным переизлучением в распаде $3d \rightarrow 1s + \gamma(E1) + \gamma(E1)$ [34]. Единственное отличие заключается в том, что угловая корреляция, определяемая выражением (30), имеет иную угловую зависимость вследствие тензорной структуры поляризации гравитона. Следует к тому же принять во внимание, что в эксперименте по рассеянию гравитона такой переход мог бы быть вызван также «паразитным» чернотельным излучением, неизбежно действующим на атомную систему. Следовательно, помимо различного углового распределения в этих двух процессах важно понять, до какой температуры стены предполагаемой установки должны быть охлаждены, чтобы однозначно подавить такое воздействие. Оценку скорости поглощения тепловых фотонов в квадрупольном переходе $1s - 3d$, обозначаемую далее как $W_{1s3d}^{E2,abs}$, следует сравнить с соответствующим поглощением гравитонов W_{1s3d}^g в этой же линии. Скорость поглощения $W_{1s3d}^{E2,abs}$ относится к скоростям спонтанных, $W_{3d1s}^{E2,spont} = 594 \text{ с}^{-1}$ [35], и индуцированных, $W_{3d1s}^{E2,ind}$, излучений согласно соотношениям

$$W_{1s3d}^{E2,abs} = \frac{g_{1s}}{g_{3d}} W_{3d1s}^{E2,ind} = \frac{g_{1s}}{g_{3d}} W_{3d1s}^{E2,spont} \frac{1}{e^{\frac{\omega_{3d1s}}{k_B T}} - 1}, \quad (33)$$

где заселенность уровня $g_a = 2(2l_a + 1)$, k_B — постоянная Больцмана, T — температура в кельвинах. При $T = 300 \text{ К}$ (комнатные температуры) вероятность поглощения тепловых фотонов в единицу времени $W_{1s3d}^{E2,abs} \sim 10^{-200} \text{ с}^{-1}$ и, следовательно, может считаться пренебрежимо малой, поскольку $W_{3d1s}^{E2,ind} \ll W_{1s3d}^g$. С учетом этого рассеяние гравитонов в линии $1s - 3d$ более предпочтительно, чем рассеяние тепловых фотонов в этом же переходе при типичных комнатных температурах.

Полученные угловые зависимости (30) значительно упрощаются, если предположить, что нале-

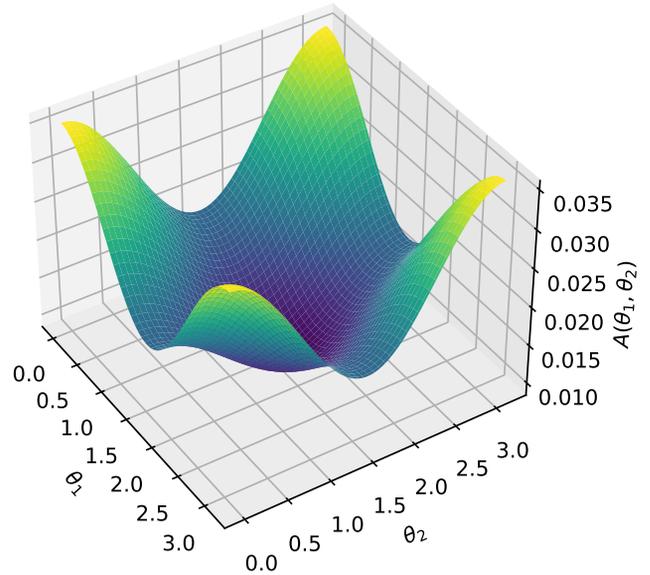


Рис. 2. (В цвете онлайн) Функция углового распределения $A(\theta_1, \theta_2, \theta_g = 0, \phi_g = 0)$ рассеянных фотонов для случая распространения гравитона вдоль оси z , см. выражение (34)

тающий гравитон распространяется вдоль оси z , т. е. полагая $\theta_g = 0$ и $\phi_g = 0$. Тогда ориентация двух испускаемых фотонов не зависит ни от одного из азимутальных углов ϕ_1 и ϕ_2 , что упрощает корреляционный фактор в уравнении (30) до следующего выражения:

$$A(\theta_1, \theta_2, \theta_g = 0, \phi_g = 0) = \frac{1}{450} (3 + \cos(2\theta_1))(3 + \cos(2\theta_2)). \quad (34)$$

Соответствующее графическое изображение углового распределения представлено на рис. 2.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Рассматривая атом водорода в качестве примера и применяя квантовоэлектродинамический подход в сочетании с линеаризованной квантовой теорией гравитации, мы получили выражения для сечения процесса двухфотонной конверсии и соответствующих угловых корреляций. В рассматриваемом сценарии в качестве источника гравитонов без потери общности может выступать любой массивный астрофизический объект. В частности, в последние годы в литературе обсуждались вопросы, связанные с выбросом гравитонов из бинарных первичных черных дыр (Primordial Black Holes — PBH) в ранней Вселенной или возникающих за счет испарения PBH [36]. Такие гравитоны могут вносить

вклад в стохастический фон гравитационных волн. При этом спектр такого излучения зависит как от массы и спина черных дыр, так и от их красного смещения [37]. То же самое относится и к ситуации, рассмотренной в работе [38], где исследовались возмущения атомов водорода гравитонами в реликтовой плазме. В [38] гравитоны, испускаемые водородом и гелием в ранней Вселенной в процессе рекомбинации, рассматривались в качестве возможного источника гравитационных волн высокой частоты. Проведенные расчеты показали, что наиболее заметный вклад дается переходом $3d - 1s$ однократно ионизированного гелия He^+ , который приводит к пику в планковском распределении на частоте 1013 Гц. Однако, как было показано авторами исследования, соответствующая плотность энергии слишком мала для обнаружения.

В предлагаемом здесь сценарии, когда атом водорода служит детектором налетающих гравитонов, анализ угловых корреляций в процессе неупругого рассеяния мог бы послужить средством определения природы частицы, служащей источником возбуждения атома. Тем не менее практическая реализация такого детектора в лабораторных условиях затруднена из-за крайне малого поперечного сечения процесса.

Последнее обстоятельство, по всей видимости, не кажется столь безнадежным, если применить схему эксперимента с лазерным усилением слабого сигнала, аналогичную той, что ранее обсуждалась в работах [39–41]. Следуя [40], рассмотрим систему трехуровневых атомов. Предполагается, что эти атомы находятся в специально сконструированном оптическом резонаторе, в котором имеется резонансная, сигнальная мода на частоте перехода $1s - 3d$, а также две резонансные моды на частоте перехода $3d - 4p$. В отсутствие населенности на уровнях $3d$ и $4p$ две последние моды вырождены по частоте и не связаны друг с другом. При этом одна из этих двух мод (мода накачки $3d - 4p$) возбуждена, т. е. содержит сильное монохроматическое поле накачки, задаваемое внешним источником (лазером). Вторая мода предназначена для возбуждения выходного сигнала — в дальнейшем будем ее называть выходной ($4p - 3d$). В начальном состоянии, т. е. до прихода сигнала, она не возбуждена и никаких полей не содержит. Принцип действия детектора заключается в следующем. До прихода сигнала в сигнальную моду атом, не будучи в резонансе с полем накачки и практически с ним не взаимодействуя, остается в основном состоянии $1s$. После прихода сигнала на частоте ω_{1s3d} на уровне $3d$ появляется некоторая населенность. При

этом под действием сильного поля накачки начинаются переходы между уровнями $3d$ и $4p$ и возникает осциллирующий дипольный момент на частоте ω_{3d4p} , который возбуждает поле в выходной моде. Задача состоит в том, чтобы продемонстрировать, что выходной сигнал может быть существенно больше входного, и определить характерное время возрастания выходного сигнала. Проведенные в работе [42] соответствующие оценки показали, что при числе фотонов в моде накачки, равном 100, и одном фотоне в сигнальной моде в рассматриваемой схеме под влиянием слабого сигнала уровень возбуждения выходной моды за время $\tau = 10^{-8}$ с достигает уровня возбуждения моды накачки, и следовательно, имеет высокую чувствительность [43]. Эффективность такой схемы для случая, если сигнальная мода возбуждается гравитоном, требует отдельного рассмотрения. При этом важно отметить, что число гравитонов в классической низкочастотной гравитационной волне может быть очень большим (порядка 10^{36} , см., например, [19]).

Несмотря на рассмотренные нами ограничения при детектировании одиночного гравитона, стоит подчеркнуть, что разработанный в работе подход к описанию угловых корреляций может быть применен для любой другой гипотетической тензорной частицы со спином 2 и константой связи более высокого порядка. Несмотря на то, что сечение рассеяния гравитонов пропорционально квадрату планковской длины, исследования такого рода продолжают. В частности, недавно было предложено увеличить чувствительность обнаружения гравитонов в лабораторных экспериментах, используя возмущения массивного ансамбля атомов [19]. Приведенные в [19] оценки вероятностей поглощения гравитонов в различных средах дают надежду на реализацию предложенного авторами подхода.

Финансирование. Работа выполнена в рамках государственного задания САО РАН, утвержденного Министерством науки и высшего образования Российской Федерации. Работа Т. А. З. поддержана фондом развития математики и теоретической физики «БАЗИС» (грант № 23-1-3-31-1).

ЛИТЕРАТУРА

1. S. Weinberg, *Gravitation and Cosmology: Principles and Applications of the General Theory of Relativity*, Wiley (1972).

2. A. Lightman, W. Press, R. Price, and S. Teukolsky, *Problem Book in Relativity and Gravitation*, Princeton University Press (2017).
3. S. Bose, I. Fuentes, A. A. Geraci, S. M. Khan, S. Qvarfort, M. Rademacher, M. Rashid, M. Toroš, H. Ulbricht, and C. C. Wanjura, *Massive Quantum Systems as Interfaces of Quantum Mechanics and Gravity*, arXiv: 2311.09218 [quant-ph].
4. N. Arkani-Hamed, S. Dimopoulos, and G. Dvali, *The Hierarchy Problem and New Dimensions at a Millimeter*, Phys. Lett. B **429**, 263 (1998).
5. S. Dimopoulos and G. Landsberg, *Black Holes at the Large Hadron Collider*, Phys. Rev. Lett. **87**, 161602 (2001).
6. S. Bose, A. Mazumdar, G. W. Morley, H. Ulbricht, M. Toroš, M. Paternostro, A. A. Geraci, P. F. Barker, M. S. Kim, and G. Milburn, *Spin Entanglement Witness for Quantum Gravity*, Phys. Rev. Lett. **119**, 240401 (2017).
7. F. Gunnink, A. Mazumdar, M. Schut, and M. Toroš, *Gravitational Decoherence by the Apparatus in the Quantum-Gravity-Induced Entanglement of Masses*, Class. Quant. Grav. **40**, 235006 (2023).
8. T. W. van de Kamp, R. J. Marshman, S. Bose, and A. Mazumdar, *Quantum Gravity Witness via Entanglement of Masses: Casimir Screening*, Phys. Rev. A **102**, 062807 (2020).
9. S. G. Elahi and A. Mazumdar, *Probing Massless and Massive Gravitons via Entanglement in a Warped Extra Dimension*, Phys. Rev. D **108**, 035018 (2023).
10. L. Asprea, A. Bassi, H. Ulbricht, and G. Gasbarri, *Gravitational Decoherence and the Possibility of Its Interferometric Detection*, Phys. Rev. Lett. **126**, 200403 (2021).
11. G. Amelino-Camelia, J. Ellis, N. E. Mavromatos, D. V. Nanopoulos, and S. Sarkar, *Tests of Quantum Gravity from Observations of Γ -Ray Bursts*, Nature **393**, 763 (1998).
12. M. Kamionkowski and E. D. Kovetz, *The Quest for B Modes from Inflationary Gravitational Waves*, Ann. Rev. Astron. Astrophys. **54**, 227 (2016).
13. E. Komatsu, *Hunting for Primordial Non-Gaussianity in the Cosmic Microwave Background*, Class. Quant. Grav. **27**, 124010 (2010).
14. R. Lieu and L. W. Hillman, *The Phase Coherence of Light from Extragalactic Sources: Direct Evidence against First-Order Planck-Scale Fluctuations in Time and Space*, Astrophys. J. **585**, 77 (2003).
15. R. Ragazzoni, M. Turatto, and W. Gaessler, *The Lack of Observational Evidence for the Quantum Structure of Spacetime at Planck Scales*, Astrophys. J. **587**, 1 (2003).
16. F. Dyson, *Is a Graviton Detectable?*, Int. J. Mod. Phys. A **28**, 1330041 (2013).
17. S. Boughn and T. Rothman, *Aspects of Graviton Detection: Graviton Emission and Absorption by Atomic Hydrogen*, Class. Quant. Grav. **23**, 5839 (2006).
18. T. Rothman and S. Boughn, *Can Gravitons Be Detected?*, Found. Phys. **36**, 1801 (2006).
19. G. Tobar, S. K. Manikandan, T. Beitel, and I. Pikovski, *Detecting Single Gravitons with Quantum Sensing*, arXiv: 2308.15440 [quant-ph].
20. L. M. Krauss and F. Wilczek, *Using Cosmology to Establish the Quantization of Gravity*, Phys. Rev. D **89**, 047501 (2014).
21. L. Landau and E. Lifshitz, *The Classical Theory of Fields*, Vol. 2, *Course of Theoretical Physics*, Elsevier Science (1975).
22. J. F. Donoghue, M. M. Ivanov, and A. Shkerin, *EPFL Lectures on General Relativity as a Quantum Field Theory*, arXiv: 1702.00319 [hep-th].
23. J. P. Pitelli and T. R. Perche, *Angular Momentum Based Graviton Detector*, Phys. Rev. D **104**, 065016 (2021).
24. J. Ramos, M. de Montigny, and F. C. Khanna, *On a Lagrangian Formulation of Gravitoelectromagnetism*, Gen. Relat. Grav. **42**, 2403 (2010).
25. S. Y. Choi, J. S. Shim, and H. S. Song, *Factorization and Polarization in Linearized Gravity*, Phys. Rev. D **51**, 2751 (1995).
26. J. F. Donoghue, *The Effective Field Theory Treatment of Quantum Gravity*, in AIP Conf. Proc. **1483**, 73 (2012).
27. D. Prinz, *Gravity-Matter Feynman Rules for Any Valence*, Class. Quant. Grav. **38**, 215003 (2021).

28. O. Y. Andreev, L. N. Labzowsky, G. Plunien, and D. A. Solovyeu, *QED Theory of the Spectral Line Profile and Its Applications to Atoms and Ions*, Phys. Rep. **455**, 135 (2008).
29. A. Anikin, T. Zalialiutdinov, and D. Solovyeu, *Angular Correlations in Two-Photon Spectroscopy of Hydrogen*, Phys. Rev. A **103**, 022833 (2021).
30. A. I. Akhiezer and V. B. Berestetskii, *Quantum Electrodynamics*, Wiley-Interscience, New York (1965).
31. U. D. Jentschura, *Nonresonant Two-Photon Transitions in Length and Velocity Gauges*, Phys. Rev. A **94**, 022117 (2016).
32. U. D. Jentschura and C. M. Adhikari, *Relativistic and Radiative Corrections to the Dynamic Stark Shift: Gauge Invariance and Transition Currents in the Velocity Gauge*, Phys. Rev. A **97**, 062120 (2018).
33. D. A. Varshalovich, A. N. Moskalev, and V. K. Khersonskii, *Quantum Theory of Angular Momentum*, World Scientific, Singapore (1988).
34. D. Solovyeu and L. Labzowsky, *Two-Photon Approximation in the Theory of Electron Recombination in Hydrogen*, Phys. Rev. A **81**, 062509 (2010).
35. W. L. Wiese and J. R. Fuhr, *Accurate Atomic Transition Probabilities for Hydrogen, Helium, and Lithium*, J. Phys. Chem. Ref. Data **38**, 565 (2009).
36. L. A. Anchordoqui, I. Antoniadis, and D. Lüst, *The Dark Universe: Primordial Black Hole – Dark Graviton Gas Connection*, Phys. Lett. B **840**, 137844 (2023).
37. A. Ireland, S. Profumo, and J. Scharnhorst, *Primordial Gravitational Waves from Black Hole Evaporation in Standard and Nonstandard Cosmologies*, Phys. Rev. D **107**, 104021 (2023).
38. J. Hu and H. Yu, *High Frequency Background Gravitational Waves from Spontaneous Emission of Gravitons by Hydrogen and Helium*, Europ. Phys. J. C **81**, 470 (2021).
39. В. П. Быков, В. К. Дубрович, *Отношение сигнал–шум при однофотонных и многофотонных переходах*, Кратк. сообщ. по физике ФИАН **9**, 11 (1989).
40. В. П. Быков, *Релаксация при оптическом детектировании*, Крат. сообщ. по физике ФИАН **9**, 10 (1999).
41. В. П. Быков, *Фотоотсчеты и лазерное детектирование слабых оптических сигналов*, УФН **175**, 495 (2005).
42. В. П. Быков, *Лазерная электродинамика*, Физматлит, Москва (2006).
43. V. P. Bykov and S. S. Postnov, *Specific Features of the Quantum Picture of Laser Detection of Optical Signals*, Phys. Wave Phenomena **2**, 81 (2010).

ИНТЕРФЕРЕНЦИОННАЯ ПОПРАВКА К ОПТИЧЕСКОМУ КОНДАКТАНСУ МАГНИТОАКТИВНОЙ СРЕДЫ С РАССЕИВАЮЩИМИ НЕОДНОРОДНОСТЯМИ

Е. Е. Городничев^{a}, Д. Б. Рогожкин^{a,b**}*

^a *Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»
115409, Москва, Россия*

^b *Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н. Л. Духова (ВНИИА)
127055, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 26 марта 2024 г.,
после переработки 15 мая 2024 г.
Принята к публикации 16 мая 2024 г.

Вычислен интерференционный вклад в оптический кондактанс (полное пропускание) неупорядоченного образца. Показано, что причиной подавления интерференции волн в среде являются акты рассеяния с переворотом спиральности. Вследствие этого, при резонансном изменении сечения этого процесса, как в случае рассеяния на частицах Ми в окрестности первой точки Керкера, спектральная зависимость интерференционного вклада также приобретает резонансный характер. При распространении волн через магнитоактивную среду приложенное магнитное поле не нарушает интерференции волн с заданной спиральностью, но подавляет ее, если спиральность на различных участках траектории меняется. Это приводит к уменьшению интерференционного вклада в кондактанс с ростом магнитного поля. Аналогичное явление — отрицательное магнитосопротивление — известно как следствие слабой локализации электронов в металлах с примесями. Обнаружено, что с ростом магнитного поля изменение интерференционной поправки к оптическому кондактансу стремится к некоторому предельному значению, зависящему от отношения транспортной длины свободного пробега к длине рассеяния с переворотом спиральности. Обсуждается возможность управления с помощью поля переходом к режиму сильной «андерсоновской» локализации в квазиодномерном случае (магнитоактивный волновод).

DOI: 10.31857/S0044451024090037

1. ВВЕДЕНИЕ

Оптические аналоги мезоскопических эффектов, наблюдаемых при транспорте электронов в твердотельных структурах [1, 2], лежат в основе многих современных достижений в манипуляции когерентными световыми полями [3]. В качестве примеров, иллюстрирующих аналогию между оптическими и квантовыми электронными явлениями, можно указать андерсоновскую локализацию света в случайных слоистых структурах [4, 5], оптические таммовские состояния в фотонных кристаллах [6], универсальные флуктуации оптического кондактанса [7, 8], топологические эффекты в фотонных системах [9].

Как известно [2], интерференция обращенных во времени волн приводит к эффекту слабой локализации. Для электронных волн в твердом теле этот эффект приводит к уменьшению проводимости. При наложении внешнего магнитного поля, которое нарушает инвариантность относительно обращения времени и подавляет интерференцию, эффект слабой локализации проявляется в виде отрицательного магнитосопротивления [2, 10, 11]. Для электромагнитного излучения интерференция волн, проходящих по обращенным во времени траекториям, является причиной такого известного явления, как когерентное усиление обратного рассеяния [2, 12]. Этот эффект проявляется в виде резкого пика в интенсивности света, рассеянного в направлении точно назад. Наряду с когерентным обратным рассеянием, интерференция обращенных во времени волн должна приводить к оптическому ана-

* E-mail: gorodn@theor.mephi.ru

** E-mail: rogozkin@theor.mephi.ru

логу эффекта уменьшения электронной проводимости — возникновению отрицательной поправки к оптическому кондактансу. Он определяется как произведение коэффициента пропускания от диффузного источника на число распространяющихся мод. Хотя оптический кондактанс обсуждался во многих теоретических и экспериментальных работах (см. [8, 12]) в контексте изучения его флуктуаций в Q1D-системах (волноводах), вклад эффекта слабой локализации электромагнитных волн в кондактанс до сих пор не изучен. В отличие от электронов, для которых известны различные способы манипуляции интерференционным вкладом в кондактанс [10, 11, 13], применительно к оптическому кондактансу этот вопрос не рассматривался.

Согласно [14–17], параметрами, которые управляют интерференцией волн в среде, являются длины затухания различных поляризационных мод. Соответствующие длины зависят от оптических характеристик отдельных рассеивателей и приложенного внешнего магнитного поля, если речь идет о рассеивателях в магнитоактивной матрице. Существенное влияние на интерференцию обращенных во времени волн оказывают процессы деполяризации с изменением спиральности [14, 15]. Поэтому сильное изменение интерференционного вклада в оптический кондактанс должно происходить в окрестности первой точки Керкера в области резонансного рассеяния M_1 , где сечение рассеяния с переверотом спиральности резко меняется в зависимости от длины волны [18]. С процессами рассеяния с переверотом спиральности напрямую связан и механизм разрушения интерференции волн в магнитном поле [19–22]. Влияние магнитного поля на интерференцию обусловлено эффектом Фарадея. В отличие от электронных волн, интерференция которых всегда нарушается магнитным полем, приложенное поле вообще не влияет на интерференцию оптических волн, если их спиральность не меняется [21, 22]. Механизм разрушения интерференции полем включает только из-за процесса деполяризации — рассеяния с переверотом спиральности. Для волн с противоположной спиральностью обусловленные магнитным полем фазовые сдвиги сокращаются, а с одинаковой — суммируются. Случайный сдвиг фаз между интерферирующими волнами возникает из-за изменения спиральности на различных участках траектории.

В настоящей работе вычислен интерференционный вклад в оптический кондактанс неупорядоченного образца. Расчеты проведены на основе системы уравнений диффузии для двух куперонных мод,

описывающих интерференцию обращенных во времени волн с заданной спиральностью. Чувствительность к значению длины рассеяния с переверотом спиральности проиллюстрирована на примере резонансной спектральной зависимости интерференционного вклада в окрестности первой точки Керкера. Показано, что во внешнем магнитном поле возникает подавление интерференционного вклада в оптический кондактанс магнитоактивного образца, аналогичное отрицательному магнитосопротивлению металлов с примесями. В пределе сильного магнитного поля возникает эффект «насыщения» — интерференционный вклад в оптический кондактанс достигает предельной величины, которая не зависит от напряженности поля и определяется отношением транспортной длины упругого рассеяния к длине затухания циркулярной поляризации. В случае волновода (Q1D-геометрии) интерференционный вклад убывает по величине обратно пропорционально напряженности поля и длине образца L . Это позволяет сделать вывод о возможности управлять с помощью поля критической длиной L , при которой происходит переход к режиму андерсоновской локализации. Ряд представленных ниже результатов был кратко изложен в [23].

2. ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ИНТЕРФЕРЕНЦИИ ВОЛН В МАГНИТОАКТИВНОЙ СРЕДЕ С РАССЕИВАЮЩИМИ ЧАСТИЦАМИ

2.1. Общие соотношения

Рассмотрим прохождение электромагнитных волн через образец непоглощающей магнитоактивной среды, в которую помещены рассеивающие частицы. Предполагается, что его линейные размеры L_x, L_y и $L_z = L$ значительно превышают длину l свободного пробега, $L_x, L_y, L \gg l$, и выполнено условие слабой локализации, $k_0 l \gg 1$ (k_0 — волновое число). Число поперечных мод \mathcal{N} , в которых происходит распространение электромагнитных волн через образец, велико,

$$\mathcal{N} = \frac{k_0^2 \mathcal{A}}{4\pi} \gg 1,$$

здесь $\mathcal{A} = L_x L_y$ — площадь поперечного сечения образца [8].

Согласно [2, 3, 12], кондактанс (или, полное пропускание) образца определяется суммой коэффициентов прохождения T_{ab} , связывающих входные и выходные моды a и b соответственно,

$$T = \sum_{a,b} T_{ba}. \quad (1)$$

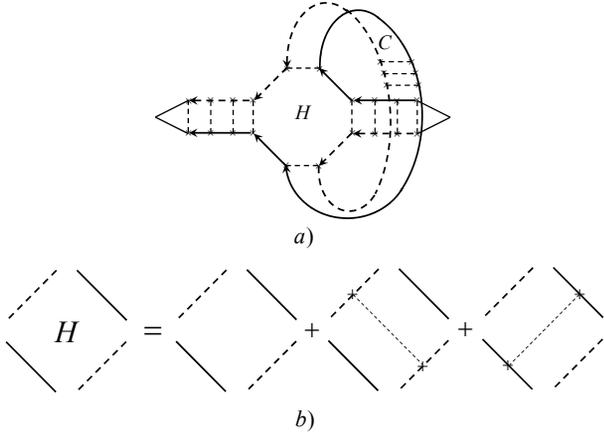


Рис. 1. *a* — Интерференционный вклад в кондактанс. *b* — Вершина Хиками [10]. Сплошные линии соответствуют средним функциям Грина в среде. Штриховые линии обозначают рассеяние на неоднородностях среды. Входящий *i* и выходящий *f* лестничные пропагаторы содержат суммирование по модам

В условиях слабой локализации, $k_0 l \gg 1$, усредненный по расположению рассеивателей интерференционный вклад $\langle \delta T \rangle$ в кондактанс определяется диаграммой, содержащей одну вершину Хиками (см. рис. 1) [2, 10, 13]. Входящая в диаграмму средняя функция Грина $\langle G_{ik}(\mathbf{r}, \mathbf{r}' | \mathbf{h}) \rangle$ описывает распространение электромагнитных волн в магнитоактивной среде между актами рассеяния. Она определяется выражением [22, 24–28]

$$\langle G_{ik}(\mathbf{r}, \mathbf{r}' | \mathbf{h}) \rangle = \langle G_{scat}(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) \rangle \times \left[P_{ik}^{(+)}(\mathbf{n}) e^{-i\mathbf{h}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')/2} + P_{ik}^{(-)}(\mathbf{n}) e^{i\mathbf{h}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')/2} \right], \quad (2)$$

где $\langle G_{scat}(|\mathbf{r}|) \rangle$ — скалярная функция Грина [2], $\mathbf{n} = (\mathbf{r} - \mathbf{r}')/|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ и

$$P_{ik}^{(\pm)}(\mathbf{n}) = \frac{1}{2}(\delta_{ik} - n_i n_k \pm i e_{ikj} n_j) \quad (3)$$

— проекционные операторы для состояний поля с определенной спиральностью (e_{ikj} — антисимметричный тензор). Вектор \mathbf{h} в (2) пропорционален напряженности приложенного магнитного поля \mathbf{H} , $\mathbf{h} = 2V\mathbf{H}$ (V — постоянная Верде [29]).

Будем предполагать, что магнитное поле достаточно слабое, $hl \ll 1$, и набег фазы, обусловленный полем, происходит в результате многих актов рассеяния. В этом приближении можно пренебречь влиянием магнитного поля на амплитуду однократного рассеяния и не учитывать поле при вычислении вершины Хиками. Представленную на рис. 1 диаграмму можно вычислить, «перезаменяя» входные пропагаторы в формуле для корреляционной функции флуктуаций интенсивности поляризованного света, полученной в [16, 17]. Возникающий в

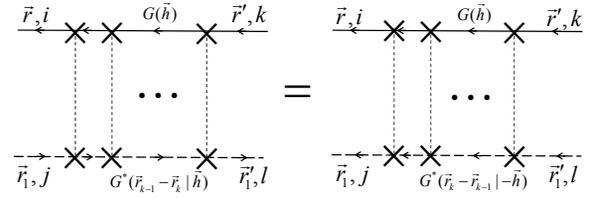


Рис. 2. Преобразование куперона к сумме лестничных диаграмм

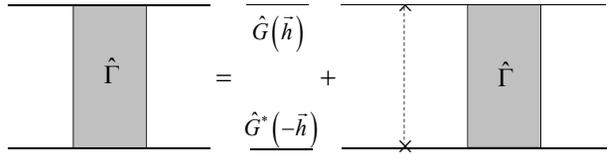


Рис. 3. Интегральное транспортное уравнение для пропагатора $\hat{\Gamma}$

результате «перезащмыкания» внутренний пропагатор в диаграмме (см. «петлю» на рис. 1*a*) — куперон $\hat{C} = \langle G_{ik}(\mathbf{r}, \mathbf{r}' | \mathbf{h}) G_{jl}^*(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}'_1 | \mathbf{h}) \rangle_C$ — описывает интерференцию волн, распространяющихся навстречу друг другу (т.е., по обращенным во времени траекториям). С помощью равенства $G_{jl}^*(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}'_1 | \mathbf{h}) = G_{lj}^*(\mathbf{r}'_1, \mathbf{r}_1 | -\mathbf{h})$ куперон можно свести к сумме лестничных диаграмм, в которых в одной из функций Грина переставлены индексы и координаты и направление магнитного поля заменено на противоположное (см. рис. 2 и [25, 26]),

$$\hat{C} = \langle G_{ik}(\mathbf{r}, \mathbf{r}' | \mathbf{h}) G_{jl}^*(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}'_1 | \mathbf{h}) \rangle_C = \langle G_{ik}(\mathbf{r}, \mathbf{r}' | \mathbf{h}) G_{lj}^*(\mathbf{r}'_1, \mathbf{r}_1 | -\mathbf{h}) \rangle_L. \quad (4)$$

В предположении, что последовательные акты рассеяния происходят в волновой зоне, входящий в (4) коррелятор $\langle G_{ik}(\mathbf{h}) G_{lj}^*(-\mathbf{h}) \rangle_L$ можно записать в представлении Вигнера,

$$\langle G_{ik}(\mathbf{r}, \mathbf{r}' | \mathbf{h}) G_{lj}^*(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}'_1 | -\mathbf{h}) \rangle_L = \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \frac{d\mathbf{k}'}{(2\pi)^3} e^{i\mathbf{k}(\mathbf{r}-\mathbf{r}_1) - i\mathbf{k}'(\mathbf{r}'-\mathbf{r}'_1)} \times \frac{\delta(k - k_0)}{k^2} \frac{\delta(k' - k_0)}{k'^2}, \quad (5)$$

$$\Gamma_{il,kj} \left(\frac{\mathbf{r} + \mathbf{r}_1}{2}, \mathbf{n} = \frac{\mathbf{k}}{k_0} \middle| \frac{\mathbf{r}' + \mathbf{r}'_1}{2}, \mathbf{n}' = \frac{\mathbf{k}'}{k_0} \right),$$

где пропагатор $\Gamma_{il,kj}(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}')$ подчиняется транспортному уравнению (см. рис. 3 и [22, 24]).

При переходе из лабораторной системы отсчета в сопутствующую матрица $\hat{\Gamma}$ преобразуется как

$$\Gamma_{il,kj}(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') = \sum_{\alpha, \beta, \gamma, \delta} e_i^{(\alpha)}(\mathbf{n}) \left(e_l^{(\beta)}(\mathbf{n}) \right)^* \Gamma_{\alpha\beta, \gamma\delta}(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') e_k^{(\gamma)}(\mathbf{n}') \left(e_j^{(\delta)}(\mathbf{n}') \right)^*, \quad (6)$$

где векторы $\mathbf{e}_i^{(\alpha)}(\mathbf{n})$ — единичные векторы поляризации в сопутствующей системе координат в линейном или циркулярном базисе. Например, в циркулярном базисе, образованном тройкой векторов

$$\mathbf{n} = (\sin \theta \cos \varphi, \sin \theta \sin \varphi, \cos \theta),$$

$$\mathbf{e}^{(\pm)}(\mathbf{n}) = (\partial \mathbf{n} / \partial \theta \mp i[\mathbf{n} \times \partial \mathbf{n} / \partial \theta]) / \sqrt{2},$$

индексы $\alpha, \beta, \gamma, \delta$ принимают значения ± 1 (см., например, [30]).

Как известно (см., например, [10, 13]), величина интерференционной поправки в 3D-случае определяется траекториями распространения волн длиной меньше или порядка l_{tr} . При этом наблюдаемой является не она сама, а ее изменение в зависимости от факторов, ограничивающих длину траекторий интерферирующих волн. Это изменение определяется длинными траекториями, и, соответственно, медленно затухающими на масштабе транспортной длины l_{tr} модами. Медленно затухающими в рассеивающей среде могут быть только циркулярно поляризованные моды [14, 22, 31, 32]. Линейная поляризация всегда затухает на масштабах порядка l_{tr} [14, 31, 32]. С учетом сказанного оставим в (6) только слагаемые, отвечающие двум циркулярно поляризованным модам с заданной спиральностью. Для этого в сумме (6) нужно сохранить слагаемые с $\alpha = \beta$ и $\gamma = \delta$ [22]. Тогда вместо (6) получаем

$$\Gamma_{il,kj}(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') = \sum_{\alpha, \beta} P_{il}^{(\alpha)}(\mathbf{n}) \Gamma_{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') P_{jk}^{(\beta)}(\mathbf{n}'), \quad (7)$$

где

$$P_{il}^{(\alpha)}(\mathbf{n}) = \mathbf{e}_i^{(\alpha)}(\mathbf{n}) \left(\mathbf{e}_l^{(\alpha)}(\mathbf{n}) \right)^*$$

— проекционные операторы (3).

В случае распространения электромагнитных волн через толстый ($L \gg l_{tr}$) образец, как и для электронов [2, 10, 11, 13], при вычислении входящих и выходящих лестничных пропагаторов в диаграмме, показанной на рис. 1а, можно воспользоваться стандартным диффузионным приближением (см., например, [16, 17]). В двухмодовом приближении (7) для интерференционного вклада в кондактанс приходим к выражению

$$\langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle = -\frac{2}{3} \left(\frac{1}{4\pi} \right)^2 \left(\frac{l_{tr}}{L} \right)^2 \times$$

$$\times n_0 \int d\mathbf{r} \int d\mathbf{n} d\mathbf{n}' (1 - \mathbf{nn}') \times$$

$$\times \left[\text{Sp} \hat{a}(\mathbf{n}, \mathbf{n}') \hat{\Gamma}(\mathbf{r}, \mathbf{n}' | \mathbf{r}, -\mathbf{n}) \right], \quad (8)$$

где n_0 — число рассеивателей в единице объема.

Матрица $a_{\alpha\beta}$ выражается через матрицу однократного рассеяния $d_{ik,jl}$ [30] с помощью соотношения [22]

$$a_{\alpha\beta}(\mathbf{n}, \mathbf{n}') = P_{il}^{(\alpha)}(\mathbf{n}) d_{il,kj}(\mathbf{n}, \mathbf{n}') P_{jk}^{(\beta)}(\mathbf{n}'). \quad (9)$$

Для сферически-симметричных рассеивателей матрица $a_{\alpha\beta}$ имеет вид

$$a_{\alpha\beta}(\mathbf{nn}') = \begin{pmatrix} a_+(\mathbf{nn}') & a_-(\mathbf{nn}') \\ a_-(\mathbf{nn}') & a_+(\mathbf{nn}') \end{pmatrix}, \quad (10)$$

где $a_{\pm}(\mathbf{nn}')$ выражаются через амплитуды однократного рассеяния ко- и кросс-поляризованных волн, A_{\parallel} и A_{\perp} , $a_{\pm}(\mathbf{nn}') = |A_{\parallel} \pm A_{\perp}|^2 / 4$.

Входящий в (8) пропагатор $\hat{\Gamma}^{(c)}$ подчиняется транспортному уравнению [22]

$$\left\{ \left[\mathbf{n} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} + \sigma \right] \delta_{\alpha\gamma} + i(\mathbf{nh})(\hat{\sigma}_z)_{\alpha\gamma} \right\} \Gamma_{\gamma\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') =$$

$$= n_0 \int d\mathbf{n}'' a_{\alpha\gamma}(\mathbf{n}, \mathbf{n}'') \Gamma_{\gamma\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{n}'' | \mathbf{r}', \mathbf{n}') +$$

$$+ \delta_{\alpha\beta} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \delta(\mathbf{n} - \mathbf{n}'), \quad (11)$$

где σ — коэффициент рассеяния; $\hat{\sigma}_z$ — z -матрица Паули. Среда предполагается непоглощающей.

В отсутствие магнитного поля система уравнений для пропагаторов $\Gamma_{\pm\pm}$ и $\Gamma_{\pm\mp}$, которые описывают интерференцию волн с определенной спиральностью, может быть сведена к уравнениям для первого (интенсивности) I и четвертого V параметров Стокса циркулярно поляризованного света. В этом случае пропагаторы $\Gamma_{\pm\pm}$ и $\Gamma_{\pm\mp}$ связаны с параметрами Стокса I и V соотношениями

$$\Gamma_{++} = \Gamma_{--} = (I + V)/2,$$

$$\Gamma_{+-} = \Gamma_{-+} = (I - V)/2.$$

Если определить интенсивности волн с заданной спиральностью как

$$I_{\pm} = (I \pm V)/2,$$

то их связь с параметрами Стокса I и V можно записать в виде линейного преобразования

$$\begin{pmatrix} I_+ \\ I_- \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I \\ V \end{pmatrix}. \quad (12)$$

В условиях магнитооптического эффекта система уравнений (11) уже не может быть сведена к уравнениям для параметров Стокса, и поэтому соответствующие величины $\Gamma_{\pm\pm}$ и $\Gamma_{\mp\pm}$ в магнитном

поле не могут быть выражены через первый и четвертый параметры Стокса. Однако для удобства мы сохраним обозначения I и V для линейных комбинаций этих величин. С помощью преобразования (12) уравнение (11) преобразуется к виду

$$\begin{aligned} & \begin{pmatrix} \mathbf{n} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} + \sigma & i\mathbf{nh} \\ i\mathbf{nh} & \mathbf{n} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} + \sigma \end{pmatrix} \times \\ & \times \begin{pmatrix} I(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') & I_V(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') \\ V_I(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') & V(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') \end{pmatrix} = \\ & = n_0 \int d\mathbf{n}_1 \begin{pmatrix} a_1(\mathbf{nn}_1) & 0 \\ 0 & a_2(\mathbf{nn}_1) \end{pmatrix} \times \\ & \times \begin{pmatrix} I(\mathbf{r}, \mathbf{n}_1 | \mathbf{r}', \mathbf{n}') & I_V(\mathbf{r}, \mathbf{n}_1 | \mathbf{r}', \mathbf{n}') \\ V_I(\mathbf{r}, \mathbf{n}_1 | \mathbf{r}', \mathbf{n}') & V(\mathbf{r}, \mathbf{n}_1 | \mathbf{r}', \mathbf{n}') \end{pmatrix} + \\ & + \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \delta(\mathbf{n} - \mathbf{n}') \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (13) \end{aligned}$$

где

$$\begin{aligned} a_1(\mathbf{nn}) &= (|A_{\parallel}|^2 + |A_{\perp}|^2)/2, \\ a_2(\mathbf{nn}) &= \text{Re } A_{\parallel} A_{\perp}^* \end{aligned}$$

— дифференциальные сечения рассеяния, входящие в транспортные уравнения для интенсивности и четвертого параметра Стокса [30, 33].

Недиагональные элементы в уравнении (13) появляются из-за эффекта Фарадея. В отсутствие магнитного поля система (13) распадается на два независимых транспортных уравнения для I и V [14, 15, 18].

2.2. Диффузионное приближение

В предположении, что входящие в (13) моды затухают на пространственных масштабах, превышающих l_{tr} , преобразуем систему уравнений (13) к диффузионному виду. В диффузионном приближении в разложении входящих в (13) пропагаторов по сферическим гармоникам следует оставить два первых слагаемых. Например, для I имеем (см., например, [2])

$$\begin{aligned} I(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') &= \\ &= \frac{1}{(4\pi)^2} [I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + 3(\mathbf{n} - \mathbf{n}') \mathbf{J}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')], \quad (14) \end{aligned}$$

где

$$I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \int d\mathbf{n} d\mathbf{n}' I(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}')$$

— пропагатор плотности, $\mathbf{J}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ — соответствующий ток (плотность потока). Аналогичные разложения справедливы и для других пропагаторов,

$V(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}')$, $I_V(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}')$ и $V_I(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}')$, входящих в систему уравнений (13).

Подставляя диффузионные формулы для величин I и V в (8), получаем оптический кондактанс в двухмодовом приближении:

$$\begin{aligned} \langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle &= \\ &= -\frac{2}{3} \frac{l_{tr}^2}{L^2} \int d\mathbf{r} \left[\sigma_{tr} I(\mathbf{r}, \mathbf{r}) + \sigma_{tr}^{(2)} V(\mathbf{r}, \mathbf{r}) \right], \quad (15) \end{aligned}$$

где

$$\begin{aligned} \sigma_{tr} &= n_0 \int d\mathbf{n}' (1 - (\mathbf{nn}')) a_1(\mathbf{nn}'), \\ \sigma_{tr}^{(2)} &= n_0 \int d\mathbf{n}' (1 - (\mathbf{nn}')) a_2(\mathbf{nn}') \end{aligned}$$

— транспортные коэффициенты рассеяния для интенсивности и четвертого параметра Стокса. Формула (15) переходит в соответствующий результат [23] в условиях медленного затухания циркулярной поляризации ($\sigma_{tr} - \sigma_{tr}^{(2)} \ll \sigma_{tr}$), а также и при сильной деполаризации ($I \gg V$).

Пропагаторы плотности $I(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ и $V(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$, входящие в (15), подчиняются системе диффузионных уравнений

$$\begin{aligned} & \begin{pmatrix} \sigma_{tr}^{(V)} \Delta - \sigma_{tr} h^2 & i(\sigma_{tr} + \sigma_{tr}^{(V)})(\mathbf{h}\nabla) \\ i(\sigma_{tr} + \sigma_{tr}^{(V)})(\mathbf{h}\nabla) & \sigma_{tr} \Delta - \sigma_{tr}^{(V)} h^2 - 3\sigma_{dep} \sigma_{tr}^{(V)} \sigma_{tr} \end{pmatrix} \times \\ & \times \begin{pmatrix} I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') & I_V(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \\ V_I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') & V(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \end{pmatrix} = \\ & = -3\sigma_{tr} \sigma_{tr}^{(V)} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad (16) \end{aligned}$$

где

$$\begin{aligned} \sigma_{tr}^{(V)} &= \sigma_{tr}^{(2)} + \sigma_{dep}, \\ \sigma_{dep} &= n_0 \int d\mathbf{n}' (a_1(\mathbf{nn}') - a_2(\mathbf{nn}')) \end{aligned}$$

— коэффициент деполаризации циркулярно поляризованного света [14, 18, 32]. Коэффициент рассеяния с переворотом спиральности в два раза меньше, $\sigma_{dep}/2$. Система уравнений (16) является обобщением независимых уравнений диффузии для I и V в отсутствие магнитного поля [14, 15].

При относительно слабом магнитном поле, $h \ll 1/l_{circ}$, где

$$l_{circ} = \sqrt{3\sigma_{dep} \sigma_{tr}^{(V)}} \quad (17)$$

— длина затухания циркулярной поляризации, влияние поля на интерференцию происходит на расстояниях $|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$, превышающих l_{circ} [14, 15, 32]. В этой

ситуации основной вклад в зависящую от магнитного поля часть интерференционной поправки (15) будет давать выживающая при больших $|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ величина $I(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$. Мода $V(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ затухает на масштабе l_{circ} и не зависит от магнитного поля. Уравнение для моды V в рассматриваемом случае сводится к уравнению диффузии в отсутствие магнитного поля. В уравнении (16) для моды I слагаемым, пропорциональным V_I , можно пренебречь (см. Приложение). В результате, это уравнение приобретает вид

$$\left[\nabla^2 - \frac{\sigma_{tr}}{\sigma_{tr}^{(V)}} h^2 \right] I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = -3\sigma_{tr} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \quad (18)$$

В условиях медленного затухания циркулярной поляризации [14, 18, 34, 35] разница между входящими в (13) сечениями $a_1(\mathbf{nn}')$ и $a_2(\mathbf{nn}')$ мала и, как следствие,

$$\sigma_{dep} \ll \sigma_{tr}, \quad \sigma_{tr} - \sigma_{tr}^{(2)} \ll \sigma_{tr}, \quad l_{circ} \gg l_{tr}.$$

При сильной деполяризации, $\sigma_{dep} \sim \sigma_{tr}$, мода V затухает на масштабах порядка транспортной длины l_{tr} . Например, в условиях рэлеевского рассеяния ($\sigma_{dep} = \sigma$, $\sigma_{tr} = \sigma$, $\sigma_{tr}^{(2)} = -\sigma/2$ [22]) длина затухания моды V составляет $1.176l$ [32]. При рассеянии на частицах Ми в окрестности второй точки Керкера [18], когда преобладает рассеяние в заднюю полусферу ($\sigma_{dep} = 2\sigma$, $\sigma_{tr} = 3\sigma/2$, $\sigma_{tr}^{(2)} = -\sigma_{tr}$) соответствующая длина равна $1.038l$. В рассматриваемом случае применять диффузионное разложение для моды V нельзя, и поэтому систему уравнений (16) можно использовать только для анализа качественной картины интерференции электромагнитных волн в магнитооптической среде [22, 24]. В этой ситуации вклад I в интерференционную поправку по-прежнему будет определяться первым слагаемым в (15), а для вычисления вклада V следует использовать более общую формулу (8). Существенно, что вклад V при $\sigma_{dep} \sim \sigma_{tr}$ будет определяться короткими траекториями (длиной меньше или порядка l_{tr}), и в условиях относительно слабого магнитного поля, $h \ll 1/l_{tr}$, не будет зависеть от h . В условиях сильной деполяризации из системы (13) следует отдельное диффузионное уравнение для моды I (см. Приложение)

$$\left(\nabla^2 - \frac{\sigma_{tr}}{\sigma} h^2 \right) I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = -3\sigma_{tr} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \quad (19)$$

Изменение режима затухания циркулярной поляризации отражается на значении коэффициента перед h^2 в уравнении (19) по сравнению с (18).

3. ИНТЕРФЕРЕНЦИОННАЯ ПОПРАВКА В ОТСУТСТВИЕ МАГНИТНОГО ПОЛЯ

Вычислим интерференционную поправку $\langle \delta T \rangle$ к контактансу плоского слоя, $L_x, L_y \gg L \gg l_{tr}$, в отсутствие поля, $h = 0$. Как известно [2, 10, 13], главный вклад в $\langle \delta T \rangle$ в 3D-случае дают малые расстояния, меньше или порядка транспортной длины l_{tr} . Но наблюдаемой на опыте является не сама интерференционная поправка, а вклад в нее длинных траекторий, чувствительных к фактору, разрушающему интерференцию. В рассматриваемом случае этим фактором является деполяризация, вызванная рассеянием с изменением спиральности.

Проанализируем, как изменяется интерференционная поправка $\langle \delta T \rangle$ в зависимости от σ_{dep} . Влияние процесса деполяризации на вклад длинных траекторий в $\langle \delta T \rangle$ определяется разностью

$$\begin{aligned} \langle \delta T(\sigma_{dep}) \rangle &= \langle \delta T \rangle_V - \langle \delta T \rangle_I = \\ &= -\frac{2}{3} \frac{l_{tr}^2}{L^2} \int d\mathbf{r} \left[\sigma_{tr}^{(2)} V(\mathbf{r}, \mathbf{r}) - \sigma_{tr} I(\mathbf{r}, \mathbf{r}) \right]. \quad (20) \end{aligned}$$

В отсутствие рассеяния с переворотом спиральности $V = I$, $\sigma_{tr}^{(2)} = \sigma_{tr}$ и выражение (20) обращается в нуль.

В эксперименте зависимость $\langle \delta T \rangle$ от σ_{dep} можно наблюдать при рассеянии света на частицах Ми в резонансной спектральной области в окрестности первой точки Керкера [18, 36], где различие между дифференциальными сечениями рассеяния a_1 и a_2 , входящими в уравнения (16), минимально. Положение первой точки Керкера определяется условием $\lambda \approx 2.29na$, где λ — длина волны света, n и a — показатель преломления и радиус частицы [18, 36, 37]. В этом случае в узком спектральном диапазоне сечение рассеяния с переворотом спиральности может меняться в сотни раз (при этом транспортное сечение остается практически неизменным). В самой точке Керкера циркулярная поляризация затухает на масштабах, намного превышающих транспортную длину [18, 36].

В отсутствие магнитного поля уравнения в системе (16) становятся независимыми:

$$\begin{aligned} \Delta I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') &= -3\sigma_{tr} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \\ \left[\Delta - 3\sigma_{dep} \sigma_{tr}^{(V)} \right] V(\mathbf{r}, \mathbf{r}') &= -3\sigma_{tr}^{(V)} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \end{aligned} \quad (21)$$

Решение диффузионного уравнения для фурье-компоненты V по параллельным границам слоя перенным определяется выражением

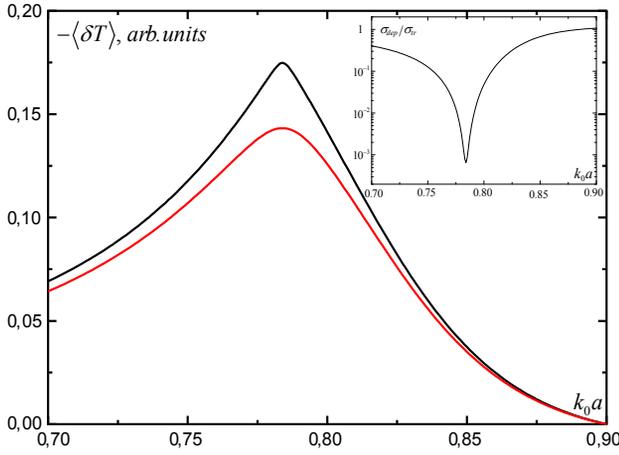


Рис. 4. Спектральная зависимость интерференционной поправки к кондактансу в окрестности первой точки Керкера (показано изменение $\langle \delta T \rangle$ относительно значения при $k_0 a = 0.9$). Частицы Si, показатель преломления и радиус частиц $n = 3.5$ и 0.2 мкм соответственно. Расчеты проведены по формулам (23) (верхняя кривая) и (24) (нижняя кривая, $L/l_{tr} = 10$). На вставке показана спектральная зависимость σ_{dep}

$$V(z, z | \mathbf{q}) = \frac{3}{\gamma l_{tr}} \frac{\text{sh } \gamma z \text{ sh } \gamma(L - z)}{\text{sh } \gamma L}, \quad (22)$$

$$\gamma = \sqrt{q^2 + 1/l_{tr}^2}.$$

Аналогичное выражение для $I(z, z | \mathbf{q})$ следует из (22) при $\gamma = q$.

Подстановка решения (22) в формулу (20) дает для относительного изменения интерференционной поправки выражение

$$\langle \delta T(\sigma_{dep}) \rangle = \frac{1}{2\pi} \frac{\mathcal{A}}{L l_{circ}}. \quad (23)$$

В (23) предполагается, что

$$\sigma_{tr} - \sigma_{tr}^{(2)} \ll \sigma_{tr}.$$

Отметим, что в отличие от резонансной спектральной зависимости σ_{dep} , значения транспортных коэффициентов в окрестности первой точки Керкера практически не меняются. Результат (23) справедлив в пределе $L \gg l_{circ}$. Его можно также получить, если при вычислении V сразу пренебречь ограниченностью образца и воспользоваться решением в приближении бесконечной среды.

Учет конечного значения L несколько усложняет выражение для интерференционного вклада в кондактанс

$$\langle \delta T(\sigma_{dep}) \rangle = \frac{1}{2\pi} \frac{\mathcal{A}}{L^2} \ln \left(\frac{\text{sh}(L/l_{circ})}{(L/l_{circ})} \right). \quad (24)$$

Спектральная зависимость $\langle \delta T \rangle$, рассчитанная по формулам (23) и (24), показана на рис. 4. Значение входящей в (23) и (24) длины l_{circ} рассчитывались по теории Ми [38]. Как следует из результатов расчета, резонансная зависимость σ_{dep} напрямую сказывается на поведении интерференционного вклада в кондактанс. Учет конечной толщины образца приводит только к уменьшению амплитуды пика.

4. ИНТЕРФЕРЕНЦИЯ ВОЛН В МАГНИТОАКТИВНОЙ СРЕДЕ

Перейдем к анализу зависимости величины интерференционного вклада в оптический кондактанс от магнитного поля. Как и в предыдущем разделе, рассматриваем образец в виде плоского слоя и предполагаем, что $L_x, L_y \gg L \gg l_{tr}$.

В отсутствие деполяризации ($\sigma_{dep} = 0$, $\sigma_{tr}^{(2)} = \sigma_{tr}$) системы уравнений для пар величин I, V_I и V, I_V в (16) совпадают друг с другом. Магнитное поле в уравнениях для линейных комбинаций $I \pm V_I$ и $V \pm I_V$ может быть исключено преобразованием

$$I(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \mathbf{h}) \pm V_I(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \mathbf{h}) = \exp(\mp i \mathbf{h}(\mathbf{r} - \mathbf{r}')) F(\mathbf{r}, \mathbf{r}'),$$

$$V(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \mathbf{h}) \pm I_V(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \mathbf{h}) = \exp(\mp i \mathbf{h}(\mathbf{r} - \mathbf{r}')) F(\mathbf{r}, \mathbf{r}').$$

Поэтому входящие в (15) значения $I(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \mathbf{h})$ и $V(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \mathbf{h})$ при совпадающих аргументах не зависят от магнитного поля. Таким образом, в отсутствие деполяризации магнитное поле не влияет на величину интерференционного вклада в кондактанс.

Зависимость интерференционной поправки к кондактансу от магнитного поля возникает только за счет деполяризующих столкновений, которые меняют спиральность на различных участках траекторий распространения волн.

Рассмотрим случай относительно сильного магнитного поля, $1/L \ll h \ll 1/l_{tr}$, когда при вычислении пропагаторов I и V можно считать среду неограниченной, но применимо приближение диффузии (см. систему уравнений (16)). В этой ситуации интерференционный вклад $\langle \delta T \rangle$ не зависит от направления поля. Ориентационная зависимость проявляется только при $h \leq 1/L$, когда сказываются эффекты, обусловленные ограниченностью образца. Однако при $h \leq 1/L$ влияние поля на изменение интерференционной поправки незначительно.

При $h \gg 1/L$, раскладывая решение системы уравнений (16) в интеграл Фурье, из формулы (15) получаем

$$\langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle = -\frac{\mathcal{A}}{4\pi^3 L} \times \int \frac{\Phi^2(Q) d\mathbf{Q}}{\Phi^2(Q) - 4(\mathbf{Q}\mathbf{h})^2} \left[\frac{1}{Q^2 + (\sigma_{tr}/\sigma_{tr}^{(V)})h^2} + \frac{\sigma_{tr}^{(2)}\sigma_{tr}^{(V)}}{\sigma_{tr}^2} \frac{1}{Q^2 + (\sigma_{tr}^{(V)}/\sigma_{tr})h^2 + 1/l_{circ}^2} \right], \quad (25)$$

где

$$\Phi^2(Q) = \frac{4\sigma_{tr}\sigma_{tr}^{(V)}}{(\sigma_{tr} + \sigma_{tr}^{(V)})^2} \times \left(Q^2 + \frac{\sigma_{tr}}{\sigma_{tr}^{(V)}}h^2 \right) \left(Q^2 + \frac{\sigma_{tr}^{(V)}}{\sigma_{tr}}h^2 + \frac{1}{l_{circ}^2} \right). \quad (26)$$

Как известно [2, 10, 13], в 3D-случае сама интерференционная поправка в диффузионном приближении расходится (каждый из вкладов в формуле (25) является расходящейся величиной при больших Q). Наблюдаемым является относительное изменение интерференционной поправки в зависимости от магнитного поля,

$$\langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle - \langle \delta T(\mathbf{h} = 0) \rangle.$$

Интегрируя (25) по направлению вектора \mathbf{Q} , эту величину можно представить в виде

$$\langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle - \langle \delta T(\mathbf{h} = 0) \rangle = -\frac{\mathcal{A}}{\pi^2 L} \int_0^\infty Q^2 dQ \times \left\{ \left[\frac{1}{Q^2 + (\sigma_{tr}/\sigma_{tr}^{(V)})h^2} \times \left(\frac{\Phi(Q)}{4Qh} \ln \frac{\Phi(Q) + 2Qh}{\Phi(Q) - 2Qh} \right) - \frac{1}{Q^2} \right] + \frac{\sigma_{tr}^{(2)}\sigma_{tr}^{(V)}}{\sigma_{tr}^2} \left[\frac{1}{Q^2 + (\sigma_{tr}^{(V)}/\sigma_{tr})h^2 + 1/l_{circ}^2} \times \left(\frac{\Phi(Q)}{4Qh} \ln \frac{\Phi(Q) + 2Qh}{\Phi(Q) - 2Qh} \right) - \frac{1}{Q^2 + 1/l_{circ}^2} \right] \right\}. \quad (27)$$

В условиях эффекта «сохранения» циркулярной поляризации,

$$\sigma_{dep} \ll \sigma_{tr}$$

(заметим, что в этом случае $\sigma_{tr} - \sigma_{tr}^{(V)} \ll \sigma_{tr}$), в зависимости $\langle \delta T \rangle$ от \mathbf{h} можно выделить два участка. При $h \ll 1/l_{circ}$ величина $\langle \delta T \rangle$ линейно меняется с магнитным полем h :

$$\langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle - \langle \delta T(\mathbf{h} = 0) \rangle = \frac{1}{2\pi} \frac{\mathcal{A}h}{L}. \quad (28)$$

В формулу (28) дает вклад только первое слагае-

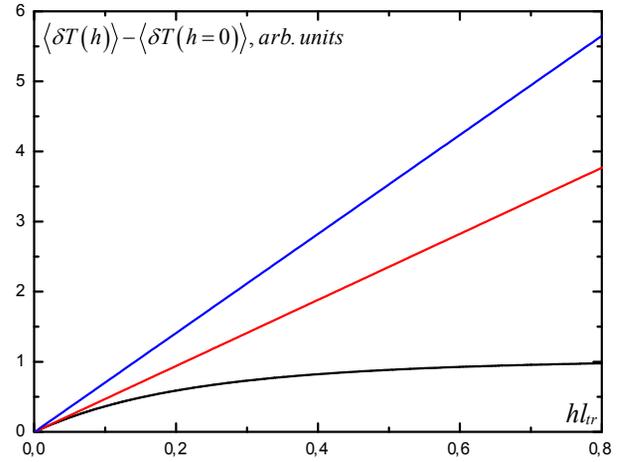


Рис. 5. Изменение интерференционного вклада $\langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle - \langle \delta T(\mathbf{h} = 0) \rangle$ в оптический контактанс с ростом магнитного поля. От нижней к верхней кривым — в условиях эффекта медленного затухания циркулярной поляризации ($\sigma_{tr}/\sigma_{dep} = 10$), рэлеевского рассеяния ($\sigma_{tr}/\sigma_{dep} = 1$) и во второй точке Керкера ($\sigma_{tr}/\sigma_{dep} = 0.75$)

мое в (15) и, соответственно, в (27). В этом случае интерференционная поправка

$$\langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle - \langle \delta T(\mathbf{h} = 0) \rangle$$

определяется длинными превышающими l_{circ} траекториями, и мода I определяется уравнением (18).

При $h \geq 1/l_{circ}$ интерференционный вклад $\langle \delta T \rangle$ выходит на плато (см. рис.5) и стремится к значению

$$\langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle - \langle \delta T(\mathbf{h} = 0) \rangle = \frac{\sqrt{2} - 1}{2\pi} \frac{\mathcal{A}}{Ll_{circ}}. \quad (29)$$

Выход на плато зависимости $\langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle - \langle \delta T(\mathbf{h} = 0) \rangle$ от магнитного поля можно объяснить уменьшением вероятности деполяризующих столкновений на длине h^{-1} с ростом поля. В условиях «сохранения» циркулярной поляризации ($\sigma_{dep} \ll \sigma_{tr}$, $\sigma_{tr}^{(V)} = \sigma_{tr}$) интеграл в формуле (25) принимает вид

$$\int d\mathbf{Q} \frac{Q^2 + h^2 + 1/(2l_{circ}^2)}{(Q^2 + h^2 + 1/(2l_{circ}^2))^2 - 4(\mathbf{Q}\mathbf{h})^2 - 1/(4l_{circ}^4)}. \quad (30)$$

В сильном поле, $h \gg 1/l_{circ}$, в пренебрежении слагаемым $1/l_{circ}^4$ в знаменателе (30) это выражение можно записать как

$$\frac{1}{2} \int d\mathbf{Q} \left[\frac{1}{(\mathbf{Q} - \mathbf{h})^2 + 1/(2l_{circ}^2)} + \frac{1}{(\mathbf{Q} + \mathbf{h})^2 + 1/(2l_{circ}^2)} \right]. \quad (31)$$

Поле \mathbf{h} исключается из (31) сдвигом в переменной интегрирования \mathbf{Q} , и интерференционный вклад в контактанс перестает зависеть от магнитного поля.

В отсутствие эффекта сохранения циркулярной поляризации, $\sigma_{dep} \sim \sigma_{tr}$ (например, в случае рэлеевского рассеяния или в окрестности второй точки Керкера), зависящая от магнитного поля часть интерференционной поправки определяется только первым слагаемым в выражении (15), и, соответственно, решением уравнения (19). Наклон в линейной зависимости $\langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle - \langle \delta T(\mathbf{h} = 0) \rangle$ от h при $h \ll 1/l_{tr}$ меняется по сравнению с (29) из-за изменения коэффициента перед h^2 в уравнении (19),

$$\langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle - \langle \delta T(\mathbf{h} = 0) \rangle = \frac{1}{2\pi} \frac{Ah}{L} \sqrt{\frac{\sigma_{tr}}{\sigma}}. \quad (32)$$

Мода V не вносит вклада в линейную зависимость (32) от магнитного поля. В сильных магнитных полях, $h \geq 1/l_{tr}$, диффузионное описание теряет свою применимость.

5. ОПТИЧЕСКИЙ КОНДАКТАНС ВОЛНОВОДА

Помимо плоского слоя, другим часто используемым в исследованиях видом образцов является волновод с рассеивающими неоднородностями [39, 40]. При распространении электромагнитных волн в волноводе, $L_x, L_y \ll L$ (Q1D-геометрия), ситуация меняется. В этом случае, если не рассматривать волновод со специально подобранным поперечным профилем показателя преломления, эффект сохранения циркулярной поляризации подавляется. При каждом отражении от боковых границ волновода знак циркулярной поляризации меняется на противоположный [41]. Основной вклад в интерференционную поправку (15) будет давать выживающая при больших L величина $I(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$, которая в отсутствие магнитного поля соответствует скалярной моде — интенсивности. Мода $V(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ затухает на масштабе $\min(L_x, L_y, l_{circ})$, и ее вклад оказывается малой величиной. В этой ситуации в уравнении для моды I слагаемым, пропорциональным V_I (см. (16)), можно пренебречь (см. Приложение), и мы приходим к уравнению (18). Для волновода уравнение (18) следует дополнить граничными условиями

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial x} I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \Big|_{x=\pm L_x/2} &= 0, \\ \frac{\partial}{\partial y} I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \Big|_{y=\pm L_y/2} &= 0 \end{aligned} \quad (33)$$

на боковых поверхностях волновода и

$$I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \Big|_{z=0, L} = 0 \quad (34)$$

на входном и выходном сечениях волновода.

Уравнение (18) справедливо в случае, когда моды I и V_I распространяются в режиме диффузии. В условиях сильной деполяризации, когда затухание циркулярной поляризации происходит на масштабах порядка длины свободного пробега l , вместо уравнения (18) следует использовать уравнение (19) (см. Приложение). Уменьшение длины деполяризации отражается на значении коэффициента перед h^2 в уравнении для I .

Решение уравнения (18) с граничными условиями (33) можно искать в виде разложения по собственным модам $\cos q_{xn}x \cos q_{ym}y$, где

$$\begin{aligned} q_{xn} &= (2\pi n/L_x), \quad q_{ym} = (2\pi m/L_y), \\ n, m &= 0, \pm 1, \pm 2, \dots \end{aligned}$$

Тогда формула (15) преобразуется следующим образом:

$$\langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle = -\frac{2}{3} \frac{l_{tr}}{L^2} \left[\sum_{\mathbf{q}} \int_0^L dz I_{\mathbf{q}}(z, z) \right], \quad (35)$$

где $I_{\mathbf{q}}(z, z')$ — коэффициенты разложения величины $I(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ по собственным поперечным модам волновода. Из решения уравнения (18) с граничным условием (34) для них можно получить выражение

$$I_{\mathbf{q}}(z, z') = \frac{3}{\gamma l_{tr}} \frac{\text{sh} \gamma z \text{sh}(\gamma(L-z))}{\text{sh} \gamma L}, \quad (36)$$

где

$$\gamma^2 = \mathbf{q}^2 + \tilde{h}^2, \quad \tilde{h} = \sqrt{\frac{\sigma_{tr}}{\sigma_{tr}^{(V)}}} h. \quad (37)$$

В условиях сильной деполяризации меняется только коэффициент пропорциональности между \tilde{h} и h (см. (19)).

В Q1D-геометрии ($L \gg L_x, L_y$) мода с $\mathbf{q} = 0$ характеризуется наименьшим затуханием. Оставляя в (35) только слагаемое с $\mathbf{q} = 0$, для интерференционного вклада в кондактанс получаем

$$\langle \delta T(\mathbf{h}) \rangle = -\frac{1}{(\tilde{h}L)} \left[\text{cth}(\tilde{h}L) - \frac{1}{\tilde{h}L} \right]. \quad (38)$$

В пределе $h = 0$ из (38) следует известный результат [42] для интерференционного вклада в кондактанс скалярных волн $\langle \delta T \rangle = -1/3$. С ростом магнитного поля величина интерференционной поправки монотонно уменьшается. При больших h величина $\langle \delta T \rangle$ убывает как $-1/\tilde{h}L$. Изменение $\langle \delta T \rangle$ с ростом поля качественно напоминает поведение интерференционной поправки к электронному кондактансу [10, 11], однако соответствующие функциональные зависимости различаются.

Полученные выше результаты относятся к случаю волновода с достаточно большим поперечным сечением, $l \ll \sqrt{A}$, когда выполнены условия перехода от системы транспортных уравнений (13) к уравнению (18) (или (19), см. Приложение).

Ситуация меняется в волноводе с малым сечением, $l \gg \sqrt{A}$. Можно считать, что циркулярно поляризованная мода распространяется в баллистическом режиме и разрушается при отражении от границ на масштабах порядка \sqrt{A} . В этом приближении приходим к диффузионному уравнению для I , аналогичному (18) (или (19)), но с дополнительным множителем, пропорциональным \sqrt{A}/l_{tr} перед h^2 . В случае волновода с круговым сечением соответствующий численный коэффициент меняется от $8\sqrt{\pi}$ в продольном поле до $4\sqrt{\pi}$ — в поперечном.

По мере уменьшения сечения волновода влияние магнитного поля на значение интерференционной поправки уменьшается. Длина, на которой происходит разрушение интерференции, растет с уменьшением A как $(l_{tr}^{1/2}/A^{1/4})(1/h)$. Поскольку применимость использованного в работе диффузионного рассмотрения для I ограничена полями $h < 1/l_{tr}$, то указанная длина всегда превышает $(l_{tr}^{3/2}/A^{1/4})$. Чтобы наблюдать влияние магнитного поля на интерференцию, это значение не должно быть больше, чем длина локализации $l_{loc} = Nl_{tr} \sim l_{tr}A/\lambda^2$. Поэтому приведенные выше результаты ограничены условием на сечение волновода $A > \lambda^2(l_{tr}/\lambda)^{2/5}$. В рассматриваемом случае в пределе слабой локализации $\lambda \ll l_{tr}$ волновод можно считать многомодовым.

6. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Проанализируем, как меняется интерференционный вклад в оптический контактанс в зависимости от отношения σ_{dep}/σ_{tr} и напряженности магнитного поля.

В отсутствие магнитного поля ($h = 0$) отрицательная интерференционная поправка $\langle \delta T \rangle$ к контактансу максимальна по величине в пределе, когда вообще нет деполяризации (т.е. нет перемешивания поляризаций из-за рассеяния, и $I = V$ в (15)). В этом случае

$$\langle \delta T \rangle = 2\langle \delta T^{(sc)} \rangle,$$

где $\langle \delta T^{(sc)} \rangle < 0$ — соответствующий результат в приближении скалярных волн. В наибольшей степени описанной выше предельной ситуации соответствует рассеяние света на ансамбле частиц Ми в окрестности первой точки Керкера ($\lambda = 2.29na$, где

λ — длина волны света, a и n — радиус и показатель преломления частицы) [18,36,37]. В этом случае для частиц с большим показателем преломления сечение рассеяния с переворотом спиральности может быть на два порядка меньше, чем транспортное сечение рассеяния [18,36]. Учет малой, но конечной величины σ_{dep} приводит к отклонению $\langle \delta T \rangle$ от $2\langle \delta T^{(sc)} \rangle$. В условиях редких столкновений с переворотом спиральности ($\sigma_{dep} \ll \sigma_{tr}$) интерференционный вклад в оптический контактанс приобретает дополнительное слагаемое (см. (23))

$$\langle \delta T \rangle = 2\langle \delta T^{(sc)} \rangle + \frac{1}{2\pi} \frac{A}{Ll_{circ}}. \quad (39)$$

Отклонение от $2\langle \delta T^{(sc)} \rangle$ в (39) определяется вторым слагаемым выражения (15), которое резко возрастает по мере удаления от первой точки Керкера. Резонансное поведение σ_{dep} напрямую отражается на величине интерференционной поправки (см. рис. 4).

В случае сильной деполяризации волн, когда изменение спиральности происходит при каждом рассеянии, $\langle \delta T \rangle = \langle \delta T^{(sc)} \rangle$ (это следует непосредственно из формулы (15), если пренебречь вкладом V).

Если не было бы рассеяния волн с изменением спиральности, то при наложении магнитного поля интерференционный вклад в оптический контактанс остался бы неизменным, $\langle \delta T \rangle = 2\langle \delta T^{(sc)} \rangle$. Это связано с тем, что в этом случае магнитное поле удается исключить из уравнения (16) и, соответственно, формулы (15) (см. раздел 4). Деполяризация включает влияние магнитного поля на величину $\langle \delta T \rangle$. В условиях медленной деполяризации ($\sigma_{dep} \ll \sigma_{tr}$) изменение интерференционного вклада с ростом магнитного поля описывается выражениями (28), (29), и при $h \gg 1/l_{circ}$ величина $\langle \delta T \rangle$ стремится к значению

$$\langle \delta T \rangle = 2\langle \delta T^{(sc)} \rangle + \frac{1}{\sqrt{2}\pi} \frac{A}{Ll_{circ}}, \quad (40)$$

т.е. отличие $\langle \delta T \rangle$ от $2\langle \delta T^{(sc)} \rangle$ меняется при изменении поля h от нуля до больших значений приблизительно в полтора раза.

Насыщение зависимости интерференционной поправки от h с ростом магнитного поля можно объяснить уменьшением вероятности деполяризующих столкновений на длине h^{-1} . До первого акта рассеяния с переворотом спиральности моды I и V успевают сильно перемешаться и происходит «гибридизация» мод I и V . Выживают только две моды с заданной спиральностью, $I + V_I$ и $V + I_V$, которые характеризуются длиной затухания в $\sqrt{2}$ раз больше, чем затухание моды V в отсутствие магнитного поля (см. выражение (31)).

При сильной деполяризации интерференционный вклад в кондактанс с ростом напряженности магнитного поля стремится к нулю. В условиях диффузии волн через Q1D-образец (волновод) реализуется именно этот случай. При быстром затухании моды V основной вклад в (15) дает интенсивность I . Согласно (35), переход к Q1D-геометрии происходит, когда в (35) преобладающим становится слагаемое с $q = 0$. В отсутствие магнитного поля вклад в (35) от ненулевых гармоник можно оценить как

$$\langle \delta T^{(sc)} \rangle = -\frac{2}{3} \frac{A l_{tr}}{L^2} \int \frac{d\mathbf{q}}{(2\pi)^2} \int_0^L dz I_{\mathbf{q}}(z, z) \sim -\frac{A}{l_{tr} L}, \quad (41)$$

где учтено, что интеграл по \mathbf{q} обрезается на значениях $q \sim 1/l_{tr}$. Требование малости (41) по сравнению с вкладом от нулевой гармоники $\langle \delta T^{(sc)} \rangle_{q=0} = -1/3$ [42] приводит к неравенству $A \ll l_{tr} L$, т. е. площадь поперечного сечения образца должна быть меньше, чем средний квадрат поперечного смещения светового луча при диффузии в слое среды толщиной L .

Следует отметить, что усредненный по положению рассеивателей кондактанс в диффузионном приближении в первом по $1/k_0 l_{tr}$ порядке равен

$$\langle T \rangle = \frac{8}{3} \frac{\mathcal{N} l_{tr}}{L}$$

(см., например, [8, 17]). Интерференционная поправка к кондактансу $\langle \delta T \rangle$ имеет порядок

$$\langle \delta T \rangle \sim \frac{1}{(k_0 l_{tr})^2} \frac{\mathcal{N} l_{tr}}{L},$$

пока не наступил переход к Q1D-геометрии. В этой геометрии в отсутствие магнитного поля $\langle \delta T \rangle = -1/3$. Поэтому в длинном, $L \sim l_{loc} = \mathcal{N} l_{tr}$ [42], волноводе, когда $\langle T \rangle$ становится порядка $\langle \delta T \rangle$, происходит переход к режиму андерсоновской локализации. Поскольку интерференционная поправка $\langle \delta T \rangle$ в присутствии магнитного поля в Q1D-случае убывает с ростом L как $1/L$ (см. (38)), то переход к режиму андерсоновской локализации при $\tilde{h} > h_c \sim 1/\mathcal{N} l_{tr}$ должен нарушаться. Из-за разрушения интерференции обращенных во времени волн длина локализации должна увеличиваться (см., например, [42]). В многомодовом оптоволокне ($\mathcal{N} \gg 1$) критическое значение магнитного поля h_c оказывается намного меньше, чем то, которое приводит к заметному эффекту в когерентном обратном рассеянии от фарадеевской среды [19, 22]. При транспорте электронов в Q1D-системах (проволах)

наблюдать подобный эффект трудно, поскольку при увеличении L происходит разрушение когерентности электронных волн из-за неупругих взаимодействий, температуры и других факторов [11, 13].

В заключение рассмотрим условия, при которых возможно экспериментальное наблюдение интерференционного вклада в кондактанс. Наиболее простой выглядит схема измерения полного коэффициента прохождения через волновод с рассеивающими неоднородностями. Будем считать, что чувствительность измерений позволяет регистрировать относительное изменение коэффициента прохождения порядка одного процента. Поскольку в Q1D-геометрии интерференционная поправка меняется от значения $-1/3$ до нуля (при наложении магнитного поля), то это накладывает требование на величину $\langle T \rangle$, которая не должна быть больше, чем 10^2 . Такое значение $\langle T \rangle$ можно обеспечить в волноводе длиной $L = 10$ см, площадью поперечного сечения $A = 10^{-2}$ мм², числом мод $\mathcal{N} = 10^4$ на длине волны $\lambda = 1$ мкм при типичном для неупорядоченных сред значении транспортной длины $l_{tr} = 100$ мкм. В этом случае отношение $A/(L l_{tr})$ (см. (41)) равно 10^{-3} , так что заведомо оправдано приближение Q1D-геометрии. Поскольку в магнитном поле интерференционная поправка заметно изменяется при $h \sim 10/L$ (см. (38)), то для характерных значений постоянной Верде ($V = 0.06$ мм⁻¹ · Тл⁻¹ для $\lambda = 1.064$ мкм, см., например, [43, 44]) наблюдать поправку к кондактансу можно в поле напряженностью 1 Тл. С ростом длины волновода амплитуда изменения оптического кондактанса с магнитным полем увеличивается, что дает возможность изучать переход к режиму сильной локализации в условиях нарушения T -инвариантности.

Благодарности. Авторы благодарят В. В. Маринюка за полезное обсуждение рассмотренных в статье вопросов.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (договор № 075-15-2021-1361 от 07.10.2021).

ПРИЛОЖЕНИЕ

В предположении, что мода V затухает быстрее моды I (т. е. в приближении относительно быстрой деполяризации), интерференционная поправка к кондактансу будет определяться только модой I . Согласно системе транспортных уравнений (13), связанные уравнения для мод I и V_I имеют вид

$$\left\{ \mathbf{n} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} + \sigma_{tot} \right\} I(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') + i(\mathbf{nh}) V_I(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') = \int d\mathbf{n}_1 a_1(\mathbf{nn}_1) I(\mathbf{r}, \mathbf{n}_1 | \mathbf{r}', \mathbf{n}') + \delta(\mathbf{n} - \mathbf{n}') \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (42)$$

$$\left\{ \mathbf{n} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} + \sigma_{tot} \right\} V_I(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') + i(\mathbf{nh}) I(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') = \int d\mathbf{n}_1 a_2(\mathbf{nn}_1) V_I(\mathbf{r}, \mathbf{n}_1 | \mathbf{r}', \mathbf{n}'). \quad (43)$$

Записывая выражение для V_I как свертку функции Грина уравнения (43) с входящим в (43) слагаемым $i(\mathbf{nh})I$ и подставляя V_I в (42), получаем замкнутое уравнение для моды I

$$\left\{ \mathbf{n} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} + \sigma_{tot} \right\} I(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') + (\mathbf{nh}) \int d\mathbf{r}'' d\mathbf{n}'' G_V(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}'', \mathbf{n}'') (\mathbf{n}'' \mathbf{h}) \times I(\mathbf{r}'', \mathbf{n}'' | \mathbf{r}', \mathbf{n}') = \int d\mathbf{n}_1 a_1(\mathbf{nn}_1) I(\mathbf{r}, \mathbf{n}_1 | \mathbf{r}', \mathbf{n}') + \delta(\mathbf{n} - \mathbf{n}') \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (44)$$

где $G_V(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}')$ — функция Грина уравнения (43) с источником в виде $\delta(\mathbf{n} - \mathbf{n}') \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$. Выполняя в (44) стандартную процедуру перехода к диффузионному приближению (см., например, [45]), приходим к уравнению

$$\Delta I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + 3 \frac{\partial}{\partial x_i} \int d\mathbf{r}'' \int d\mathbf{n} d\mathbf{n}' n_i (\mathbf{nh}) \int d\mathbf{n}'' \times G_V(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}'', \mathbf{n}'') (\mathbf{n}'' \mathbf{h}) I(\mathbf{r}'', \mathbf{n}'' | \mathbf{r}', \mathbf{n}') - 3\sigma_{tr} \int d\mathbf{r}'' \int d\mathbf{n} d\mathbf{n}' (\mathbf{nh}) \int d\mathbf{n}'' \times G_V(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}'', \mathbf{n}'') (\mathbf{n}'' \mathbf{h}) I(\mathbf{r}'', \mathbf{n}'' | \mathbf{r}', \mathbf{n}') = -3\sigma_{tr} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \quad (45)$$

В предположении, что функция G_V убывает на расстояниях много меньших, чем характерный масштаб изменения моды I , можно разложить I в окрестности $\mathbf{r}'' = \mathbf{r}$. Оставляя только первый член в разложении, получаем

$$\Delta I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') - \frac{\sigma_{tr}}{\sigma_{tr}^{(V)}} h^2 I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + 3h_j h_k \frac{\sigma_{tr}^{(V)} - \sigma_{tr}}{\sigma_{tr}^{(V)}} \times \left[\int d\mathbf{n} d\mathbf{n}' n_j n'_k \int d\mathbf{r}'' (\mathbf{n} \nabla) G_V(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}'', \mathbf{n}') \right] \times I(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = -3\sigma_{tr} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \quad (46)$$

Преобразуем третье слагаемое в левой части уравнения (46). Подставляя в него вытекающее из

теоремы взаимности (см., например, [46]) равенство $(\mathbf{n} \nabla_{\mathbf{r}}) G_V(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}'', \mathbf{n}') = -(\mathbf{n}' \nabla_{\mathbf{r}''}) G_V(\mathbf{r}'', -\mathbf{n}' | \mathbf{r}, -\mathbf{n})$, (47)

представим его в виде

$$3h_j h_k \frac{\sigma_{tr}^{(V)} - \sigma_{tr}}{\sigma_{tr}^{(V)}} \times \left[\int d\mathbf{n} d\mathbf{n}' n'_k n_j \oint_S (\mathbf{n}' ds) G_V(\mathbf{r}_S, -\mathbf{n}' | \mathbf{r}, -\mathbf{n}) \right] \times I(\mathbf{r}, \mathbf{r}'), \quad (48)$$

где интегрирование проводится по поверхности образца, а \mathbf{r}_S берется на его границе. В случае, когда расстояние от точки \mathbf{r} до границы образца превышает длину затухания циркулярно поляризованной моды l_{circ} , вкладом слагаемого (48) в уравнение (46) можно пренебречь. В результате уравнение (46) сводится к уравнению (18). Это утверждение остается справедливым, пока линейные размеры образца намного больше транспортной длины, $(L, \sqrt{A}) \gg l_{tr}$, и для вычисления функции Грина G_V можно воспользоваться диффузионным приближением, положив

$$G_V(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}'', \mathbf{n}') = G_V(\mathbf{r}, \mathbf{r}'') / (4\pi)^2,$$

где

$$G_V(\mathbf{r}, \mathbf{r}'') = \int d\mathbf{n} d\mathbf{n}' G_V(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}'', \mathbf{n}')$$

— пропагатор «плотности» циркулярно поляризованной моды V . В этом случае вклад (48) исчезает из-за обращения пропагатора плотности в нуль на границах области интегрирования [45].

Отметим, что если в разложении I в окрестности $\mathbf{r}'' = \mathbf{r}$ оставить в (45) следующее слагаемое, то это приведет к перенормировке множителя перед ΔI в уравнении (46) на малую добавку порядка $(hl_{tr})^2 \ll 1$, которой в рассматриваемом приближении можно пренебречь.

Полученные выше результаты (см. (18)) опираются на диффузионное приближение при вычислении функции Грина G_V . В условиях сильной деполаризации, $\sigma_{dep} \sim \sigma_{tr}$, длина затухания циркулярно поляризованной моды оказывается близка к длине свободного пробега l [18, 32], и в первом приближении для вычисления функции G_V можно воспользоваться баллистическим приближением, т. е. считать, что главный вклад в G_V дают нерассеянные волны,

$$G_V(\mathbf{r}, \mathbf{n} | \mathbf{r}', \mathbf{n}') = \delta(\mathbf{n} - \mathbf{n}') \delta\left(\mathbf{n} - \frac{\mathbf{r} - \mathbf{r}'}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}\right) \frac{e^{-\sigma|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2}. \quad (49)$$

Подставляя (49) в (44), и предполагая, что мода I является более плавной функцией координат и направлений, чем G_V , приходим для I к уравнению диффузии вида (18), в котором $\sigma_{tr}^{(V)}$ следует заметить на σ (см. (19)).

Уравнения (18) и (19) остаются справедливыми и для волновода, $L \gg \sqrt{A}$. Применимость уравнения (18) в условиях медленного затухания циркулярной поляризации связана с использованием диффузионного приближения для G_V . Из-за того, что при отражении от боковых границ волновода знак циркулярной поляризации меняется на противоположный, пропагатор плотности G_V на границах волновода обращается в нуль (т. е., когда рассеивающая среда помещается в волновод с отражающими границами, для G_V граничные условия, в отличие от моды I , не меняются). Уравнение (19) в условиях сильной деполяризации справедливо, пока поперечное сечение достаточно велико, $\sqrt{A} > l$. В волноводе с малым сечением, но который остается многомодовым, $\lambda \ll \sqrt{A} \ll l$, подстановка баллистической функции Грина (49) в (44) после промежуточного интегрирования по пространственным переменным приводит к диффузионному уравнению для $I_{\mathbf{q}=0}(z, z')$, аналогичному (19), но с дополнительным множителем, пропорциональным \sqrt{A}/l_{tr} перед h^2 .

ЛИТЕРАТУРА

1. *Analogies in Optics and Microelectronics*, ed. by W. van Haeringen and D. Lenstra, Kluwer, Dordrecht (1990).
2. E. Akkermans and G. Montambaux, *Mesoscopic Physics of Electrons and Photons*, Cambridge University Press, Cambridge (2007).
3. S. Rotter and S. Gigan, *Rev. Mod. Phys.* **89**, 015005 (2017).
4. L. Schertel, O. Irtenkauf, C. M. Aegerter et al., *Phys. Rev. A* **100**, 043818 (2019).
5. K. Y. Bliokh, S. A. Gredeskul, P. Rajan et al., *Phys. Rev. B* **85**, 014205 (2012).
6. T. Goto, A. V. Dorofeenko, A. M. Merzlikin, et al., *Phys. Rev. Lett.* **101**, 113902 (2008).
7. F. Scheffold and G. Maret, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5800 (1998).
8. A. A. Chabanov, N. P. Trégourés, B. A. van Tiggelen, and A. Z. Genack, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 173901 (2004).
9. T. Ozawa, H. M. Price, A. Amo, N. Goldman, M. Hafezi, L. Lu, M. C. Rechtsman, D. Schuster, J. Simon, O. Zilberberg, and I. Carusotto, *Rev. Mod. Phys.* **91**, 015006 (2019).
10. B. L. Altshuler, A. G. Aronov, D. E. Khmel'nitskii, A. I. Larkin, *Quantum Theory of Solids*, Mir, Moscow (1982), p. 130.
11. G. Bergmann, *Phys. Rep.* **107**, 1 (1984).
12. M. C. W. van Rossum and T. M. Nieuwenhuizen, *Rev. Mod. Phys.* **71**, 313 (1999).
13. P. A. Lee and T. V. Ramakrishnan, *Rev. Mod. Phys.* **57**, 287 (1985).
14. Е. Е. Городничев, А. И. Кузовлев, Д. Б. Рогозкин, *Письма в ЖЭТФ* **68**, 21 (1998).
15. Е. Е. Городничев, А. И. Кузовлев, Д. Б. Рогозкин, *ЖЭТФ* **133**, 839 (2008).
16. Е. Е. Городничев, А. И. Кузовлев, Д. Б. Рогозкин, *Письма в ЖЭТФ*, **89**, 649 (2009).
17. Е. Е. Gorodnichev, A. I. Kuzovlev, and D. B. Rogozkin, *JOSA A* **33**, 95, (2016).
18. Е. Е. Городничев, А. И. Кузовлев, Д. Б. Рогозкин, *Письма в ЖЭТФ* **104**, 155 (2016).
19. R. Lenke, R. Lehner, and G. Maret, *Europhys. Lett.* **52**, 620 (2000).
20. R. Lenke, C. Eisenmann, D. Reinke, and G. Maret, *Phys. Rev. E* **66**, 056610 (2002).
21. Е. Е. Gorodnichev and D. B. Rogozkin, *J. Phys.: Conf. Ser.* **1686**, 012024 (2020).
22. Е. Е. Gorodnichev, K. A. Kondratiev, and D. B. Rogozkin, *Phys. Rev. B* **105**, 104208 (2022).
23. Е. Е. Городничев, Д. Б. Рогозкин, *Письма в ЖЭТФ* **118**, 30 (2023).
24. А. А. Голубенцев, *Изв. ВУЗов. Радиофизика* **27**, 734 (1984).
25. А. А. Голубенцев, *ЖЭТФ* **86**, 47 (1984).
26. F. C. MacKintosh and S. John, *Phys. Rev. B* **37**, 1884 (1988).
27. V. Gasparian and Zh. S. Gevorkian, *Phys. Rev. A* **87**, 053807 (2013).
28. M. A. Kozhaev, R. A. Niyazov, and V. I. Belotelov, *Phys. Rev. A* **95**, 023819 (2017).
29. A. K. Zvezdin and V. A. Kotov, *Modern Magneto-optics and Magneto-optical Materials*, Institute of Physics Publishing, (1997), p. 404.

30. M. I. Mishchenko, *Electromagnetic Scattering by Particles and Particle Groups*, Cambridge University Press, Cambridge (2014).
31. Е. Е. Городничев, А. И. Кузовлев, Д. Б. Рогозкин, ЖЭТФ **131**, 357 (2007).
32. E. E. Gorodnichev, A. I. Kuzovlev, and D. B. Rogozkin, Phys. Rev. E **90**, 043205 (2014).
33. Р. Ньютон, *Теория рассеяния волн и частиц*, Мир, Москва (1969).
34. F. C. MacKintosh, J. X. Zhu, D. J. Pine, and D. A. Weitz, Phys. Rev. B **40**, 9342 (1989).
35. D. Bicoût, C. Brosseau, A. S. Martinez, and J. M. Schmitt, Phys. Rev. E **49**, 1767 (1994).
36. Е. Е. Городничев, А. И. Кузовлев, Д. Б. Рогозкин, КЭ **46**, 947 (2016).
37. M. K. Schmidt, J. Aizpurua, X. Zambrana-Puyalto, X. Vidal, G. Molina-Terriza, and J. J. Saenz, Phys. Rev. Lett. **114**, 113902 (2015).
38. P. Laven, Appl. Opt. **42**, 436 (2003).
39. A. A. Chabanov, Z. Q. Zhang, and A. Z. Genack, Phys. Rev. Lett. **90**, 203903 (2003).
40. H. Cao, A. P. Mosk, and S. Rotter, Nature Physics **18**, 994 (2022).
41. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, Москва (1982).
42. C. W. J. Beenakker, Rev. Mod. Phys. **69**, 731 (1997).
43. S. Kumari and S. Chakraborty, J. Sens. Sens. Syst. **7**, 421 (2018).
44. D. Vojna, O. Slezák, A. Lucianetti, and T. Mocek, Appl. Sci. **9**, 3160 (2019).
45. А. Исмару, *Распространение и рассеяние волн в случайно-неоднородных средах*, Мир, Москва (1981), т. 1.
46. E. P. Zege, A. P. Ivanov, and I. L. Katsev, *Image Transfer Through a Scattering Medium*, Springer Verlag (1991).

ЧАСТОТНО-ВРЕМЕННОЙ АНАЛИЗ ИЗМЕНЕНИЙ РАДОНОВЫХ ВЫБРОСОВ В ПОДЗЕМНОЙ ЛАБОРАТОРИИ LNGS, ИЗМЕРЕННЫХ ДЕТЕКТОРОМ LVD

*В. Ф. Якушев**, *Н. Ю. Агафонова***, *В. В. Ашишмин*, *Е. А. Добрынина****, *Р. И. Еникеев*,
Н. А. Филимонова, *И. Р. Шакирьянова*, от имени Коллаборации LVD

*Институт ядерных исследований Российской академии наук
117312, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 13 февраля 2024 г.,
после переработки 23 апреля 2024 г.
Принята к публикации 24 апреля 2024 г.

Представлен частотно-временной анализ временных рядов скорости счета гамма-квантов, измеренных детектором LVD в Лаборатории LNGS, Гран-Сассо, Италия. Изменение темпа счета гамма-квантов связано с выбросами радона в атмосферу подземного зала Лаборатории. Радиоактивный газ радон поступает в помещение через микротрещины и поровую воду из грунта. На вариации радона влияют гравитационные эффекты вращения Солнца и Земли, а также подвижки грунта от сейсмических явлений в Итальянском регионе. С помощью дискретного преобразования Фурье были найдены суточные (солнечные и лунные), полусуточные, лунно-месячные, недельный и годовой периоды.

DOI: 10.31857/S0044451024090049

1. ВВЕДЕНИЕ

Радон ^{222}Rn образуется в грунте в результате деления и распадов элементов уранового и ториевого рядов [1] и выходит в атмосферу подземного помещения через множественные микротрещины в породе или из воды, насыщающейся радоном (радон хорошо растворяется в воде) на пути через скальную породу до подземного зала.

Уменьшение концентрации радона происходит а) за счет распада (период полураспада радона равен 3.825 сут), б) за счет миграции из массива окружающего грунта в воздух. Однако же новая генерация газа появляется из цепочки распадов урана. Поэтому среднее содержание радона в грунте всегда постоянно и определяется концентрацией урана (радия) в этом массиве. Миграция радона в горном массиве и его выделение с поверхности определяются макроскопическим коэффициентом диффузии, который зависит от многих факторов. Наиболее важными из них являются пористость, проницаемость

и трещиноватость. Поскольку количество микротрещин увеличивается при деформациях земной коры во время землетрясений или в результате гравитационных приливов от Солнца и Луны, должна усиливаться и эманация радона.

На установке LVD, описание которой будет дано в разд. 2, можно наблюдать выбросы радона, связанные с гравитационными приливами, техногенной деятельностью (микротряской) и сейсмической активностью в регионе [2]. Эти исследования могут стать еще одним инструментом для создания общей системы наблюдения и помочь геофизикам в прогнозе разрушительных землетрясений.

Из низкоэнергетического фона LVD методом наложения эпох получены годовые вариации скорости счета гамма-квантов от распада радона $\delta N = (4 \pm 2)\%$, которые связаны с насыщением водой грунта [3]. В недавних работах [4, 5] на LVD были обнаружены техногенные недельные и суточные вариации скорости счета гамма-квантов, а также найдены лунно-месячные вариации методом наложения эпох [6].

Цель этой работы — проведение гармонического анализа методом дискретного преобразования Фурье непрерывного временного ряда скорости счета гамма-квантов для нахождения периодов гар-

* E-mail: yakushevvaleriy897@gmail.com

** E-mail: agafonova@inr.ru

*** E-mail: dobrynina02@mail.ru

моник, связанных с гравитационными приливами от движения Солнца и Луны — это солнечно-суточные, лунно-суточные, лунные периоды и годовой период [7].

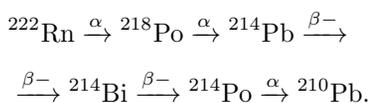
2. ОПИСАНИЕ ДЕТЕКТОРА LVD И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ДАННЫЕ

Детектор LVD [8] находится в Лаборатории LNGS [9] (Италия) на глубине 3300 м в.э. в сейсмоопасном регионе под горным массивом Гран-Сассо. Три башни детектора (Т1, Т2, Т3) состоят из 840 сцинтилляционных счетчиков. Каждый счетчик размером 1.5 м^3 заполнен жидким сцинтиллятором на основе уайт-спирита (C_nH_{2n} , $n \approx 9.6$) и просматривается тремя фотоэлектронными умножителями (ФЭУ). Общая масса детектора 1 кт железа и 1 кт сцинтиллятора. Внешние счетчики установки, расположенные рядом с окружающим детектор грунтом, экранируют внутренние счетчики (240 шт.) от внешней радиоактивности скалы.

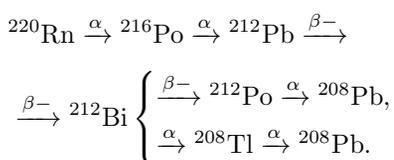
Эксперимент LVD сконструирован для регистрации нейтрино от коллапсов звездных ядер в нашей Галактике. Фоном детектора в области высоких энергий являются мюоны космических лучей и продукты их взаимодействия в веществе детектора. В области низких энергий фон детектора — гамма-кванты от естественной радиоактивности грунта и материалов конструкции, а также гамма-кванты от радиоактивного газа радона, находящегося в атмосфере подземного зала.

Гамма-кванты распада дочерних ядер радона и торона от цепочек распада урана и тория в диапазоне от 0.5 до 3.5 МэВ регистрируются всеми счетчиками детектора в течении 10 с каждые 10 мин.

Гамма-излучение создается в основном ядрами ^{214}Bi , за счет β -распада превращающимися в ^{214}Po с характерным временем $\tau = 19.7$ мин. Наиболее вероятная цепочка распада:



Число гамма-квантов от цепочки распада торона почти на порядок меньше:



Спектры гамма-квантов и цепочки распада ^{232}Th и ^{238}U приведены в [10].

Количество отсчетов, обусловленных радоном, для 70 внутренних счетчиков одной башни составляет около 3150 за 10 с. Это задает чувствительность метода 5% на уровне 3σ , т. е. за 10-секундный интервал измерений установка зафиксирует 5-процентное отклонение концентрации с достоверностью $\sim 99.7\%$. Подробно метод регистрации описан в [11].

Установка работает с 1992 г. Временные ряды скоростей счета гамма-квантов формируются для внутренних счетчиков каждой башни детектора отдельно, так как башни работают независимо и немного различаются по своим характеристикам и расположению в экспериментальном зале [12].

Данные представляют собой темп счета импульсов выше низкого энергетического порога ~ 0.5 МэВ. Данные усредняются по многим детекторам для каждой из трех башен LVD и для шести измерений каждого часа. Данные почищены. Таким образом, для гармонического анализа получены непрерывные временные ряды $y_{T1}(t)$, $y_{T2}(t)$, $y_{T3}(t)$ — темп счета радона соответственно башен Т1, Т2 и Т3 детектора LVD в герцах.

Затем данные усредняются только по первой и второй башням, так как третья башня несколько отличается конструктивно и по физическим параметрам (сцинтиллятор, ФЭУ, конструкция детекторов), т. е. $y(t) = (y_{T1}(t) + y_{T2}(t))/2$ для каждого часа. Полное время измерения 157800 ч (18 лет) с 1 января 2004 г. Статистическую ошибку в каждом бине входной гистограммы y_n , $n = 1, \dots, 157800$ можно определить пересчетом ошибок в процессе усреднения данных. Систематические ошибки оценить сложно. Их много, и они изменяются со временем (температура, напряжение питающей сети, изменение характеристик сцинтиллятора, ФЭУ, электроники за многие годы и прочее).

Поэтому представляется неплохим вариантом взять мажоритарную ошибку в виде среднеквадратичного отклонения y_n за все время измерений T_{meas} :

$$s(y_n) = \sqrt{\frac{1}{157800} \sum_{n=1}^{157800} (\bar{y} - y_n)^2}. \quad (1)$$

Сюда автоматически войдут все статистические и изменяющиеся систематические ошибки. Результат по ошибкам: $\bar{y} = 59.18$ Гц, $s(y_n) = 9.82$ Гц. Эта мажоритарная оценка ошибки одинакова для всех y_n . Теперь у нас есть два временных ряда y_n и $s(y_n)$. Это все, что нужно для проведения анализа Фурье.

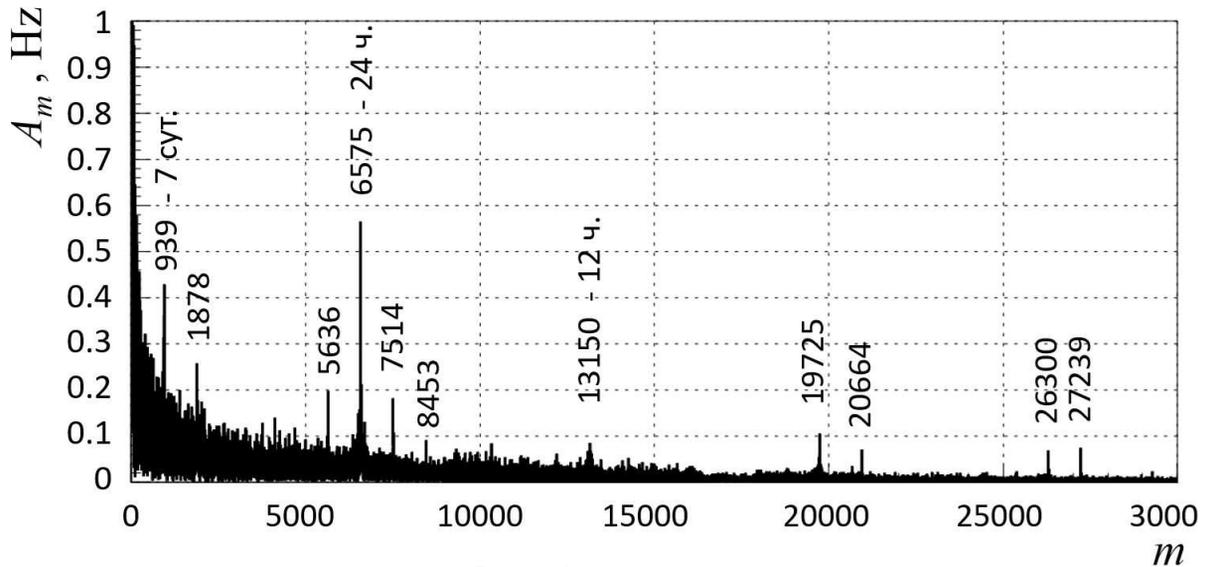


Рис. 1. Фурье-гармоники

3. ФУРЬЕ-АНАЛИЗ

Дискретный фурье-анализ проводился по формулам Бесселя для нахождения амплитуд гармоник косинуса и синуса с нулевой фазой и потом результат приводился к одной функции косинуса (без синуса) с ненулевой фазой (для простого графического представления результатов).

Параллельно с вычислением амплитуд гармоник и их фаз проводился перенос ошибок (на основе $s(y_n)$). Формула переноса ошибок стандартная:

$$s(z_m(y_n)) = \sqrt{\sum_{n=1}^{157800} \left(\frac{\partial z}{\partial y_n} s(y_n) \right)^2},$$

где $z_m(y_n)$ — функция амплитуды m -й гармоники A_m , зависящая от всех значений y_n входной радоновой гистограммы, $s(y_n)$ — ошибка y_n .

Всего было 157800 (18 лет) измерений ($n = 1, \dots, 157800$), поэтому число гармоник на выходе равно $157800/2 = 78900$ ($m = 1, \dots, 78900$). Период гармоники номер $m = 1$ (самой медленной): $T_1 = 157800 \text{ ч} = 18 \text{ лет}$ (частота $f_1 = 1/T_1$). Период гармоники номер 78900 (самой быстрой): $T_{78900} = 2 \text{ ч}$ (частота $f_{78900} = 1/T_{78900}$). Связь между номером гармоники m и ее периодом T_m : $T_m = 157800/m$.

Чтобы потом оценивать значимость какой-либо гармоники на основе ее амплитуды, в этой же программе вычисляется амплитуда B_m гармоник эквивалентного по мощности белого шума (и ошибка $s(B_m)$). У белого шума все гармоники имеют одинаковую амплитуду $B = B_m$.

Пусть A_m — амплитуда m -й гармоники радоновых данных; $s(A_m)$ — ошибка A_m . Мощность гармоники пропорциональна квадрату ее амплитуды.

Тогда $B^2 \cdot 78900 = \sum_{m=1}^{78900} A_m^2$, следовательно, амплитуда белого шума

$$B = B_m = \sqrt{\frac{1}{78900} \sum_{n=1}^{78900} A_n^2} \text{ [Гц]}.$$

В результате получаем $B = 0.0495 \text{ Гц}$, $s(B) = 6.66 \cdot 10^{-4} \text{ Гц}$ — среднеквадратичная ошибка величины B . Вычислим значимость каждой гармоники:

$$\eta_m = \frac{A_m - B}{s(A_m - B)} = \frac{A_m - B}{\sqrt{(s(A_m))^2 + (s(B))^2}}. \quad (2)$$

Величина η_m может быть отрицательна, это значит, что амплитуда гармоники ниже белого шума. Значимость гармоники показывает, на сколько среднеквадратичных отклонений $s(A_m - B)$ амплитуда гармоники превышает амплитуду белого шума.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ АНАЛИЗА ФУРЬЕ ДАННЫХ LVD

Результатом анализа Фурье являются амплитуды гармоник A_m в герцах и их ошибки, фазы гармоник в радианах и их ошибки, а также значимости η_m амплитуд гармоник.

На рис. 1 представлен график, полученный с помощью дискретного преобразования Фурье. В некоторых областях спектра гармоник наблюдаются ясно выраженные пики с весьма значимыми амплитудами — эти области спектра представлены на отдельных графиках, обсуждаемых ниже. На всех графиках по оси абсцисс отложены номера гармоник.

Таблица 1. Параметры основных и комбинационных частот видимых пиков

Период, сут	Частота f_{comb}	Номер гармоники m	A_m , Гц	Видимый пик, m	Значимость η
7.000	f_2	939	0.43	939	$> +10$
3.501	$2f_2$	$2 \cdot 939 = 1878$	0.26	1879	+5.98
1.166	$f_1 - f_2$	$6575 - 939 = 5636$	0.20	5635	+4.26
1.000	f_1	6575	0.56	6575	$> +10$
0.875	$f_1 + f_2$	$6575 + 939 = 7514$	0.18	7515	+3.82
0.778	$f_1 + 2f_2$	$6575 + 2 \cdot 939 = 8453$	0.090	8454	+1.18
0.500	$2f_1$	$2 \cdot 6575 = 13150$	0.077	13149	+0.79
0.333	$3f_1$	$3 \cdot 6575 = 19725$	0.074	19726	+0.70
0.318	$3f_1 + f_2$	$3 \cdot 6575 + 939 = 20664$	0.032	20664	-0.51
0.250	$4f_1$	$4 \cdot 6575 = 26300$	0.038	26301	-0.33
0.241	$4f_1 + f_2$	$4 \cdot 6575 + 939 = 27239$	0.075	27231	+0.74

Рассмотрим подробно значимые пики на рис. 1. Обозначим f_1 ($T = 1$ сут) частоту самой значимой гармоники (суточный пик) с максимальной значимой амплитудой, а f_2 ($T = 7$ сут) — следующую по амплитуде гармонику. Комбинационные частоты должны зависеть в основном от этих двух частот: $f_{comb} = (nf_1 \pm kf_2)$, при условиях n, k целые ≥ 0 ; $f_{comb} > 0$. В табл. 1 приведены одиннадцать номеров гармоник экспериментальных видимых пиков (рис. 1) и их соответствие номерам гармоник комбинационных частот.

Совпадение комбинационных частот с наблюдаемыми значениями подтверждает корректность проведенного фурье-анализа.

4.1. Солнечно-суточный период (1.00 сут = 24 ч). Волна S1

Рассмотрим подробнее солнечно-суточный пик, период которого составляет $T = 1$ сут = 24 ч 00 мин. Это суточная приливная волна S1. Здесь и далее обозначения волн S1, M1, M2, P1, K1 из перечня основных приливных волн по Мельхиору [7]. На рис. 1 это один из самых высоких пиков в районе $m = 6575$ с амплитудой самой высокой гармоники $A_m = 0.56$ Гц и значимостью $\eta_m > 10$. Справа и слева от него видны комбинационные частоты: $(f_1 - f_2)$, гармоника $m = 6575 - 939 = 5636$, значимость $\eta_m \approx 4.2$, и $(f_1 + f_2)$, гармоника $m = 6575 + 939 = 7514$, значимость $\eta_m \approx 3.8$. На рис. 2 приведен диапазон гармоник от $m = 6300$ до $m = 6800$. В центре виден узкий солнечно-суточный пик шириной несколько гармоник. Ширина пика на полувысоте ~ 5 гармоник.

Солнечные волны P1 ($T = 1.003$ сут) и K1 ($T = 0.997$ сут) трудно отличить от соседних пиков рядом.

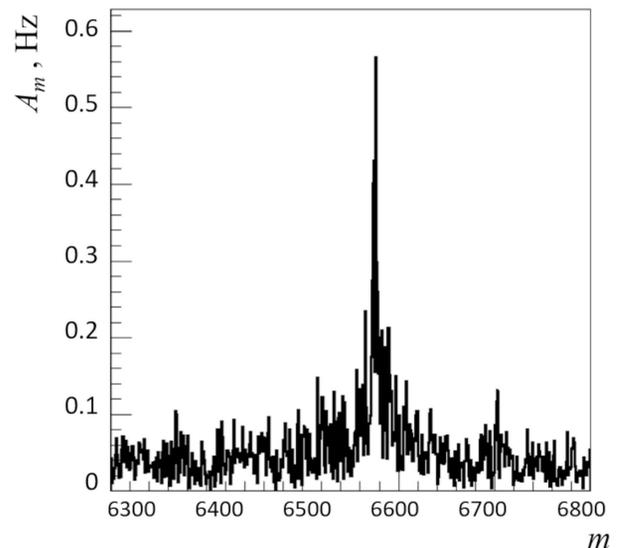


Рис. 2. Фурье-гармоники $m = 6300 \nabla \cdot 6800$

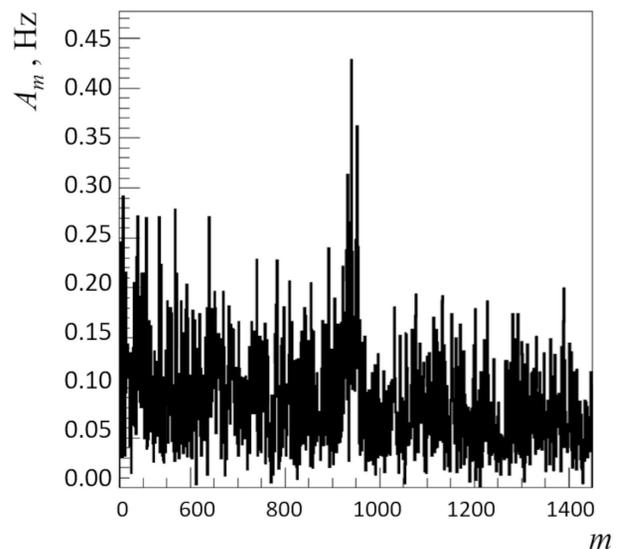


Рис. 3. Фурье-гармоники $m = 450 \nabla \cdot 1450$

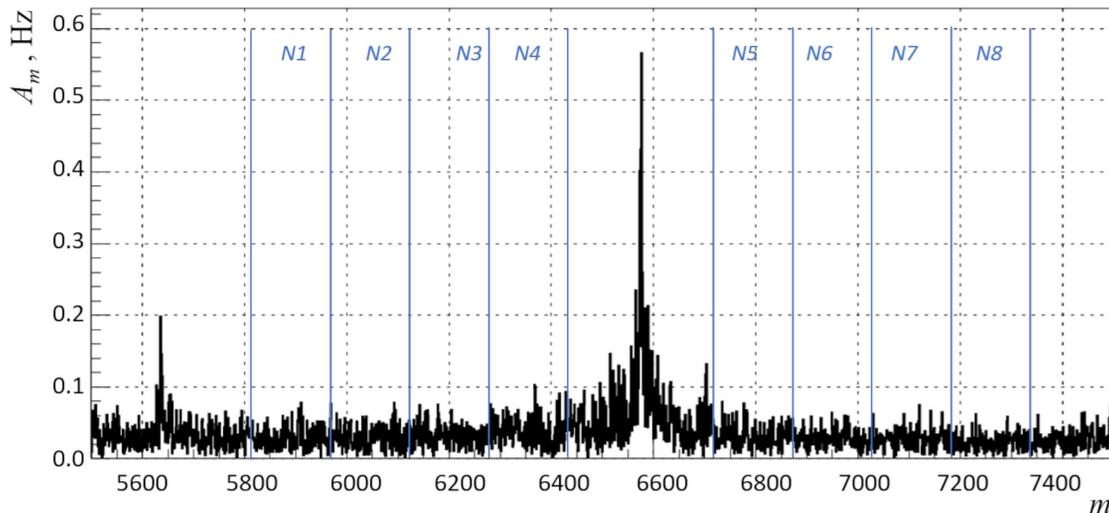


Рис. 4. Фурье-гармоники от 5500 до 7600

В этом же месте $T = 1$ сут находится пик от ежесуточного прихода людей на установку и микро-сейсмического воздействия от тяжелых грузовиков в транспортных туннелях. Эффект от техногенной деятельности человека в рабочие дни был обнаружен на данных LVD в работе [5]. На рис. 3 показаны гармоники в диапазоне $m = 450 \nabla \cdot 1450$ гармоник. В центре виден «размытый» пик с периодом $T = 7$ сут. Амплитуда максимальной гармоники ($m = 940$) в недельном пике составляет 0.43 Гц, а его значимость $\eta_m > 10$.

Полусуточная волна S2 тоже видна (гармоника $m = 13150$), но ее амплитуда в 7 раз меньше, чем амплитуда волны S1.

4.2. Поиск суточного лунного периода

$T = (1.01 \nabla \cdot 1.06)$ сут (волна M1) и
полусуточного периода

$T = (0.505 \nabla \cdot 0.531)$ сут (волна M2)

Область m в диапазоне $6202 \nabla \cdot 6509$ (ширина в 307 гармоник) соответствует $T_m = (1.01 \nabla \cdot 1.06)$ сут — это диапазон лунно-суточной приливной волны M1. Период волны M1 около 24 ч 50 мин. Это лунные сутки, они варьируются в течение месяца из-за эксцентриситета орбиты Луны вокруг Земли. Области изменения периодов приливных волн S1 и M1 не перекрываются.

На рис. 4 показаны гармоники в диапазоне $m = 5500 \nabla \cdot 6600$. Справа суточный пик f_1 ($m = 6575$, $T_{6575} = 1$ сут). Слева пик $(f_1 - f_2)$ ($m = 6575 - 939 = 5636$) — комбинационная частота.

Возьмем слева от солнечного пика ($T = 1.0000$ сут, рис. 4) центральную часть шириной в 154 гармоники ($m = 6278 \nabla \cdot 6432$) — здесь амплиту-

ды гармоник A_m должны существенно превышать эквивалентный по мощности белый шум. Пусть это будет область N4. Усредним в этой области все гармоники по мощности:

$$\bar{A} = \bar{A}_m = \sqrt{\frac{1}{154} \sum_{m=6278}^{6432} A_m^2}.$$

Левее по спектру последовательно возьмем еще три такие же области шириной по 154 гармоники (номера областей N1, N2, N3). Справа от солнечно-суточного пика симметрично возьмем еще четыре области (номера областей N5, N6, N7, N8). Таким образом, солнечно-суточный пик «вырезан» и не мешает поиску лунного пика. Области (N1–N8) выбраны так, чтобы не попадать на комбинационные частоты $(f_1 - f_2)$ и $(f_1 + f_2)$. Мажоритарную ошибку амплитуды одной гармоники $s(A_m)$ возьмем как среднееквадратичное отклонение от среднего амплитуд гармоник по всем восьми областям: $s(A_m) = 1.61 \cdot 10^{-2}$ Гц. Вычислим также эквивалентный по мощности белый шум, локально только по восьми областям: $B_m = 3.42 \cdot 10^2$ Гц, $s(B_m) = 4.60 \cdot 10^{-4}$ Гц (для одной гармоники).

Результаты расчета для всех N1–N8 областей представлены в табл. 2. Имеем $s(\bar{A}) = 1.30 \cdot 10^{-3}$ Гц, $s(\bar{B}) = 0.37 \cdot 10^{-4}$ Гц для каждой из областей N1–N8.

Можно утверждать, что мы видим лунно-суточный пик $T = (1.01 \nabla \cdot 1.06)$ сут в ожидаемом для волны M1 месте со значимостью $\eta = 7.96$.

Аналогично с поиском волны M1 проведен поиск волны M2 (лунно-приливной полусуточной волны, ее период 12 ч 25.2 мин). Слева и справа относительно пика волны S2 (гармоника $m = 13150$) выделялись области N1 и N2 шириной в 616 гармоник.

Таблица 2. Параметры выбранных областей для нахождения лунно-суточного пика M1

Область	N1	N2	N3	N4	N5	N6	N7	N8
Диапазон гармоник m	5813∇· 5967	5968∇· 6122	6123∇· 6277	6278∇· 6432	6433∇· 6872	6873∇· 7027	7028∇· 7182	7183∇· 7337
Период, сут	1.131∇· 1.102	1.102∇· 1.074	1.074∇· 1.047	1.047∇· 1.022	0.979∇· 0.957	0.957∇· 0.936	0.936∇· 0.915	0.915∇· 0.896
$\bar{A} \cdot 10^{-2}$, Гц	3.29	3.46	3.52	4.45	3.45	3.13	3.11	2.64
Значимость η	-0.96	+0.31	+0.79	+7.96	+0.29	-2.18	-2.37	-5.96

Таблица 3. Параметры выбранных областей для нахождения лунного полусуточного пика M2

Область	N1	N2	N3	N4
Диапазон m	12373∇·12988	13312∇·13927	13928∇·14543	14544∇·15159
Период, сут	0.531∇·0.506	0.494∇·0.472	0.472∇·0.452	0.452∇·0.434
\bar{A} , Гц	$1.26 \cdot 10^{-2}$	$1.114 \cdot 10^{-2}$	$1.137 \cdot 10^{-2}$	$1.064 \cdot 10^{-2}$
Значимость η	+5.42	-1.55	-0.47	-3.83

Область N1 — область искомого расположения пика M2, а область N2 симметрична относительно S2. Правее N2 добавлены еще две области N3 и N4. Результаты сведены в табл. 3.

Эквивалентный по мощности белый шум, локально только по четырем областям: $B_m = 1.148 \cdot 10^{-2}$ Гц, $s(\bar{A} - \bar{B}) = 2.188 \cdot 10^{-4}$ Гц. Волна M2 видна со значимостью $\eta = +5.42$.

4.3. Поиск синодического лунно-солнечного периода (29.3∇·29.8) сут

Синодический лунно-солнечный период — это период времени между двумя одинаковыми фазами Луны, например, между двумя полнолуниями. Гравитационное влияние Луны и Солнца создает в Земле приливные волны с амплитудой на ее поверхности в среднем несколько десятков сантиметров.

Солнечно-суточный пик должен быть в районе периода $T_m = 29.5$ сут. Область гармоник лунно-солнечный пика представлена на рис. 5. Гармоника $m = 223$, $T_m = 29.48$ сут имеет значимость $\eta = 11.67$. Влево и вправо значимость сильно снижается. Но слева на гармонике $m = 217$ наблюдается пик значимостью $\eta = 9.8$, $T_m = 30.30$ сут. Пик такой же ширины, как у $m = 223$. Вероятно, это комбинационная частота.

Если f_1 соответствует $m = 223$ и гармоника для $(f_1 - f_2)$ $m = 217$, то f_2 должна соответствовать гармонике $m = 6$. Посмотрим, есть ли пик в районе $m = 6$. В табл. 4 наблюдается явный пик с центром на гармонике приблизительно $m = (5 + 6 + 7 + 8)/4 = 6.5$. Вероятно, пик $m = 217$ является комбинационной частотой по трем причинам:

а) $A_{217} < A_{223}$;

Таблица 4. Значения амплитуд для гармоник $m = 4\nabla \cdot 9$

m	T_m , солнечные сут	A_m , Гц
4	1643	0.92
5	1351	2.45
6	1095	0.31
7	939	1.61
8	822	1.37
9	730	0.32

б) пики на $m = 217$ и $m = 223$ имеют одинаковую ширину, и она равна приблизительно одной гармонике;

в) имеется пик на $m = 6$.

Чтобы точнее оценить значимость лунно-солнечного пика, будем определять амплитуду белого шума B_m по участку спектра в области $m = 223$. На рис. 5 видно, что ширину пика $T = 29.5$ сут мож-

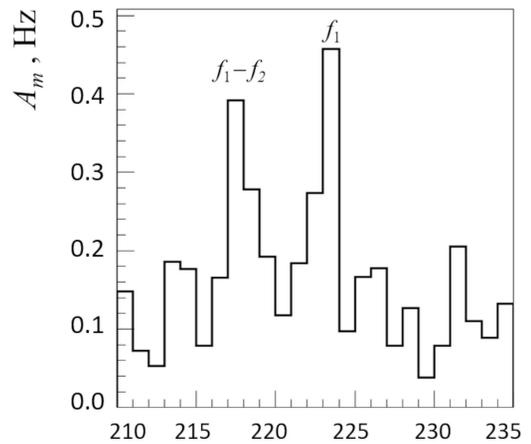


Рис. 5. Фурье-гармоники от 210 до 235

но выбрать в одну гармонику $m = 223$. Амплитуда этой гармоники равна $A_{223} = 0.457$ Гц, ошибка $s(A_{223}) = 0.10$ Гц.

Амплитуда каждой гармоники эквивалентного по мощности белого шума (вычисленного по окрестности $m = 210 \nabla \cdot 233$) равна $B_m = 0.19$ Гц, $s(B_m) = 2.05 \cdot 10^{-2}$ Гц. В этих условиях значимость гармоники $m = 223$ равна $\eta = 2.64$.

Для синодического периода, где у нас имеется одна, довлеющая над остальными, гармоника, можно получить фазу — сдвиг максимума функции косинуса относительно начала измерения. Приводя функцию дискретного преобразования Фурье к косинусу, получаем $y_m(t) = A_m \cos(\varpi_m t + \varphi_m)$, где φ_m — фаза в радианах, ϖ_m — круговая частота в рад/сут ($\varpi_m = 2\pi/T_m$, $T_m = 29.5$).

Мы использовали разный набор статистики с 2004 по 2022 гг. Приводим здесь наиболее значимые результаты. На шестилетней статистике с 2004 г. получена фаза $\varphi_m = 4.152 \pm 0.083$ рад. Переводя радианы в сутки и зная, что день полнолуния с 2004 г. приходится на 6.65 сут, посчитаем задержку максимума эффекта влияния луны и солнца на выход радона: $\Delta t = (9.99 - 6.65)$ сут = (3.35 ± 0.39) сут.

На десятилетней статистике с 2011 г. получена фаза $\varphi_m = 1.49 \pm 0.067$ рад. Переводя радианы в сутки и учитывая день полнолуния с 2011 г. (18.89 сут), получаем задержку $\Delta t = (22.501 - 18.89)$ сут = (3.61 ± 0.30) сут.

Посчитав среднее Δt с весом, обратным дисперсиям, по двум разным статистикам, получаем, что через $\Delta t = (3.51 \pm 0.24)$ сут после полнолуния LVD «видит» максимум выхода радона по измеряемым детектором гамма-квантам.

4.4. Поиск аномалистического лунно-месячного периода 27.55455 сут

Луна при движении по орбите вокруг планеты Земля проходит через точку, ближайшую к Земле, — точку перигея. Период между двумя перигеями равен $T_a = 27.55455$ сут — аномалистический лунный месяц (волна Mm). Аналогично Земля проходит вокруг Солнца за период $T = 365.2422$ сут между двумя перигелиями — солнечный год, т. е. возвращается в ту же точку своей орбиты.

Посмотрим на амплитудный спектр гармоник (рис. 6) в диапазоне $215 \nabla \cdot 315$. В области $m = (226 \nabla \cdot 248) \sim T_m = (29.1 \nabla \cdot 26.5)$ сут видны гармоники с повышенными амплитудами — максимальная $A_{max} = 0.392$ Гц, $m = 243$. Выишем гармоники с амплитудами, превышающими $A_{max}/2 = 0.196$ Гц в этой области: $m_i = 231, 235, 237, 240, 243, 244$. За-

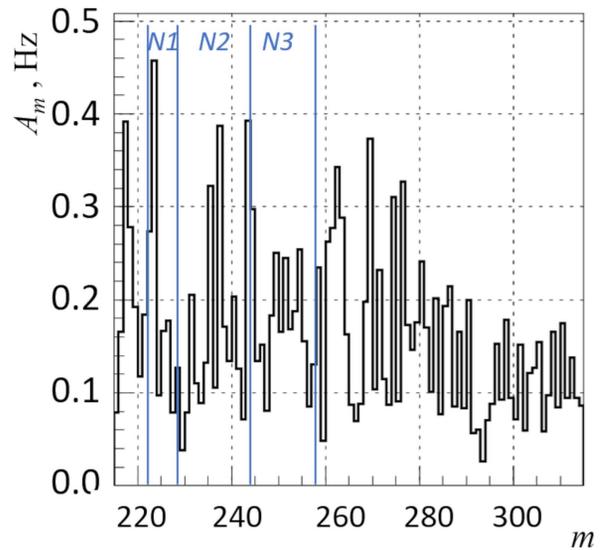


Рис. 6. Фурье-гармоники от 215 до 315

фиксируем эту область гармоник, с 231 по 244 включительно, и будем считать, что здесь сосредоточена большая часть мощности пика $T_a = 27.55455$ сут (ширина на полувысоте). Уточним положение центра пика усреднением всех периодов T_m в указанных границах с весом, равным мощности гармоник (т. е. квадратам амплитуд A_m^2):

$$\bar{T}_m = \frac{\sum_{m=231}^{244} (T_m^2 A_m^2)}{\sum_{m=231}^{244} A_m^2} = 27.54955 \text{ сут.}$$

Эта величина совпадает с астрономическим периодом T_a с точностью 0.005 сут. Теперь найдем значимость пика: предположительно мы имеем пик в области гармоник $m = (231 \nabla \cdot 244)$, включающей 14 гармоник (область N2). Еще левее такую же область в 14 гармоник $m = (217 \nabla \cdot 230)$ мы взять не можем — там пик $T = 29.5$ сут. Поэтому возьмем область только в 7 гармоник $m = (224 \nabla \cdot 230)$ — область N1. А правее можем взять еще одну область в 14 гармоник $m = (245 \nabla \cdot 230)$ — область N3.

Суммарно по трем областям N1 ∇ N3 получаем амплитуду белого шума $B_m = 0.190$ Гц. В результате с учетом числа гармоник в областях получаем табл. 5. Из вычисленных параметров $\bar{T}_m = 27.5495$ и значимости $\eta = +1.384$ мы можем только сказать, что есть указания на существование пика в области аномалистического периода.

4.5. Поиск солнечно-годового периода 365.2422 сут

Солнечный год (или тропический) — это промежуток времени, за который Солнце завершает один цикл смены времен года, как это видно с Земли, или время, необходимое для того, чтобы Солнце, начав

Таблица 5. Параметры выбранных областей для нахождения лунно-месячного пика

Область	N1	N2	N3
Диапазон гармоник	$224\nabla \cdot 230$	$231\nabla \cdot 244$	$245\nabla \cdot 258$
Периоды, сут	$29.35\nabla \cdot 28.59$	$28.46\nabla \cdot 26.94$	$26.84\nabla \cdot 25.48$
Число гармоник	7	14	14
\bar{A} , Гц	0.1187	0.2231	0.1819
Ошибка $s(\bar{A})$, Гц	$3.3711 \cdot 10^{-2}$	$2.3838 \cdot 10^{-2}$	$2.3838 \cdot 10^{-2}$
Ошибка $s(\bar{B})$, Гц	$5.6983 \cdot 10^{-3}$	$4.0293 \cdot 10^{-3}$	$4.0293 \cdot 10^{-3}$
Значимость η	-2.074	+1.384	-0.320

Таблица 6. Параметры выбранных областей для нахождения годового пика

Область	N1	N2	N3	N4	N5
Диапазон m	$9\nabla \cdot 15$	$16\nabla \cdot 20$	$21\nabla \cdot 25$	$26\nabla \cdot 30$	$31\nabla \cdot 35$
Периоды, сут	$730.5\nabla \cdot 438.3$	$410.9\nabla \cdot 328.7$	$313.1\nabla \cdot 263.0$	$252.9\nabla \cdot 219.2$	$212.1\nabla \cdot 187.9$
\bar{A} , Гц	0.598	1.168	0.766	0.481	0.424
Значимость η	-0.91	+2.59	+0.222	-1.45	-1.79

свое движение от выбранной эклиптической долготы, завершило один полный цикл времен года и возвратилось к той же самой эклиптической долготе — это 365 сут и 6 ч, более точно $T = 365.2422$ сут.

На рис. 7 приведены амплитуды гармоник в диапазоне $m = 1\nabla \cdot 35$. Гармоника $m = 18$ соответствует периоду $T_m = 365.27$ сут. Объединим гармоники ($m = 16\nabla \cdot 20$) вокруг T_m в область N2. Слева и справа фиксируем области N1, N3, N4, N5 (рис. 7, табл. 6). Находим мажоритарную среднеквадратичную ошибку амплитуды одной гармоники $s(A_m) = 0.373$ Гц, уровень белого шума $B_m = 0.728$ Гц, ошибку $s(B_m) = 7.17 \cdot 10^{-2}$ Гц и значимость η усредненных по мощности амплитуд по областям. Результаты показаны в табл. 6. Значимость найденного пика годового цикла солнца $\eta = +2.59$.

5. ОБСУЖДЕНИЕ И ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате фурье-анализа временного ряда данных эксперимента LVD по скорости счета гамма-квантов в подземном помещении в спектре гармоник с большой значимостью η найдены пики следующих периодов:

$T = 1$ сут, $\eta > 10$ — пик с самой большой амплитудой, вклад в который дает эффект солнечно-суточных приливов в грунте (волна S1), и в основном (больше 95%) сформирован работой персонала Лаборатории и проездом грузовиков в транспортных туннелях;

$T = 7$ сут — работа персонала в подземной лаборатории и автомобильный трафик в транспортных туннелях, $\eta > 10$;

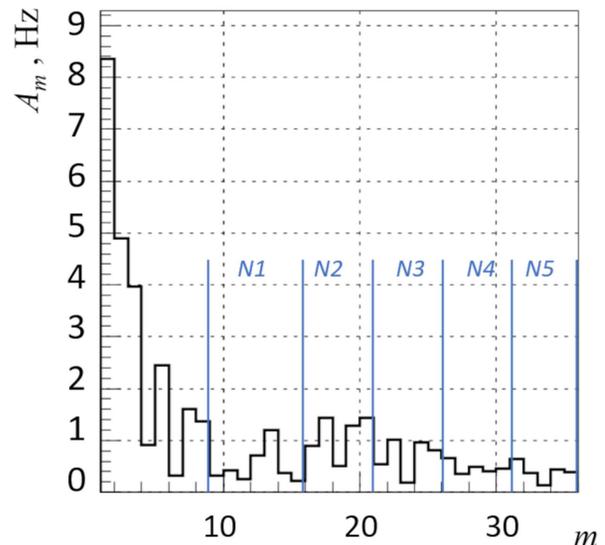


Рис. 7. Фурье-гармоники от 1 до 35

$T = (1.01\nabla \cdot 1.06)$ сут — период от лунно-суточных приливов в грунте (волна M1), $\eta = 8$;

$T = (0.506\nabla \cdot 0.531)$ сут — период от лунно-полусуточных приливов в грунте (волна M2), $\eta = 5.4$. Вычисленная суммарная мощность пика M2 меньше суммарной мощности пика S1.

Это говорит о том, что происхождение экспериментального пика S1 в основном техногенное и в меньшей степени от гравитационных эффектов Солнца.

Периоды с небольшой значимостью:

$T = (29.3\nabla \cdot 29.8)$ сут — синодический лунный месяц — период от лунно-солнечных приливов в грунте, $\eta = 2.7$;

$T = 365.24$ сут — годовой период между перигелиями, $\eta = 2.6$;

$T = 27.55455$ сут — аномалистический лунный месяц — период между перигеями, $\eta = 1.38$.

В нашем исследовании мы подтверждаем наличие связанных с солнечными и в большей степени с лунными периодами вариаций гамма-квантов от естественной радиоактивности под землей, существование которых при анализе потока тепловых нейтронов в приземном слое впервые было получено в работе [13].

Необходимо заметить, мы считаем, что полученный розовый фурье-спектр (большие амплитуды гармоник на малых частотах) связан с долговременной нестабильностью детекторов-счетчиков (в основном фотоумножителей), которая корректируется ежемесячными калибровками LVD, но не корректируется при измерении скорости счета гамма-квантов от распадов радона в зале установки. Однако же это не помешало найти периоды в данных LVD, связанные с гравитационными эффектами от вращения Луны и Земли.

Фаза — положение максимума косинусоиды гармоники — была определена для синодического периода ($T = 29.5$ сут). Было найдено, что через $\Delta t = (3.51 \pm 0.24)$ сут после полнолуния LVD «видит» увеличение выхода радона по измеряемым детектором гамма-квантам.

Другие фазы определить трудно, так как искомые периоды во временном ряде скоростей счета гамма-квантов состоят из нескольких гармоник со своей фазой. Поэтому единственным методом нахождения фазы для уже «заранее известных» периодов остается метод наложения эпох. В статьях [5, 6] методом наложения эпох были найдены фазы для годового периода (середина августа) и лунного синодического периода (полнолуние). В работе [6] было указание на задержку максимума выхода радона после полнолуния от 1 до 5 сут. Полученный результат в работе [6] подтверждает наличие задержки в 3.5 сут с большей точностью.

Земная кора, как и литосфера в целом, под воздействием приливных волн в Земле постоянно подвергается деформациям: во время положительных полуволн — растяжению, а во время отрицательных — сжатию. В результате таких деформаций в породах, из которых складывается земная кора, возникают внутренние напряжения, воздействующие на их физические свойства, а также изменяется объем микропор, микротрещин и капилляров. Изменение объемов микропор, капилляров и микротрещин

влечет за собой изменение соотношения объемов поровой и гравитационной (свободной) воды в водоносных слоях. Результаты нашего анализа подтверждают, что в районах геофизических разломов возрастает эманация глубинных газов, коррелирующая с приливами в земной коре.

Результаты анализа позволят выделить (разделить) в экспериментальных данных детектора случаи возрастания темпа счета гамма-квантов от естественной радиоактивности, связанные с гравитационными эффектами, и возрастания от инъекции радона при землетрясениях в итальянском регионе.

Финансирование. Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант № 23-22-00048), <https://rscf.ru/project/23-22-00048/>.

LVD Collaboration: Authors and Affiliations

N. Yu. Agafonova¹, M. Aglietta^{2,3}, P. Antonioli⁴,
V. V. Ashikhmin¹, G. Bari⁴, G. Bruno^{5,6},
E. A. Dobrynina¹, R. I. Enikeev¹, W. Fulgione^{3,5},
P. Galeotti^{2,3}, M. Garbini^{4,7}, P. L. Ghia⁸, P. Giusti⁴,
E. Kemp⁹, A. S. Malgin¹, A. Molinaro^{5,10},
R. Persiani⁴, I. A. Pless¹¹, O. G. Ryazhskaya¹,
G. Sartorelli⁴, I. R. Shakiryanova¹, M. Selvi⁴,
G. C. Trincheri^{2,3}, C. F. Vigorito², V. F. Yakushev¹,
and A. Zichichi^{4,7}

¹Institute for Nuclear Research of the Russian Academy of Sciences
117312, Moscow, Russia

²Department of Physics, University of Turin and INFN
10125, Turin, Italy

³INAF, Osservatorio Astrofisico di Torino
10025, Turin, Italy

⁴University of Bologna and INFN
40127, Bologna, Italy

⁵INFN, Laboratori Nazionali del Gran Sasso
67100, Assergi, L'Aquila, Italy

⁶New York University Abu Dhabi, NYUAD
129188, Abu Dhabi, United Arab Emirates

⁷Centro Enrico Fermi
00184, Roma, Italy

⁸Laboratoire de Physique des 2 Infinis Irène Joliot Curie, CNRS
91406, Orsay, France

⁹University of Campinas
13083, Campinas, Brazil

¹⁰Gran Sasso Science Institute
67100, L'Aquila, Italy

¹¹Massachusetts Institute of Technology
02139, Cambridge, USA

ЛИТЕРАТУРА

1. Д. В. Сивухин, *Общий курс физики*, т. V, *Атомная и ядерная физика*, Физматлит, Москва (2002).
2. Н. Ю. Агафонова, Е. А. Добрынина, Н. А. Филимонова, от имени Коллаборации LVD, Вестник Московского университета, сер. 3, физика, астрономия **78**, 2310202 (2023) [N. Yu. Agafonova, E. A. Dobrynina, and N. A. Filimonova, Moscow Univ. Phys. **78**, 27 (2023)].
3. Н. Ю. Агафонова, В. В. Ашихмин, В. Л. Дадыкин, Е. А. Добрынина, Р. И. Еникеев, А. С. Мальгин, О. Г. Рязжская, И. Р. Шакирьянова, В. Ф. Якушев и Коллаборация LVD, Изв. РАН, сер. физ. **81**, 551 (2017) [N. Yu. Agafonova, V. V. Ashikhmin, V. L. Dadykin, E. A. Dobrynina, R. I. Enikeev, A. S. Malgin, O. G. Ryazhskaya, I. R. Shakiyanova, V. F. Yakushev, and the LVD Collaboration, Bull. Russ. Acad. Sci., Physics **81**, 512 (2017)].
4. Н. Ю. Агафонова, В. В. Ашихмин, Е. А. Добрынина, Р. И. Еникеев, А. С. Мальгин, К. Р. Рудаков, О. Г. Рязжская, И. Р. Шакирьянова, В. Ф. Якушев, Изв. РАН, сер. физ. **83**, 673 (2019) [N. Yu. Agafonova, V. V. Ashikhmin, E. A. Dobrynina, R. I. Enikeev, A. S. Malgin, K. R. Rudakov, O. G. Ryazhskaya, I. R. Shakiryanova, and V. F. Yakushev, Bull. Russ. Acad. Sci., Physics **83**, 614 (2019)].
5. Н. Ю. Агафонова, Е. А. Добрынина, Н. А. Филимонова, И. Р. Шакирьянова, от имени Коллаборации LVD, ЖЭТФ **164**, 386 (2023) [N. Yu. Agafonova, E. A. Dobrynina, N. A. Filimonova, and I. R. Shakiryanova, JETP **137**, 333 (2023)].
6. N. Yu. Agafonova, V. V. Ashikhmin, E. A. Dobrynina et al., on behalf of the LVD Collaboration, Phys. Atom. Nuclei **86**, 1014 (2023).
7. П. Мельхиор, *Земные приливы*, Мир, Москва (1968).
8. G. Bari, M. Basile, G. Bruni, G. Cara Romeo, A. Castelvetti, L. Cifarelli, A. Contin, C. Del Papa, P. Giusti, G. Iacobucci, G. Maccarrone, T. Massam, R. Nania, V. O'Shea, F. Palmonari et al., Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **264**, 5 (1988).
9. Национальная лаборатория Гран-Сассо Национального института ядерной физики Италии <https://www.lngs.infn.it> (дата обращения 20.01.2024).
10. G. Bruno, PhD Thesis, Univ. Degli Studi di L'Aquila, L'Aquila (2012).
11. Н. Ю. Агафонова, В. А. Алексеев, Е. А. Добрынина, В. В. Кузнецов, А. С. Мальгин, О. Г. Рязжская, В. Ф. Якушев, Препринт № 1071/2001 ИЯИ РАН, Москва (2001).
12. Н. Ю. Агафонова, О. Г. Рязжская, от имени Коллаборации LVD, ЖЭТФ **161**, 533 (2022) [N. Yu. Agafonova, M. Aglietta, P. Antonioli, V. V. Ashikhmin, G. Bari, G. Bruno, E. A. Dobrynina, R. I. Enikeev, W. Fulgione, P. Galeotti, M. Garbini, P. L. Ghia, P. Giusti, E. Kemp, A. S. Malgin, A. Molinaro, R. Persiani, I. A. Pless, O. G. Ryazhskaya, G. Sartorelli, I. R. Shakiryanova, M. Selvi, G. C. Trinchero, C. F. Vigorito, V. F. Yakushev, and A. Zichichi, JETP **134**, 449 (2022)].
13. В. В. Алексеенко, Ю. М. Гаврилюк, Д. М. Громушкин, Д. Д. Джаппуев, А. У. Куджаев, В. В. Кузьминов, О. И. Михайлова, Ю. В. Стенькин, В. И. Степанов, Физика земли **45**, 91 (2009) [V. V. Alekseenko, Y. M. Gavrilyuk, D. D. Dzhappuev, A. U. Kudzhaev, V. V. Kuzminov, O. I. Mikhailova, Y. V. Stenkin, V. I. Stepanov, D. M. Gromushkin, Izvestiya, Phys. Sol. Earth **45**, 709 (2009)].

МОДЕЛИРОВАНИЕ ЗАРЯДОВЫХ КОРРЕЛЯЦИЙ АДРОНОВ В СОУДАРЕНИЯХ ТЯЖЕЛЫХ ИОНОВ ПРИ ЭНЕРГИЯХ NICA

Е. Е. Забродин, В. Л. Коротких, И. П. Локтин^{}, С. В. Петрушанко, А. М. Снугирев,
А. С. Чернышов, Г. Х. Эйюбова*

*Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова,
Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 26 февраля 2024 г.,
после переработки 13 мая 2024 г.
Принята к публикации 14 мая 2024 г.

Проведен модельный анализ зарядовых корреляций адронов в соударениях тяжелых ионов для энергий, которые будут доступны на коллайдере NICA. В качестве характеристики зарядовых корреляций рассмотрены функции баланса, представляющие собой плотности вероятности того, что разноименно заряженные частицы разделены определенными интервалами быстроты и азимутального угла. Показано, что наблюдаемые в эксперименте STAR на коллайдере RHIC зависимости быстрой ширины функции баланса от центральности соударений ионов золота при энергиях на пару нуклонов в системе центра масс $\sqrt{s_{NN}} = 7.7$ и 11.5 ГэВ могут быть воспроизведены моделью HYDJET++ в случае введения в модель пособытийного сохранения электрического заряда прямых адронов и учета конечных значений изоспинового, странного и барионного химических потенциалов.

DOI: 10.31857/S0044451024090050

1. ВВЕДЕНИЕ

Изучение свойств субъядерной материи в условиях экстремально высоких плотностей энергии и температуры, достигаемых в релятивистских соударениях тяжелых ионов, является одним из наиболее динамично развивающихся направлений современной ядерной физики [1]. Первые указания на формирование в соударениях тяжелых ионов нового состояния сильно взаимодействующей материи — кварк-глюонной плазмы (КГП), такие как аномальное подавление выхода J/ψ -мезонов, тепловое излучение фотонов и лептонных пар, усиленный выход «странных» адронов, были получены в экспериментах с фиксированной мишенью на ускорителе SPS. Совокупность данных, полученных в экспериментах на коллайдерах RHIC и LHC [2–8] (подавление выхода кваркониев и жестких адронов, модификация характеристик адронных струй, сильная азимутальная анизотропия потока частиц, дальнедействующие азимутальные корреляции и др.), сви-

детельствует о проявлении коллективных эффектов на партонном уровне и согласуется с предположением о формировании горячей материи с гидродинамическими свойствами («кварк-глюонная жидкость»). Дальнейшее экспериментальное и теоретическое исследование множественного рождения частиц в релятивистских соударениях ядер связано как с уточнением параметров образованной при высоких энергиях горячей КГП, так и с исследованием динамики кварк-адронных фазовых переходов, включая поиск «критической точки», вблизи их границы — программы скана энергий на RHIC и SPS, будущие проекты CBM на ускорителе FAIR в GSI и MPD на коллайдере NICA в ОИЯИ. При этом значительный интерес представляет исследование различных типов импульсных, угловых и зарядовых корреляций частиц, несущих информацию о различных стадиях эволюции системы в ядро-ядерном взаимодействии.

Зарядовые корреляции частиц характеризуются «функциями баланса» (ФБ) — плотностью вероятности того, что разноименно заряженные частицы разделены определенными интервалами быстроты и азимутального угла [9–11]. В совокупности с коллективным движением начальное пространственное разделение коррелирующих зарядов при-

^{*} E-mail: lokhtin@www-hep.sinp.msu.ru

водит к их дальнейшему распространению в разных направлениях и формированию пространственно-импульсных корреляций между парами зарядов. При этом ширины ФБ чувствительны к времени, в течение которого в системе происходит разделение электрического заряда, что открывает возможность использования ФБ для получения информации о пространственно-временных характеристиках области испускания частиц, включая информацию о наличии и типе кварк-адронного фазового перехода. Функции баланса заряженных частиц изучались в экспериментах с тяжелыми ионами на SPS [12], RHIC [13–15] и LHC [16–19]. Один из основных полученных экспериментальных результатов заключается в том, что ширина ФБ для заряженных частиц уменьшается при переходе от периферических ядро-ядерных соударений к центральным, а также с ростом энергии сталкивающихся пучков. При этом ширина ФБ обратно пропорциональна силе коллективного потока в системе. Современные теоретические модели плохо описывают зарядовые корреляции частиц в соударениях тяжелых ионов, в частности, зависимость ширины ФБ от центральности взаимодействий, что может свидетельствовать о неучтенных механизмах таких корреляций в моделях. Таким образом, актуальной задачей является выявление источников зарядовых корреляций в различных теоретических подходах и разработка адекватной процедуры моделирования таких корреляций, позволяющей описать экспериментальные данные в широком диапазоне энергий.

В данной работе проведен модельный анализ зарядовых корреляций адронов в соударениях тяжелых ионов для диапазона «промежуточных» энергий, который уже был частично исследован на RHIC и будет детально изучен на NICA [20]. Для моделирования соударений ионов золота при энергиях на пару нуклонов в системе центра масс $\sqrt{s_{NN}} = 7.7$ и 11.5 ГэВ использовалась двухкомпонентная модель Монте-Карло HYDJET++ [21, 22], конечное состояние ядерной реакции в которой представляет собой суперпозицию мягкой гидродинамической и жесткой струйной компонент. В предыдущей работе [23] нами была разработана и реализована в модели HYDJET++ процедура учета зарядовых корреляций прямых адронов мягкой компоненты, включающая в себя пособытийное сохранение электрического заряда на стадии «вымораживания» и позволившая воспроизвести экспериментально наблюдаемую зависимость ширины ФБ в соударениях ионов свинца при энергиях LHC. В настоящей работе данная процедура, разработанная изначально для электриче-

ски нейтральных систем (соответствует ультрарелятивистским энергиям LHC), обобщена на случай систем с дисбалансом электрического заряда, что соответствует, в частности, диапазону энергий NICA $\sqrt{s_{NN}}$ от 4 до 11 ГэВ.

2. ФУНКЦИИ БАЛАНСА РАЗНОИМЕННО ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ

Формализм функций зарядового баланса был предложен и развит в работах [9, 10, 24–26]. Общее определение функции зарядового баланса может быть записано следующим образом:

$$B_{\alpha\beta}(\Delta y, \Delta\varphi) = \frac{1}{2} \int d\Omega \delta(y_\alpha - y_\beta - \Delta y) \delta(\varphi_\alpha - \varphi_\beta - \Delta\varphi) \times \left\{ \frac{P_{\alpha+\beta-} - P_{\alpha+\beta+}}{P_{\alpha+}} + \frac{P_{\alpha-\beta+} - P_{\alpha-\beta-}}{P_{\alpha-}} \right\}, \quad (1)$$

где $d\Omega = dy_\alpha d\varphi_\alpha dy_\beta d\varphi_\beta$, $\Delta y = y_\alpha - y_\beta$ — относительная быстрота частиц сортов α и β , $\Delta\varphi = \varphi_\alpha - \varphi_\beta$ — относительный азимутальный угол частиц сортов α и β , $P_{\alpha+\beta-} = P_{\alpha+\beta-}(y_\alpha, \varphi_\alpha; y_\beta, \varphi_\beta)$ — совместная плотность вероятности обнаружить положительно заряженную частицу сорта α с быстротой y_α и азимутальным углом φ_α и отрицательно заряженную частицу сорта β с быстротой y_β и азимутальным углом φ_β , $P_{\alpha+} = P_{\alpha+}(y_\alpha, \varphi_\alpha)$ — плотность вероятности обнаружить положительно заряженную частицу сорта α с быстротой y_α и азимутальным углом φ_α ; остальные плотности вероятности вводятся аналогично. Под проецированием функции зарядового баланса, например, на ось Δy понимается преобразование

$$B(\Delta y) = \int B(\Delta y, \Delta\varphi) d\Delta\varphi$$

или соответствующее суммирование в случае гистограммы. Шириной проекции ФБ называется величина $\langle \Delta y \rangle$, вычисляемая как

$$\langle \Delta y \rangle = \frac{\int B(\Delta y) \Delta y d\Delta y}{\int B(\Delta y) d\Delta y} \approx \frac{\sum_i B_i \Delta y_i}{\sum_i B_i}. \quad (2)$$

Для практического вычисления ФБ принимается ультрарелятивистский предел $y = \eta$ и используется следующее выражение:

$$B_{\alpha\beta}(\Delta\eta, \Delta\varphi) = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{N_{\alpha+}} \frac{d^2 N_{\alpha+\beta-}}{d\Delta\eta d\Delta\varphi} + \frac{1}{N_{\alpha-}} \frac{d^2 N_{\alpha-\beta+}}{d\Delta\eta d\Delta\varphi} - \frac{1}{N_{\alpha+}} \frac{d^2 N_{\alpha+\beta+}}{d\Delta\eta d\Delta\varphi} - \frac{1}{N_{\alpha-}} \frac{d^2 N_{\alpha-\beta-}}{d\Delta\eta d\Delta\varphi} \right\}, \quad (3)$$

где $N_{\alpha+}$ — количество положительно заряженных частиц сорта α , $d^2 N_{\alpha+\beta-}/d\Delta\eta d\Delta\varphi$ — распределение пар частиц $\alpha^+\beta^-$ по относительным псевдобыстроте и азимутальному углу; остальные распределения вводятся аналогично. В общем случае частицы сортов α и β могут не принадлежать к одному событию. Если частицы принадлежат одному событию — это соответствует «собственной» функции зарядового баланса, если частицы принадлежат разным событиям — это соответствует «смешанной» ФБ. Для подавления искажения, вносимого в ФБ характерным для низкоэнергетичной части диапазона энергий RHIC и планируемого диапазона энергий NICA избытком положительного заряда, из распределений «собственной» функции баланса вычитаются распределения «смешанной» ФБ:

$$\begin{aligned} \frac{1}{N_{\alpha+}} \frac{d^2 N_{\alpha+\beta-}}{d\Delta\eta d\Delta\varphi} &= \\ &= \frac{1}{N_{\alpha+}} \frac{d^2 N_{\alpha+\beta-}^S}{d\Delta\eta d\Delta\varphi} - \frac{1}{N_{\alpha+}} \frac{d^2 N_{\alpha+\beta-}^M}{d\Delta\eta d\Delta\varphi}, \end{aligned} \quad (4)$$

где индекс «S» означает, что для составления пар частицы выбираются из одного события («собственная» ФБ), индекс «M» — из двух или более независимых событий («смешанная» ФБ).

При экспериментальном изучении ФБ дополнительное искажение в ее измерение вносит конечность углового аксептанса детектора. Корректировка ФБ на псевдобыстротный аксептанс проводится согласно [15]

$$B(\Delta\eta|\infty) = \frac{B(\Delta\eta|\Delta\eta_{max})}{(1 - \Delta\eta/\Delta\eta_{max})}, \quad (5)$$

где $B(\Delta\eta|\infty)$ — функция баланса в отсутствие ограничений на интервал псевдобыстрот, $B(\Delta\eta|\Delta\eta_{max})$ — ФБ, рассчитанная в конечном интервале по псевдобыстроте, $\Delta\eta_{max}$ — максимально доступная для измерения в данном эксперименте относительная псевдобыстрота пары частиц. В представленной работе для корректного сравнения результатов моделирования с данными STAR функции баланса были построены на интервале $0 < \Delta\eta < 2$ ($\Delta\eta_{max} = 2$), а ширины скорректированных ФБ рассчитывались в интервале $0.1 < \Delta\eta < 1.6$.

3. МОДЕЛЬ HYDJET++

Для моделирования множественного рождения частиц в релятивистских соударениях тяжелых ионов в данной работе используется двухкомпонентная модель Монте-Карло HYDJET++, конечное

состояние ядерной реакции в которой представляет собой суперпозицию мягкой гидродинамической и жесткой струйной компонент. Детальное описание HYDJET++ приводится в работах [21, 22]. Основой для моделирования жесткой компоненты HYDJET++ является генератор событий PYQUEN (PYthia QUENched) [27], модифицирующий полученные с помощью генератора адрон-адронных взаимодействий PYTHIA [28, 29] характеристики партонных струй с учетом многократного рассеяния и радиационных и столкновительных потерь энергии жестких партонов в КГП. Поскольку при рассматриваемых энергиях доминирующим вкладом в множественность адронов является вклад от мягкой компоненты, ограничимся ниже кратким представлением основных характеристик только мягкой компоненты модели.

Для описания термального (мягкого) рождения адронов в HYDJET++ используется параметризация релятивистской гидродинамики на гиперповерхности вымораживания сгустка адронной материи, сформированного в ядро-ядерном взаимодействии, с последующим распадом резонансов [30, 31]. Предполагается, что химический состав системы фиксируется на стадии «химического вымораживания» при данной температуре T^{ch} и химических потенциалах $\mu_B, \mu_I, \mu_S, \mu_C$ (соответственно для барионного заряда, электрического заряда, странности и очарования). В этом случае распределение адронов в системе покоя элемента жидкости имеет вид

$$\begin{aligned} f_i^{eq}(p^{*0}; T^{ch}, \mu_i, \gamma_s, \gamma_c) &= \\ &= \frac{g_i}{\gamma_s^{-n_i^s} \gamma_c^{-n_i^c} \exp\{([p^{*0} - \mu_i]/T^{ch})\} \pm 1}, \end{aligned}$$

где p^{*0} — энергия адрона в системе покоя элемента жидкости, g_i — спиновый фактор, $\gamma_s \leq 1$ и $\gamma_c \geq 1$ — коэффициенты подавления странности и усиления очарования соответственно, n_i^s и n_i^c — число s -кварков и c -кварков в адроне i , знак \pm в знаменателе учитывает различие в квантовой статистике для фермионов и бозонов. В этом случае плотность числа адронов типа i (без учета коэффициентов γ_s и γ_c) может быть записана в виде

$$\begin{aligned} \rho_i^{eq}(T, \mu_i) &= \\ &= \frac{g_i}{2\pi^2} m_i^2 T \sum_{k=1}^{\infty} \frac{(\mp 1)^{k+1}}{k} \exp\left(\frac{k\mu_i}{T}\right) I_2\left(\frac{km_i}{T}\right), \end{aligned}$$

где I_2 — модифицированная функция Бесселя второго порядка, m_i — масса частицы. В модели предусмотрена и возможность независимого задания входных параметров на стадии химического

вымораживания (температуры, химических потенциалов, коэффициентов γ_s и γ_c), и их вычисление в рамках феноменологических параметризаций [21].

В общем случае, стадии химического вымораживания (когда перестает меняться отношение между числом адронов различного типа) и термического вымораживания (когда перестает меняться импульсное распределение адронов) разделены по времени и проходят при разных температурах, T^{ch} и T^{th} соответственно (при этом $T^{ch} \geq T^{th}$). Множественность адронов в событии моделируется в соответствии с распределением Пуассона со средним \overline{N}_i для адронов каждого типа i , вычисляемым на гиперповерхности вымораживания в приближении эффективного термального объема:

$$\overline{N}_i = \rho_i^{eq}(T) V_{eff}, \quad \rho_i^{eq}(T) = \int d^3 p^* f_i(p^{*0}; T).$$

Здесь $\rho_i^{eq}(T)$ — плотность адронов i при температуре T , f_i и p^{*0} — соответственно распределение числа адронов и энергия адрона в системе покоя элемента жидкости, V_{eff} — эффективный объем области излучения адронов с гиперповерхности собственного времени $\tau = \text{const}$, вычисляемый при параметре удара ядро-ядерного соударения b как

$$V_{eff} = \tau \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{R(b,\varphi)} \sqrt{1 + \delta(b) \text{th}^2 Y_T(r, b) \cos 2\varphi} \times \\ \times \text{ch} Y_T T(r, b) r dr \int_{\eta_{min}}^{\eta_{max}} Y_L(\eta) d\eta,$$

где $Y_L(\eta)$ и $Y_T(r, b)$ — профили продольной (функция Гаусса) и поперечной (линейная функция) коллективных быстроев, $R(b, \varphi)$ — поперечный размер адронного сгустка в азимутальном направлении φ , $\delta(b)$ — параметризация импульсной азимутальной анизотропии источника. Характеристики стабильных частиц и резонансов берутся из таблицы SHARE [32].

Модель HYDJET++ изначально была разработана для ультрарелятивистских энергий RHIC и LHC, но в дальнейшем была адаптирована и для диапазона промежуточных энергий NICA и FAIR. На основе сравнения результатов моделирования с данными эксперимента STAR на RHIC по выходам и импульсным спектрам идентифицированных адронов в соударениях ионов золота при энергиях $\sqrt{s_{NN}} = 7.7$ и 11.5 ГэВ [33] была проведена настройка основных параметров HYDJET++ [34], что позволило применить данную модель для исследования

перспектив измерения некоторых физических эффектов в экспериментах на NICA. В частности, с помощью модели HYDJET++ для соударений тяжелых ионов при энергиях NICA было исследовано влияние различных «глобальных наблюдаемых» (множественности, коллективных потоков) на многочастичные корреляции частиц, определяемые методом факториальных моментов [35, 36].

4. ЗАРЯДОВЫЕ КОРРЕЛЯЦИИ ПРЯМЫХ АДРОНОВ В HYDJET++

В «стандартной» версии модели HYDJET++ источниками зарядовых корреляций адронов являются распад резонансов и фрагментация партонных струй. В работе [23] было показано, что этих источников недостаточно, чтобы описать экспериментально наблюдаемую зависимость ширины ФБ в соударениях ионов свинца при энергиях LHC, и была разработана процедура учета зарядовых корреляций прямых адронов, включающая пособытийное сохранение электрического заряда на стадии «вымораживания» и позволившая воспроизвести экспериментальные данные. Под прямыми адронами подразумеваются адроны, сформированные непосредственно на гиперповерхности химического вымораживания, в отличие от частиц, возникающих в результате распада резонансов. Данная процедура заключается в случайном отборе половины прямых заряженных адронов мягкой компоненты модели (оставшаяся половина убирается из события), для каждого из которых генерируется «частица-партнер» с противоположным знаком электрического заряда и таким же значением поперечного импульса. При этом псевдобыстрота η_2 и азимутальный угол φ_2 такой частицы-партнера распределены вокруг псевдобыстроты η_1 и азимутального угла φ_1 первой частицы в соответствии с распределением Гаусса:

$$P_{\mu,\sigma}(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp \left[-\frac{(x - \mu)^2}{2\sigma^2} \right], \quad (6)$$

где $\mu = \eta_1, \varphi_1$, $\sigma = \sigma_\eta, \sigma_\varphi$ и $x = \eta_2, \varphi_2$. Значения ширин этих распределений σ_η и σ_φ характеризуют силу зарядовых корреляций прямых адронов и являются дополнительными параметрами модели, которые подбираются из сравнения с экспериментальными данными по соответствующим ширинам ФБ.

Важно отметить, что описанная выше процедура учета зарядовых корреляций прямых адронов применима для электрически нейтральных систем (т. е. с нулевыми значениями изоспинового, странного и барионного химических потенциалов), что соответ-

ствуется ультрарелятивистским энергиям ЛНС. В настоящей работе проведено обобщение данной процедуры на случай систем с дисбалансом положительного и отрицательного электрического заряда и конечных значений химических потенциалов, который соответствует диапазону энергий NICA. Для учета электрического дисбаланса системы процедура введения зарядовых корреляций проводится для каждого сорта прямых заряженных адронов мягкой компоненты модели HYDJET++ отдельно. Среди адронов i -го сорта случайным образом отбираются $N_i = (Q_i^+ + Q_i^-)/q_i$ положительных при $N_i > 0$ или отрицательных при $N_i < 0$ заряженных адронов, которые остаются в событии без модификаций (здесь Q_i^+ — суммарный заряд положительно заряженных адронов i -го типа, Q_i^- — суммарный заряд отрицательно заряженных адронов, q_i — модуль электрического заряда данного сорта адронов). Сохранение N_i прямых адронов неизменными обеспечивает сохранение зарядового дисбаланса. К оставшейся «электрически нейтральной» части прямых заряженных адронов события применяется ранее описанная процедура введения зарядовых корреляций.

5. РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ И СРАВНЕНИЕ С ДАННЫМИ RHIC

Таблица 1 показывает отношения множественностей положительно и отрицательно заряженных адронов различного типа в центральной области быстрот $|y| < 0.1$ для 5% наиболее центральных соударений ионов золота при энергиях $\sqrt{s_{NN}} = 7.7$ и 11.5 ГэВ (результаты HYDJET++ и данные STAR [33]). В табл.1 приведены также значения изоспинового μ_I , странного μ_S и барионного μ_B химических потенциалов в HYDJET++. Результаты для модифицированной и немодифицированной версий HYDJET++ совпадают и близки к экспериментальным данным. Нами было также проверено, что проведенная модификация не меняет выходы и импульсные спектры идентифицированных адронов, сохраняя достигнутое ранее в немодифицированной версии модели описание данных STAR по этим наблюдаемым [34].

В дальнейшем для проверки эффективности разработанной процедуры учета зарядовых корреляций прямых адронов моделирование и отбор событий проводились с такими же условиями, как и в эксперименте STAR [15]. С помощью немодифицированной и модифицированной версий генератора событий HYDJET++ моделировались соударения ионов золота при энергиях $\sqrt{s_{NN}} = 7.7$ и 11.5 ГэВ для ше-

Таблица 1. Отношения множественностей разноименно заряженных адронов в центральных соударениях Au+Au при энергиях RHIC и значения химических потенциалов в HYDJET++

		π^+/π^-	K^+/K^-	p/\bar{p}
7.7 ГэВ	RHIC STAR	0.93 ± 0.12	2.70 ± 0.31	141 ± 24
	HYDJET++	0.89	2.70	130
	$\mu_{I,S,B}$, МэВ	6	100	429
11.5 ГэВ	RHIC STAR	0.95 ± 0.14	2.03 ± 0.28	29.3 ± 5.3
	HYDJET++	0.93	1.99	28.2
	$\mu_{I,S,B}$, МэВ	7	72	313

Таблица 2. Значения параметра σ_η в модифицированной версии модели HYDJET++, подобранные для описания данных STAR

Центральность, %	σ_η	
	$\sqrt{s_{NN}} = 7.7$ ГэВ	$\sqrt{s_{NN}} = 11.5$ ГэВ
0–5	1.25	1.00
5–10	1.35	1.08
10–20	1.47	1.17
20–30	1.62	1.30
30–40	1.80	1.44
40–50	2.00	1.60

сти классов центральностей (диапазон от 0 до 50 %). Для анализа отбирались заряженные частицы с поперечными импульсами $0.2 < p_T < 2$ ГэВ/с в интервале псевдобыстрот $|\eta| < 1$. Мы ограничились диапазоном центральности 50 %, который соответствует максимальным значениям прицельного параметра $b \sim 1.5R_A$, где R_A — радиус ядра, так как используемое гидродинамическое описание может быть плохо применимо для очень периферических соударений в рассматриваемом диапазоне энергий.

На рис. 1 и 2 представлены зависимости быструх ширин ФБ от центральности соударений ионов золота при энергиях $\sqrt{s_{NN}} = 7.7$ и 11.5 ГэВ соответственно. Погрешности измерений видны только для данных, статистические неопределенности модельных результатов находятся в пределах размера маркера. В табл.2 приведены используемые значения параметра σ_η для быструх корреляций прямых заряженных адронов в модифицированной версии HYDJET++. Помимо результатов HYDJET++, на рисунках также приведены результаты микроскопической транспортной модели UrQMD [37], основанной на адронном каскадировании и широко применяемой для моделирования соударений тяжелых ионов при промежуточных энергиях. Можно видеть, что немодифицированная вер-

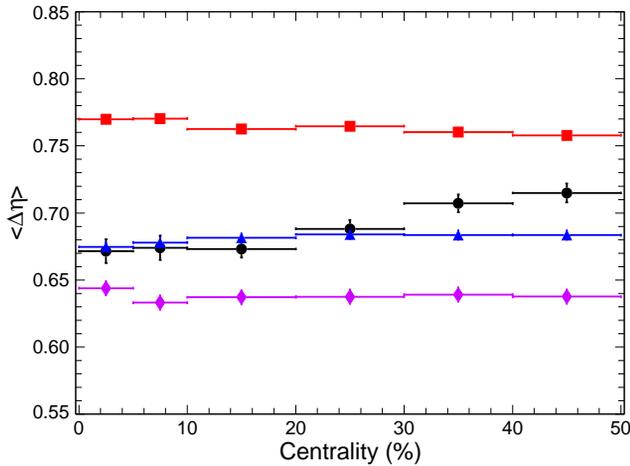


Рис. 1. Зависимости быстрой ширины функции баланса от центральности соударений Au+Au при энергии $\sqrt{s_{NN}} = 7.7$ ГэВ. Круги — данные STAR [15], ромбы и треугольники — результаты моделирования с немодифицированной и модифицированной версиями HYDJET++ соответственно, квадраты — результаты моделирования UrQMD

сия HYDJET++ и UrQMD не воспроизводят измеренные STAR зависимости быстрых ширин ФБ от центральности, недооценивая (HYDJET++, за исключением 20% наиболее центральных соударений при $\sqrt{s_{NN}} = 11.5$ ГэВ) или переоценивая (UrQMD) экспериментальные значения. Введение в модель HYDJET++ зарядовых корреляций прямых адронов позволяет существенно улучшить описание данных в рассматриваемом диапазоне энергий и центральностей. Значения быстрых ширин ФБ воспроизводятся с хорошей точностью до 30% центральности. Наблюдаемая для более периферических соударений некоторая недооценка данных может свидетельствовать об ограниченной применимости используемой модели (как и статистического приближения в целом) в случае относительно небольших множественностей.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В рамках модели HYDJET++ исследованы зарядовые корреляции адронов в соударениях тяжелых ионов для диапазона промежуточных энергий, соответствующего программе скана энергий на коллайдере RHIC и планируемым энергиям коллайдера NICA. В качестве характеристики зарядовых корреляций рассмотрены функции баланса, представляющие собой плотности вероятности того, что разноименно заряженные частицы разделены определенными интервалами быстроты и азимутального угла. Современные теоретические модели плохо описыва-

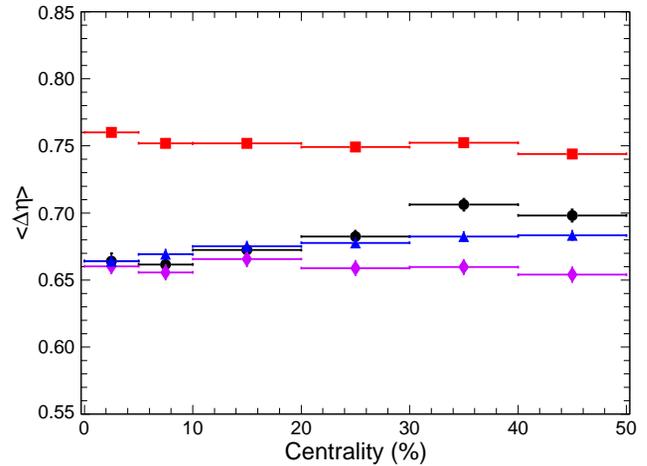


Рис. 2. Зависимости быстрой ширины функции баланса от центральности соударений Au+Au при энергии $\sqrt{s_{NN}} = 11.5$ ГэВ. Круги — данные STAR [15], ромбы и треугольники — результаты моделирования с немодифицированной и модифицированной версиями HYDJET++ соответственно, квадраты — результаты моделирования UrQMD

ют зарядовые корреляции частиц в соударениях тяжелых ионов, в частности, зависимость ширин ФБ от центральности взаимодействий, что может свидетельствовать о неучтенных механизмах таких корреляций в моделях.

Проведено обобщение разработанной ранее процедуры учета зарядовых корреляций прямых адронов для электрически нейтральных систем (соответствует ультррелятивистским энергиям LHC) на случай систем с дисбалансом положительного и отрицательного заряда (соответствует промежуточным энергиям NICA и RHIC). Показано, что экспериментально наблюдаемые зависимости быстрых ширин функции баланса от центральности соударений ионов золота при энергиях $\sqrt{s_{NN}} = 7.7$ и 11.5 ГэВ могут быть воспроизведены моделью HYDJET++ в случае введения в модель пособия сохранения электрического заряда прямых адронов и учета конечных значений изоспинового, странного и барионного химических потенциалов. Таким образом, предложенный подход для модификации статистического рождения адронов позволяет описать зарядовые корреляции в соударениях тяжелых ионов в широком диапазоне энергий (от LHC до NICA).

Благодарности. Авторы благодарят Л. В. Бравину и А. И. Демьянова за полезные обсуждения.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант № 24-22-00011).

ЛИТЕРАТУРА

1. J. W. Harris and B. Muller, arXiv: 2308.05743.
2. I. Arsene et al. (BRAHMS Collaboration), Nucl. Phys. A **757**, 1 (2005).
3. B. B. Back et al. (PHOBOS Collaboration), Nucl. Phys. A **757**, 28 (2005).
4. J. Adams et al. (STAR Collaboration), Nucl. Phys. A **757**, 102 (2005).
5. K. Adcox et al. (PHENIX Collaboration), Nucl. Phys. A **757**, 184 (2005).
6. B. Muller, J. Schukraft, and B. Wyslouch, Ann. Rev. Nucl. Part. Sci. **62**, 361 (2012).
7. N. Armesto and E. Scomparin, Eur. Phys. J. Plus **131**, 52 (2016).
8. ALICE Collaboration, arXiv: 2211.04834.
9. D. Drijard et al., Nucl. Phys. B **155**, 269 (1979).
10. S. Bass, P. Danielewicz, and S. Pratt, Phys. Rev. Lett. **85**, 2689 (2000).
11. V. Vechernin, Symmetry **14**, 21 (2022).
12. C. Alt et al. (NA49 Collaboration), Phys. Rev. C **71**, 034903 (2005).
13. M. M. Aggarwal et al. (STAR Collaboration), Phys. Rev. C **82**, 024905 (2010).
14. B. I. Abelev et al. (STAR Collaboration), Phys. Lett. B **690**, 239 (2010).
15. L. Adamczyk et al. (STAR Collaboration), Phys. Rev. C **94**, 024909 (2016).
16. B. Abelev et al. (ALICE Collaboration), Phys. Lett. B **723**, 267 (2013).
17. J. Adam et al. (ALICE Collaboration), Eur. Phys. J. C **76**, 86 (2016).
18. S. Acharya et al. (ALICE Collaboration), Phys. Rev. C **100**, 044903 (2019).
19. A. Tumasyan et al. (CMS Collaboration), arXiv: 2307.11185.
20. V. Abgaryan et al. (MPD Collaboration), Eur. Phys. A **58**, 140 (2022).
21. I. P. Lokhtin, L. V. Malinina, S. V. Petrushanko et al., Comput. Phys. Commun. **180**, 779 (2009).
22. И. П. Лохтин, Л. В. Малинина, С. В. Петрушанко и др., ЯФ **73**, 2196 (2010).
23. A. S. Chernyshov, G. Kh. Eyubova, V. L. Korotkikh et al., Chin. Phys. C **47**, 084107 (2023).
24. D. Drijard et al., Nucl. Phys. B **166**, 233 (1980).
25. J. Fu, J. Phys. G: Nucl. Part. Phys. **38**, 065104 (2011).
26. S. Pratt and C. Plumberg, Phys. Rev. C **104**, 014906 (2021).
27. I. P. Lokhtin and A. M. Snigirev, Eur. Phys. J. C **45**, 211 (2006).
28. T. Sjostrand, S. Mrenna, and P. Skands, JHEP **0605**, 026 (2006).
29. T. Sjostrand, S. Mrenna, and P. Skands, Comput. Phys. Commun. **178**, 852 (2008).
30. N. S. Amelin, R. Lednicky, T. A. Pocheptsov et al., Phys. Rev. C **74**, 064901 (2006).
31. N. S. Amelin, R. Lednicky, I. P. Lokhtin et al., Phys. Rev. C **77**, 014903 (2008).
32. G. Torrieri, S. Steinke, W. Broniowski et al., Comput. Phys. Commun. **167**, 229 (2005).
33. L. Adamczyk et al. (STAR Collaboration), Phys. Rev. C **96**, 044904 (2017).
34. A. V. Belyaev, L. V. Bravina, A. S. Chernyshov et al., J. Phys. Conf. Ser. **1690**, 012117 (2020).
35. O. Kodolova, M. Cheremnova, I. Lokhtin et al., Phys. Part. Nucl. **52**, 658 (2021).
36. M. Cheremnova, A. Chernyshov, Ye. Khyzhniak et al., Symmetry **14**, 1316 (2022).
37. S. A. Bass, M. Belkacem, M. Bleicher et al., Prog. Part. Nucl. Phys. **41**, 255 (1998).

ТОЧЕЧНЫЕ ДЕФЕКТЫ В ШПИНЕЛЯХ FeMe_2O_4 ($\text{Me} = \text{Fe}, \text{Cr}$): ИССЛЕДОВАНИЕ В РАМКАХ МЕТОДА DFT+U

Г. Д. Чичеватов ^{a,b,*}, В. В. Стегайлов ^{a,b,c}

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

^b Московский физико-технический институт (Национальный исследовательский университет)
141701, Долгопрудный, Московская обл., Россия

^c Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики»
101000, Москва, Россия

Поступила в редакцию 2 апреля 2024 г.,
после переработки 2 апреля 2024 г.
Принята к публикации 21 апреля 2024 г.

Кристаллы класса шпинелей $\text{A}\text{Me}_2\text{O}_4$ находят широкое практическое применение, от фотокатализа до спинтроники, но зачастую обладают нетривиальными электронными и магнитными свойствами, нелегко поддающимися теоретическому описанию. В работе были проведены расчеты в рамках метода DFT+U для всевозможных нейтральных точечных дефектов в Fe_3O_4 (магнетит) и FeCr_2O_4 (хромит) и рассмотрены всевозможные типы катионных и кислородных дефектов в обеих шпинелях. Полученные результаты раскрывают как сходства, так и принципиальные различия дефектных соединений Fe_3O_4 и FeCr_2O_4 , характеризуя хромит как более дефектоустойчивый материал, и могут служить подспорьем для развития новых многомасштабных моделей коррозии сталей.

DOI: 10.31857/S0044451024090062

1. ВВЕДЕНИЕ

Учет сильных электронных корреляций в задачах моделирования конденсированных сред является одной из наиболее актуальных проблем современной физики. Во многих случаях это касается соединений переходных металлов и вкуче с присутствием в них сильно вырожденных орбитальных степеней свободы приводит к большому разнообразию эффектов [1–3]. К некоторым из них можно отнести феномены фазового расслоения и зарядового упорядочения [4–6]. Магнетит Fe_3O_4 и некоторые производные оксиды железа (Fe_4O_5 , Fe_5O_6) являются одними из самых ярких представителей семейства сильно коррелированных оксидов, в которых переход металл–изолятор сопровождается тем или иным изменением зарядового упорядочения; эти структуры изучены с помощью методов рентгеновской и нейтронной дифракции и рентгеновского рассеяния [7–9], мессбауэровской спектроскопии

и теоретически с помощью метода LSDA+U [10, 11]. Первопринципные методы учета сильных электронных корреляций, такие как приближение локальной электронной плотности с поправкой U (LDA+U) [12–14], LDA с динамической теорией среднего поля (LDA+DMFT) в LMTO-орбиталах или плоских волнах [15, 16], методы Хартри–Фока с погруженными кластерами [17–20], сильно различаются по своей точности и ресурсозатратности.

Оксидные пленки $(\text{Fe}_{1-x}\text{Cr}_x)_{3-\delta}\text{O}_4$ имеют большое значение для антикоррозионной стойкости сталей в контакте со свинцовым теплоносителем (возможное технологическое решение в ядерных реакторах четвертого поколения) [21, 22]. При коррозии ферритных/мартенситных сталей защитная оксидная пленка, как правило, состоит из внешнего магнетитного слоя (Fe_3O_4) и внутреннего слоя шпинели $(\text{Fe}_{1-x}\text{Cr}_x)_{3-\delta}\text{O}_4$ [21–24], где $x = 0.20\text{--}0.23$ [25]. Предполагается, что рост внутреннего хромсодержащего слоя происходит в сторону стали и регулируется прежде всего диффузией кислорода из теплоносителя внутрь, а внешнего магнетитного слоя — наружу из-за диффузии железа в противоположном

* E-mail: chichevatov.gd@phystech.edu

направлении; диффузия же хрома из стали ограничена [22–25]. Для понимания преобладающих механизмов массопереноса в коррозионной кинетике защитных оксидных пленок необходимы представления о содержании и транспорте точечных дефектов в этих оксидах [26].

Расчеты с помощью теории функционала плотности (DFT) демонстрируют пагубность свинца и висмута для антикоррозионной стойкости оксидных пленок [27–29], при этом присутствие кислорода на поверхности стали в определенной концентрации действительно препятствует неограниченной коррозии [30]. Однако в рамках упомянутых моделей коррозии довольно мало первопринципных расчетов посвящено термодинамике образования точечных дефектов в оксидах $\text{Fe}(\text{Fe}_{1-x}\text{Cr}_x)_2\text{O}_4$ (см. далее).

Структура шпинели отвечает общей формуле AB_2O_4 , где А — сайт катионной подрешетки с тетраэдрическим, а В — октаэдрическим кислородным окружением (рис. 1). Магнетит $\text{Fe}_{3-\delta}\text{O}_4$, яркий представитель семейства сильно коррелированных оксидов переходных металлов, при нормальных условиях является инвертированной шпинелью $\text{A}^{3+}\text{B}^{2+}\text{B}^{3+}\text{O}_4$ пространственной группы $Fd\bar{3}m$. Атомы железа в сайтах с октаэдрическим кислородным окружением (В-сайтах) обладают усредненной степенью окисления +2.5, тогда как атомы в сайтах с тетраэдрическим окружением (А-сайтах) имеют степень окисления +3 и магнитные моменты, упорядоченные антиферромагнитно к моментам на В-сайтах (таким образом, магнетит — ферримагнетик с температурой Нееля около 860 К). Скачкообразное падение электропроводности и понижение сингонии кристаллической решетки до моноклинной наблюдаются ниже $T_V \simeq 120$ К (переход Фервея) [31–33]. Хромит FeCr_2O_4 , для сравнения, является нормальной шпинелью $\text{A}^{2+}\text{B}^{3+}\text{O}_4$, также с взаимным антиферромагнитным упорядочением А- и В-подрешеток, и обладает по меньшей мере двумя характерными переходами помимо перехода ферримагнетик–парамагнетик. Один связан с кооперативным эффектом Яна–Теллера (JT) и понижением сингонии до тетрагональной в силу присутствия JT-активных ионов Fe_A^{2+} , происходящим при $T_{JT} \simeq 135$ К [34–36]. Второй — с динамической спиновой фрустрацией в В-подрешетке (не исчезающей несмотря на JT-понижения симметрии), приводящей к коническим спиновым структурам ниже $T_c \simeq 35$ К и существенно понижающей температуру Нееля примерно до 80 К по сравнению с Fe_3O_4 [34, 35, 37, 38].

В данной работе анализируется электронная структура бездефектных кубических фаз магнетита и хромита. Затем приводится краткий обзор цикла экспериментальных исследований Дикманна и соавторов по изучению точечных дефектов в магнетите при высоких температурах. Далее описываются теоретические и вычислительные методы в рамках приближения DFT+U, используемые в работе, и термодинамический анализ устойчивости магнетита и хромита, необходимый для определения условий, при которых будут анализироваться энергии образования дефектов. За описанием результатов расчетов следует их обсуждение в контексте имеющихся экспериментальных данных.

2. ЭЛЕКТРОННЫЕ СВОЙСТВА МАГНЕТИТА И ХРОМИСТЫХ ШПИНЕЛЕЙ

2.1. Зарядовое упорядочение в Fe_3O_4

Множество теоретических исследований было посвящено механизму перехода Фервея и расчетам основного состояния электронной структуры магнетита в низкотемпературной (LT) фазе из первых принципов [39–44]. Результаты этих работ сходятся в том, что LT-фаза обладает дальним зарядовым упорядочением атомов Fe_B^{2+} и Fe_B^{3+} и орбитальным упорядочением $t_{2g,\downarrow}$ -орбиталей Fe_B^{2+} (отмечается ближний орбитальный порядок в согласии с моделью Кугеля–Хомского [1, 40, 44]). При этом опровергается механизм, предложенный Фервеем и обусловленный возникновением так называемого фервеевского ближнего зарядового упорядочения Fe_B -атомов, призванного минимизировать энергию электростатического взаимодействия электронов [45]. Однако в упомянутых работах, как справедливо отмечено в [46], прослеживаются два разных взгляда на первопринципную причину перехода. Так, авторы работы [39] акцентировали внимание на зарядовом упорядочении и электрон-электронном взаимодействии, тогда как в работе [41] чисто электронный механизм стабилизации зарядового упорядочения опровергается в пользу JT-искажений. В работах [42, 43] отмечалась решающая роль электрон-фононного взаимодействия более сложного характера, чем обычное JT-взаимодействие, и прежде всего фононной X_3 -моды в появлении запрещенной зоны и понижении симметрии в низкотемпературной фазе магнетита.

Наиболее современная модель [47–49] предполагает, что лишний электрон локализован по типу малого полярона, но не на одном сайте Fe_B^{2+} , а сра-

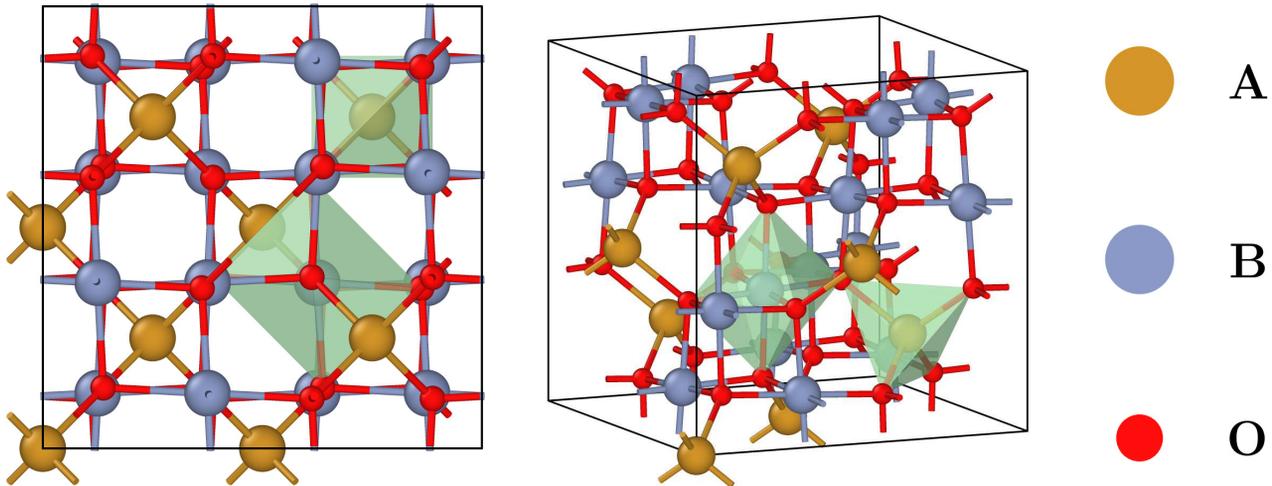


Рис. 1. Кубическая элементарная ячейка шпинели AB_2O_4 пространственной группы $Fd\bar{3}m$ (56 атомов). Зеленым показаны тетраэдрическое и октаэдрическое кислородные окружения

зу на трех соседних: для описания такого диспропорционирования атомов Fe_B^{2+} и Fe_B^{3+} (и их сопутствующих смещений) предложены квазичастицы — тримероны, обнаруживаемые в ЛТ-фазе магнетита при помощи рентгеноструктурного анализа [47, 48] и теоретически [49]. Возникающее тримеронное зарядовое упорядочение и поляронный JT-эффект на Fe_B^{2+} -атомах суть элементы единого механизма фервеевского перехода [46]. Конкретнее, зарядовое упорядочение, присутствующее в рамках ближнего, но не до конца понятного порядка при $T > T_V$ и дальнего тримеронного при $T < T_V$, модулирует X_3 -моду благодаря ее особо сильной электрон-фононной связи [50, 51]. Таким образом, переход Фервея имеет смешанную природу, обусловленную как электронными, так и решеточными степенями свободы [50].

Метод DFT+U, весьма эффективный при описании сильно коррелированных систем [12–14], способен воспроизводить расщепление пика $t_{2g,\downarrow}(\text{B})$ -электронов и, соответственно, появление запрещенной зоны и зарядовое диспропорционирование в В-сайтах ЛТ-фазы [10, 39, 40, 42]. Долгое время полагалось, что при $T > T_V$, т. е. в кубической высокотемпературной (НТ) фазе, магнетит является полуметаллом [39, 41, 42, 52]. Тем не менее многие эксперименты доказывают, что при повышении температуры запрещенная зона E_g остается конечной и лишь сильно сужается более чем на 50 мэВ. Это отражается в результатах фотоэмиссионной спектроскопии ($E_g(\text{НТ}) \simeq 100$ мэВ, $E_g(\text{ЛТ}) \simeq 150$ мэВ, [53, 54]), спектроскопии оптической проводимости (0.14 эВ [55]), сканирующей туннельной спектроскопии на нанокристаллах ($E_g(\text{НТ}) \simeq 75 \pm 10$ мэВ,

$E_g(\text{ЛТ}) \simeq 140\text{--}320$ мэВ [56, 57]). Расчеты с помощью метода LDA + DMFT также показали [58], что ширина запрещенной зоны $E_g \simeq 0.051$ эВ в НТ-фазе и $E_g \simeq 0.087$ эВ в ЛТ-фазе. Однако авторы пришли к несколько зауженной запрещенной зоне в ЛТ-фазе и неверным, по современным представлениям, выводам о преобладающей роли JT-искажений в механизме перехода Фервея, недооценив важность зарядового упорядочения. Сами структурные искажения учитывались косвенно, путем лишь самосогласованного варьирования параметра Δ расщепления $t_{2g}(\text{B})$ -орбиталей до момента дестабилизации НТ-спектра по отношению к ЛТ-спектру при $\Delta = \Delta_c$. Кроме того, в работе [58] параметры U и J DMFT-гамильтониана были взяты из работ [10] и [40], однако использованное в этом гамильтониане значение $V = 0.4$ эВ для параметра кулоновского взаимодействия между разными узлами отличалось от значения 0.18 эВ в работе [10]. Наличие ближнего зарядового упорядочения в Fe_B -сайтах при $T > T_V$ было позднее подтверждено методами рассеяния рентгеновских лучей [7, 46]; оно косвенно следует также из величин изменения энергии в DFT-расчетах [59] и энтропии [45, 53] между моноклинной и кубической фазами и некоторыми особенностями поведения экспериментальных и найденных теоретически фононных спектров [50]. Это исключает (по меньшей мере в некотором диапазоне $T > T_V$) правильность представлений о делокализации $t_{2g,\downarrow}(\text{B})$ -электрона в симметрии $Fd\bar{3}m$ и об одинаковых степенях окисления $\text{Fe}_B(+2.5)$. Некоторые расчеты $Fd\bar{3}m$ -фазы магнетита в рамках моделей DFT+U или гибридной DFT

воспроизводят запрещенную зону в минорной (для спина «вниз») компоненте плотности электронных состояний (density of states, DOS) именно благодаря этому понижению симметрии электронной волновой функции, но не кристаллической структуры [60–62].

Среди самых последних примеров моделирования Fe_3O_4 следует упомянуть работы [59, 63, 64]. Авторы работы [59] провели детальные расчеты с помощью метода DFT+U и изучили влияние локального Fe-окружения на энергии образования нейтральных и заряженных кислородных вакансий в низкотемпературной фазе магнетита, а также нашли численное подтверждение наличию ближнего порядка в HT-фазе. В работе [63] метод DFT+U+V использовался для описания основного состояния в кубической фазе, однако было получено неверное распределение DOS, характерное для полуметаллов, тогда как результаты расчетов в DFT+U-приближении правильно воспроизвели основные черты DOS и присутствие уединенного пика $\text{Fe}_B t_{2g,\downarrow}$ -электронов железа в минорной компоненте спина, однако потолок валентной зоны ошибочно пришелся на середину этого пика, а не на его верхнюю границу. Наконец, расчеты в рамках классической молекулярной динамики с потенциалом ClayFF и метода Монте-Карло [64] смогли описать распределение и эволюцию различных степеней окисления у В-атомов железа, тогда как учет этого диспропорционирования сам по себе является «узким горлышком» в проблеме создания классических потенциалов для магнетита [65].

2.2. Хромистые шпинели

Железо-хромистые смешанные составные шпинели $\text{Fe}_{1+x}\text{Cr}_{2-x}\text{O}_4$, $0 < x < 2$, и их тонкие пленки достаточно широко исследованы в экспериментах [66–71]. Структурные и магнитные фазовые переходы отражены в фазовых T - x -диаграммах работ [67, 68, 70]. Присутствие ионов Fe_A^{2+} при $x < 2$ приводит к возникновению кооперативного JT-эффекта (в хромите $T_{JT} \simeq 135$ К) с понижением сингонии решетки [34–36, 67, 68, 70]. Кроме того, магнитная фрустрация в пироклорной В-подрешетке $\text{Fe}(\text{Cr}_B^{3+})_2\text{O}_4$ [37, 38] (и вообще при $x < 0.6$ [70]) приводит к коническим спиновым структурам и, как следствие, заметному понижению температуры Нееля до 80 К при уменьшении x вплоть до 0 в хромите FeCr_2O_4 [34, 35, 38, 66, 70]. Влияние x на обменные константы, критическую температуру, зарядовое распределение и поляронный транспорт в шпинелях $\text{Fe}_{1+x}\text{Cr}_{2-x}\text{O}_4$ и их тонких пленках детально

описаны в работах [66, 69, 71]. В частности, отмечается, что увеличение доли Cr приводит к понижению электропроводности из-за возможного блокирования поляронного переноса по цепочкам $\text{Fe}_B^{3+}-\text{Fe}_B^{2+}$, поскольку Cr^{3+} наиболее стабилен в этих шпинелях, видимо, благодаря наибольшей энергии стабилизации кристаллическим полем в октаэдрическом окружении.

Первопринципные расчеты железо-хромистых шпинелей относительно редки и, как правило, касаются структур FeCr_2O_4 (хромит) [38, 72–75], CrFe_2O_4 [76, 77], а также интерфейсов или твердых растворов $\text{Fe}_3\text{O}_4-\text{FeCr}_2\text{O}_4$ [78, 79]. Хромит при комнатной температуре является нормальной шпинелью ($\text{Fe}_A^{2+}(\text{Cr}_B^{3+})_2\text{O}_4$), однако температура Нееля 80 К, ниже которой хромит обладает ферромагнитным упорядочением вплоть до 35 К [35], значительно ниже комнатной. В некоторых теоретических работах DOS хромита оказывается характерной для полуметалла [38, 72, 77, 79], но составляет около 2 эВ в расчетах методом GGA+U [73–75, 78], см. табл. 1 (GGA — generalized gradient approximation). При этом оптическая ширина запрещенной зоны хромита также конечна — $E_g = 1.3 - 1.5$ эВ [38, 80, 81]. Отметим, что в работе [75] значение $E_g = 1.61$ эВ ближе всего к экспериментальным (см. табл. 1). Это может объясняться более аккуратным выбором параметров U и тем, что релаксация атомных координат в $Fd\bar{3}m$ -фазе не проводилась и в результате было достигнуто лучшее приближение к кубической HT-фазе.

Таблица 1. Ширина запрещенной зоны FeCr_2O_4 , рассчитанная в приближении GGA+U

E_g , эВ	U , эВ	Год, источник
2.09	3.7 (Fe), 3.2 (Cr)	2013 [78]
1.8	5.0 (Fe), 3.0 (Cr)	2015 [73]
2.15	4.3 (Fe), 4.0 (Cr)	2021 [74]
1.61*	3.8 (Fe), 2.0 (Cr)	2023 [75]

Примечание. * Без релаксации атомных координат в $Fd\bar{3}m$ -структуре

3. ЭНЕРГИИ ОБРАЗОВАНИЯ И МИГРАЦИИ ТОЧЕЧНЫХ ДЕФЕКТОВ В Fe_3O_4 ПО ЭКСПЕРИМЕНТАМ ДИКМАННА И СОВАВТОРОВ

Точечные дефекты, с неизбежностью возникающие в любых реальных кристаллах, оказывают

сильное влияние на их свойства [82]. В течение последних десятилетий прошлого века Дикманн и др. широко исследовали термодинамику и транспорт дефектов в нестехиометрических оксидах [83], в частности, в магнетите [84–91] и производных шпинелях [92–94]. Одной из основных проблем, указанных авторами работы [83], являлась трудность интерпретации экспериментальных данных с позиций механизмов ионного транспорта в шпинелях из-за отсутствия на тот момент внятных представлений о процессах с участием дефектов на микроскопическом уровне. Серия работ Дикманна и др. по исследованию магнетита привнесла много ясности в этот вопрос. В работах [84–86] авторы измеряли остаточную радиоактивность изотопов Fe-59 по мере диффузии с поверхности в глубь образцов. Так, в работе [84] были измерены зависимости коэффициентов диффузии D_{Fe}^* меченых атомов при 900–1400 °С от парциального давления кислорода, имеющие характерную V-образную форму в двойном логарифмическом масштабе (рис. 2). На основании закона действующих масс были выделены два региона (большие и малые парциальные давления кислорода) в предположении, что в первом преобладает вакансионный, а во втором — междуузельный механизм диффузии. При каждой температуре полученная V-образная зависимость описывалась формулой [84, 89]

$$D_{Fe}^*(T, a_{O_2}) = D_V^\circ(T) \frac{a_{O_2}^{2/3}}{1 + 2K_V a_{O_2}^{2/3}} + D_I^\circ(T) a_{O_2}^{-2/3}, \quad (1)$$

где D_V° и D_I° — парциальные коэффициенты диффузии для вакансий (V) и междуузлий (I), $a_{O_2} = p_{O_2}/1 \text{ атм}$ — нормированная активность кислорода, K_V — константа равновесия, зависящая от температуры. Для вычленения истинных энергий активации диффузии дефектов из фиктивных энергий активации

$$E_{fict}^\alpha = -\frac{d \ln D_\alpha^\circ}{d(1/T)}, \quad \alpha = V, I \quad (2)$$

(с целью пролить свет на механизмы катионной диффузии) требуется знать энергии образования соответствующих точечных дефектов. Дикманн и др. предложили модель точечных дефектов для катионной подрешетки магнетита [85]. Таким образом, с использованием известной температурной зависимости константы равновесия K_2 для реакции образования вакансий железа

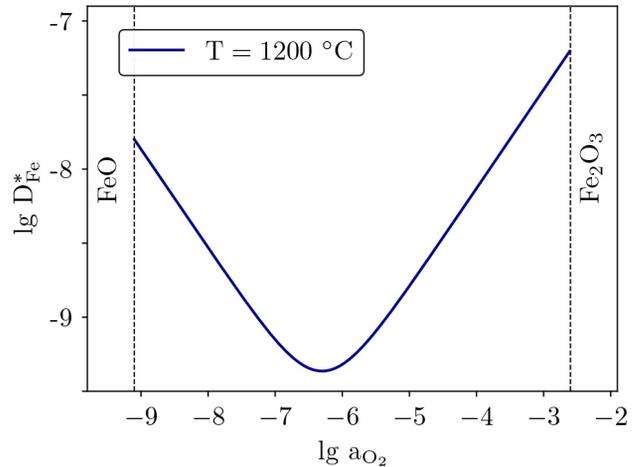
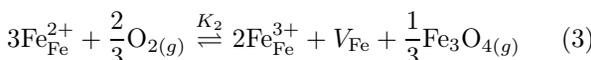
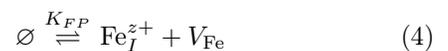


Рис. 2. Зависимость коэффициента диффузии Fe-59 в магнетите от парциального давления кислорода при 1200 °С согласно формуле (1). Указаны границы магнетит-гематитного (Fe₂O₃) и магнетит-вюститного (FeO) буферов (по данным работы [84])

(индекс «(g)» указывает на газовую фазу) было получено значение $E_{act}^V = 137 \text{ кДж/моль}$ для энергии в случае вакансионного механизма диффузии железа из выражения

$$E_{act}^V = -\left(\frac{d(\ln D_V^\circ - \ln K_2)}{d(1/T)}\right) = E_{fict}^V - E_{form}^V.$$

Так как эти данные касались только диапазона больших активностей кислорода (вакансионный механизм), то лишь константа K_2 и ее температурная зависимость могли быть известны. По этой причине энергия активации для междуузельного механизма диффузии, связанного с вакансионным через френкелевское равновесие,



(\emptyset — бездефектный кристалл) не могла быть получена при помощи только константы K_2 , поскольку величина

$$-\left(\frac{d(\ln D_I^\circ + \ln K_2)}{d(1/T)}\right) = E_{act}^I - \frac{d(\ln K_5)}{d(1/T)} = E_{act}^I + E_{form}^{FP} = 330 \text{ кДж/моль}$$

включала еще неизвестную авторам энергию образования E_{form}^{FP} пары Френкеля Fe_I/V_{Fe} [86].

С целью получить собственные данные о концентрации дефектов во всем диапазоне стабильности магнетита при 900–1400 °С, Дикманн и др. в работах [87, 89] использовали термогравиметрический анализ. Авторы пришли к следующей зависимости

для отклонения от стехиометрии δ в $\text{Fe}_{3-\delta}\text{O}_4$ (по сути, титриметрической кривой) [87]:

$$\delta = \sum_i [\text{V}_{\text{Fe}}] - \sum_{i,z} [\text{Fe}_I^{z+}] = \frac{K_V(T)}{4} \frac{a_{\text{O}_2}^{2/3}}{1 + 2K_V(T)a_{\text{O}_2}^{2/3}} - 4K_I(T)a_{\text{O}_2}^{-2/3} \quad (5)$$

(суммирование проводится по возможным зарядовым состояниям z и неэквивалентным конфигурациям i). По кривым титрования были получены аррениусовские температурные зависимости констант K_V и K_I с энергиями активации -226 кДж/моль для K_V и 358 и 526 кДж/моль для K_I' и K_I'' соответственно [89] (поведение K_I авторам работы [89] не удалось описать в рамках одной экспоненты, поэтому $K_I = K_I' + K_I''$). Истинные энергии активации диффузии (барьеры миграции) точечных дефектов, вычисленные [91] без уточнения механизмов миграции в виде

$$E_{act}^V = - \left(\frac{d(\ln D_V^\circ - \ln K_V)}{d(1/T)} \right), \\ E_{act}^I = - \left(\frac{d(\ln D_I^\circ - \ln K_I)}{d(1/T)} \right),$$

составили 0.9 эВ для вакансий и 2.65 эВ для междоузлий. Для фиктивных энергий активации для парциальных коэффициентов D_V°, D_I° по формуле (2) из [84] были получены значения -139 и 614 кДж/моль соответственно [89, 91].

В работе [89] термогравиметрия использовалась для контроля массы образца во времени в процессе релаксации профиля концентраций дефектов после резкого изменения p_{O_2} . По измеренным временным зависимостям авторы рассчитали химический (ионный) коэффициент диффузии D_{ion} , связанный непосредственно с коэффициентами диффузии и концентрациями точечных дефектов уравнением $D_{ion}c_{ion} = \sum_{def} D_{def}c_{def}$ (c_{ion} — эффективная концентрация участвующих в диффузии ионов). Следуя логике предыдущих работ, авторы выделили регионы с преимущественно вакансионным либо междоузельным механизмом диффузии и ввели коэффициенты D_V, D_I вместо единого D_{ion} . Таким образом, авторы дополнили наблюдение диффузии Fe в пространстве по методу меченых атомов [84] комплементарным временным анализом [89] и установили их формульную связь через константы равновесия из [87], а именно

$$D_V = \frac{12D_V^\circ}{K_V f_V}, \quad D_I = \frac{3D_I^\circ}{4K_I f_I}, \quad (6)$$

где f_V и f_I — средние корреляционные факторы диффузии вакансий и междоузлий в модели случайных блужданий. Вводя температурную зависимость фактора f_V ,

$$f_V = \frac{0.5\eta_{tet}D_{V(tet)} + 0.56(1 - \eta_{tet})D_{V(oct)}}{\eta_{tet}D_{V(tet)} + (1 - \eta_{tet})D_{V(oct)}}, \quad (7)$$

из тех соображений, что доля вакансий в тетраэдрических (A) сайтах меняется как

$$\eta_{tet} = \frac{1}{1 + a \exp\{(b/T)\}},$$

а коэффициент диффузии равен

$$D_V = \eta_{tet}D_{V(tet)} + (1 - \eta_{tet})D_{V(oct)}$$

(0.5 и 0.56 — корреляционные факторы диффузии A- и B-вакансий соответственно [95], a, b — некоторые подгоночные параметры), авторы использовали температурную зависимость величины

$$\frac{12D_V^\circ}{K_V} = 0.5\eta_{tet}D_{V(tet)} + 0.56(1 - \eta_{tet})D_{V(oct)}$$

для определения a, b и энергий активации для коэффициентов диффузии $D_{V(tet)}, D_{V(oct)}$ [89] и добились хорошего согласия между коэффициентами D_V , измеренными в [89] и рассчитанными по формулам (6) и (7), и данными работ [84, 87]. Таким образом, Дикманну и др. удалось получить некоторые представления о диффузии вакансий на микроуровне и разделить энергии активации 0.75 эВ и 1.26 эВ для октаэдрических и тетраэдрических вакансий соответственно [89]; доля последних возрастает с ростом температуры. При учете в (7) только октаэдрических вакансий ($\eta_{tet} \equiv 0, f_V \equiv 0.56$) получалось ранее указанное значение 0.9 эВ. Для энергии активации диффузии междоузлий по результатам термогравиметрии [89] получено значение 2.37 эВ. Видно, что оба последних значения в хорошем согласии с указанными в предыдущем абзаце (по результатам измерения диффузии меченых атомов [84] и нестехиометричности [87]). Механизм диффузии междоузлий, правда, остался неуточненным. Таблица 2 обобщает данные по барьерам миграции в работах Дикманна и др.

Результаты различных экспериментов по диффузии кислорода и катионов различных переходных металлов в магнетите и производных шпинелях приведены в обзоре [96]. Так, меченые атомы Sr обладают самыми низкими коэффициентами диффузии в магнетите и смешанных Fe-Sr-шпинелях (на три

порядка ниже, чем атомы Fe, см. также [92]), однако зависимости от парциального давления O_2 идентичны. Дефекты анионной подрешетки считаются второстепенными [97], однако отсутствие измерений коэффициентов диффузии в обеих подрешетках при одинаковых внешних условиях (парциальном давлении кислорода) затрудняет сравнение их температурных зависимостей.

Таблица 2. Энергии активации диффузии катионных точечных дефектов в Fe_3O_4 (эВ) из работ [89, 91] (vac — вакансии, int — междоузлия)

Метод	vac	int
Метод меченых атомов [84] + статическая термогравиметрия [87]	0.9* 1.26 (A) 0.75 (B)	2.37
Термогравиметрия во времени [89]	0.9	2.65

Примечание. * $f_V \equiv f_V(B) = 0.56$ в (7).

Приближения DFT и DFT+U способны предоставить достаточно многосторонние сведения о термодинамических и кинетических свойствах точечных дефектов в магнитных оксидах железа, таких как гематит Fe_2O_3 [98], однако подобные исследования магнетита, особенно его НТ-фазы, имеют незавершенный и разрозненный характер. Так, авторы работы [99] исследовали миграцию октаэдрических вакансий в шпинелях MeFe_2O_4 , $\text{Me} = \text{Fe}, \text{Co}, \text{Ni}$ и получили барьер миграции 0.7 эВ для В-вакансии в Fe_3O_4 в согласии с результатом Дикманна и др. [89], однако использовали некорректное магнитное упорядочение в магнетите. Впервые последовательный подход к моделированию точечных дефектов в кубической фазе магнетита с помощью метода DFT+U, опирающийся на полупроводящее основное состояние с фервеевским упорядочением, описан в работах [61, 62], но касается только катионной подрешетки. При детальном исследовании кислородных вакансий [59] также было уделено большое внимание зарядовому упорядочению. В настоящей работе охвачен наиболее полный набор всевозможных точечных дефектов в магнетите и хромите, однако расчеты барьеров миграции не проводились.

4. ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ И ВЫЧИСЛИТЕЛЬНЫЕ МЕТОДЫ

При аккуратном подборе параметра U для лучшего описания свойств конкретного оксида железа метод DFT+U способен описывать электронные и

термодинамические свойства кристалла на уровне точности, почти не уступающем уровню метода DFT с гибридными функционалами плотности [100]. Более того, сами по себе гибридные функционалы типа HSE содержат неопределенность выбора скринингового параметра и, как и в случае с U в методе DFT+U, при уменьшении этого параметра также могут приводить к исчезновению запрещенной зоны в минорной компоненте DOS магнетита [60, 100]. Поскольку единообразные исследования точечных дефектов в шпинелях $\text{Fe}_{1+x}\text{Cr}_{2-x}\text{O}_4$ из первых принципов отсутствуют, в настоящей работе с помощью метода DFT+U были проведены расчеты энергий образования нейтральных точечных дефектов как в катионной, так и в кислородной подрешетках магнетита и хромита для двух пограничных случаев при $x = 2, 0$. Энергии формирования точечных дефектов зависят от химических потенциалов элементарных компонентов, поэтому прежде всего из условий стабильности Fe_3O_4 и FeCr_2O_4 и с привлечением энергий Гиббса формирования различных оксидов Fe и Cr из термодинамической базы данных [101] были найдены пределы изменения этих величин в хорошем согласии с экспериментальными границами стабильности. Поскольку исследовались именно высокотемпературные кубические $Fd\bar{3}m$ -фазы Fe_3O_4 и FeCr_2O_4 , особое внимание в нашей работе было уделено корректному приближению к основному состоянию электронной подсистемы, с тем чтобы минимизировать низкотемпературные артефакты DFT. Наконец, были описаны дефектные конфигурации с наименьшей энергией и рассчитаны энергии образования точечных дефектов с учетом только вклада от оптимизации электронной и ионной систем в пренебрежении объемными эффектами и вкладами фоновой и электронной энтропий. Полученные в нашей работе результаты находятся в хорошем количественном согласии с другими первопринципными расчетами энергий образования точечных дефектов в Fe_3O_4 и работами Дикманна и др., что во многом оправдывает избранные нами приближения и достоверность результатов, полученных для FeCr_2O_4 .

Расчеты были выполнены с использованием программного пакета VASP [102–104]. Для аппроксимации электронной плотности вблизи атомных ядер применялся метод присоединенных плоских волн (projector augmented waves method, PAW) [105] в комбинации с обобщенным градиентным приближением для обменно-корреляционного потенциала на уровне функционала Пердью–Бурка–Эрнцера (PBE GGA) [106]. Были выбраны

PAW-псевдопотенциалы Fe(4s2 3d6), Cr(4s1 3d5) и O(2s2 2p4). В расчетах использовались 56-атомные кубические ячейки (см. рис. 1). Энергия обрезания плоских волн составляла 550 эВ, разрешение Γ -центрированной k -сетки — $4 \times 4 \times 4$, критерии сходимости самосогласованных циклов составляли $10^{-6}(10^{-5})$ эВ по электронным (ионным) шагам. Симметричные ограничения на электронную плотность не накладывались, поскольку это принципиально важно для диспропорционирования зарядовых состояний +2 и +3 между октаэдрическими сайтами железа в магнетите [60–62]. Метод тетраэдров [107] применялся для аппроксимации электронной функции распределения при интегрировании в первой зоне Бриллюэна. Хотя упоминаемые нами референсные литературные данные касаются температур $T > T_N \simeq 860$ К для магнетита (и тем более $T > T_N \simeq 80$ К для хромита), во все расчеты была включена спиновая поляризация с коллинеарными магнитными моментами. Для учета сильных электронных корреляций использовался подход DFT+U в модификации Дударева [108] с $U_{Fe} = 3.5$ эВ [60–62], $U_{Cr} = 2.0$ эВ [75]. Применялись оптимальные стратегии параллелизации вычислений в VASP [109].

Для визуализации структур использовалась программа OVITO [110]. Пакет pymatgen [111] применялся для обработки выходных файлов, пакет ShakeNBreak [112, 113] — для обеспечения более «кропотливой» релаксации в дефектных структурах.

Энергии (энтальпии) образования нейтральных дефектов рассчитывались по формуле

$$E_{form} = E_{def} - E_0 - \Delta n_i \mu_i, \quad (8)$$

где E_{def} — энергия дефектной суперъячейки в DFT+U, E_0 — энергия бездефектной суперъячейки в DFT+U, $\Delta n_i = \pm 1$ в зависимости от типа дефекта (вакансия или междоузлие), $\mu_i = \mu_i^0 + \Delta \mu_i$ — химический потенциал добавляемого или убираемого атома. В случае $FeCr_2O_4$ дополнительные расчеты энергий образования для наиболее выгодных конфигураций вакансий и междоузлий были проделаны на сетке $6 \times 6 \times 6$, но относительные изменения величин $E_{def} - E_0$ составили менее 1%. Выбор референсных химических потенциалов μ_i^0 ничем не ограничен, однако: 1) они должны быть отнесены к одинаковым термодинамическим параметрам (T, P) для всех элементов в составе рассматриваемой фазы; 2) хотя абсолютные значения μ_i^0 не имеют смысла, как и энергии суперъячеек в DFT+U, но все эти величины должны быть рассчитаны в

одном и том же приближении. Отрицательная добавка $\Delta \mu_i$ изменяется в пределах термодинамической стабильности фазы (см. разд. 5). Для кислорода $O_{2(g)}$ эта поправка может быть связана с его парциальным давлением в идеально-газовом приближении ($\Delta \mu_i = \Delta \mu_i(P), P = p_{O_2}$):

$$\begin{aligned} \mu_{i.g.}(T, P) &= G_{i.g.}^{DFT}(T_0, P_0) + \\ &+ (H(T, P_0) - H(T_0, P_0)) - \\ &- (TS(T, P_0) - T_0 S(T_0, P_0)) + T \ln(P/P_0) = \\ &= \mu_{i.g.}^0(T, P_0) + T \ln(P/P_0), \quad (9) \end{aligned}$$

где G — энергия Гиббса, H — энтальпия, S — энтропия, индекс «DFT» означает, что величина $G_{i.g.}(T_0, P_0)$ должна быть рассчитана в рамках используемого в работе приближения. В нашем случае, поскольку триплет молекулярного кислорода неверно описывается в GGA, в первом слагаемом нельзя было принять $T_0 = 0, P_0 = 0$. Поэтому мы положили $T_0 = 298.15$ К и $P_0 = 1$ атм и нашли

$$G_{O_{2(g)}}^{DFT}(T_0, P_0) = -9.74 \text{ эВ}$$

исходя из 1) найденных нами DFT-энергий $H_{H_2, H_2O(g)}^{DFT}(T = 0, P = 0)$ молекул H_2 и H_2O , пересчитанных по формуле (9) в энергии Гиббса $G_{H_2, H_2O(g)}^{DFT}(T_0, P_0)$ с помощью термодинамических данных [101]; 2) энергии Гиббса $\Delta G^c(T_0, P_0) = -4.92$ эВ/ O_2 для реакции горения водорода при нормальных условиях, после чего получили

$$\begin{aligned} G_{O_{2(g)}}^{DFT}(T_0, P_0) &= 2(G_{H_2O(g)}^{DFT}(T_0, P_0) - \\ &- G_{H_2(g)}^{DFT}(T_0, P_0)) - \Delta G^c(T_0, P_0). \end{aligned}$$

Второе и третье слагаемые в (9) для пересчета $G_{O_{2(g)}}^{DFT}(T_0, P_0)$ от $T = T_0$ к требуемой температуре $T = 1500$ К (эта температура была выбрана, поскольку большинство актуальных экспериментальных данных ближе всего именно к ней) по формуле (9) также брались из базы данных [101]. В сумме первые три слагаемых в (9) при $T = 1500$ К дали величину

$$\mu_{O_{2(g)}}^0(T, P_0) = -6.357 \text{ эВ/}O.$$

Последнее слагаемое в (9) есть добавка $\Delta \mu_{O_{2(g)}}(P)$.

Химические потенциалы Fe и Cr также рассчитывались как $\mu_i^0 + \Delta \mu_i$, где μ_i^0 — энергия элементарной ОЦК-фазы металла в расчете на атом в DFT+U ($\mu_{Cr}^0 = -7.774$ эВ/атом, $\mu_{Fe}^0 = -5.571$ эВ/атом),

$\Delta\mu_i$ — отрицательная добавка, обусловленная отличием рассматриваемой фазы от чистого металла. Следующий раздел посвящен расчету пределов изменения $\Delta\mu_i$.

5. ГРАНИЦЫ ТЕРМОДИНАМИЧЕСКОЙ СТАБИЛЬНОСТИ ДЛЯ ХИМИЧЕСКИХ ПОТЕНЦИАЛОВ

Добавочные химические потенциалы $\Delta\mu_i$ элементарных компонентов в области термодинамической стабильности Fe_3O_4 или FeCr_2O_4 связаны соотношениями соответственно

$$\begin{aligned} 3\Delta\mu_{\text{Fe}} + 4\Delta\mu_{\text{O}} &= \Delta G_{\text{form}}(\text{Fe}_3\text{O}_4), \\ \Delta\mu_{\text{Fe}} + 2\Delta\mu_{\text{Cr}} + 4\Delta\mu_{\text{O}} &= \Delta G_{\text{form}}(\text{FeCr}_2\text{O}_4), \end{aligned} \quad (10)$$

где ΔG_{form} — энергии Гиббса образования фаз, тогда как для конкурирующих фаз $\text{Fe}_x\text{Cr}_y\text{O}_z$ должны иметь место неравенства

$$x\Delta\mu_{\text{Fe}} + y\Delta\mu_{\text{Cr}} + z\Delta\mu_{\text{O}} < \Delta G_{\text{form}}(\text{Fe}_x\text{Cr}_y\text{O}_z), \quad (11)$$

свидетельствующие об их нестабильности относительно фаз элементарных компонентов (конкурирующими являются Fe_2O_3 и FeO , а также дополнительно Cr_2O_3 и CrO_2 для хромита). Энергии Гиббса образования фаз ΔG_{form} в работе были взяты из базы NIST [101] для $T = 1500$ К. Так, для магнетита

$$\begin{aligned} 3\Delta G_{\text{form}}(\text{Fe}_2\text{O}_3) - 2\Delta G_{\text{form}}(\text{Fe}_3\text{O}_4) &> \Delta\mu_{\text{O}} > \\ &> \Delta G_{\text{form}}(\text{Fe}_3\text{O}_4) - 3\Delta G_{\text{form}}(\text{FeO}). \end{aligned} \quad (12)$$

После пересчета согласно формуле

$$\Delta\mu_{\text{O}} = \frac{1}{2}T \ln \left(\frac{P}{P_0} \right)$$

искомые границы стабильности составили

$$-8.06 < \lg p_{\text{O}_2} < -2.23$$

в хорошем согласии со значениями -8.9 и -2.4 при 1500 К, полученным Дикманном и др., см. рис. 7 в работе [87].

Аналогичные соотношения были составлены в случае хромита FeCr_2O_4 , энергия формирования которого относительно Fe, Cr, O отсутствовала в таблицах NIST JANAF и была рассчитана по данным из работы [114] (≈ -945 кДж/моль). Диаграмма стабильности на рис. 3 хорошо воспроизводит нижнюю границу (недостаток кислорода), $\lg(p_{\text{O}_2}^{\text{poor}}/P_0) = -14.15$ по сравнению со значениями -14.57 при 1473 К [115], -14 при 1473 К [92],

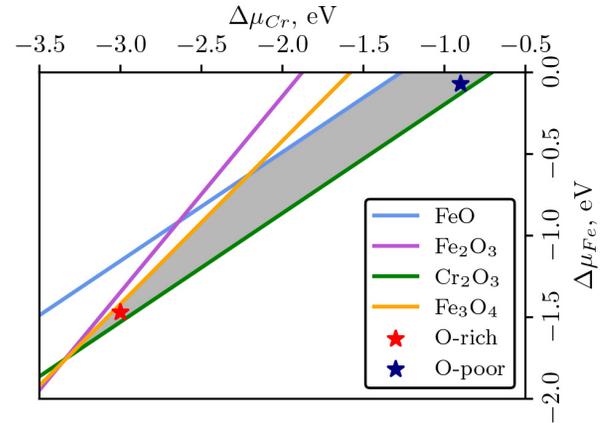


Рис. 3. Фазовая диаграмма стабильности FeCr_2O_4 . Серым закрашена область, где стабилен FeCr_2O_4 и нестабильны конкурирующие оксиды. Красным и синим маркерами отмечены репрезентативные точки для условий избытка ($\Delta\mu_{\text{O}} = -0.59$ эВ) и недостатка ($\Delta\mu_{\text{O}} = -1.99$ эВ) кислорода соответственно

-13.7 при 1500 К [116]. Однако верхняя граница $\lg(p_{\text{O}_2}^{\text{rich}}/P_0) = -2.41$ относительно неплохо воспроизводит результат -5.20 из работы [115], но сильно завышена по сравнению со значениями -12.5 [92] и -11.7 [116]. Стоит, однако, отметить, что верхняя граница стабильности шпинелей $(\text{Fe}_{1-x}\text{Cr}_x)_3\text{O}_4$ на фазовых диаграммах $p_{\text{O}_2}-x$ [92, 116] испытывает очень крутой спад к нижней при приближении $x \rightarrow 2/3$ (как если бы составу FeCr_2O_4 соответствовало одно допустимое давление кислорода), что может приводить к большим погрешностям в определении этой границы.

6. РЕЗУЛЬТАТЫ

6.1. FeMe_2O_4 ($\text{Me} = \text{Fe}, \text{Cr}$): модель основного состояния кубической фазы

Для описания бездефектной кубической фазы магнетита и хромита методом DFT, как подчеркивалось в работах [62, 75], исключалась релаксация не только формы ячейки, но и положений атомов с сохранением принадлежности решетки пространственной группе $Fd\bar{3}m$ (позиции Вайкоффа $8a$, $16c$, $32e$ для А-, В- и кислородной подрешеток, смещение атомов кислорода $u = 0.0049$ в Fe_3O_4 и $u = 0.0126$ в FeCr_2O_4), и лишь параметр решетки был оптимизирован. При этом, однако, допускалось понижение симметрии электронной плотности. Балансируя вновь между необходимостью оставаться в рамках статических расчетов при 0 К методом DFT и

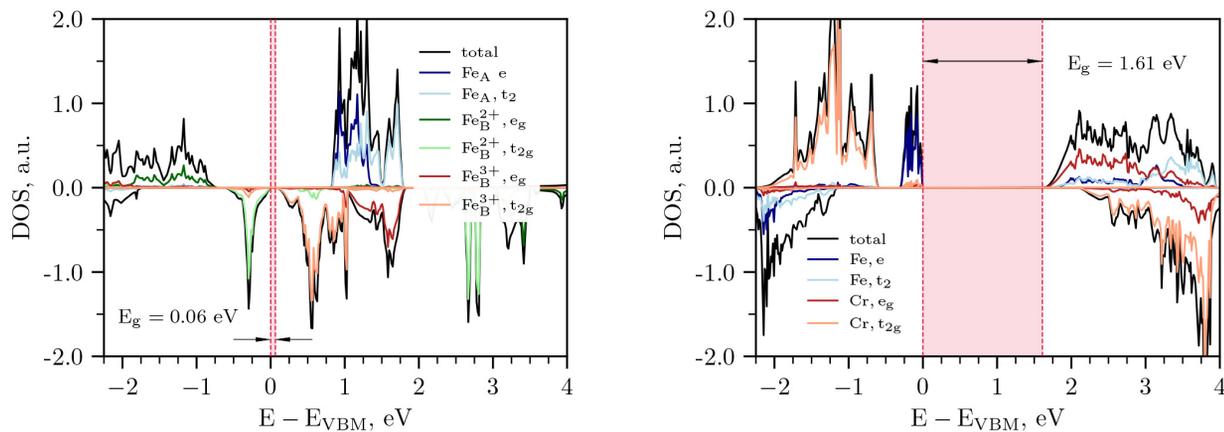


Рис. 4. Плотности электронных состояний (DOS) Fe_3O_4 (слева) и FeCr_2O_4 (справа). Уровень потолка зоны проводимости (VBM) принят за 0. Запрещенная зона E_g закрашена розовым

стремлением аппроксимировать НТ-фазу, где зарядовое упорядочение является ближним и, в конце концов, может исчезнуть, мы добились зарядового диспропорционирования в В-подрешетке магнетита в соответствии с упорядочением Фервея в основном состоянии [61]. Параметр решетки, минимизирующий энергию, составил 8.474 \AA для Fe_3O_4 и 8.488 \AA для FeCr_2O_4 и в последующих расчетах был фиксирован.

На рис. 4 слева изображена орбитально-разрешенная DOS кубического магнетита. Примечательно присутствие узкой, но конечной запрещенной зоны $E_g = 0.06 \text{ эВ}$. Как и в моноклинной ЛТ-фазе [40], запрещенная зона относится к расщеплению t_{2g} -орбиталей атомов Fe_B^{2+} и Fe_B^{3+} вследствие зарядового упорядочения. Узкий t_{2g} -пик в минорной компоненте DOS на уровне потолка валентной зоны соответствует локализованному на атоме Fe_B^{2+} электрону. DOS хромита FeCr_2O_4 представлена на рис. 4 справа, ширина запрещенной зоны 1.61 эВ , а потолка валентной зоны соответствует e -пик лишнего электрона на атоме Fe_A^{2+} . Основные характеристики двух шпинелей в основном состоянии собраны в табл. 3.

Таблица 3. Параметр решетки a , магнитные моменты катионов m , магнитный момент ячейки M , ширина запрещенной зоны E_g кубических FeMe_2O_4 , $\text{Me} = \text{Fe}, \text{Cr}$

Me	$a, \text{ \AA}$	m, μ_B	M, μ_B	$E_g, \text{ эВ}$
Fe	8.47	4.1 (Fe_B^{3+}), 3.7 (Fe_B^{2+}) -4.0 (Fe_A^{3+})	32	0.06
Cr	8.49	2.9 (Cr_B^{3+}) -3.7 (Fe_A^{2+})	16	1.61

По матрицам заселенностей, полученным в результате работы методом DFT+U, можно заключить, что ионам металлов соответствуют высокоспиновые конфигурации $\text{Fe}_B^{3+}t_{2g,\uparrow}^3e_{g,\uparrow}^2$, $\text{Fe}_B^{2+}t_{2g,\uparrow}^3e_{g,\uparrow}^2t_{2g,\downarrow}^1$, $\text{Fe}_A^{3+}e_{\downarrow}^2t_{2,\downarrow}^3$ в Fe_3O_4 и $\text{Cr}_B^{3+}t_{2g,\uparrow}^3e_{g,\uparrow}^0$, $\text{Fe}_A^{2+}e_{\downarrow}^2t_{2,\downarrow}^3e_{\uparrow}^1$ в FeCr_2O_4 . По округленным до целых значениям собственным числам матриц заселенностей можно отождествить моменты Fe^{3+} с $5 \mu_B$, Fe^{2+} с $4 \mu_B$ и Cr^{3+} с $3 \mu_B$. Полные моменты ячеек составили, таким образом, $8 \cdot 5 + 8 \cdot 4 - 8 \cdot 5 = 32 \mu_B$ в Fe_3O_4 и $16 \cdot 3 - 8 \cdot 4 = 16 \mu_B$ в FeCr_2O_4 .

6.2. Энергии образования нейтральных дефектов

Обозначения межузельных положений в катионной подрешетке шпинели (два тетраэдрических A_1, A_2 и октаэдрическое B) в нашей работе аналогичны описанным в [62], но список изучаемых точечных дефектов был расширен ($\text{Fe}_{A_1, A_2, B, int}, V_{\text{Fe}, A, B}, O_{A_1, A_2, B, int}, V_O$ в Fe_3O_4 и $\text{Fe}_{A_1, A_2, B, int}, V_{\text{Fe}, A}, \text{Cr}_{A_1, A_2, B, int}, V_{\text{Cr}, B}, O_{A_1, A_2, B, int}, V_O$ в FeCr_2O_4). В FeCr_2O_4 дополнительно рассмотрен антисайт-дефект Fe-Cr. Кроме того, был использован метод ShakeNBreak [112, 113] для более полного охвата конфигурационного пространства каждой дефектной структуры и во избежание проблемы локальных структурных минимумов при релаксации. Наконец, поскольку матрицы заполнения d -орбиталей и магнитное упорядочение в дефектных ячейках были *a priori* неизвестны, при моделировании катионных дефектов магнитные моменты на атомах металла и полный момент ячейки в начале расчета были инициализированы разными способами. В отдельных случаях также

Таблица 4. Химические потенциалы μ_i , избранные для расчета энергий формирования точечных дефектов согласно (8); числа слева соответствуют условиям недостатка O_2 , а справа — избытка

Me	μ_{Fe} , эВ	μ_{Cr} , эВ	μ_{O} , эВ
Fe	(-6.20 -6.85)	(- -)	(-7.56 -7.07)
Cr	(-5.64 -7.04)	(-8.67 -10.77)	(-8.35 -6.95)

Таблица 5. Энергии формирования нейтральных точечных дефектов и френкелевских пар $\text{Fe}_I/\text{V}_{\text{Fe}}$, $\text{Cr}_I/\text{V}_{\text{Cr}}$, $\text{O}_I/\text{V}_{\text{O}}$, эВ. Приведены наименьшие значения для каждого из типов дефектов*

Fe_3O_4	rich**	poor	FeCr_2O_4	rich	poor
$\text{Fe}_{\text{A}1}\text{-int}$	2.16	1.51	Fe-Cr^{***}	1.74	1.74
$\text{Fe}_{\text{A}2}\text{-int}$	2.13	1.48	Fe-int	4.85	3.45
$\text{Fe}_{\text{B}}\text{-int}$	1.14	0.49	Cr-int	6.66	4.56
A-vac	1.19	1.84	Fe-vac	1.77	3.17
B-vac	0.07	0.72	Cr-vac	1.38	3.48
O-int	2.37	2.86	O-int	3.57	4.97
O-vac	0.53	0.04	O-vac	3.00	1.60
$\text{Fe}_{\text{Bint}}/\text{V}_{\text{B}}$	1.21		$\text{Cr}_{\text{int}}/\text{V}_{\text{Cr}}$	8.04	
$\text{Fe}_{\text{Aint}}/\text{V}_{\text{A}}$	3.32		$\text{Fe}_{\text{int}}/\text{V}_{\text{Fe}}$	6.62	
$\text{O}_{\text{int}}/\text{V}_{\text{O}}$	2.90		$\text{O}_{\text{int}}/\text{V}_{\text{O}}$	6.57	

Примечания.

* Жирным выделены наименьшие значения в каждом столбце.

** rich/poor — условия избытка/недостатка O_2 .

*** Антисайт-дефект Fe-Cr.

допускалось изменение спинового упорядочения на одном или двух катионах. Принятые нами меры хотя лишь отчасти и косвенно, но способствовали преодолению более глобальной проблемы локальных минимумов метода DFT+U как основывающегося на орбитально-зависимом функционале плотности [117, 118].

Для расчета энергий образования по формуле (8) в работе были взяты значения химических потенциалов, имитирующие условия верхней и нижней границ стабильности хромита по шкале парциальных давлений O_2 (маркеры на рис. 3). Заметим, что на нижней границе хромит может сосуществовать с чистым железом. В случае магнетита нижняя граница была выбрана из тех же соображений (т. е. $\lg p_{\text{O}_2}^{\text{min}} = -8.06$, см. разд. 5), однако верхняя была взята равной не -2.23 , как было рассчитано нами,

а -4.76 . Это соответствует значению верхней границы стабильности магнетита $p_{\text{O}_2}^{\text{max}}(T)$ в контакте с расплавом свинца с растворенным в нем кислородом, которое было найдено экстраполяцией зависимости $\ln p_{\text{O}_2}^{\text{max}}(T)$ к 1500 К (см. рис. 6 в работе [23]). Таблица 4 содержит все использованные в расчетах значения химических потенциалов.

Рассчитанные в работе энергии образования дефектов в Fe_3O_4 и FeCr_2O_4 сгруппированы в табл. 5. Для наглядности были отобраны наименьшие значения среди междоузлий O в обоих шпинелях и междоузлий Fe и Cr в хромите. Отметим, что энергии образования в целом заметно выше в FeCr_2O_4 , чем в Fe_3O_4 . Это может быть связано с тем, что ионы железа в октаэдрических (B) сайтах магнетита проявляют смешанную валентность, что делает возможным эффективное экранирование изменений зарядовой плотности, вызванных появлением дефекта, путем изменения соотношения количеств двух- и трехзарядных катионов [87].

6.2.1. Магнетит

Согласно [62] и нашим результатам, вакансии и междоузлия в B-сайтах являются одними из наиболее легко образующихся дефектов подрешетки железа, однако стоит добавить, что нейтральные кислородные вакансии также обладают низкими энергиями формирования, в отличие от междоузлий. В условиях избытка кислорода наиболее легко образуются вакансии железа, что ожидаемо в рамках модели точечных дефектов Дикманна [87], см. выражение (5) в нашей работе. Величины магнитных моментов атомов в регулярных катионных подрешетках практически не отличались от их значений в чистом магнетите (см. табл. 3).

A-междоузлия Fe. Релаксация атомных координат суперъядер с междоузлиями $\text{Fe}_{\text{A}1}$ и $\text{Fe}_{\text{A}2}$ (положения междоузлий обозначены согласно [62]) привела к структурно- и энергетически близким конфигурациям (в табл. 5 приведены оба значения). Один из B-атомов вблизи начального положения междоузлия выходит из своего сайта, и на месте образовавшейся B-вакансии располагается димер атомов Fe (рис. 5). Магнитный момент ячейки составил $34 \mu_{\text{B}}$ (ср. с [62]). Анализ собственных чисел матриц заселенностей показал (рис. 6), что распределения валентностей в регулярной B-подрешетке (октаэдрической) атомов Fe в обоих случаях были представлены шестью трехвалентными и девятью двухвалентными ионами с высокоспиновыми кон-

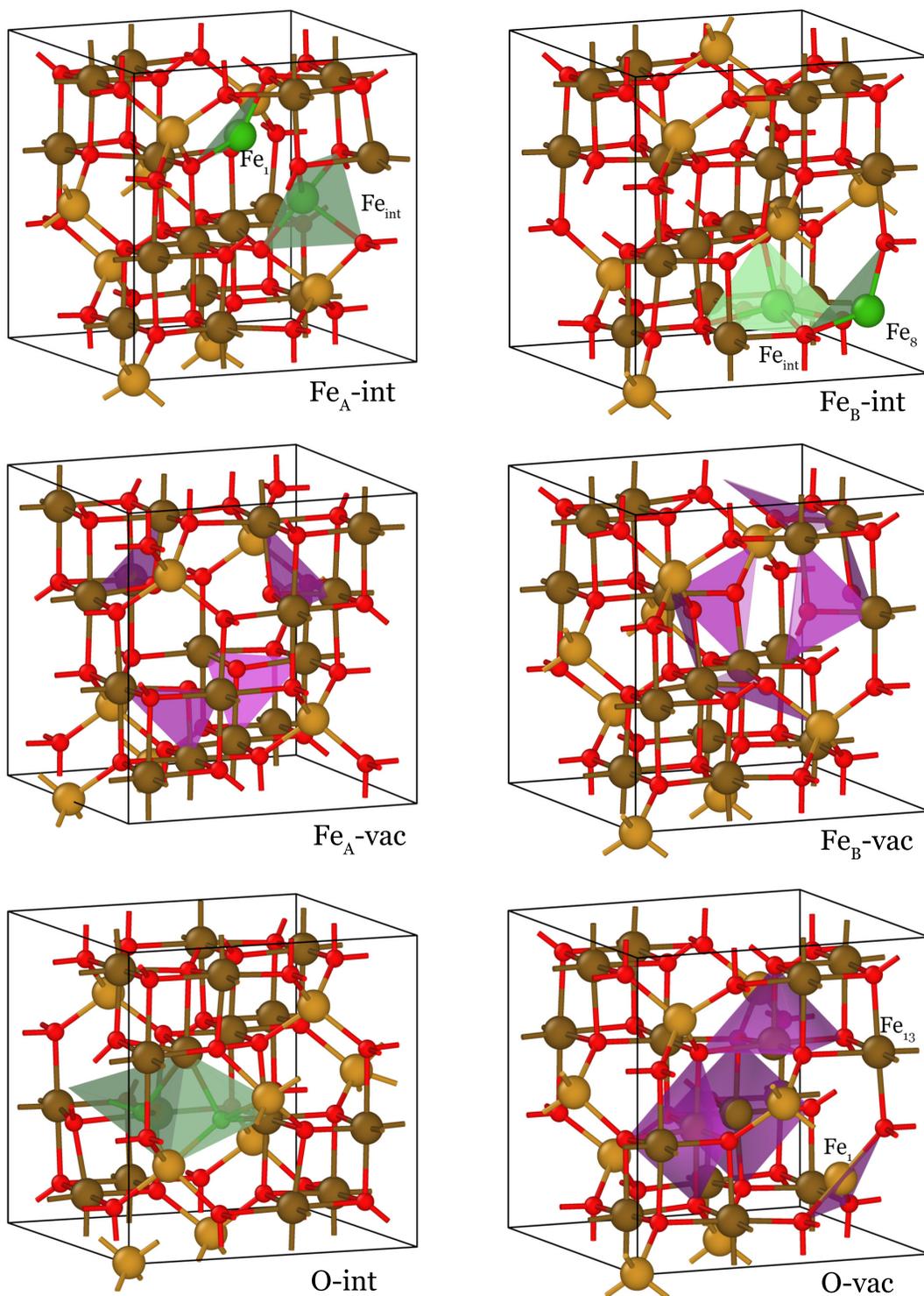


Рис. 5. (56 ± 1) -атомные ячейки Fe_3O_4 с дефектом после релаксации. Атомы Fe_B показаны коричневым, Fe_A — песочным, O — красным; междуузлия — зеленым, окружение вакансий — лиловым

фигурациями $\text{Fe}_B^{3+} t_{2g,\uparrow}^3 e_{g,\uparrow}^2$ и $\text{Fe}_B^{2+} t_{2g,\uparrow}^3 e_{g,\uparrow}^2 t_{2g,\downarrow}^1$; в регулярной А-подрешетке (тетраэдрической) — восьмью трехвалентными ионами $\text{Fe}_A^{3+} e_{g,\downarrow}^2 t_{2,\downarrow}^3$. Междоузельный димер в В-позиции состоит из двух ионов $\text{Fe} t_{2,\uparrow}^3 e_{g,\uparrow}^2 (t_2 + e)_{\downarrow}^1$, магнитные моменты которых равны $3.4 \mu_B$ и $3.6 \mu_B$ и сонаправлены с В-подрешеткой (мажорная компонента спина, атомы $\text{Fe}_B(1)$, Fe_{int} на рис. 6). Это воспроизводит результат работы [62]. Лишние \downarrow -электроны, локализованные на каждом из этих междоузельных атомов, являются смесью t_2 - и e -состояний ввиду того, что атомы не принадлежат регулярному сайту и не имеют правильного тетраэдрического (или октаэдрического) окружения. Таким образом, если считать эти два атома формально двухвалентными (согласно заполнению d -оболочки), то суммарная валентность $6 \cdot 3 + 9 \cdot 2 + 2 \cdot 2 + 8 \cdot 3 = 64$ соответствует суммарной валентности атомов кислорода в ячейке. Примечательно, что это было достигнуто в приближении DFT+U благодаря соответствующему изменению количества ионов Fe_B^{2+} и Fe_B^{3+} . Видно также, что формально целочисленные магнитные моменты $5 \mu_B$ для Fe_B^{3+} и $4 \mu_B$ для Fe_B^{2+} приводят к полному моменту $6 \cdot 5 + 9 \cdot 4 + 2 \cdot 4 - 8 \cdot 5 = 34 \mu_B$.

В-междоузлия Fe. Нужно отметить, что найденная нами наиболее энергетически выгодная конфигурация для междоузлия Fe в В-сайте отличалась от указанной в [62]: 1) магнитный момент ячейки составлял не $26 \mu_B$, а $28 \mu_B$; 2) согласно [62], после релаксации междоузлие и соседние Fe_A -атомы практически не смещались, в нашем же случае атом из А-сайта смещается в ближайшее свободное В-междоузельное положение по соседству с уже имеющимся В-междоузлем. Таким образом, конфигурация после релаксации на самом деле являла собой не одно междоузлие $\text{Fe}_{B,int}$, а два атома Fe в соседних междоузельных В-сайтах, окружающие вакансию в А-сайте: $2\text{Fe}_{B,int} + V_{\text{Fe},A}$, см. рис. 5. Такая конфигурация была получена в ходе релаксации и для магнитного момента $26 \mu_B$, но нами было установлено, что ячейки с магнитным моментом $26 \mu_B$ обладали более высокими энергиями как при координатах атомов, полученных для $28 \mu_B$, так и при конфигурации, аналогичной [62], т. е. дополнительный выигрыш в энергии был приобретен именно с учетом нового перераспределения электронов на d -оболочках Fe. Анализ матриц заселенностей $3d$ -орбиталей показал (рис. 6), что регулярная В-подрешетка атомов Fe в ячейке содержит семь ионов $\text{Fe}_B^{3+} t_{2g,\uparrow}^3 e_{g,\uparrow}^2$ и 9 ионов $\text{Fe}_B^{2+} t_{2g,\uparrow}^3 e_{g,\uparrow}^2 t_{2g,\downarrow}^1$, а А-подрешетка — семь ионов $\text{Fe}_A^{3+} t_{2,\downarrow}^3 e_{g,\downarrow}^2$. Два В-междоузлия вокруг

А-вакансии (атомы $\text{Fe}_A(8)$, Fe_{int}) имеют конфигурации, практически соответствующие высокоспиновым $\text{Fe}_B^{2+} t_{2g,\downarrow}^3 e_{g,\downarrow}^2 t_{2g,\uparrow}^1$, $-3.7 \mu_B$, но с небольшой примесью $e_{g,\uparrow}$ -состояний к $t_{2g,\uparrow}$ -состояниям (опять же, видимо, из-за искажений октаэдрического окружения); магнитные моменты ориентированы антипараллельно В-подрешетке. В [62] магнитный момент (одного) В-междоузлия составлял $-3.73 \mu_B$, также антипараллельно В-подрешетке, но распределение зарядовых состояний 10 Fe_B^{2+} , 6 Fe_B^{3+} , 8 Fe_A^{3+} и Fe_{int}^{2+} — в сумме 64, а целочисленный магнитный момент $10 \cdot 4 + 6 \cdot 5 - 8 \cdot 5 - 4 = 26 \mu_B$, в то время как в нашей конфигурации с двумя междоузлиями в В-сайтах и А-вакансией: 9 Fe_B^{2+} , 7 Fe_B^{3+} , 7 Fe_A^{3+} и 2 $\text{Fe}_{B,int}^{2+}$ — также 64, что соответствует сумме кислородных валентностей, но магнитный момент $9 \cdot 4 + 7 \cdot 5 - 7 \cdot 5 - 2 \cdot 4 = 28 \mu_B$. Естественно, как и в случае А-междоузлия, двухвалентных ионов становится больше, а трехвалентных — меньше, но в этом случае изменение пропорции связано отчасти и с переходом тетраэдрического трехвалентного атома железа в двухвалентное состояние с почти октаэдрическим окружением.

А- и В-вакансии Fe. Значительных структурных изменений после релаксации ячеек с одной вакансией железа в Fe_3O_4 , кроме незначительного отталкивания атомов кислорода от местонахождения вакансии, обнаружено не было (см. рис. 5). В-вакансия обладает более низкой энергией образования, чем А-вакансия (см. табл. 5), а магнитные моменты ячейки составляют $30 \mu_B$ (5 Fe_B^{2+} , 10 Fe_B^{3+} , 8 Fe_A^{3+}) и $40 \mu_B$ (5 Fe_B^{2+} , 11 Fe_B^{3+} , 7 Fe_A^{3+}) соответственно, где подразумеваются высокоспиновые конфигурации ионов; изменение соотношения количеств двух- и трехвалентных атомов железа в точности компенсирует исчезновение одного атома железа (рис. 6); подобные результаты были получены в работе [61].

Вакансии и междоузлия O. В ходе расчетов было обнаружено, что метод DFT+U применительно к структурам $\text{Fe}_{24}\text{O}_{32\pm 1}$, содержащим кислородный точечный дефект, приводил к особенно большому разнообразию возможных магнитных и зарядовых упорядочений (особенно мелко испещренной минимумами поверхности энергии орбитально-зависимого хаббардовского вклада), поскольку среди конфигураций с близкими энергиями оказывались как те, которые различались положением изменивших валентность атомов Fe_B относительно дефекта, так и те, где допускался переворот спина одного из атомов Fe_B , соседних с дефектом (\downarrow вместо \uparrow

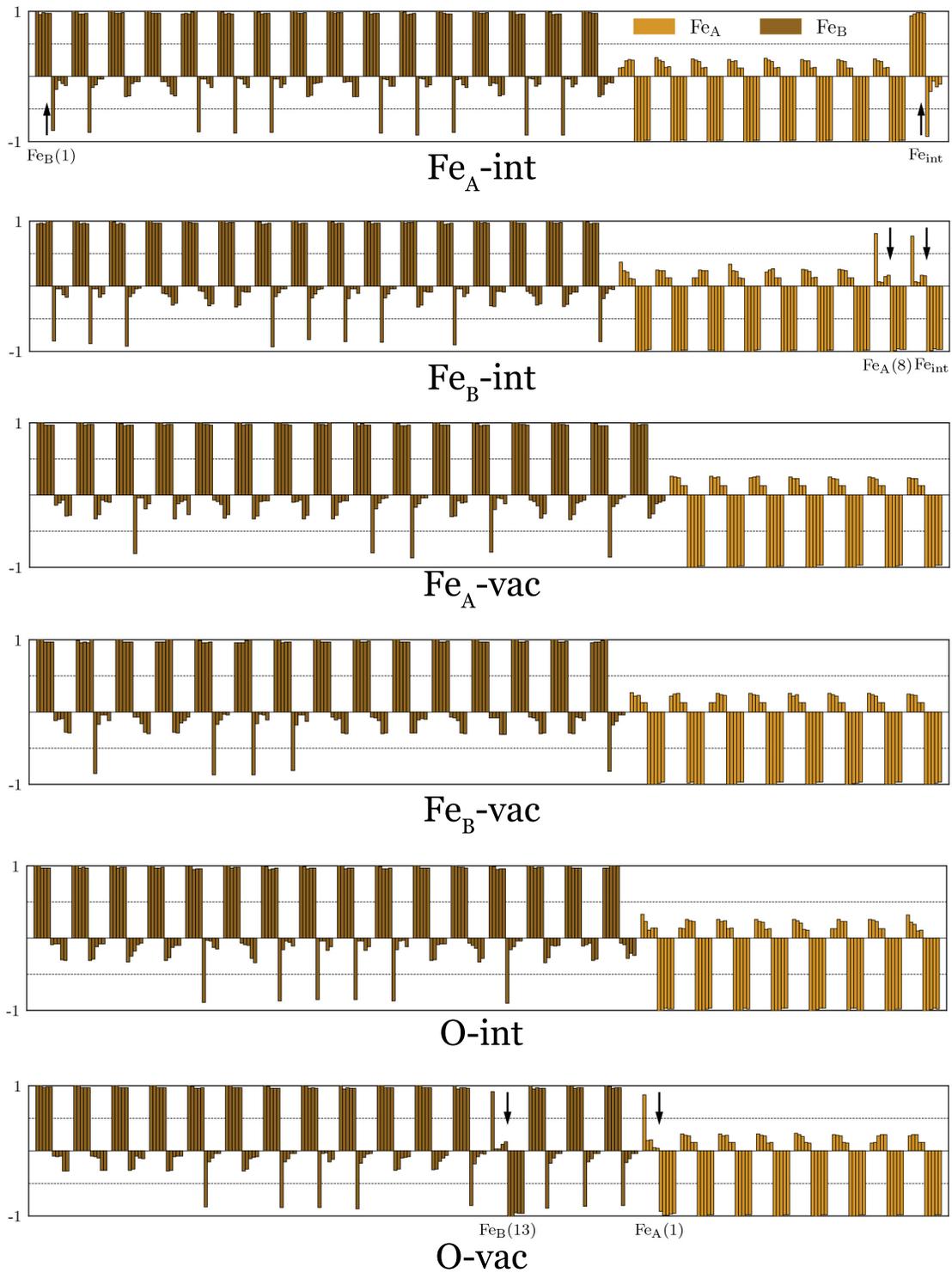


Рис. 6. Собственные числа матриц заполнения $3d$ -оболочек Fe_B (коричневый) и Fe_A (песочный) в (56 ± 1) -атомных ячейках Fe_3O_4 , см. рис. 5. Положения стрелок пояснены в тексте

в наших обозначениях), и (в случае вакансии) смена валентности атома Fe_A с 3 до 2. Мы ограничились полуинтуитивным перебором достаточно большого (около 10–15) числа начальных упорядочений, осознавая, что охватить такое большое конфигурационное пространство возможных комбинаций спиновых и зарядовых упорядочений крайне затруднительно, но замечая, что смогли локализовать искомые энергии основного состояния в пределах не более 50 мэВ от найденных нами наименьших энергий структур с кислородной вакансией или междуузлем.

Так, в случае междуузлия (см. рис. 5) переборот спина октаэдрического атома Fe и смена валентности тетраэдрического оказались невыгодными, конечная структура обладала распределением валентностей и высокоспиновыми конфигурациями в соответствии с $6 \text{Fe}_B^{2+} t_{2g,\uparrow}^3 e_{g,\uparrow}^2 t_{2g,\downarrow}^1$, $10 \text{Fe}_B^{3+} t_{2g,\uparrow}^3 e_{g,\uparrow}^2$, $8 \text{Fe}_A^{3+} e_{\downarrow}^2 t_{2,\downarrow}^3$ (рис. 6) и полным моментом $6 \cdot 4 + 10 \cdot 5 - 8 \cdot 5 = 34 \mu_B$. Изменения положений катионов были не так значительны, но один из соседних атомов O заметно сместился и занял положение в тетраэдрическом катионном окружении ($2\text{Fe}_A + 2\text{Fe}_B$) симметрично междуузельному атому O относительно диагонали цепочки атомов Fe_B , так что стал неотличим от самого междуузлия.

Появление вакансии O (см. рис. 5) наиболее выгодными делает конфигурации, в которых самые близкие к вакансии атомы Fe_B , преимущественно являются двухвалентными (см. рис. 6), поскольку избыточная электронная плотность из-за нескомпенсированных валентностей хорошо локализовывалась на катионах Fe_B^{2+} . В найденной в этой работе структуре с наименьшей энергией все 6 ионов соответствовали конфигурации Fe_B^{2+} . Кроме того, один из ближайших к вакансии атомов Fe_B , связанных с соседним для вакансии атомом $\text{Fe}_A(1)$ кислородным мостиком, изменил свою проекцию спина ($\text{Fe}_{B,\downarrow}^{2+}$, $\text{Fe}_B(13)$ на рис. 6). Сам же катион $\text{Fe}_A(1)$, лишенный связи с одним атомом кислорода, стал двухвалентным ($\text{Fe}_{A,\downarrow}^{2+} e_{\downarrow}^2 t_{2,\downarrow}^3 t_{2,\uparrow}^1$), лишний электрон на нем локализован на t_2 -орбиталях с одинаковым вкладом от каждой ($(1/\sqrt{3})(d_{xy}^{\uparrow} + d_{xz}^{\uparrow} + d_{yz}^{\uparrow})$). Во всей В-подрешетке в целом стало также на один двухвалентный ион больше (высокоспиновые 7Fe_B^{3+} , 9Fe_B^{2+}). Полный магнитный момент ячейки составил $8 \cdot 4 + 7 \cdot 5 - 4 - 4 - 7 \cdot 5 = 24 \mu_B$. Избыточная электронная плотность на месте вакансии перераспределилась, таким образом, в виде двух дополнительных электронов, локализованных на соседних Fe_A и Fe_B , рис. 10, сверху. Это объясняет смещение (отталкивание) атома Fe_A в сторону от местоположения вакансии, так что он находится практи-

чески в плоскости трех оставшихся соседних атомов O (в тригональном окружении), как хорошо видно по почти плоскому координационному многограннику Fe_A на рис. 5.

6.2.2. Хромит

В хромите, как видно из правой части табл. 3, в условиях избытка кислорода наиболее легко образуются вакансии хрома. В условиях недостатка кислорода наиболее легко образуются вакансии кислорода и антисайты. Междуузлия, как Fe и Cr, так и O, образуются труднее всего.

Междуузлия Cr и Fe. Конечная структура с Cr-междуузлем с наименьшей энергией напоминала результат для В-междуузлия в Fe_3O_4 после релаксации, а именно, атом Fe по соседству с Cr-междуузлем сместился практически в соседнее В-межузельное положение, а само Cr-междуузлие занимало другое соседнее В-межузельное положение (ср. рис. 5 и 7). Магнитные моменты двух атомов Cr — собственно междуузлия и соседнего регулярного В-атома (Cr_{int} и $\text{Cr}(2)$ на рис. 8, соответственно) — отличаются от тех, которыми обладают атомы $\text{Cr}_B^{3+} t_{2g,\uparrow}^3 e_{g,\uparrow}^0$ в регулярных сайтах решетки (см. табл. 4): он равен $4.0 \mu_B$ для междуузлия Cr_{int} и $3.6 \mu_B$ для соседнего атома $\text{Cr}(2)$. Судя по матрицам заполнения (рис. 8), этим атомам могут быть поставлены в соответствие валентные состояния $\text{Cr}^{1+} t_{2g,\uparrow}^3 e_{g,\uparrow}^2$, $\text{Cr}^{2+} t_{2g,\uparrow}^3 e_{g,\uparrow}^1$ и условно целочисленные магнитные моменты $5 \mu_B$ и $4 \mu_B$. Сместившийся атом Fe, находясь в окружении, близком к октаэдрическому, практически обладал конфигурацией $\text{Fe}^{2+} t_{2g,\downarrow}^3 e_{g,\downarrow}^2 t_{2g,\uparrow}^1$ (остальные атомы Fe — $\text{Fe}_A^{2+} e_{\downarrow}^2 t_{2,\downarrow}^3 e_{\uparrow}^1$). Полный магнитный момент ячейки составил $5 + 4 + 15 \cdot 3 - 8 \cdot 4 = 22 \mu_B$ ($1 + 2 + 15 \cdot 3 + 8 \cdot 2 = 64$).

В случае с Fe-междуузлем, однако, конфигурация ($2\text{Fe}_{B,int} + V_{\text{Fe},A}$) уже не обладала наименьшей энергией, хотя и была в пределах 0.1 эВ от нее. Более выгодной была конфигурация с междуузлем типа A2 (см. рис. 7); междуузельный атом Fe_{int} был смещен от исходного A2-положения к соседнему A-положению и вытеснял соседний регулярный атом Fe_A ближе к соседнему В-межузельному положению. В результате пик e_{\uparrow} -электронов этого атома Fe_A в области потолка валентной зоны (см. рис. 4) превратился в гибрид e_{\uparrow} - и t_2 -электронов с числами заполнения, более близкими к половинным (атом $\text{Fe}(3)$ на рис. 8, его магнитный момент ($-3.5 \mu_B$) меньше, чем у Fe_A^{2+}), что могло отразиться на высокой энергии образования междуузлия. Похожая

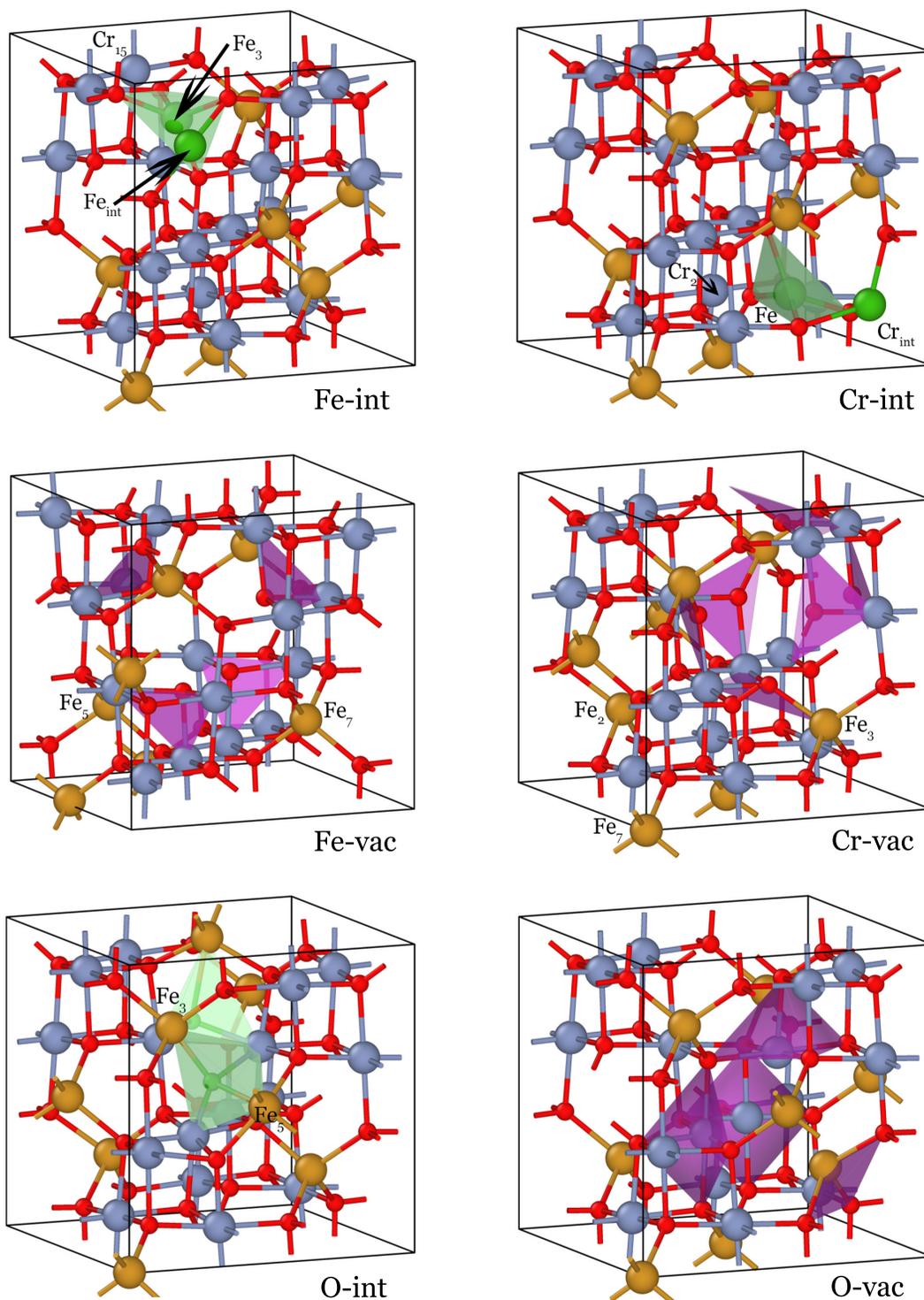


Рис. 7. (56 ± 1) -атомные ячейки FeCr_2O_4 с дефектом после релаксации. Атомы Fe_A показаны песочным, Cr_B — синим, O — красным; междоузлия — зеленым, окружение вакансий — лиловым

ситуация возникала и с самим междуузлем, но с более явной локализацией электрона (атом Fe_{int} на рис. 8); междуузлие обладало магнитным моментом $-3.1 \mu_B$, формально соответствующим состоянию Fe_{int}^{1+} . Соседний с междуузлем атом Cr также понизил валентность и повысил магнитный момент (Cr_B^{2+} , $t_{2g,\uparrow}^3 e_{g,\uparrow}^1$, атом Cr(15) на рис. 8; $\mu = 3.6 \mu_B$). Полный целочисленный магнитный момент был равен $15 \cdot 3 - 8 \cdot 4 - 3 + 4 = 14 \mu_B$ ($15 \cdot 3 + 8 \cdot 2 + 1 + 2 = 64$).

Анализ DOS в структурах с междуузлиями показал, что дополнительные электроны на атомах Fe^{1+} , Cr^{1+} , Cr^{2+} были сильно делокализованы и привели к появлению широких зон с сильной гибридизацией у мажорной (для спина «вверх») спиновой компоненты в запрещенной зоне бездефектного хромита. В случае междуузлия Cr эти зоны были достаточно близки к исходному уровню дна зоны проводимости и привели к металлизации зонной структуры. Они состояли из $e_{g,\uparrow}$ -орбиталей атома Cr^{2+} (атома Cr(2)) и $e_{g,\uparrow}$ -орбиталей междуузлия Cr^{1+} (атом Cr_{int}), гибридных с $e_{g,\uparrow}$ -орбиталями остальных атомов Cr_B^{3+} . В случае междуузлия Fe металлизации не происходило, но имела место делокализация $e_{g,\uparrow}$ -электрона Cr_B^{2+} (атом Cr(15)) и $t_{2,\uparrow}$ -электрона междуузлия Fe^{1+} (атом Fe_{int}), гибридных с e_g -орбиталями атомов Cr_B^{3+} и другими состояниями.

Вакансии Cr и Fe. При появлении катионных вакансий только подрешетка катионов Fe реагировала на изменение баланса валентностей путем локализации дырок. Так, в ячейке с вакансией Fe (см. рис. 7) дырочная плотность локализовалась на двух атомах Fe_A^{2+} . У атомов Fe(5) и Fe(7) на рис. 8 соответствующим образом изменились числа заполнения d -оболочек ($\text{Fe}_A^{3+} e_{\downarrow}^2 t_{2,\downarrow}^1$, тогда как остальные атомы имеют привычные высокоспиновые конфигурации $\text{Fe}_A^{2+} e_{\downarrow}^2 t_{2,\downarrow}^3 e_{\uparrow}^1$ и $\text{Cr}_B^{3+} t_{2g,\uparrow}^3 e_{g,\uparrow}^0$). Магнитный момент ячейки составил $16 \cdot 3 - 5 \cdot 4 - 2 \cdot 5 = 18 \mu_B$ ($16 \cdot 3 + 5 \cdot 2 + 2 \cdot 3 = 64$). В ячейке с вакансией Cr (см. рис. 7) аналогичным образом появилось три атома Fe_A^{3+} (атомы Fe(2), Fe(3), Fe(7) на рис. 8), магнитный момент ячейки — $15 \cdot 3 - 5 \cdot 4 - 3 \cdot 5 = 10 \mu_B$ ($15 \cdot 3 + 5 \cdot 2 + 3 \cdot 3 = 64$). Сопутствующие изменения DOS в обоих случаях включают появление пиков незаполненных e_{\uparrow} -уровней атомов Fe_A^{3+} в середине запрещенной зоны (образовавших новое дно зоны проводимости) и сразу над ними — пиков незаполненных $t_{2,\uparrow}$ -уровней. В разд. 7 будет обсуждаться более выгодное положение акцепторных дефектов (катионных вакансий и кислородных междуузлий) с точки зрения их энергий образования в хромите.

Антисайт-дефект Fe–Cr. В качестве модели антисайт-дефекта был рассмотрен лишь тот случай, когда местами меняются ближайшие атомы Fe и Cr (связанные посредством атома O, рис. 9). Среди нескольких вариантов магнитного и зарядового упорядочения наименьшей энергией обладала ячейка с магнитным моментом $16 \mu_B$, как в бездефектном магнетите, и без изменений проекций спинов атомов Fe_{Cr} и Cr_{Fe} , обменявшихся позициями (атомы Cr_{Fe} , Fe_{Cr} на рис. 8). Однако видно, что атом железа в составе антисайт-дефекта стал трехвалентным ($\text{Fe}_B^{3+} t_{2g,\downarrow}^3 e_{g,\downarrow}^2$), а хрома — двухвалентным ($\text{Cr}_A^{2+} e_{\uparrow}^2 t_{2,\uparrow}^2$). Уровень дна зоны проводимости существенно понизился и соответствовал освобожденной $t_{2g,\uparrow}$ -орбитали атома Fe_{Cr} , а потолок валентной зоны, напротив, стал выше и состоял из $t_{2,\uparrow}$ -орбиталей тетраэдрического атома Cr_{Fe} . Таким образом, запрещенная зона стала примерно вдвое уже. Порядок e_g - и t_{2g} -орбиталей как Fe_{Cr} , так и Cr_{Fe} относительно друг друга также поменялся в соответствии с изменившимся кислородным окружением. Остальные атомы решетки находились в привычных электронных конфигурациях.

Вакансии и междуузлия O. Конфигурация кислородного междуузлия была такой же, как в Fe_3O_4 , см. рис. 7, т. е. междуузельный и регулярный атомы O располагались симметрично относительно изначального регулярного положения после релаксации. Как и в случае вакансий Fe и Cr, имела место локализация дырочной плотности на атомах Fe-подрешетки. Атомы Fe(3), Fe(5), имеющие на одного кислородного соседа больше, чем в обычном тетраэдрическом окружении, повысили свою степень окисления до +3 (см. рис. 8). В связи с появлением двух Fe_A^{3+} -атомов в запрещенной зоне мажорной компоненты DOS FeCr_2O_4 появились пики незаполненных e_{\uparrow} -орбиталей, составившие дно зоны проводимости, и над ними — пики незаполненных $t_{2,\uparrow}$ -орбиталей.

Однако структура с вакансией O-вакс коренным образом отличалась от таковой в Fe_3O_4 . А именно, ион $\text{Fe}_A(1)$, лишенный соседнего атома O и в Fe_3O_4 смещавшийся в направлении от вакансии по диагонали куба, в FeCr_2O_4 сместился, напротив, по направлению к вакансии (ср. рис. 5 и 7). При этом если в $\text{Fe}_3\text{O}_4 + V_O$ стало на два катиона Fe^{2+} больше, то в $\text{FeCr}_2\text{O}_4 + V_O$ заметных изменений в числах заполнения $3d$ -орбиталей по сравнению с бездефектным хромитом не произошло, см. рис. 8, а полный магнитный момент ячейки $16 \mu_B$ не изменился. Аналогичный результат был получен для нейтральных

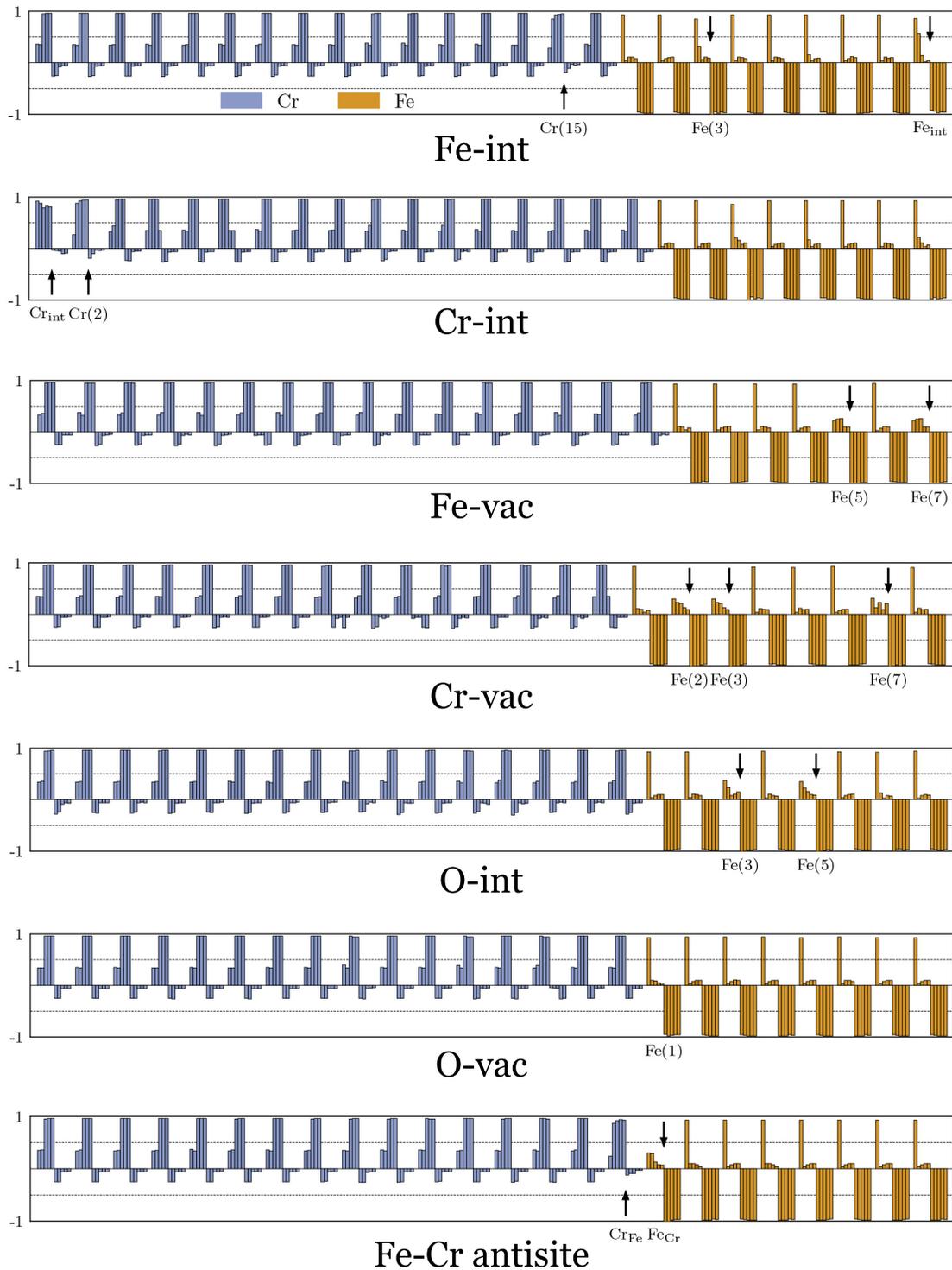


Рис. 8. Собственные числа матриц заполнения 3d-оболочек Cr (синий цвет) и Fe (песочный) в (56 ± 1) -атомных ячейках FeCr_2O_4 , см. рис. 7 и рис. 9. Положения стрелок пояснены в тексте

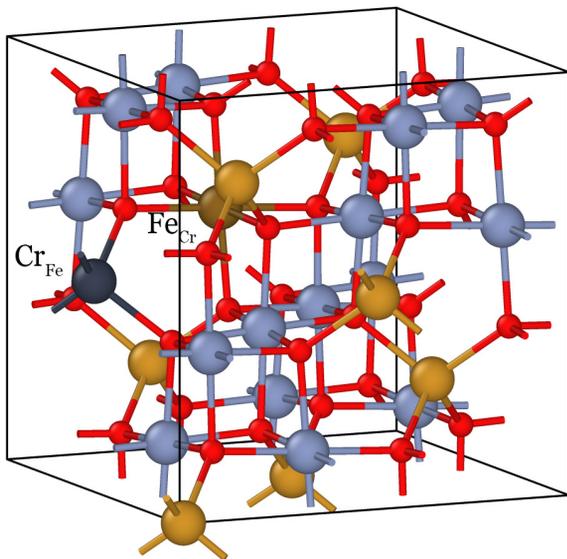


Рис. 9. 56-атомная ячейка FeCr_2O_4 с антисайт-дефектом Fe–Cr после релаксации. Атомы антисайт-дефекта (Fe_{Cr} , Cr_{Fe}) показаны более темными оттенками

вакансий O в Fe_3O_4 , CoFe_2O_4 , NiFe_2O_4 [59,119,120]. Тем не менее в запрещенной зоне $\text{FeCr}_2\text{O}_4 + V_{\text{O}}$ появились два новых маленьких пика, образовавших потолок валентной зоны и дно зоны проводимости. Они принадлежали в большей степени e_g -состояниям трех катионов Cr, ближайших к вакансии, с заметной примесью $3d$ -состояний других атомов Cr. Для того чтобы понять, почему конфигурации с магнитным моментом ячейки $18 \mu_B$, где два лишнего электрона были практически локализованы на двух катионах Cr^{2+} , были менее выгодны энергетически, и выяснить, каким образом перераспределилась избыточная зарядовая плотность на месте кислородной вакансии, мы визуализировали ее в том энергетическом диапазоне DOS, который содержал вызванные появлением O-вакансии пики (примерно от -0.5 до 0 эВ относительно потолка валентной зоны). Результат представлен на рис. 10, снизу, куда также включены заполненные e_g -состояния Fe_A^{2+} , близкие к потолку валентной зоны. Для сравнения, зарядовая плотность t_{2g} -состояний Fe_B^{2+} вблизи потолка валентной зоны $\text{Fe}_3\text{O}_4 + V_{\text{O}}$ показана на рис. 10, сверху. Противоположный характер смещений атомов Fe_A (атомы № 1 на рис. 6 и 8) теперь становится понятен, поскольку в $\text{Fe}_3\text{O}_4 + V_{\text{O}}$ избыточная электронная плотность распределена по хорошо локализованным орбитальям окружающих вакансию катионов Fe_A^{2+} (1) и Fe_B^{2+} , тогда как в $\text{FeCr}_2\text{O}_4 + V_{\text{O}}$ она делокализована в области вакансии между ближайшими атомами Cr и атомом Fe и представляет

собой единую связывающую орбиталь, состоящую из гибридованных e_g -состояний Cr и t_{2g} -состояний Fe(1). Похожее распределение электронной плотности продемонстрировано для нейтральной вакансии O в NiFe_2O_4 [120]. Связывающий характер этой обобществленной орбитали и приводит к притяжению Fe(1) к вакансии. В противоположность этому, в структуре с магнитным моментом ячейки $18 \mu_B$ с высокой степенью локализации электронов на атомах Cr наблюдалось отталкивание Fe(1) от вакансии, как и в $\text{Fe}_3\text{O}_4 + V_{\text{O}}$.

7. ОБСУЖДЕНИЕ

Основным результатом настоящей работы являются рассчитанные энергии образования нейтральных точечных дефектов в магнетите и хромите. В обоих шпинелях в условиях избытка O_2 наиболее легко образуются вакансии в октаэдрической подрешетке атомов металла, а в условиях недостатка O_2 кислородные вакансии и междоузлия обладают соответственно наименьшими и наибольшими энергиями образования. Примечательно, что в случае магнетита граничные значения химического потенциала кислорода практически совпадают с теми, при которых впервые обращаются в нуль энергии формирования точечных дефектов (в нашем случае вакансий Fe_B или O), тогда как в хромите такого не наблюдается. Причина может заключаться в том, что заряженные точечные дефекты не принимались во внимание в настоящей работе. Возможно, это приводит к завышенным энергиям образования, поскольку роль заряженных дефектов проявляется сильнее в FeCr_2O_4 , чем в Fe_3O_4 . В то же время в магнетите эти энергии (1.21 эВ для B-подрешетки и 3.32 эВ для A-подрешетки) хорошо воспроизводят низко- и высокотемпературные пределы энергии активации для константы Френкеля из работ Дикманна и др. [89,91] (1.38 и 3.11 эВ соответственно). В [62] предлагалось трактовать существование этих пределов как переход от преобладающего механизма образования пар в B-подрешетке при более низких температурах к A-парам при более высоких. Поскольку наше уточненное значение 1.21 эВ ниже 1.38 эВ из работ Дикманна и др. (в отличие от 1.52 эВ в [62]), дополнительно стоит обратить внимание, что наши результаты 1.21 и 3.32 эВ примерно на 0.2 эВ отличаются от результатов Дикманна и др. Это может быть связано с тем, что авторы описывали поведение вакансионной константы равновесия K_V одной экспонентой, в отличие от $K_I = K'_I + K''_I$, и из-за

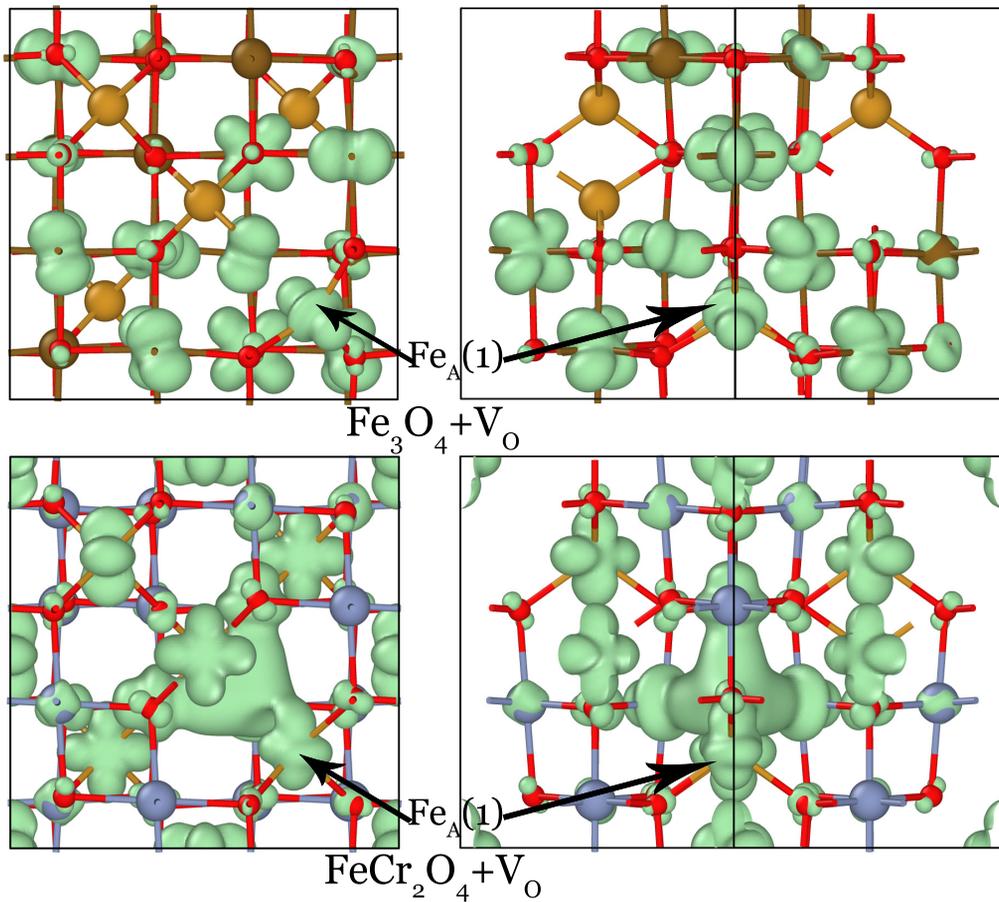


Рис. 10. Электронная плотность состояний в пределах 0.5 эВ от потолка валентной зоны в $\text{Fe}_3\text{O}_4 + \text{V}_\text{O}$ (сверху) и $\text{FeCr}_2\text{O}_4 + \text{V}_\text{O}$ (снизу); слева — [001]-проекция, справа — [101]-проекция

такого усреднения их результаты чуть ближе друг к другу, чем наши.

Нами не было обнаружено экспериментальных исследований точечных дефектов в FeCr_2O_4 , однако сравнительный анализ нестехиометричности δ в магнетите $\text{Fe}_{3-\delta}\text{O}_4$ [87] и смешанных шпинелях $(\text{Fe}_{1-x}\text{Cr}_x)_{3-\delta}\text{O}_4$ при $x \leq 0.5$ [92] при 1200 °C показал, что увеличение содержания хрома сужало диапазон значений δ примерно на порядок с каждой стороны. Улавливаемые при увеличении содержания Cr в $(\text{Fe}_{1-x}\text{Cr}_x)_{3-\delta}\text{O}_4$ тенденции находятся в согласии с нашими результатами для FeCr_2O_4 .

В самом деле, в хромите энергии образования нейтральных точечных дефектов в целом заметно выше вне зависимости от внешних условий (активности кислорода). Для адекватного сравнения энергий образования точечных дефектов одинакового типа в двух шпинелях в табл. 6 приведена разность энергий образования

$$\Delta E_{form} = E_{form,i}(\text{FeCr}_2\text{O}_4) - E_{form,i}(\text{Fe}_3\text{O}_4),$$

где i — индекс типа дефекта, рассчитанных для одинаковых внешних условий по O и Fe. Это означает, что значения химических потенциалов μ_i элементов выбираются на линии сосуществования Fe_3O_4 и FeCr_2O_4 (оранжевая линия на рис. 3), тем самым устраняется зависимость ΔE_{form} от выбора внешних условий. Для дефектов с участием атомов одинакового типа это тривиально, поскольку химические потенциалы, входящие в формулу выше, взаимно уничтожаются, а для дефектов В-подрешеток возникающая разница $\mu_{\text{Cr}} - \mu_{\text{Fe}}$ есть постоянная величина, не зависящая от выбора значений химических потенциалов. Все величины в табл. 6 положительны. Мы предполагаем, что более низкие энергии образования в Fe_3O_4 являются прямым следствием эффективного экранирования возмущений электронной плотности в магнетите, вызванных появлением дефекта, путем изменения соотношения количеств катионов Fe_B^{2+} и Fe_B^{3+} . На это указывали Дикманн и др., обосновывая способность катионных точечных дефектов образовывать подобие идеально-

Таблица 6. Увеличение энергий образования точечных дефектов в FeCr_2O_4 по сравнению с Fe_3O_4

Дефект*	ΔE_{form} , эВ	Дефект**	ΔE_{form} , эВ
A- <i>vac</i>	0.76	A- <i>int</i>	2.52
B- <i>vac</i>	1.45	B- <i>int</i>	5.38
O- <i>int</i>	1.32	O- <i>vac</i>	2.35

Примечания.

*Менее высокий прирост.

**Более высокий прирост.

го раствора в Fe_3O_4 благодаря высоким буферным способностям катионной подрешетки [87]. Подобный эффект наблюдался в результатах данного исследования и работах [61, 62, 99]. В бездефектном хромите катионы Fe имеют зарядовое состояние +2, а Cr — исключительно +3, на сильную стабилизацию последнего кристаллическим полем указывали авторы работы [121]. Появление катионных междоузлий и кислородной вакансии приводило к нехарактерным для Fe и Cr в железохромистых шпинелях степеням окисления Fe(+1), Cr(+1), Cr(+2) либо делокализации высвободившихся валентных электронов.

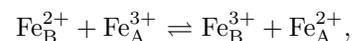
В отличие от Fe_3O_4 , экранирование избыточной зарядовой плотности в FeCr_2O_4 без необходимости принимать нехарактерную степень окисления возможно только в случае катионных вакансий и кислородного междоузлия, когда происходит повышение степени окисления катионов Fe_A^{2+} до другой характерной для Fe в шпинелях, +3. Эти типы дефектов сгруппированы в левой части табл. 6, и действительно, повышение энергий образования для них заметно меньше, чем для дефектов первой группы (правая часть табл. 6). Таким образом, можно предположить, что дополнительный дестабилизирующий вклад в дефектные конфигурации FeCr_2O_4 связан непосредственно с появлением нехарактерных для атомов Fe и Cr в шпинелях степеней окисления. Отметим, что в экспериментальном исследовании при 1200 °C эффект замещения Fe на Cr в $(\text{Fe}_{1-x}\text{Cr}_x)_{3-\delta}\text{O}_4$ сильнее сказывался на концентрациях междоузлий, чем вакансий, см. рис. 5 в работе [92].

Разница в изменениях энергий образования при переходе от Fe_3O_4 к FeCr_2O_4 между вакансиями и междоузлиями катионов может быть лишь следствием стерических факторов. Однако в таком случае непонятно более сильное повышение энергий образования у вакансий O, чем у междоузлий (табл. 6). Следовательно, нельзя игнорировать

фактор экранирующей способности Fe-подрешетки, присутствующей и в FeCr_2O_4 в том числе.

Авторы работы [59] рассмотрели кислородные вакансии в магнетите и детально изучили такие факторы, влияющие на энергии формирования этих точечных дефектов, как их зарядовое состояние и локальное окружение ионов Fe_B^{2+} и Fe_B^{3+} ; последний фактор приводил к изменению энергий формирования нейтральных вакансий в пределах 1.1 эВ. Поскольку авторы не приводят конкретного значения химического потенциала O для расчета энергий формирования, используют отличное от ферреевского упорядочение в основном состоянии магнетита и, кроме того, не избегают релаксации бездефектной ячейки с зарядовым упорядочением, заметное завышение нашего результата 0.04 эВ для вакансии кислорода у магнетит-вюститного буфера до 0.8 эВ в работе [59] не является неожиданностью. Кроме того, магнитный момент ячейки с вакансией, согласно [59], не изменился; в нашем же случае из-за переворота магнитного момента одного из атомов Fe_B^{2+} он уменьшился на $8\mu_B$. Однако в работе [59] показано, что наименьшими энергиями среди нейтральных конфигураций обладают те, где, во-первых, один из лишних электронов локализован на соседнем с вакансией A-атоме, и, во-вторых, где нет делокализации высвободившихся в результате появления вакансии O электронов. Наша конфигурация удовлетворяет этим условиям. Вопрос, не рассмотренный нами на данном этапе работы, но заслуживающий внимания, касается влияния степени инвертированности шпинели и соотношения количества катионов на энергии образования точечных дефектов [119, 120, 122].

Известно, однако, что в магнетите параметр инверсии, близкий к единице при низких температурах, уменьшается вплоть до нуля по мере как замещения части атомов железа на атомы хрома в хромите FeCr_2O_4 , так и повышения температуры [123, 124]. Во втором случае, как было показано для стехиометрического Fe_3O_4 [125], возникающий катионный беспорядок связан не только с самодопированием магнетита (дырочным допированием B-подрешетки) и смещением вправо равновесия:



но и с увеличением соотношения концентраций атомов Fe в B- и A-сайтах, $[\text{Fe}_B]/[\text{Fe}_A]$. В условиях стехиометричности это может происходить в результате преимущественного образования пар Френкеля $\text{Fe}_{B,int}/V_A$.

Описанные в работе [62] трудности согласованной интерпретации экспериментов [87, 89, 125] с помощью результатов расчетов методом DFT+U теперь могут быть отчасти разрешены, поскольку указанные работы и наши результаты находятся одновременно в удовлетворительном согласии. Так, вывод Дикманна и др. о преобладании В-вакансий железа в их общем числе [87, 89] подтверждается тем, что энергии образования А-вакансий в наших расчетах больше на 1.12 эВ, и не может быть опровергнут в работе [125], поскольку в ней исследовался стехиометрический магнетит. С другой стороны, результат работы [125] об увеличении числа занятых В-сайтов и уменьшения числа занятых А-сайтов с ростом температуры подтверждается результатом Дикманна и др. [89] об увеличении доли А-вакансий с ростом температуры. Правда, стоит иметь в виду, что измерения в работе [125] проводились при более низких температурах, чем измерения Дикманна и др. Наконец, последний факт подтверждается нашими результатами, что, на первый взгляд, неочевидно. Действительно, в работах [87, 89] было обнаружено, что режим образования (и миграции) катионных междоузлий двухэкспоненциален и с ростом температуры переключается с одного механизма на другой. Как отмечалось выше, соответствующие энергии активации для констант Френкеля (1.38 и 3.11 эВ [87]) были отождествлены в работе [62] с рассчитанными в ней же энергиями образования френкелевских пар в В- и А-подрешетках (1.52 и 3.27 эВ). Полученные в нашей работе значения для тех же категорий составляют 1.21 и 3.32 эВ и находятся в хорошем согласии с результатами работы [87]. В рамках таких представлений о расчете энергий образования пар Френкеля результаты работы [125] о преимущественном образовании пары $\text{Fe}_{\text{В},\text{int}}/V_{\text{А}}$ трудно интерпретировать, поскольку энергия ее образования, согласно нашим расчетам, равна 2.33 эВ, что много выше 1.21 эВ. Это противоречие, отмеченное в [62], разрешается в нашей работе благодаря обнаруженной здесь новой конфигурации В-междоузлия. В разд. 6.2.1 указывалось, что она представляет собой в действительности два В-междоузлия по соседству с А-вакансией, т. е. формально является не самостоятельным В-междоузлем, а В-междоузлем, взаимодействующим с парой Френкеля $\text{Fe}_{\text{В},\text{int}}/V_{\text{А}}$. Как следствие, энергия 1.21 эВ образования френкелевской В-пары в нашей работе также может быть отнесена скорее к $\text{Fe}_{\text{В},\text{int}}/V_{\text{А}}$, чем $\text{Fe}_{\text{В},\text{int}}/V_{\text{В}}$.

Таким образом, для корректной интерпретации экспериментальных данных, которые не предостав-

ляют информации о процессах на микроуровне (в частности, распределении вакансий и междоузлий в составе пар Френкеля по их удаленности друг от друга) и соотношения их с результатами расчетов может быть необходимым учитывать зависимость расчетной энергии образования от расстояния между вакансией и междоузлем. Как можно было видеть, при обычном сложении энергий образования независимых вакансии и междоузлия результат для френкелевской пары может оказываться завышенным, но, с другой стороны, релаксация структуры с ненарушенной стехиометрией и междоузлем рядом с вакансией должна приводить к заниженным значениям или вовсе основному состоянию, т. е. бездефектной структуре.

8. ВЫВОДЫ

В работе сделана попытка связать детальный анализ электронной и атомной структур точечных дефектов в магнетите и хромите на основе метода DFT+U с расчетом энергий образования рассматриваемых дефектов в этих оксидах при условиях избытка и недостатка кислорода. Рассчитаны энергии образования нативных нейтральных точечных дефектов — катионных и кислородных вакансий и междоузлий — в магнетите и хромите. Особое внимание уделено интерпретации результатов экспериментальных работ Дикманна и др. как наиболее полного и согласованного из известных нам, однако зачастую обделяемого вниманием и анализом в расчетных работах исследования точечных дефектов в магнетите и других шпинелях. Ценность метода DFT+U, таким образом, сочеталась с богатством доступных для интерпретации с его помощью экспериментальных данных (таких как энергии образования френкелевских пар).

Выполненные расчеты энергий образования точечных дефектов привели к следующим основным результатам.

1. И в магнетите, и в хромите катионные В-вакансии и О-вакансии обладают наименьшими энергиями образования в условиях избытка и недостатка O_2 соответственно.

2. Энергии образования нейтральных точечных дефектов в FeCr_2O_4 заметно выше, чем в Fe_3O_4 , что может быть объяснено с позиций высокой буферной способности системы ионов смешанной валентности $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ в магнетите; это свойство системы ионов железа также отчасти проявлялось и в хромите при образовании катионных вакансий и кислородного междоузлия.

3. Энергии образования пар Френкеля составили

1.21 эВ в В-подрешетке железа в Fe_3O_4 в хорошем согласии с экспериментальными значениями;

2.90 эВ в О-подрешетке магнетита;

6.62 эВ в Fe-подрешетке хромита;

6.57 эВ в О-подрешетке хромита.

Сравнение полученных результатов расчетов для магнетита в рамках метода DFT+U с экспериментальными данными Дикманна и др. и недавним экспериментом [125] свидетельствует о том, что при интерпретации экспериментальных результатов следует учитывать обнаруженную в данной работе возможность составного характера френкелевской пары в магнетите.

Финансирование. Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (соглашение с ОИВТ РАН № 075-01129-23-00 от 29.12.2022 г.) Исследование осуществлено в рамках Программы фундаментальных исследований НИУ ВШЭ. Расчеты выполнялись в суперкомпьютерных центрах ОИВТ РАН и УИТ МФТИ. Кроме того, авторы благодарят МСЦ РАН за предоставленные вычислительные ресурсы.

ЛИТЕРАТУРА

1. К. И. Кугель, Д. И. Хомский, УФН **136**, 621 (1982).
2. С. В. Стрельцов, Д. И. Хомский, УФН **187**, 1205 (2017).
3. D. I. Khomskii and S. V. Streltsov, Chem. Rev. **121**, 2992 (2021).
4. М. Ю. Каган, К. И. Кугель, Д. И. Хомский, ЖЭТФ **120**, 470 (2001).
5. I. I. Mazin, D. I. Khomskii, R. Lengsdorf, J. A. Alonso, W. G. Marshall, R. M. Ibberson, A. Podlesnyak, M. J. Martínez-Lope, and M. M. Abd-Elmeguid, Phys. Rev. Lett. **98**, 176406 (2007).
6. А. О. Сбойчаков, А. В. Рожков, К. И. Кугель, А. Л. Рахманов, Письма в ЖЭТФ **112**, 693 (2020).
7. A. Bosak, D. Chernyshov, M. Hoesch, P. Piekartz, M. Le Tacon, M. Krisch, A. Kozłowski, A. M. Oleś, and K. Parlinski, Phys. Rev. X **4**, 011040 (2014).
8. S. V. Ovsyannikov, M. Bykov, E. Bykova, D. P. Kozlenko, A. A. Tsirlin, A. E. Karkin, V. V. Shchennikov, S. E. Kichanov, H. Gou, A. M. Abakumov, R. Egoavil, J. Verbeeck, C. McCammon, V. Dyadkin, D. Chernyshov, S. van Smaalen, and L. S. Dubrovinsky, Nat. Chem. **8**, 501 (2016).
9. S. V. Ovsyannikov, M. Bykov, S. A. Medvedev, P. G. Naumov, A. Jesche, A. A. Tsirlin, E. Bykova, I. Chuvashova, A. E. Karkin, V. Dyadkin, D. Chernyshov, and L. S. Dubrovinsky, Angew. Chem. Int. Ed. **59**, 5632 (2020).
10. V. I. Anisimov, I. S. Elfimov, N. Hamada, and K. Terakura, Phys. Rev. B **54**, 4387 (1996).
11. V. S. Zhandun, N. V. Kazak, I. Kupenko, D. M. Vasiukov, X. Li, E. Blackburn, and S. G. Ovchinnikov, Dalton Trans. **53**, 2242 (2024).
12. V. I. Anisimov, J. Zaanen, and O. K. Andersen, Phys. Rev. B **44**, 943 (1991).
13. A. I. Liechtenstein, V. I. Anisimov, and J. Zaanen, Phys. Rev. B **52**, R5467 (1995).
14. V. I. Anisimov, F. Aryasetiawan, and A. I. Liechtenstein, J. Phys.: Condens. Matter **9**, 767 (1997).
15. V. I. Anisimov, A. I. Poteryaev, M. A. Korotin, A. O. Anokhin, and G. Kotliar, J. Phys. Condens. Matter **9**, 7359 (1997).
16. G. Trimarchi, I. Leonov, N. Binggeli, D. Korotin, and V. I. Anisimov, J. Phys.: Condens. Matter **20**, 135227 (2008).
17. L. Hozoi, L. Siurakshina, P. Fulde, and J. van den Brink, Sci. Rep. **1**, 65 (2011).
18. S. Nishimoto, V. M. Katukuri, V. Yushankhai, H. Stoll, U. K. Röfler, L. Hozoi, I. Rousochatzakis, and J. van den Brink, Nat. Commun. **7**, 10273 (2016).

19. D. A. Maltsev, Y. V. Lomachuk, V. M. Shakhova, N. S. Mosyagin, L. V. Skripnikov, and A. V. Titov, *Phys. Rev. B* **103**, 205105 (2021).
20. A. V. Oleynichenko, Y. V. Lomachuk, D. A. Maltsev, N. S. Mosyagin, V. M. Shakhova, A. Zaitsevskii, and A. V. Titov, *Phys. Rev. B* **109**, 125106 (2024).
21. J. Zhang, *Corros. Sci.* **51**, 1207 (2009).
22. Q. Chen, Y. Chen, F. Zhang, J. Yang, C. Zhu, W. Zhang, H. Liu, Y. Zhong, J. Deng, Q. Li, N. Liu, and J. Yang, *J. Nucl. Mater.* **573**, 154097 (2023).
23. N. Li and J. Zhang, *Oxid. Met.* **63**, 353 (2005).
24. K. Lambrinou, V. Koch, G. Coen, J. Van den Bosch, and C. Schroer, *J. Nucl. Mater.* **450**, 244 (2014).
25. L. Martinelli and F. Balbaud-Célérier, *Mater. Corros.* **62**, 531 (2011).
26. D. Kolotinskii, V. Nikolaev, V. Stegailov, and A. Timofeev, *Corros. Sci.* **211**, 110829 (2023).
27. Y. Li, R. Zhou, X. Long, T. Gao, and C. Chen, *J. Nucl. Mater.* **583**, 154492 (2023).
28. D. Li, C. Song, H. Y. He, C. S. Liu, and B. C. Pan, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **16**, 7417 (2014).
29. D. Li, B. Qu, H. Y. He, Y. G. Zhang, Y. Xu, B. C. Pan, and R. Zhou, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **18**, 7789 (2016).
30. Y. Lei, Y. Zhang, X. Li, Y. Xu, X. Wu, X. Wang, M. Sun, J. Yang, C. Liu, and Z. Wang, *J. Nucl. Mater.* **582**, 154470 (2023).
31. E. J. W. Verwey, *Nature* **144**, 327 (1939).
32. E. J. Verwey, P. W. Haayman, and F. C. Romeijn, *J. Chem. Phys.* **15**, 181 (1947).
33. J. E. Lorenzo, C. Mazzoli, N. Jaouen, C. Detlefs, D. Mannix, S. Grenier, Y. Joly, and C. Marin, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 226401 (2008).
34. G. Shirane, D. E. Cox, and S. J. Pickart, *J. Appl. Phys.* **35**, 954 (1964).
35. S. Bordács, D. Varjas, I. Kézsmárki, G. Mihály, L. Baldassarre, A. Abouelsayed, C. A. Kuntscher, K. Ohgushi, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 077205 (2009).
36. S. Nakamura and A. Fuwa, *Phys. Procedia* **75**, 747 (2015).
37. K. Tomiyasu, H. Hiraka, K. Ohoyama, and K. Yamada, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 124703 (2008).
38. J. A. G. Cerón, D. A. L. Téllez, and J. Roa-Rojas, *J. Electron. Mater.* **51**, 822 (2022).
39. H.-T. Jeng, G. Y. Guo, and D. J. Huang, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 156403 (2004).
40. I. Leonov, A. N. Yaresko, V. N. Antonov, M. A. Korotin, and V. I. Anisimov, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 146404 (2004).
41. H. P. Pinto and S. D. Elliott, *J. Phys. Condens. Matter* **18**, 10427 (2006).
42. P. Piekarczyk, K. Parlinski, and A. M. Oleś, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 156402 (2006).
43. P. Piekarczyk, K. Parlinski, and A. M. Oleś, *Phys. Rev. B* **76**, 165124 (2007).
44. F. Zhou and G. Ceder, *Phys. Rev. B* **81**, 205113 (2010).
45. P. W. Anderson, *Phys. Rev.* **102**, 1008 (1956).
46. H.-Y. Huang, Z.-Y. Chen, R.-P. Wang, F. M. de Groot, W.-B. Wu, J. Okamoto, A. Chainani, A. Singh, Z.-Y. Li, J.-S. Zhou, H.-T. Jeng, G. Y. Guo, J.-G. Park, L. H. Tjeng, C. T. Chen, and D. J. Huang, *Nat. Commun.* **8**, 15929 (2017).
47. M. S. Senn, J. P. Wright, and J. P. Attfield, *Nature* **481**, 173 (2012).
48. M. S. Senn, J. P. Wright, J. Cumby, and J. P. Attfield, *Phys. Rev. B* **92**, 024104 (2015).
49. M. S. Senn, I. Loa, J. P. Wright, and J. P. Attfield, *Phys. Rev. B* **85**, 125119 (2012).

50. P. Piekarczyk, D. Legut, E. Baldini, C. A. Belvin, T. Kołodziej, W. Tabiś, A. Kozłowski, Z. Kakol, Z. Tarnawski, J. Lorenzana, N. Gedik, A. M. Oleś, J. M. Honig, and K. Parlinski, *Phys. Rev. B* **103**, 104303 (2021).
51. W. Wang, J. Li, Z. Liang, L. Wu, P. M. Lozano, A. C. Komarek, X. Shen, A. H. Reid, X. Wang, Q. Li, W. Yin, K. Sun, I. K. Robinson, Y. Zhu, M. P. Dean, and J. Tao, *Sci. Adv.* **9**, eadf8220 (2023).
52. J. Noh, O. I. Osman, S. G. Aziz, P. Winget, and J.-L. Brédas, *Sci. Technol. Adv. Mater.* **15**, 044202 (2014).
53. J.-H. Park, L. H. Tjeng, J. W. Allen, P. Metcalf, and C. T. Chen, *Phys. Rev. B* **55**, 12813 (1997).
54. D. Schrupp, M. Sing, M. Tsunekawa, H. Fujiwara, S. Kasai, A. Sekiyama, S. Suga, T. Muro, V. A. M. Brabers, and R. Claessen, *Europhys. Lett.* **70**, 789 (2005).
55. S. K. Park, T. Ishikawa, and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **58**, 3717 (1998).
56. A. Hevroni, M. Bapna, S. Piotrowski, S. A. Majetich, and G. Markovich, *J. Phys. Chem. Lett.* **7**, 1661 (2016).
57. A. Banerjee and A. J. Pal, *J. Phys.: Condens. Matter* **32**, 055701 (2019).
58. L. Craco, M. S. Laad, and E. Müller-Hartmann, *Phys. Rev. B* **74**, 064425 (2006).
59. S. Srivastava, B. P. Uberuaga, and M. Asta, *J. Phys. Chem. C* **127**, 17460 (2023).
60. H. Liu and C. Di Valentin, *J. Phys. Chem. C* **121**, 25736 (2017).
61. М. И. Шутикова, В. В. Стегайлов, *ЖЭТФ* **160**, 249 (2021).
62. M. I. Shutikova and V. V. Stegailov, *J. Phys.: Condens. Matter* **34**, 475701 (2022).
63. N. Naveas, R. Pulido, C. Marini, P. Gargiani, J. Hernandez-Montelongo, I. Brito, and M. Manso-Silván, *J. Chem. Theory Comput.* **19**, 8610 (2023).
64. E. Gürsoy, G. B. Vonbun-Feldbauer, and R. H. Meißner, *J. Phys. Chem. Lett.* **14**, 6800 (2023).
65. Ó. A. Restrepo, Ó. Arnache, J. Restrepo, C. S. Beccuart, and N. Mousseau, *Comput. Mater. Sci.* **213**, 111653 (2022).
66. M. Robbins, G. Wertheim, R. Sherwood, and D. Buchanan, *J. Phys. Chem. Sol.* **32**, 717 (1971).
67. H. Levinstein, M. Robbins, and C. Capio, *Mater. Res. Bull.* **7**, 27 (1972).
68. K. Kose and S. Iida, *J. Appl. Phys.* **55**, 2321 (1984).
69. D. Lee and G. Chern, *Physica B* **407**, 297 (2012).
70. J. Ma, V. O. Garlea, A. Rondinone, A. A. Aczel, S. Calder, C. dela Cruz, R. Sinclair, W. Tian, S. Chi, A. Kiswandhi, J. S. Brooks, H. D. Zhou, and M. Matsuda, *Phys. Rev. B* **89**, 134106 (2014).
71. P. V. B. Pinho, A. Chartier, D. Menut, A. Barbier, M. O. Hunault, P. Ohresser, C. Marcelot, B. Warot-Fonrose, F. Miserque, and J.-B. Moussy, *Appl. Surf. Sci.* **615**, 156354 (2023).
72. D. Santos-Carballal, A. Roldan, R. Grau-Crespo, and N. H. de Leeuw, *Phys. Rev. B* **91**, 195106 (2015).
73. D. Das and S. Ghosh, *J. Phys. D* **48**, 425001 (2015).
74. C. Li, P. Li, L. Li, D. Wang, X. Gao, and X. J. Gao, *RSC Adv.* **11**, 21851 (2021).
75. Н. А. Фоминых, В. В. Стегайлов, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 857 (2023).
76. S. A. Chambers, T. C. Droubay, T. C. Kaspar, I. H. Nayyar, M. E. McBriarty, S. M. Heald, D. J. Keavney, M. E. Bowden, and P. V. Sushko, *Adv. Funct. Mater.* **27**, 1605040 (2017).
77. C. Benhalima, S. Amari, L. Beldi, and B. Bouhafs, *Spin* **9**, 1950014 (2019).
78. D. A. Andersson and C. R. Stanek, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 15550 (2013).

79. L. Sun, *J. Alloys Compd.* **875**, 160065 (2021).
80. T. Ramachandran and F. Hamed, *Mater. Res. Bull.* **95**, 104 (2017).
81. A. Boudjema, R. Bouarab, S. Saadi, A. Bouguelia, and M. Trari, *Appl. Energy* **86**, 1080 (2009).
82. C. Freysoldt, B. Grabowski, T. Hickel, J. Neugebauer, G. Kresse, A. Janotti, and C. G. Van de Walle, *Rev. Mod. Phys.* **86**, 253 (2014).
83. R. Dieckmann, *J. Phys. Chem. Sol.* **59**, 507 (1998).
84. R. Dieckmann and H. Schmalzried, *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.* **81**, 344 (1977).
85. R. Dieckmann and H. Schmalzried, *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.* **81**, 414 (1977).
86. R. Dieckmann, T. O. Mason, J. D. Hodge, and H. Schmalzried, *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.* **82**, 778 (1978).
87. R. Dieckmann, *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.* **86**, 112 (1982).
88. R. Dieckmann, C. A. Witt, and T. O. Mason, *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.* **87**, 495 (1983).
89. R. Dieckmann and H. Schmalzried, *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.* **90**, 564 (1986).
90. M. Backhaus-Ricoult and R. Dieckmann, *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.* **90**, 690 (1986).
91. R. Dieckmann, M. R. Hilton, and T. O. Mason, *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.* **91**, 59 (1987).
92. J. Töpfer, S. Aggarwal, and R. Dieckmann, *Solid State Ion.* **81**, 251 (1995).
93. S. Aggarwal and R. Dieckmann, *Phys. Chem. Miner.* **29**, 695 (2002a).
94. S. Aggarwal and R. Dieckmann, *Phys. Chem. Miner.* **29**, 707 (2002b).
95. N. Peterson, W. Chen, and D. Wolf, *J. Phys. Chem. Solids* **41**, 709 (1980).
96. J. A. Van Orman and K. L. Crispin, *Rev. Mineral. Geochem.* **72**, 757 (2010).
97. F. Millot and N. Yan, *J. Phys. Chem. Solids* **58**, 63 (1997).
98. S. Shousha, S. Khalil, and M. Youssef, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **23**, 25518 (2021).
99. C. L. Muhich, V. J. Aston, R. M. Trottier, A. W. Weimer, and C. B. Musgrave, *Chem. Mater.* **28**, 214 (2016).
100. Y. Meng, X.-W. Liu, C.-F. Huo, W.-P. Guo, D.-B. Cao, Q. Peng, A. Dearden, X. Gonze, Y. Yang, J. Wang, H. Jiao, Y. Li, and X.-D. Wen, *J. Chem. Theory Comput.* **12**, 5132 (2016).
101. M. W. Chase, *NIST-JANAF Thermochemical Tables*, ACS, New York (1998).
102. G. Kresse and J. Hafner, *Phys. Rev. B* **49**, 14251 (1994).
103. G. Kresse and J. Furthmüller, *Comput. Mater. Sci.* **6**, 15 (1996).
104. G. Kresse and J. Furthmüller, *Phys. Rev. B* **54**, 11169 (1996).
105. P. E. Blöchl, *Phys. Rev. B* **50**, 17953 (1994).
106. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865 (1996).
107. P. E. Blöchl, O. Jepsen, and O. K. Andersen, *Phys. Rev. B* **49**, 16223 (1994).
108. S. L. Dudarev, G. A. Botton, S. Y. Savrasov, C. J. Humphreys, and A. P. Sutton, *Phys. Rev. B* **57**, 1505 (1998).
109. V. Stegailov, G. Smirnov, and V. Vecher, *Concurr. Comput. Pract. Exp.* **31**, e5136 (2019).
110. A. Stukowski, *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.* **18**, 015012 (2010).
111. S. P. Ong, W. D. Richards, A. Jain, G. Hautier, M. Kocher, S. Cholia, D. Gunter, V. L. Chevrier, K. A. Persson, and G. Ceder, *Comput. Mater. Sci.* **68**, 314 (2013).

112. I. Mosquera-Lois, S. R. Kavanagh, A. Walsh, and D. O. Scanlon, *J. Open Source Softw.* **7**, 4817 (2022).
113. I. Mosquera-Lois, S. R. Kavanagh, A. Walsh, and D. O. Scanlon, *Npj Comput. Mater.* **9**, 1 (2023).
114. S. E. Ziemniak, L. M. Anovitz, R. A. Castelli, and W. D. Porter, *J. Chem. Thermodyn.* **39**, 1474 (2007).
115. R. Sneath and D. Klemm, *Neues Jb. Miner. Abh.* **125**, 227 (1975).
116. M. Shevchenko, D. Shishin, and E. Jak, *Ceram. Int.* **48**, 33418 (2022).
117. B. Dorado, B. Amadon, M. Freyss, and M. Bertolus, *Phys. Rev. B* **79**, 235125 (2009).
118. B. Meredig, A. Thompson, H. A. Hansen, C. Wolverton, and A. van de Walle, *Phys. Rev. B* **82**, 195128 (2010).
119. K. Sharma, L. Calmels, D. Li, A. Barbier, and R. Arras, *Phys. Rev. Mater.* **6**, 124402 (2022).
120. R. Arras, K. Sharma, and L. Calmels, *J. Mater. Chem. C* **12**, 556 (2024).
121. H. S. C. O'Neil and A. Navrotsky, *Am. Mineral.* **69**, 733 (1984).
122. R. Eppstein and M. Caspary Toroker, *ACS Mater. Au.* **2**, 269 (2022).
123. V. A. Kurepin, *Contrib. Mineral. Petrol.* **149**, 591 (2005).
124. D. Levy, R. Giustetto, and A. Hoser, *Phys. Chem. Miner.* **39**, 169 (2012).
125. H. Elnaggar, S. Graas, S. Lafuerza, B. Detlefs, W. Tabiś, M. A. Gala, A. Ismail, A. van der Eerden, M. Sikora, J. M. Honig, P. Glatzel, and F. de Groot, *Phys. Rev. Lett.* **127**, 186402 (2021).

СПИНОВАЯ ПОЛЯРИЗАЦИЯ ЭЛЕКТРОНОВ В ТУННЕЛЬНЫХ КОНТАКТАХ $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}/\text{MgO}/\text{InSb}$

Н. А. Виглин ^{a*}, В. М. Цвелиховская ^a, А. О. Шориков ^{a,b}, Т. Н. Павлов ^a, В. В. Проглядо ^a

^a Институт физики металлов им. М. Н. Михеева
Уральского отделения Российской академии наук
620108, Екатеринбург, Россия

^b Уральский федеральный университет им. Б. Н. Ельцина
620002, Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 26 февраля 2024 г.,
после переработки 27 апреля 2024 г.
Принята к публикации 6 мая 2024 г.

Методом магнетронного напыления и безмасочной фотолитографии изготовлены латеральные спиновые устройства с туннельными контактами $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}/\text{MgO}/\text{InSb}$. Измерены вольт-амперные характеристики и сопротивление контактов, а также эффект Ханле при диффузии поляризованных электронов между контактами. В рамках первопринципной молекулярной динамики выполнены расчеты зонной структуры в сверхъячейках, моделирующих интерфейсы Co/MgO и MgO/InSb . Показано что на границе интерфейса Co/MgO для блоховских состояний электронов возникает существенная спиновая поляризация. Вследствие этого вероятности прохождения через слой диэлектрика и через интерфейсы ферромагнетик/диэлектрик, диэлектрик/полупроводник для этих электронов различные. Вычислены высота и ширина туннельных барьеров на основании анализа вольт-амперных характеристик туннельных контактов. Показано, что более высокая степень поляризации достигается в туннельных контактах с большей высотой барьера и более высоким сопротивлением. Показано, что в интерфейсе MgO/InSb из-за большой разницы величин параметров решеток высока вероятность образования дефектов, не позволяющих достичь высоких поляризационных характеристик туннельных контактов.

DOI: 10.31857/S0044451024090074

1. ВВЕДЕНИЕ

Инжекция поляризованных по спину электронов из ферромагнитного (ФМ) металла в немагнитный металл или полупроводник является давней целью теоретических и экспериментальных исследований спиновой электроники [1]. Особую привлекательность представляет спиновая инжекция в полупроводники, поскольку использование углового момента электрона (спина) как дополнительного параметра для контроля и управления состоянием электронов может существенно расширить функциональные возможности существующих полупроводниковых приборов [2, 3]. Для приборов на основе кремния даже разработаны новые направления проектирования и создания устройств, использующих спин электронов [4, 5]. Не меньший интерес представляет инжекция спин-поляризованных электро-

нов в полупроводники группы $\text{A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{V}}$. Например, в светоизлучающих устройствах на основе полупроводника GaAs возникает поляризованная люминесценция [6, 7]. В полупроводнике InSb инжекция поляризованных электронов может вызвать отклонение от равновесной заселенности спиновых уровней и даже их инверсию и, как следствие, генерацию электромагнитного излучения [8].

Однако простая схема спиновой поляризации электронов в немагнитном материале при инжекции электронов из ФМ-металла через омический контакт оказалась неработоспособной. Опыты [9] по инжекции поляризованных электронов из пермаллоя в Al показали чрезвычайно малую эффективность этой схемы. Попытки обнаружить в полупроводнике InAs поляризованные электроны, инжектированные через омические контакты с ФМ-металлом (пермаллой, Co, Ni), также не увенчались успехом [10]. Крайне низкая эффективность инжекции спин-поляризованных электронов из ФМ-метал-

* E-mail: viglin@imp.uran.ru

ла в полупроводники подтверждалась расчетами в работе [11]. Было показано, что если проводимости полупроводника и ферромагнетика равны, то в полупроводнике может быть достигнута только небольшая спиновая поляризация. Если проводимость полупроводника много меньше, чем ФМ-металла, а поляризация электронов ФМ-металла меньше 100 %, то поляризация электронов в полупроводнике пренебрежимо мала. Коротко вывод формулируется как «несоответствие проводимостей» (the conductivity mismatch) ФМ-металла и полупроводника. В терминах сопротивлений (величин обратных проводимостям), сопротивление r_F ферромагнетика много меньше сопротивления r_N полупроводника, $r_F \ll r_N$. Такое «несоответствие» наблюдается в подавляющем большинстве реальных ФМ-металлов и полупроводников.

В 2000 г. появились работа Рашба [12], в которой для решения проблемы несоответствия сопротивлений ферромагнетика и полупроводника ($r_F \ll r_N$) предлагалось расположить между ФМ-металлом и полупроводником тонкий слой диэлектрика, образующего туннельный контакт (ТК), спин-зависимое сопротивление которого, r_C , должно быть больше сопротивления полупроводника r_N , $r_C \geq r_N$. Сопротивление ТК экспоненциально растет с увеличением толщины слоя диэлектрика [13], и регулирование величины сопротивления слоя сводится к подбору его толщины. Труднее создавать ТК с тонким слоем диэлектрика и небольшим сопротивлением r_C , соизмеримым с r_N , поскольку когда толщина диэлектрического слоя равна или меньше величины средней шероховатости подложки, высока вероятность возникновения в слое сквозных отверстий (pinhole) [14].

Акцентируем внимание на зависимости сопротивления ТК от направления спина. В работе [12] предположение о существовании такой зависимости основывались на экспериментальных данных, полученных при исследованиях полупроводников силовым туннельным микроскопом с ФМ-иглой из Ni [15]. Исследования показали, что возникает спиновая поляризация туннельного тока, причем величина ее возрастает с уменьшением ширины туннельного барьера. Туннельный барьер представлял собой слой вакуума между полупроводником и ФМ-иглой. Необходимо отметить, что проводимость слоя вакуума не обладает какой-либо спиновой зависимостью. Так же не очевидна спиновая зависимость туннельной проводимости в диэлектрике, однако такая зависимость была предсказана с помощью теоретических расчетов. Для Fe/MgO/Fe [16], Co/MgO/Co и FeCo/MgO/FeCo [17] были проделаны

расчеты из первых принципов, показывающие наличие спин-зависимого сопротивления в ТК. Зависимость туннельного сопротивления от направления спина вытекала из-за разной вероятности переходов для электронов со спином вверх и спином вниз между состояниями с s -, p -, и d -симметрией в ФМ-металле и диэлектрике [18]. Расчеты проводились для сплошного однородного диэлектрика MgO, параметр решетки которого искусственно увеличивался для эпитаксиального согласования с параметрами ФМ-металлов. Материалы электродов и диэлектрика обладали одинаковой кристаллической ОЦК-структурой. Можно предполагать, что для ТК с неоднородной пленкой диэлектрика, со структурными искажениями и дефектами, спиновая зависимость сопротивления станет слабее или совсем исчезнет. Однородность пленки диэлектрика является одним из главных критериев качества ТК. Требования к свойствам пленки диэлектрика следующие. Диэлектрический слой должен быть однородным, плоским, не содержать сквозных отверстий и обладать совместимостью как с ФМ-металлом, так и с полупроводником [19]. Наиболее распространенный способ оценки качества ТК: «разумное» соответствие толщины d_C слоя диэлектрика и высоты ϕ_C потенциального барьера, предполагаемое при его изготовлении и вычисленное на основании анализа вольт-амперных характеристик (ВАХ) в какой-нибудь теоретической модели, например, работы [20].

Таким образом, представляется актуальным провести систематические исследования в одних и тех же латеральных спиновых устройствах сопротивления, поляризационных характеристик, а также ширины и высоты ТК, вычисленных при анализе ВАХ, для сопоставления этих параметров.

Для изучения поляризационных характеристик ТК Co_{0.9}Fe_{0.1}/MgO/InSb мы исследовали величину эффекта Ханле при диффузии поляризованных электронов между контактами, а для получения информации о сопротивлении, ширине и высоте туннельного барьера исследовались ВАХ контактов. Также были выполнены расчеты зонной структуры в сверхъячейках, моделирующих интерфейсы Co/MgO и MgO/InSb в рамках первопринципной молекулярной динамики. Нашей задачей было выяснение влияния параметров туннельного барьера на эффективность инжекции спин-поляризованных электронов из ФМ-металла в полупроводник InSb.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Исследования проводились в латеральных спиновых устройствах, подобных описанному в работе [21], изготовленных на грани (110) монокристаллических пластин InSb с концентрацией электронов $n = 1.64 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$. ТК между электродами из $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}$ и InSb были изготовлены из тонких слоев MgO, полученных магнетронным распылением мишени из оксида магния.

Латеральные устройства имели по шесть ФМ-электродов со структурой $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}(60 \text{ нм})/\text{MgO}(1.8 \text{ нм})$, пересекающих узкое окно, созданное методами фотолитографии в пленке фоторезиста, расположенной на пластине InSb (горизонтальная полоса на рис. 1). Толщина фоторезиста 1 мкм, пластины InSb — порядка 0.5 мм. Вертикальные полосы — ФМ-электроды (показано только пять электродов) с условной нумерацией слева направо от №1 до №6. К концам электродов присоединены токоподводящие дорожки, заканчивающиеся контактными площадками (на рисунке не показаны). Площадь туннельного контакта определяется произведением ширины полупроводникового канала на ширину ФМ-электрода.

Величина спиновой поляризации электронов P_n^N в полупроводнике рассчитывалась на основании измеренных напряжений, которые были получены при электрическом детектировании спин-поляризованных электронов. Метод детектирования основан на зависимости величины и знака контактной разности потенциалов полупроводника и ФМ-контакта от взаимной намагниченности этого контакта и электронного газа в полупроводнике под ним. Возникновение потенциала интерпретируется спин-зарядовой связью Джонсона–Силеби [9]. Также это явление в терминах, связанных с энергией электронов, объясняется отклонением величины химического потенциала поляризованных электронов, находящихся на расстояниях порядка длины спиновой диффузии вблизи инжектора, от химического потенциала неполяризованных электронов, расположенных вдали от инжектора. Для определения энергии электронов, расположенных в локальных областях кристалла, вводится понятие квазихимического потенциала [1]. Особенность электрического детектирования спинового состояния электронов заключается в необходимости выделения слабого электрического сигнала, обусловленного локальной намагниченностью электронного газа, из более сильных сигналов, вызванных движением электронов полупроводника в электрическом поле вблизи намагниченных ФМ-

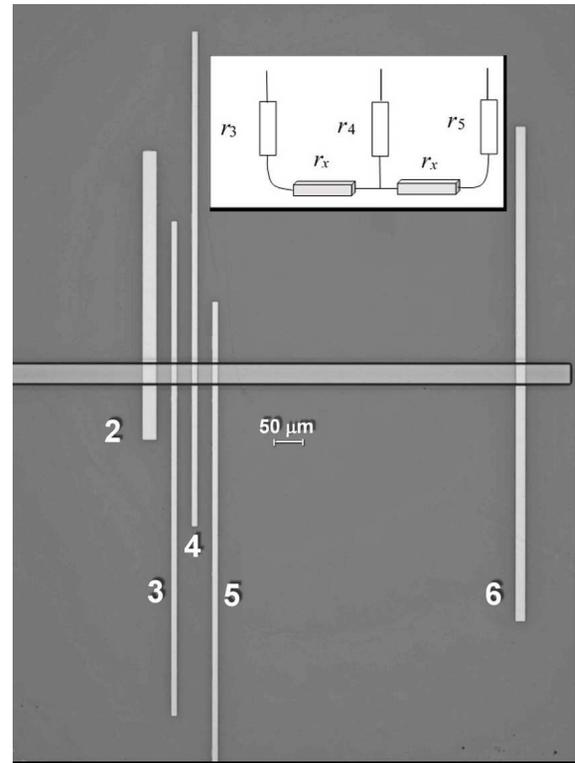


Рис. 1. Фотография латерального спинового устройства со структурой ТК $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}(60 \text{ нм})/\text{MgO}(1.8 \text{ нм})/\text{InSb}$. Горизонтальная полоса в центре — InSb, вертикальные полосы — электроды $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}$. Вставка: упрощенная схема электрических цепей между электродами № 3, № 4 и № 5

контактов. Для снижения уровня этих сигналов используется метод так называемых нелокальных измерений, при которых измерительная цепь детектора пространственно отделена от электрической цепи инжектора, создающей ток электронов в полупроводнике (рис. 2). Электроны, инжектируемые из контакта №3 в полупроводник, могут дрейфовать под действием электрического поля в направлении контакта №1, образующего вместе с инжектором цепь электрического тока, со скоростью $v_d = -\mu E$, где μ — подвижность электронов в полупроводнике, E — электрическое поле. Также эти электроны за счет диффузии могут смещаться во все стороны со скоростью диффузии $v_s = L_s^N/\tau_s$, где L_s^N — длина спиновой диффузии в немагнитном полупроводнике, τ_s — время спиновой релаксации. Измерения проводятся в режиме малых токов, когда $v_s \gg v_d$. Контакт №4 (детектор) расположен вне цепи электрического тока на дистанции d от инжектора №3, соизмеримой с длиной L_s^N . Потенциал контакта №4 (детектора) измеряется относительно контакта №6,

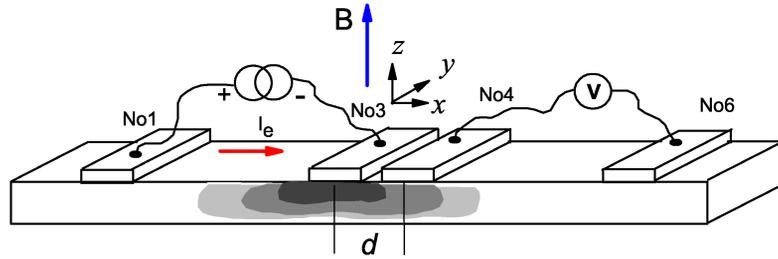


Рис. 2. Схема устройства для измерений электрических сигналов, обусловленных диффузией спинполяризованных электронов. ФМ-электроды № 1, № 3, № 4, № 6, намагничены вдоль оси y , расположены на поверхности полупроводникового канала, в котором происходит спиновый транспорт. Ток I_e течет от №1 к №3. Под №3 затемнением с разной контрастностью условно показано облако поляризованных по спину электронов, степень поляризации которых по мере диффузии от инжектирующего электрода убывает. Нелокальное напряжение измеряется между контактами №4 и №6. Магнитное поле при измерении эффекта Ханле изменяется в диапазоне ± 30 Гс вдоль оси z перпендикулярно плоскости устройства

удаленного от №3 на расстояние, много большее L_s^N , так что спины электронов под ним находятся в равновесном состоянии. При такой конфигурации расположения контактов детектор чувствителен только к потенциалам, создаваемым намагниченными электродами, остальные сигналы в значительной мере подавлены.

При регистрации сигналов, создаваемых поляризованными электронами, сравнивают потенциалы на детекторе при параллельном и антипараллельном намагничивании инжектора и детектора, либо изменяют направление результирующей намагниченности поляризованных электронов, а направления намагниченности инжектора и детектора оставляют неизменными. Управление направлением намагниченности электронов можно реализовать с помощью магнитного поля с индукцией B , направленной по оси z перпендикулярно намагниченности инжектора и, следовательно, намагниченности газа поляризованных электронов. Данная геометрия эксперимента позволяет наблюдать так называемый эффект Ханле. Спины электронов, диффундирующих от инжектора к детектору, в поперечном магнитном поле с индукцией B за время t поворачиваются на угол $\varphi = \omega_L t$. Здесь $\omega_L = gB\mu_B/\hbar$ — частота Лармора, g — g -фактор электронов проводимости, μ_B — магнетон Бора. В предположении того, что детектор чувствителен к проекции магнитного момента электрона на направление намагниченности в детекторе, вклад в выходной сигнал от каждого электрона будет пропорционален $\cos \varphi$. Поскольку электроны имеют различное время транзита, углы спиновой прецессии также будут разными. Если разница углов будет сравнима с периодом Лармора, то средний магнитный момент возле детектора окажется нулевым. Для подсчета в точке детектирования вклада от всех электронов необходимо провести интегрирование по всем временам диффузии. Кроме того,

необходимо учесть, что во время диффузии происходит релаксация со временем τ_s . После интегрирования и усреднений, учитывающих конечные размеры контактов, результирующее напряжение $V_H(B, d)$ в зависимости от поперечного магнитного поля B в точке, удаленной от инжектора на расстояние d , с учетом сопротивлений ферромагнетика r_F , туннельного контакта r_C и полупроводника r_N , может быть рассчитано с помощью выражения [22]

$$V_H(B, d) = \pm P_j^2 r_N j \exp\left(-\frac{d}{L_s^N} \alpha\right) \times \left[\frac{\alpha \cos\left(\frac{d}{L_s^N} \beta\right) - \beta \sin\left(\frac{d}{L_s^N} \beta\right)}{\alpha^2 + \beta^2} \right], \quad (1)$$

где

$$\alpha = \frac{\sqrt{\sqrt{1 + (\omega_L \tau_s)^2} + 1}}{\sqrt{2}},$$

$$\beta = \frac{\sqrt{\sqrt{1 + (\omega_L \tau_s)^2} - 1}}{\sqrt{2}},$$

j — плотность тока в инжекторе. Спиновая поляризация P_j тока в полупроводнике равна

$$P_j = \frac{r_F P_\sigma^F + r_C P_\sigma^C}{r_F + r_C + r_N}. \quad (2)$$

Здесь P_σ^F и P_σ^C — коэффициенты спиновой поляризации проводимости в ФМ-металле и контакте. При расчете осуществляется подгонка теоретической зависимости напряжения $V_H(B, d)$ к полученной экспериментально. Подгоночными параметрами являются L_s^N , τ_s и P_σ^C . Эффект Ханле наблюдался при температуре $T = 77$ К в магнитном поле B , перпендикулярном плоскости устройства, плавно изменяющимся от -30 до 30 Гс. Для наблюдения эффекта использовались рядом расположенные узкие электроды. Если поляризованные электроны инжектировались из электрода №3 (токовая цепь

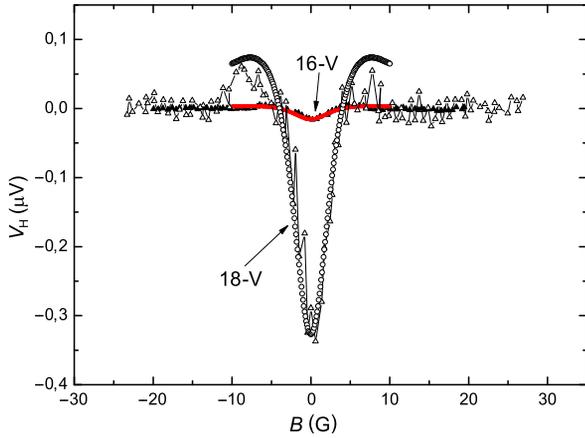


Рис. 3. Напряжение на детекторе (контакт №4) при эффекте Ханле. Для устройства 16-V: темные треугольники — экспериментальные точки, красные кружки — расчет с помощью выражения (1). Для устройства 18-V: светлые треугольники — данные эксперимента, светлые кружки — расчет с помощью выражения (1)

между электродами №1 и №3), то детектирование осуществлялось электродом №4 относительно электрода №6. Дистанции между электродами №3, №4 и №5 при изготовлении устройств закладывались одинаковыми, поэтому аналогичная конфигурация эксперимента могла быть организована с электродами №4 и №5 в качестве инжектора и детектора. Мы исследовали четыре латеральных спиновых устройства с электродами, созданными с помощью лазерной технологии фотолитографии, имеющими одинаковые размеры и расстояния между ними. Во всех устройствах технология подготовки подложек и создания туннельного барьера были одинаковыми. В одном устройстве отсутствовал эффект Ханле, в другом обнаружили дефекты в токоподводящих цепях. Для анализа были отобраны два устройства с рабочими номерами 16-V и 18-V. На рис. 3 показана полученная экспериментально зависимость напряжения V_H на детекторе (электрод №4) при эффекте Ханле и теоретическая зависимость для двух спиновых устройств. В тех устройствах, в которых был обнаружен эффект Ханле, оценивался коэффициент спиновой поляризации проводимости ТК, P_σ^C , и коэффициент спиновой поляризации электронов, P_n^N , инжектированных из ФМ-металла в полупроводник.

Спиновая поляризация электронов в полупроводнике вычислялась с помощью выражения

$$P_n^N = jeP_j r_N P_\sigma^C \left[\left(\frac{dn}{d\xi} \right) \frac{1}{n} \right], \quad (3)$$

где e — заряд электрона, ξ — энергия Ферми, n — концентрация электронов в зоне проводимо-

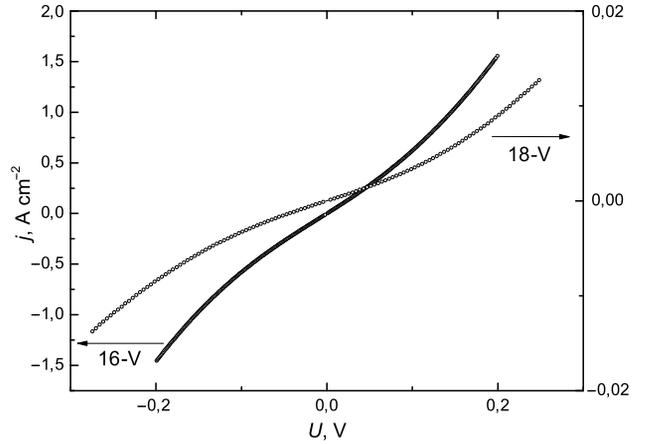


Рис. 4. ВАХ, измеренные между электродами №4 и №5 в устройствах 16-V и 18-V

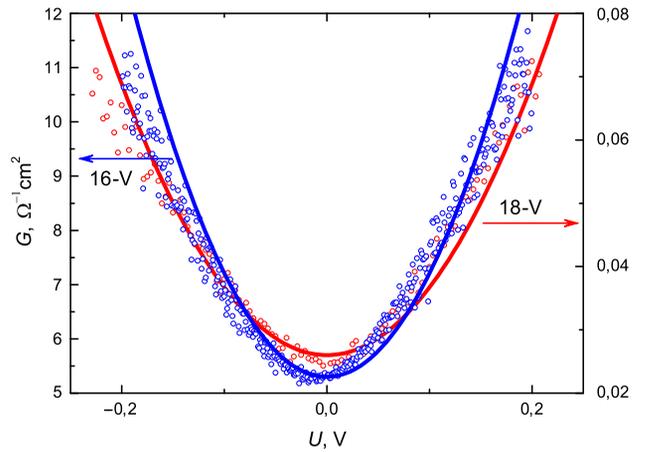


Рис. 5. Зависимость дифференциальной проводимости G от смещающего напряжения U между электродами №4 и №5 для устройства 18-V (красные кружки) и 16-V (синие кружки). Сплошные красная и синяя линии — аппроксимация полиномами второго порядка

сти полупроводника, параметр $(dn/d\xi)/n$ рассчитывался с использованием интеграла Ферми с индексом 1/2 по методике, приведенной в работе [22]. Спиновая поляризация тока (или эффективность спиновой инжекции) P_j , как видно из ее определения, зависит от соотношения сопротивлений r_C , r_F и r_N , а также от поляризации проводимости P_σ^F ферромагнетика и P_σ^C контакта. Сопротивление $r_F = \rho_F L_s^F = 8.4 \cdot 10^{-16}$ Ом · см² (для ферромагнетика $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}$ удельное сопротивление $\rho_F = 7 \cdot 10^{-10}$ Ом · см и длина спиновой диффузии $L_s^F = 1.2 \cdot 10^{-6}$ см [23]).

Мы предположили, что в ферромагнетике $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}$, который применялся в качестве инжектора, поляризация проводимости приблизительно равна поляризации электронов, $P_\sigma^F \simeq P_n^F = 0.224$ [21]. Сопротивление полупроводника $r_N = \rho_N L_s^N =$

Таблица 1. Сопротивление R , толщина барьера d_C , высота барьера ϕ_C , поляризация электронов P_n^N , поляризация контакта P_σ^C для устройства 16-V

Цепь	R , Ом · см ²	d_C , Å	ϕ_C , эВ	P_n^N	P_σ^C
r_{34}	0.1	31.045	0.757	—	—
r_{45}	0.16	24.946	0.861	0.0048	—
r_{35}	0.136	19.486	0.982	—	—
r_3	0.03	—	—	—	—
r_4	0.06	—	—	—	0.035
r_5	0.09	—	—	—	—

Таблица 2. То же, что в табл. 1 для устройства 18-V

Цепь	R , Ом · см ²	d_C , Å	ϕ_C , эВ	P_n^N	P_σ^C
r_{34}	18.04	20.776	1.005	—	—
r_{45}	25.554	26.229	0.955	0.07	—
r_{35}	16.488	30.012	0.888	—	—
r_3	4.487	—	—	—	—
r_4	13.553	—	—	—	0.5
r_5	12.001	—	—	—	—

$= 1.52 \cdot 10^{-4}$ Ом · см² ($\rho_N = 0.0608$ Ом · см на основании данных измерений Холла, $L_s^N = 25 \cdot 10^{-4}$ см [24]).

Сопротивления ТК r_C вычислялись следующим образом. Мы измеряли зависимость тока от напряжения, приложенного между парами электродов: №3 и №4, №4 и №5, №3 и №5. На рис. 4 показаны ВАХ, измеренные на электродах №4 и №5, для устройств 16-V и 18-V. Геометрия электродов в этих устройствах одинакова. Видно, что ВАХ нелинейная, а дифференциальная проводимость $G = dj/dU$ достаточно хорошо описывается полиномами второго порядка (рис. 5). Сопротивление каждой из цепей r_{34} , r_{45} и r_{35} , состоящей из суммы сопротивлений токоподводящих дорожек, ФМ-электродов, ТК и сопротивления полупроводника, расположенного между электродами, измерялось при одних и тех же величинах напряжения, приложенного к концам цепи (табл. 1 и 2). Для расчета сопротивлений ТК r_3 , r_4 и r_5 мы воспользовались упрощенной схемой протекания тока между электродами устройства, в которой сопротивления токоподводящих дорожек и ферромагнитных электродов не учитывались (см. вставку на рис. 1). Сопротивление полупроводника между электродами, r_x , рассчитывалось как сопротивление параллелипипеда, длина которого равна расстоянию между центрами соответствующих контактов, а сечение равно площади контакта. Таким образом, сопротивление полупроводника между со-

седними контактами (№3 и №4, №4 и №5), при расстоянии между центральными осями $35 \cdot 10^{-4}$ см, равно $r_x = 2.13 \cdot 10^{-4}$ Ом · см, а сопротивление между контактами №3 и №5 равно $2r_x$:

$$\begin{aligned} r_{34} &= r_3 + r_x + r_4, \\ r_{45} &= r_4 + r_x + r_5, \\ r_{35} &= r_3 + 2r_x + r_5. \end{aligned} \quad (4)$$

Сопротивления r_3 , r_4 и r_5 были найдены при решении системы линейных уравнений методом Гаусса. При расчете величины $V_H(B, d)$ с помощью выражений (1) и (2) в каждом из устройств для сопротивления r_C использовались значения r_4 .

В модели протекания тока через одиночный туннельный барьер в случае малых напряжений смещения дифференциальная проводимость имеет параболическую зависимость от напряжения [25]. Подбор экспериментальных данных к теоретическому выражению дает высоту барьера ϕ_C и его толщину d_C . Если получены «разумные» значения, можно сделать вывод, что в проводимости доминирует туннелирование [26]. В нашем случае измерение ВАХ проводится в более сложной цепи, содержащей два туннельных барьера, разделенных каналом полупроводника. Тем не менее дифференциальная проводимость $G = dj/dU$, измеренная для различных комбинаций пар контактов №3, №4 и №5, также может быть описана параболой. На рис. 5 показана зависимость G от напряжения смещения между контактами №4 и №5 для двух устройств и построены параболы $y = 0.026(1 + 21z^2)$ для устройства 18-V и $y = 5.3(1 + 36z^2)$ для устройства 16-V. Безразмерный параметр z численно совпадает с величиной напряжения U . Удовлетворительное совпадение теоретических и экспериментальных кривых позволило нам провести оценки цепей, содержащих два туннельных барьера с помощью теории, развитой для одиночного барьера [25]:

$$G = \frac{dj}{dU} = \eta(1 + 3\gamma U^2), \quad (5)$$

где

$$\eta = \frac{3}{2} \frac{e^2 (2m\phi_C)^{1/2}}{h^2 d_C} \exp(-A\phi_C^{1/2}),$$

$$A = \frac{4\pi(2m)^{1/2} d_C}{h},$$

$$\gamma = \frac{(Ae)^2}{96\phi_C} - \frac{Ae^2}{32\phi_C^{3/2}},$$

m — масса электрона, $h = 2\pi\hbar$. Результаты расчетов приведены в табл. 1 и 2.

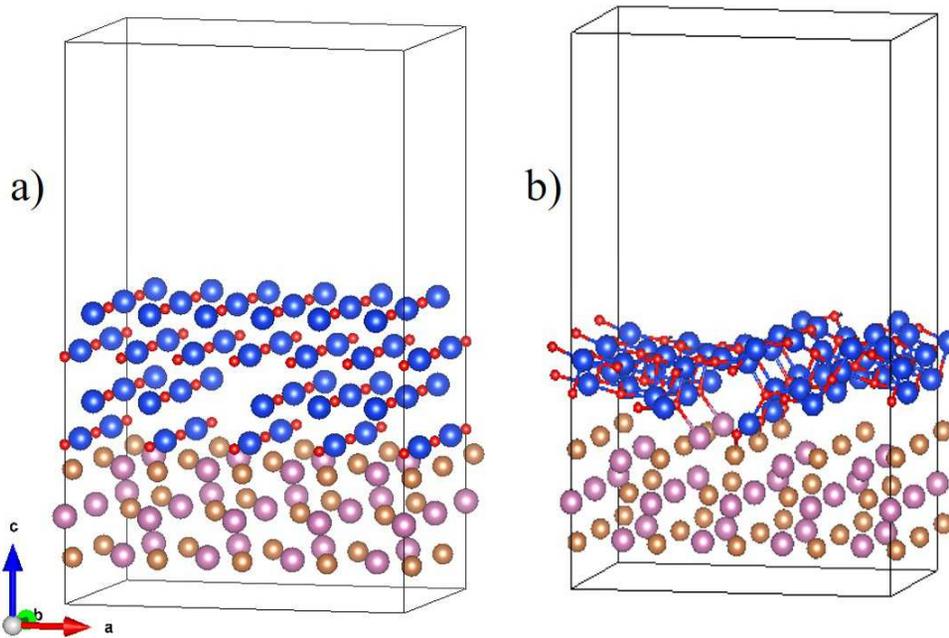


Рис. 6. Сверхъячейки вакуум/MgO/InSb: *a* — стартовое состояние и *b* — конечное состояние. Сиреневые шары означают In, золотые — Sb, синие — Mg, красные — O

3. ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ РАСЧЕТЫ

Для исследования интерфейсов Co/MgO и MgO/InSb были проведены расчеты в рамках первопринципной молекулярной динамики. Релаксация кристаллической структуры и расчеты зонной структуры проводились с помощью пакета Quantum Espresso [27] в приближении электронной плотности (DFT) с использованием функционала PBE (Perdew – Burke – Ernzerhof) [28]. Учет кулоновских корреляций на *d*-оболочке Co был выполнен в рамках метода GGA+U [29, 30]. Параметр кулоновского взаимодействия для кобальта был выбран равным 8 эВ и хундовского взаимодействия 1 эВ. Псевдопотенциалы были взяты из библиотеки стандартных псевдопотенциалов для твердых тел [31]. Были сконструированы сверхъячейки, моделирующие интерфейс Co/MgO и несколько сверхъячеек для MgO/InSb. Конструкции сверхъячеек, а также детали расчетов в данной статье не приводятся. Здесь мы рассмотрим только описание результатов. Для интерфейса Co/MgO расчет показал, что в двух приграничных слоях произошло изменение зонной структуры вследствие гибридизации *s*-, *p*- и *d*-состояний Co с *p*-состояниями O в MgO. В приграничных слоях происходит металлизация, и в запрещенной щели возникают преимущественно *p*-состояния кислорода. В глубине пленки зонная структура сохраняется такой же, как и для стехиометрического образца с запрещенной щелью 4.5 эВ. Для интерфейса MgO/InSb в результате

релаксации произошла существенная модификация положения атомов, вызванная большим расхождением величин параметров решеток (постоянная решетки $a = 6.63 \text{ \AA}$ InSb и $a = 4.19 \text{ \AA}$ MgO, что на 37% меньше).

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

При изготовлении спиновых устройств диэлектрический слой толщиной 18 Å формировался магнетронным распылением мишени из MgO. Эта толщина соответствует ширине $d_C = 18 \text{ \AA}$ туннельного барьера. Расчеты зонной структуры (в рамках метода DFT) показали, что высота туннельного барьера $\phi_C \simeq 2 \text{ эВ}$ в двух первых атомных слоях пленки MgO вблизи интерфейса Co/MgO и $\phi_C \simeq 2.5 \text{ эВ}$ для слоев в глубине пленки. Наличие дефектов и нестехиометрии уменьшает величину запрещенной щели в MgO и приводит к уменьшению ϕ_C . Ширина туннельного барьера, вычисленная на основании анализа ВАХ в контакте №4 для устройства 16-V, составила $d_C = 24.9 \text{ \AA}$, а для 18-V — $d_C = 26.3 \text{ \AA}$. Значения близки друг к другу, но при этом больше, чем 18 Å. Такую разницу можно объяснить тем, что расчет протекания тока через двойной туннельный барьер проводился с помощью выражений для одиночного барьера. На основании анализа ВАХ [25] мы получили высоту барьера $\phi_C = 0.86 \text{ эВ}$ в контакте №4 для устройства 16-V и $\phi_C = 0.96 \text{ эВ}$ для 18-V, что более чем в два раза меньше высоты барьера ϕ_C для стехиометрического MgO. Можно предположить,

что ТК в обоих устройствах дефектные, но плотность дефектов в устройстве 18-V ниже, чем в 16-V. Об этом свидетельствует большее значение высоты барьера ϕ_C в устройстве 18-V, более высокие сопротивление r_C и поляризация проводимости P_σ^C в контакте (см. табл. 1 и 2).

Возникновение дефектов на границе между MgO и InSb закономерно из-за существенного рассогласования параметров решеток этих материалов. Этот результат иллюстрируется зонными расчетами в сверхъячейке, моделирующей интерфейс MgO/InSb. На рис. 6 приведены положения атомов для сверхъячейки до и после релаксации. Видно, что разница в постоянных решетки привела к тому, что для снятия напряжения, вызванного большой эпитаксиальной деформацией, пленка MgO оторвалась от поверхности InSb, при этом сохранила контакт в области дислокации, что можно рассматривать как формирование сквозных отверстий (рис. 6b). За счет искажений начальные расстояния Mg–O в пленке (2.817 Å) уменьшились до 2.088 Å, что близко к значениям в стехиометрическом MgO (2.095 Å). Но при этом сама структура сохранила только остатки кубического мотива, что можно интерпретировать как формирование аморфного слоя на границе интерфейса.

Таким образом, поляризационные характеристики ТК практически полностью определяются качеством диэлектрического слоя, расположенного между ферромагнитным и полупроводниковым электродами.

Качество диэлектрического слоя может быть оценено на основании сравнения величин высоты и ширины туннельного барьера, полученных при анализе ВАХ, и сравнении величин сопротивлений контактов. В контактах с меньшей плотностью дефектов больше величина ϕ_C , выше сопротивление контакта r_C и выше значения коэффициентов поляризации P_n^N и P_σ^C .

Результаты расчетов показывают, что в случае большой разницы параметров решеток полупроводника и пленок диэлектрика, нанесенных на полупроводник, даже в случае идеальной поверхности без шероховатостей высока вероятность возникновения в пленке диэлектрика дефектов, затрудняющих инжекцию поляризованных электронов через диэлектрик.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Эффективность инжекции спин-поляризованных электронов из ФМ-металла через туннельный барьер в полупроводник определяется наличием

спин-зависимого сопротивления туннельного барьера, которое должно быть больше сопротивления r_N полупроводника. Спиновая зависимость сопротивления ТК реализуется в сплошных, однородных и плоских диэлектрических слоях, свойства которых подпадают под определение «качественного» барьера [19]. При использовании для туннельного барьера диэлектриков, параметр решетки которых значительно отличается от параметра решетки полупроводника, высока вероятность возникновения случайных дефектов, резко снижающих P_σ^C и эффективность инжекции. Таким образом, туннельный барьер, один из интерфейсов которого MgO/InSb, невозможно сделать качественным без использования специальных мер для создания однородной бездефектной пленки диэлектрика. Такой мерой могло бы быть применение буферной прослойки, нивелирующей несоответствие параметров решеток MgO и InSb, или использование другого диэлектрика, кристаллическая решетка которого лучше бы соответствовала решетке InSb. Следует заметить, что спин-зависимое сопротивление ТК возникает из-за различия вкладов от s -, p - и d -орбиталей электронов в состоянии ФМ-металла на уровне Ферми для зон со спинами вверх и вниз в приграничном слое интерфейса, а также их различной гибридизацией с s - и p -состояниями в слое диэлектрика, имеющими различную скорость затухания [18]. В этом смысле туннельный контакт действует как «спиновый» фильтр, однако сам диэлектрик не обладает фильтрующими функциями, аналогичными, например, оптическому поляризатору.

Финансирование. Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования РФ (тема «Спин», Государственная регистрация № 122021000036-3), расчеты электронной структуры выполнены при частичной поддержке Российского научного фонда (проект № 24-12-00024).

ЛИТЕРАТУРА

1. J. Fabian, A. Matos-Abiague, C. Ertler et al., Acta Phys. Slov. **57**, 565 (2007).
2. I. Zutic, J. Fabian, and S. Das Sarma, Rev. Mod. Phys. **76**, 323 (2004).
3. D. D. Awschalom and M. E. Flatte, Nature Phys. **3**, 153 (2007).
4. H. Dery, P. Dalal, L. Cywinski and L. J. Sham, Nature **447**, 5736 (2007).

5. H. Dery, Y. Song, P. Li, and I. Zutic, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 082502 (2011).
6. A. T. Hanbicki, O. M. J. van't Erve, R. Magno et al., *Appl. Phys. Lett.* **82**, 4092 (2003).
7. X. Jiang, R. Wang, R. M. Shelby et al., *Phys. Rev. Lett.* **94**, 056601 (2005).
8. Н. А. Виглин, В. В. Устинов, В. В. Осипов, *Письма в ЖЭТФ* **86**, 221 (2007).
9. M. Johnson and R. Silsbee, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 1790 (1985).
10. A. Filip, B. H. Hoving, F. Jedema et al., *Phys. Rev. B* **62**, 9996 (2000).
11. G. Schmidt, D. Ferrand, L. W. Molenkamp et al., *Phys. Rev. B* **62**, 4790 (2000).
12. E. I. Rashba, *Phys. Rev. B* **62**, R16267 (2000).
13. E. Merzbacher, *Quantum Mechanics*, Wiley, New York (1997).
14. Н. А. Виглин, И. В. Грибов, В. М. Цвелиховская, Е. И. Патраков, *ФТП* **53**, 277 (2019).
15. S. F. Alvorado, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 513 (1995).
16. W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. C. Schulthess et al., *Phys. Rev. B* **63**, 054416 (2001).
17. X.-G. Zhang and W. H. Butler, *Phys. Rev. B* **70**, 172407 (2004).
18. J. M. MacLaren, X.-G. Zhang, W. H. Butler et al., *Phys. Rev. B* **59**, 5470 (1999).
19. O. M. J. van't Erve, A. L. Friedman, E. Cobas et al., *Nat. Nanotechnol.* **7**, 737 (2012).
20. J. G. Simmons, *J. Appl. Phys.* **34**, 1793 (1963).
21. N. A. Viglin, V. V. Ustinov, S. O. Demokritov et al., *Phys. Rev. B* **96**, 235303 (2017).
22. Н. А. Виглин, Ю. В. Никулин, В. М. Цвелиховская и др., *ЖЭТФ* **161**, 866 (2022).
23. J. Bass and W. P. Pratt Jr., *J. Phys.: Condens. Matter* **19**, 183201 (2007).
24. Н. А. Виглин, В. М. Цвелиховская, Н. А. Кулеш и др., *Письма в ЖЭТФ* **110**, 248 (2019).
25. J. G. Simmons, *J. Appl. Phys.* **34**, 238 (1963).
26. B. J. Jönsson-Åkerman, R. Escudero, C. Leighton et al., *Appl. Phys. Lett.* **77**, 18 (2000).
27. P. Giannozzi, S. Baroni, N. Bonini et al., *J. Phys.: Cond. Matter* **21**, 395502 (2009).
28. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett* **77**, 3865 (1996).
29. V. I. Anisimov, J. Zaanen, and Ole K. Andersen. *Phys. Rev. B* **44**, 943 (1991).
30. V. I. Anisimov, F. Aryasetiawan, and A. I. Lichtenstein, *J. Phys.: Cond. Matter* **9**, 767 (1997).
31. G. Prandini, A. Marrazzo, I. E. Castelli et al., *npj Comp. Mater.* **4**, 72 (2018).

ПРОИСХОЖДЕНИЕ ЛИНИИ ЭПР ($g \approx 4$) В МАГНИТНЫХ НАНОКОМПОЗИТАХ — ПРОЯВЛЕНИЕ ДВУХКВАНТОВЫХ ПЕРЕХОДОВ В ФЕРРОМАГНИТНЫХ ГРАНУЛАХ

А. Б. Дровосеков ^{a*}, М. Ю. Дмитриева ^{a,b}, А. В. Ситников ^{c,d}, С. Н. Николаев ^d,
В. В. Рыльков ^{d,e,f}

^a Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук
119334, Москва, Россия

^b Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики»
101000, Москва, Россия

^c Воронежский государственный технический университет
394026, Воронеж, Россия

^d Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт»
123182, Москва, Россия

^e Институт теоретической и прикладной электродинамики
Российской академии наук
125412, Москва, Россия

^f Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова
Российской академии наук
141190, Фрязино, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 21 мая 2024 г.,
после переработки 21 мая 2024 г.
Принята к публикации 23 мая 2024 г.

Методом электронного магнитного резонанса в широком диапазоне частот ($f = 7\text{--}37$ ГГц) и температур ($T = 4.2\text{--}360$ К) исследуются пленки металл-диэлектрических наногранулярных композитов M_xD_{100-x} с различным составом и процентным соотношением металлической и диэлектрической фаз ($M = \text{Fe}, \text{Co}, \text{Ni}, \text{CoFeB}$; $D = \text{Al}_2\text{O}_3, \text{SiO}_2, \text{ZrO}_2$; $x \approx 15\text{--}60$ ат. %). При концентрациях металлической ферромагнитной фазы ниже порога перколяции экспериментальные спектры, помимо обычного сигнала ферромагнитного резонанса, содержат дополнительный пик поглощения, характеризующийся удвоенным эффективным g -фактором $g \approx 4$. Появление такого пика в спектрах резонанса и его необычные свойства объясняются в рамках квантовомеханической модели «гигантского спина» возбуждением внутри магнитных наногранул «запрещенных» («двухквантовых») переходов с изменением проекции спина $\Delta m = \pm 2$.

DOI: 10.31857/S0044451024090086

1. ВВЕДЕНИЕ

Магнитные наночастицы и наногранулярные системы давно являются предметом интенсивных исследований, что обусловлено необычными физическими свойствами этих объектов, а также широкими возможностями практических применений [1–3]. С точки зрения фундаментальной физики магнитные наночастицы можно рассматривать как про-

межуточное звено между парамагнитными (ПМ) ионами и макроскопическими ферромагнетиками. В частности, ансамбли таких частиц проявляют так называемые суперпарамагнитные свойства, а магнитная динамика индивидуальных наночастиц в ряде случаев допускает описание как в рамках классического, так и квантового подходов [4, 5].

Магнитные металл-диэлектрические наногранулярные композиты (наноконпозиты) представляют собой массив ферромагнитных (ФМ) наногранул, беспорядочно расположенных в твердотельной ди-

* E-mail: drovosekov@kapitza.ras.ru

электрической среде (матрице). В наших предыдущих работах [6–10] изучались пленочные нанокм-позиты различных составов M_xD_{100-x} на основе переходных ФМ-металлов $M = Fe, Co, CoFeB$ и диэлектриков $D = Al_2O_3, SiO_2, LiNbO_3$. Величина x в формуле M_xD_{100-x} отражает номинальное атомарное процентное содержание металлической фазы в нанокм-позите, существенная часть которой формирует ФМ-наногранулы. Вместе с тем некоторая часть ФМ-фазы оказывается диспергированной в виде отдельных ПМ-ионов Fe и Co в изолирующем пространстве между гранулами [11, 12].

В работах [8–10] пленки нанокм-позитов M_xD_{100-x} исследовались методом магнитного резонанса в широком диапазоне частот ($f = 7-37$ ГГц) и температур ($T = 4.2-360$ К). Помимо обычного сигнала ФМ-резонанса (ФМР), экспериментальные спектры демонстрировали дополнительный более слабый пик поглощения, характеризующийся эффективным g -фактором $g \approx 4.3$. Заметим, что подобный сигнал часто наблюдается при исследованиях наночастиц на основе железа в различных немагнитных средах [13–15] и связывается с электронным ПМ-резонансом (ЭПР) изолированных ионов Fe^{3+} , присутствующих в системе [16–18]. В некоторых случаях пик ЭПР ($g \approx 4.3$) проявляется также для ионов Co^{2+} [19–21]. Однако, в отличие от традиционного ЭПР ионов Fe^{3+}, Co^{2+} , в нашем случае наблюдаемый пик демонстрирует ряд необычных свойств:

- 1) гораздо лучше проявляется в продольной геометрии возбуждения резонанса;
- 2) при изменении концентрации x ФМ-фазы меняется характер температурной зависимости интенсивности пика $I(T)$: при малых x эта зависимость имеет убывающий вид, а при приближении к порогу перколяции становится возрастающей.

Подчеркнем, что необычные особенности дополнительного пика не позволяют связать его с неоднородностью состава образцов либо с возбуждением в пленках неоднородных мод магнитных колебаний, как, например, в работах [22–33].

Настоящая работа посвящена дальнейшему исследованию природы аномального пика магнитного резонанса. Обнаружено, что, помимо нанокм-позитов на основе ФМ-металлов Fe и Co, пик ЭПР ($g \approx 4.3$) проявляется также для систем Ni_xD_{100-x} ($D = Al_2O_3, ZrO_2$) на основе чистого никеля. Таким образом, появление данного пика в спектрах резонанса нельзя объяснить присутствием в системе изолированных ионов Fe^{3+} либо Co^{2+} . В этой связи предлагается альтернативное объяснение наблюдае-

мых эффектов, предполагающее квантовомеханический подход к описанию спектров магнитного резонанса ФМ-наногранул [4, 5].

2. ОБРАЗЦЫ И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Пленочные нанокм-позиты M_xD_{100-x} толщиной около 1–3 мкм синтезированы методом ионно-лучевого распыления на ситалловых подложках с использованием составных мишеней [34, 35]. Мишень представляет собой пластину из ФМ-металла Fe, Co, Ni либо сплава $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ (CoFeB), на которую крепится набор (12–15 шт.) прямоугольных полосок оксидов Al_2O_3, SiO_2 или ZrO_2 . Неравномерное расположение диэлектрических полосок на поверхности мишени позволяет формировать пленку нанокм-позита M_xD_{100-x} с плавным контролируемым изменением концентрации x вдоль подложки в широком диапазоне $\Delta x \approx 30-40$ ат.%. В дальнейшем исследования проводятся на небольших кусочках выращенной пленки размером 5×5 мм², так что изменение x в пределах одного образца составляет менее 1 ат.%. Содержание металлической фазы в пленках определялось методом энергодисперсионного рентгеновского микроанализа.

По данным просвечивающей электронной микроскопии и рентгеновской дифракции полученные композиты представляют собой ансамбль кристаллических ФМ-наногранул, случайным образом расположенных внутри аморфной оксидной матрицы [35–40]. Гранулы имеют форму, близкую к округлой, а их средний размер (2–8 нм) плавно увеличивается с ростом содержания ФМ-фазы в нанокм-позите (рис. 1).

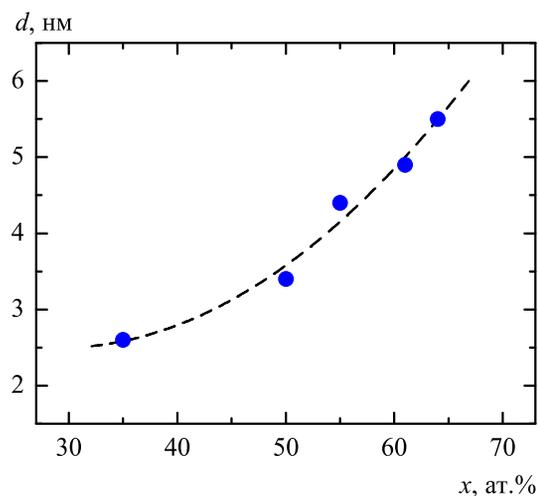


Рис. 1. Средний размер d ФМ-гранул как функция содержания ФМ-фазы в нанокм-позите $Ni_x(Al_2O_3)_{100-x}$ по данным рентгеновской дифракции [39]

Порог перколяции для всех исследуемых композитов лежит в окрестности концентраций металлической фазы $x \simeq 50$ ат.%. При этом, согласно магнитным данным, приблизительно в этой же области концентраций либо несколько меньших происходит переход образцов от суперпарамагнитного к ферромагнитному поведению [33–39].

В настоящей работе образцы нанокompозитов исследуются методом магнитного резонанса в широком диапазоне частот ($f = 7\text{--}37$ ГГц) и температур ($T = 4.2\text{--}360$ К) с использованием лабораторного спектрометра проходного типа на основе прямоугольного и перестраиваемого цилиндрического резонаторов [8]. В используемой геометрии измерений внешнее статическое магнитное поле \mathbf{H} (до 17 кЭ) лежит в плоскости пленки. При этом имеется возможность ориентировать высокочастотное магнитное поле \mathbf{h} как перпендикулярно ($\mathbf{h} \perp \mathbf{H}$), так и параллельно ($\mathbf{h} \parallel \mathbf{H}$) статическому («поперечная» и «продольная» геометрии возбуждения резонанса).

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 2, 3 показаны экспериментальные спектры магнитного резонанса, полученные для ряда исследуемых нанокompозитов M_xD_{100-x} при комнатной температуре. В обычной поперечной геометрии возбуждения резонанса ($\mathbf{h} \perp \mathbf{H}$) для всех структур наблюдается интенсивный пик поглощения ФМР. Как было показано ранее [6, 8, 10], частотно-полевые диаграммы для этого пика, а также зависимости его положения от ориентации поля относительно плоскости пленки хорошо описываются обычными формулами Киттеля с учетом размагничивающего фактора $4\pi M$.

При изменении геометрии возбуждения резонанса на продольную ($\mathbf{h} \parallel \mathbf{H}$) интенсивность пика ФМР существенно падает. При этом в более слабом поле проявляется второй пик поглощения. В работах [8, 10] было продемонстрировано, что частотно-полевые и ориентационные зависимости для этого пика хорошо описываются простой формулой ЭПР

$$f = \gamma H_{eff}, \quad (1)$$

где гиромагнитное отношение γ соответствует эффективному g -фактору $g = 4.3 \pm 0.1$, а эффективное поле H_{eff} , помимо внешнего поля, включает магнитодипольные поля, создаваемые внутри пленки массивом ФМ-гранул.

Обратим внимание, что пик ЭПР ($g \approx 4$) проявляется для систем самого разного состава, включая нанокompозиты на основе чистых Co и Ni (рис. 2, 3), что не позволяет связать его с традиционным ЭПР

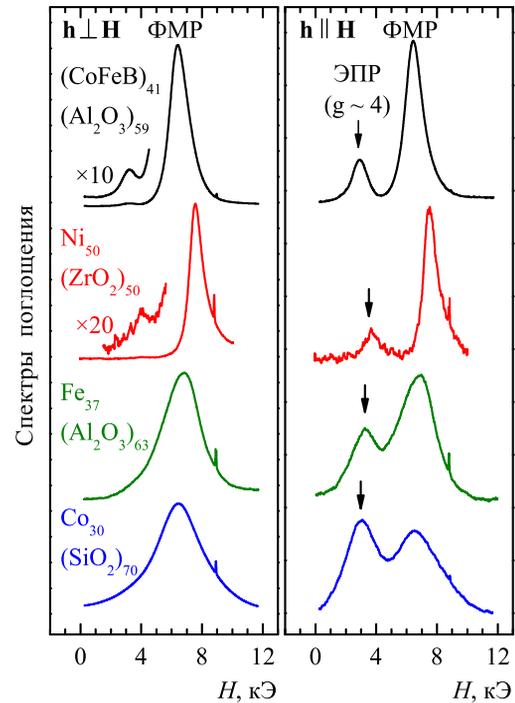


Рис. 2. Спектры магнитного резонанса в пленках нанокompозитов различного состава M_xD_{100-x} в поперечной ($\mathbf{h} \perp \mathbf{H}$) и продольной ($\mathbf{h} \parallel \mathbf{H}$) геометрии возбуждения. Спектры получены на частоте $f \approx 25$ ГГц при комнатной температуре

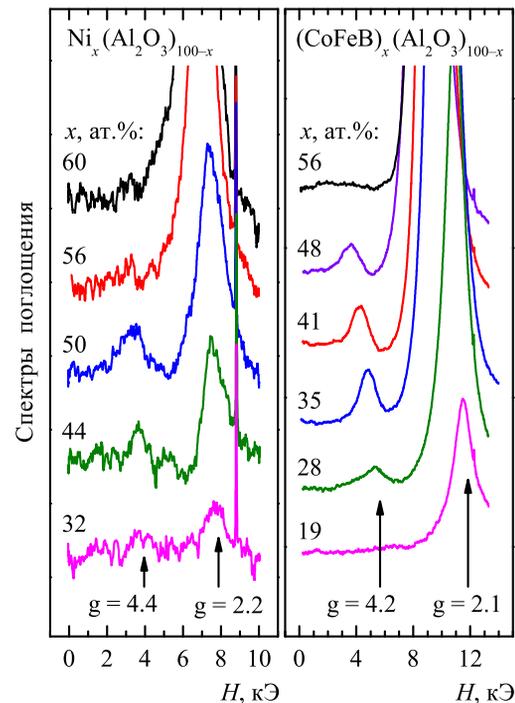


Рис. 3. Экспериментальные спектры для пленок нанокompозитов $Ni_x(Al_2O_3)_{100-x}$ на частоте $f \approx 24.6$ ГГц и $(CoFeB)_x(Al_2O_3)_{100-x}$ ($f \approx 34.4$ ГГц), полученные при комнатной температуре в продольной геометрии возбуждения резонанса ($\mathbf{h} \parallel \mathbf{H}$)

ионов Fe^{3+} ($g \approx 4.3$). Вместе с тем можно заметить, что наблюдаемые эффективные g -факторы для пиков ФМР и ЭПР различаются примерно в 2 раза. Для линии ФМР в зависимости от состава пленок g -фактор варьируется в диапазоне $g \approx 2.1\text{--}2.2$, что характерно для металлических Fe, Co, Ni и их сплавов [41]. Для линии ЭПР эта величина оказывается в 2 раза больше: $g \approx 4.2\text{--}4.4$.

В качестве примера на рис. 4 приведены частотно-полевые диаграммы для двух резонансных пиков в нанокompозитах на основе Ni. В области высоких частот зависимости $f(H)$ описываются линейными функциями, наклоны которых различаются в 2 раза.

Отметим, что наиболее узкие резонансные пики наблюдаются для пленок $(\text{CoFeB})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ и $\text{Ni}_x\text{D}_{100-x}$. Для этих структур пик ЭПР ($g \approx 4$) удается разрешить как в продольной, так и в поперечной геометрии возбуждения резонанса (см. рис. 2). При этом его амплитуда оказывается примерно одинаковой в обеих геометриях [8, 10].

Еще одна необычная особенность пика ЭПР ($g \approx 4$) заключается в аномальной зависимости его интенсивности от содержания ФМ-фазы в нанокompозите (см. рис. 3) и температуры (рис. 5–7). Заметим, что основной пик ФМР ведет себя в этом отношении вполне естественно — его интенсивность монотонно возрастает с увеличением концентрации

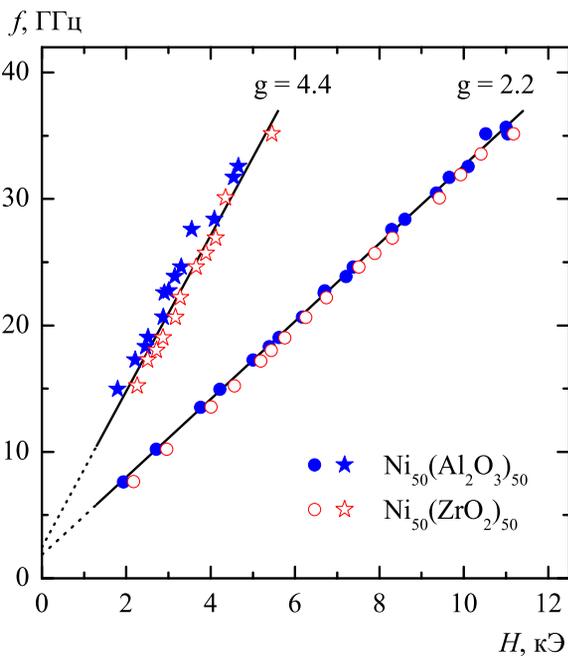


Рис. 4. Частотно-полевые зависимости для двух пиков резонанса в пленках $\text{Ni}_{50}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{50}$ и $\text{Ni}_{50}(\text{ZrO}_2)_{50}$ при комнатной температуре. Символы — экспериментальные данные, наклон прямых линий соответствует эффективным g -факторам $g = 2.2$ и $g = 4.4$

ФМ-фазы и с понижением температуры. Другая картина наблюдается для пика ЭПР. Спектры, измеренные при комнатной температуре, демонстрируют немонотонное поведение интенсивности пика ЭПР ($g \approx 4$) от содержания ФМ-фазы в нанокompозите, x (рис. 3). С увеличением x пик сначала растет, однако при переходе за порог перколяции $x \gtrsim 50$ ат. % уменьшается и исчезает.

При изменении содержания ФМ-фазы в нанокompозите меняется также характер температурной зависимости интенсивности пика ЭПР (рис. 5–7). При низких концентрациях ФМ-фазы $x \lesssim 25$ ат. % интенсивность пика $I(T)$ монотонно увеличивается с понижением температуры по обычному закону Кюри $I(T) \propto 1/T$. Однако с ростом x зависимость $I(T)$ приобретает немонотонный характер с наличием максимума по температуре. При этом по мере увеличения x максимум интенсивности смещается в область высоких температур. Наконец, в пределе высоких концентраций ФМ-фазы наблюдается лишь приблизительно линейный рост $I(T) \propto T$ (рис. 6) [9].

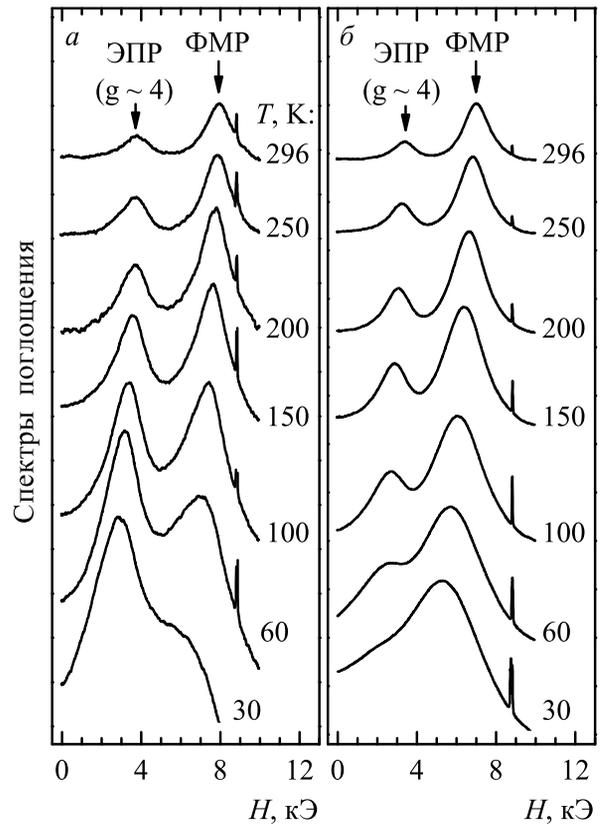


Рис. 5. Спектры пленок $(\text{CoFeB})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$ с концентрацией $x \approx 25$ ат. % (а), 35 ат. % (б) при различных температурах $T = 30\text{--}296$ К, полученные на частоте $f \approx 25$ ГГц в продольной геометрии возбуждения резонанса ($\mathbf{h} \parallel \mathbf{H}$)

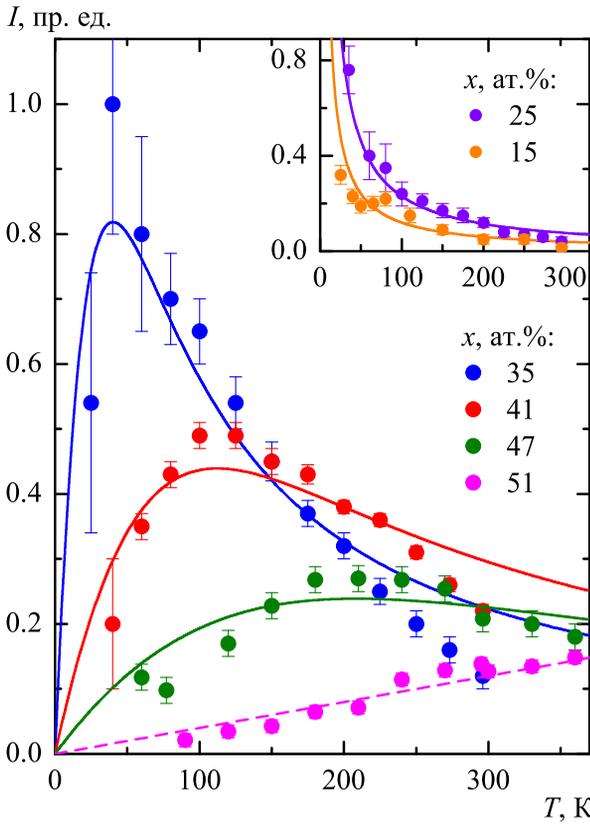


Рис. 6. Температурные зависимости интегральной интенсивности $I(T)$ линии ЭПР ($g \approx 4$) для пленок наноккомпозитов $(\text{CoFeB})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$. Символы — экспериментальные данные на частоте $f \approx 25$ ГГц, сплошные линии — расчет в модели «гигантского спина», штрихи — линейная зависимость. Линии на вставке — закон Кюри $I(T) \propto 1/T$

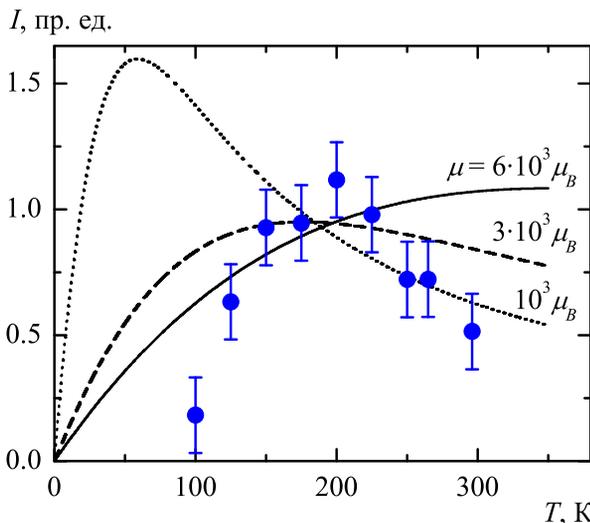


Рис. 7. Температурная зависимость интегральной интенсивности $I(T)$ линии ЭПР ($g \approx 4$) для пленки $\text{Ni}_{50}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{50}$. Символы — экспериментальные данные на частоте $f \approx 18$ ГГц, линии — расчет в модели «гигантского спина» с разными значениями магнитного момента гранул μ

4. МОДЕЛЬ «ГИГАНТСКОГО СПИНА»

Появление в спектрах резонанса пика с удвоенным эффективным g -фактором можно объяснить в рамках модели «гигантского спина» возбуждением внутри ФМ-наногранул «двухквантовых» переходов с изменением проекции спина $\Delta m = \pm 2$ [42–46]. В рамках этого подхода можно объяснить более яркое проявление пика с $g \approx 4$ в продольной геометрии возбуждения резонанса [44–46], а также аномальную температурную зависимость его интенсивности [42, 44, 45].

В модели гигантского спина ФМ-наногранула трактуется как ПМ-центр с очень большим спином $S \sim 10^2\text{--}10^4$. Во внешнем поле происходит зеемановское расщепление уровней энергии этого спина по его проекции на направление поля $m = -S \dots + S$. Вынужденные переходы с изменением проекции спина $\Delta m = \pm 1$ под действием переменного поля в классическом пределе соответствуют возбуждению обычной моды ФМР. Номинально «запрещенные» («двухквантовые») переходы с $\Delta m = \pm 2$ становятся «разрешенными» с учетом дополнительных возмущений в системе, например, при наличии магнитной анизотропии гранул либо диполь-дипольных взаимодействий между ними [19, 47].

Рассмотрим простейший случай наличия слабой одноосной анизотропии гранул с эффективным полем H_A . Такая анизотропия может возникать в гранулах, например, при отклонении их формы от сферической. В этом случае квантовомеханическая вероятность переходов между уровнями $m \pm 1$ гранулы в рамках теории возмущений оценивается выражением [48, 49]

$$f_{m \pm 1} \propto \left(\frac{H_A}{H} \right)^2 \frac{(U_m^{m-1} U_{m+1}^m)^2}{S^2}, \quad (2)$$

где

$$U_m^{m-1} = \sqrt{S(S+1) - m(m-1)}.$$

Отметим, что для произвольной ориентации оси анизотропии относительно направления поля вероятности возбуждения таких переходов поперечным и продольным переменными полями оказываются сравнимы между собой [49], что согласуется с экспериментально наблюдаемым поведением пика ЭПР ($g \approx 4$).

Обратим внимание, что, согласно формуле (2), вблизи основного состояния гранулы, $m = -S$, вероятность переходов с $\Delta m = \pm 2$ стремится к нулю. Напротив, максимальные вероятности этих переходов реализуются при малых значениях $|m| \ll S$. Однако соответствующие уровни энергии лежат выше основного состояния $m = -S$ на величину порядка

μH , где μ — магнитный момент гранулы. Поэтому в условиях низких температур ($k_B T \ll \mu H$, k_B — константа Больцмана), когда гранулы переходят в основное состояние, интенсивность «двухквантовой» линии $I(T)$ уменьшается. В пределе высоких температур ($k_B T \gg \mu H$) выравнивание заселенностей энергетических уровней гранулы приводит к выходу зависимости $I(T)$ на закон Кюри $I(T) \propto 1/T$. Таким образом, максимум интенсивности линии с $g \approx 4$ ожидается при температуре $T \sim \mu H/k_B$. С увеличением концентрации ФМ-фазы в нанокompозите магнитный момент гранул растет, что объясняет смещение максимума в область высоких температур. Выше порога перколяции гранулы начинают объединяться в макроскопические кластеры, μ резко возрастает, и двухквантовая линия полностью исчезает.

Для количественной оценки интенсивности линии учтем разность заселенностей уровней $m \pm 1$ при конечной температуре T :

$$\Delta\rho_{m\pm 1}(T) = Z_S^{-1} \left(e^{-2(m-1)\varkappa} - e^{-2(m+1)\varkappa} \right),$$

где Z_S — статистическая сумма, задаваемая известным выражением [50]

$$Z_S = \frac{\text{sh}[(2S+1)\varkappa]}{\text{sh}(\varkappa)}, \quad \varkappa = \frac{\mu_B H_{\text{eff}}}{k_B T}$$

(μ_B — магнетон Бора). Эффективное поле H_{eff} в приведенных уравнениях, помимо внешнего поля, включает магнитодипольные поля, создаваемые внутри пленки массивом ФМ-гранул. В соответствии с формулой (1) это поле определяется простым соотношением $H_{\text{eff}} = f/\gamma$. С учетом вероятностей двухквантовых переходов (2) интегральная интенсивность линии ЭПР ($g \approx 4$) пропорциональна величине

$$I(T) \propto \sum_{m=1-S}^{S-1} f_{m\pm 1} \Delta\rho_{m\pm 1}(T). \quad (3)$$

На рис. 6, 7 представлено сравнение экспериментальных зависимостей $I(T)$ для пика ЭПР ($g \approx 4$) в пленках разного состава с результатами численного расчета в описанной модели. Подгоночными параметрами являются вертикальный масштаб функции (3) и спин частицы S (соответствующий магнитный момент $\mu = 2S\mu_B$), который определяет положение максимума $I(T)$ по температуре.

На качественном уровне экспериментальные данные согласуются с теорией. Вместе с тем можно заметить и систематические количественные расхождения. По сравнению с расчетом, экспериментальные зависимости $I(T)$ демонстрируют

более «острые» максимумы. Это несоответствие в большей мере проявляется для нанокompозита на основе Ni (рис. 7). Как показано на рис. 7, наблюдаемое поведение можно формально приписать уменьшению магнитного момента μ гранул при повышении температуры. Действительно, с учетом конечной температуры Кюри T_C вещества гранул, в условиях $T \lesssim T_C$ эффект уменьшения $\mu(T)$ вполне ожидаем. В случае гранул Ni этот эффект должен сильнее проявляться благодаря более низкой T_C по сравнению с CoFeB. Заметим также, что при понижении температуры магнитные взаимодействия между наногранулами могут играть важную роль и приводить к формированию более крупных магнитоупорядоченных кластеров, вызывая дополнительный рост эффективной величины μ [51]. Однако рассмотренная простейшая модель полностью пренебрегает подобными эффектами межгранульных взаимодействий и не учитывает наличия возбужденных состояний наночастиц с уменьшенным значением полного спина при $T \lesssim T_C$, а потому является лишь качественным приближением реальной ситуации.

На рис. 8 представлены результаты оценки магнитного момента μ гранул из зависимостей $I(T)$ для пика ЭПР ($g \approx 4$) в пленках $(\text{CoFeB})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$. Для сравнения приведены значения μ по результатам аппроксимации функцией Ланжевена кривых $4\pi M(H)$, полученных из данных ФМР при

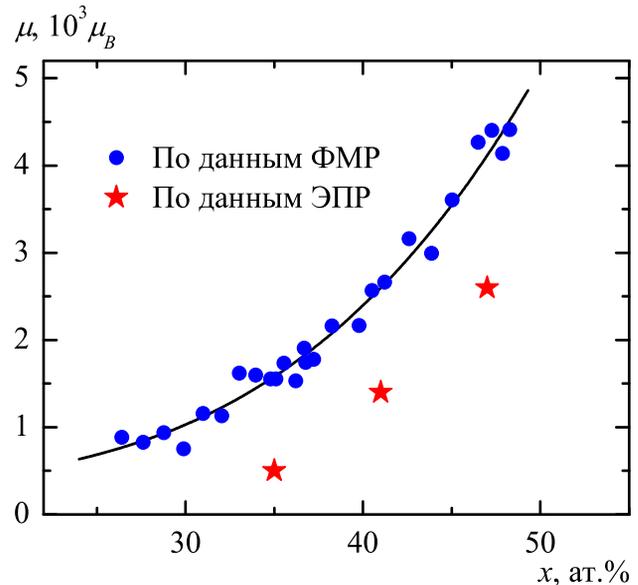


Рис. 8. Магнитный момент гранулы как функция концентрации ФМ-фазы в нанокompозите $(\text{CoFeB})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}$, полученный из аппроксимации зависимостей $4\pi M(H)$ (по данным ФМР) и по температурным зависимостям интенсивности пика ЭПР

комнатной температуре, как это описано в работе [10]. Как видно, величины магнитного момента гранул, определенные двумя способами, оказываются одного порядка. Однако данные ЭПР систематически показывают более низкие значения μ по сравнению с данными ФМР. Можно предположить, что это различие обусловлено разбросом ФМ-гранул по размерам. При этом пик ФМР главным образом определяется резонансом в крупных гранулах, а пик ЭПР ($g \approx 4$) более эффективно возбуждается в мелких магнитных частицах.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом электронного магнитного резонанса исследованы пленки металл-диэлектрических наногранулярных композитов M_xD_{100-x} с различным составом ($M = Fe, Co, Ni, CoFeB$; $D = Al_2O_3, SiO_2, ZrO_2$) и содержанием металлической ФМ-фазы $x \approx 15-60$ ат.%. Экспериментальные спектры, помимо обычного сигнала ФМР, содержат дополнительный пик поглощения с удвоенным эффективным g -фактором $g \approx 4$, демонстрирующий ряд необычных особенностей. Появление в спектрах такого пика и его свойства можно объяснить в рамках квантовомеханической модели «гигантского спина», рассматривающей ФМ-наногранулы как ПМ-центры с очень большим спином $S \sim 10^2-10^4$. Наблюдаемая линия ЭПР ($g \approx 4$) связывается с возбуждением в этих ПМ-центрах двухквантовых переходов с изменением проекции спина $\Delta m = \pm 2$. В рамках такого подхода на качественном уровне объясняется немонотонная температурная зависимость интенсивности необычного пика, нестандартные условия его возбуждения продольным высокочастотным магнитным полем, а также исчезновение пика при содержании ФМ-фазы выше порога перколяции нанокompозита.

Таким образом, наблюдаемые особенности магнитного резонанса наногранулярных композитов подчеркивают «дуализм» классических и квантовых свойств ФМ-наночастиц. Поведение основной линии ФМР хорошо описывается в рамках классических представлений о возбуждении прецессии вектора намагниченности ансамбля наногранул. В то же время свойства дополнительного пика объясняются на квантовомеханическом языке возбуждением переходов ЭПР между спиновыми состояниями индивидуальных наногранул.

Финансирование. Работа выполнена в рамках Государственного задания при поддержке Российского научного фонда (проект № 22-19-00171).

ЛИТЕРАТУРА

1. J. L. Dormann and D. Fiorani, *Magnetic Properties of Fine Particles*, Elsevier, Amsterdam (1992).
2. S. P. Gubin, ed., *Magnetic Nanoparticles*, John Wiley & Sons, Hoboken, NJ (2009).
3. S. Bedanta, A. Barman, W. Kleemann, O. Petravic, and T. Seki, *J. Nanomater.* **2013**, 952540 (2013).
4. N. Noginova, F. Chen, T. Weaver, E. P. Giannelis, A. B. Bourlinos, and V. A. Atsarkin, *J. Phys.: Condens. Matter* **19**, 246208 (2007).
5. V. A. Atsarkin and N. Noginova, *Appl. Magn. Reson.* **51**, 1467 (2020).
6. A. B. Дровосеков, N. M. Крейнес, A. S. Баркалова, S. N. Николаев, V. V. Рылков, and A. V. Ситников, *J. Magn. Magn. Mater.* **495**, 165875 (2020).
7. А. Б. Дровосеков, Н. М. Крейнес, А. С. Баркалова, С. Н. Николаев, А. В. Ситников, В. В. Рыльков, *Письма в ЖЭТФ* **112**, 88 (2020).
8. А. Б. Дровосеков, Н. М. Крейнес, О. А. Ковалев, А. В. Ситников, С. Н. Николаев, В. В. Рыльков, *ЖЭТФ* **161**, 853 (2022).
9. А. Б. Дровосеков, Н. М. Крейнес, О. А. Ковалев, А. В. Ситников, С. Н. Николаев, В. В. Рыльков, *ЖЭТФ* **162**, 426 (2022).
10. А. Б. Дровосеков, Н. М. Крейнес, Д. А. Зигануров, А. В. Ситников, С. Н. Николаев, В. В. Рыльков, *ЖЭТФ* **164**, 650 (2023).
11. V. Rylkov, A. Sitnikov, S. Nikolaev, A. Emelyanov, K. Chernohlazov, K. Nikiruy, A. Drovosekov, M. Blinov, E. Fadeev, A. Taldenkov, V. Demin, A. Vedenev, A. Bugaev, and A. Granovsky, *IEEE Magn. Lett.* **10**, 2509504 (2019).
12. В. В. Рыльков, А. В. Емельянов, С. Н. Николаев, К. Э. Никируй, А. В. Ситников, Е. А. Фадеев, В. А. Демин, А. Б. Грановский, *ЖЭТФ* **158**, 164 (2020).
13. Yu. A. Koksharov, D. A. Pankratov, S. P. Gubin, I. D. Kosobudsky, M. Beltran, Y. Khodorkovsky, and A. M. Tishin, *J. Appl. Phys.* **89**, 2293 (2001).
14. A. Jitianu, M. Crisan, A. Meghea, I. Rau, and M. Zaharescu, *J. Mater. Chem.* **12**, 1401 (2002).
15. I. Edelman, O. Ivanova, R. Ivantsov, D. Velikanov, V. Zablude, Y. Zubavichus, A. Veligzhanin, V. Zaitkovskiy, S. Stepanov, A. Artemenko, J. Curély, and J. Kliava, *J. Appl. Phys.* **112**, 084331 (2012).
16. T. Castner, G. S. Newell, W. C. Holton, and C. P. Slichter, *J. Chem. Phys.* **32**, 668 (1960).
17. H. H. Wickman, M. P. Klein, and D. A. Shirley, *J. Chem. Phys.* **42**, 2113 (1965).

18. Я. Г. Клява, *ЭПР-спектроскопия неупорядоченных твердых тел*, Зинатне, Рига (1988).
19. А. Абрагам, Б. Блини, *Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов*, Мир, Москва (1972).
20. C. Legein, J. Y. Buzaré, and C. Jacoboni, *J. Non-Cryst. Sol.* **161**, 112 (1993).
21. O. Raita, A. Popa, D. Toloman, M. Stan, A. Darabont, and L. Giurgiu, *Appl. Magn. Res.* **40**, 245 (2011).
22. W. Wang, Z. Jiang, and Y. Du, *J. Appl. Phys.* **78**, 6679 (1995).
23. N. A. Lesnik, R. Gontarz, G. N. Kakazei, A. F. Kravets, P. E. Wigen, and J. Dubowik, *Phys. St. Sol. (a)* **196**, 157 (2003).
24. J. Gómez, A. Butera, and J. A. Barnard, *Phys. Rev. B* **70**, 054428 (2004).
25. G. N. Kakazei, Yu. G. Pogorelov, M. D. Costa, V. O. Golub, J. B. Sousa, P. P. Freitas, S. Cardoso, and P. E. Wigen, *J. Appl. Phys.* **97**, 10A723 (2005).
26. M. J. M. Pires, J. C. Denardin, E. C. da Silva, and M. Knobel, *J. Appl. Phys.* **99**, 063908 (2006).
27. С. А. Вызулин, Ю. Е. Калинин, Г. Ф. Копытов, Е. В. Лебедева, А. В. Ситников, Н. Е. Сырьев, *Изв. вузов, Физика* **49**, 47 (2006).
28. G. N. Kakazei, X. M. Liu, J. Ding, V. O. Golub, O. Y. Salyuk, R. V. Verba, S. A. Bunyaev, and A. O. Adeyeye, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 232402 (2015).
29. O. N. Martyanov, D. A. Balaev, O. V. Pylypenko, L. V. Odnodvoretz, S. V. Chernov, S. A. Nepijko, H. J. Elmers, C. M. Schneider, and G. Schönhense, *J. Supercond. Nov. Magn.* **28**, 3587 (2015).
30. Е. Н. Каблов, О. Г. Оспенникова, В. П. Пискорский, Д. В. Королев, Ю. Е. Калинин, А. В. Ситников, Е. И. Куницына, А. Д. Таланцев, В. Л. Бердинский, Р. Б. Моргунов, *ФТТ* **58**, 1086 (2016).
31. N. Neugebauer, A. Fabian, M. T. Elm, D. M. Hofmann, M. Czerner, C. Heiliger, and P. J. Klar, *Phys. Rev. B* **101**, 104409 (2020).
32. Л. Н. Котов, М. П. Ласёк, В. К. Турков, Д. М. Хлопов, В. С. Власов, Ю. Е. Калинин, А. В. Ситников, *Изв. РАН, сер. физическая* **84**, 1255 (2020).
33. Е. А. Denisova, S. V. Komogortsev, R. S. Iskhakov, L. A. Chekanova, Yu. E. Kalinin, and A. V. Sitnikov, *Acta Phys. Polon. A* **134**, 623 (2018).
34. О. В. Стогней, А. В. Ситников, А. Д. Аль-Малики, *Вестник Воронежского государственного технического университета* **10**, 7 (2014).
35. Ю. Е. Калинин, А. В. Ситников, О. В. Стогней, *Альтернативная энергетика и экология* **54**, 9 (2007).
36. V. V. Rylkov, S. N. Nikolaev, K. Yu. Chernoglazov, V. A. Demin, A. V. Sitnikov, M. Yu. Presnyakov, A. L. Vasiliev, N. S. Perov, A. S. Vedeneev, Yu. E. Kalinin, V. V. Tugushev, and A. V. Granovsky, *Phys. Rev. B* **95**, 144202 (2017).
37. О. В. Стогней, А. В. Ситников, *ФТТ* **52**, 2356 (2010).
38. И. М. Трегубов, М. Ю. Смолякова, Д. Н. Клименко, М. А. Каширин, О. В. Стогней, *Изв. вузов, Порошковая металлургия и функциональные покрытия* **2**, 37 (2013).
39. О. В. Стогней, А. Д. Аль-Малики, А. А. Гребенников, К. И. Семенов, Е. О. Буловацкая, А. В. Ситников, *ФТП* **50**, 725 (2016).
40. M. S. Filatov, O. V. Stognei, and M. S. Antonova, *J. Phys. Conf. Ser.* **872**, 012029 (2017).
41. M. A. W. Schoen, J. Lucassen, H. T. Nembach, T. J. Silva, B. Koopmans, C. H. Back, and J. M. Shaw, *Phys. Rev. B* **95**, 134410 (2017).
42. N. Noginova, T. Weaver, E. P. Giannelis, A. B. Bourlinos, V. A. Atsarkin, and V. V. Demidov, *Phys. Rev. B* **77**, 014403 (2008).
43. N. Noginova, B. Bates, and V. A. Atsarkin, *Appl. Magn. Res.* **47**, 937 (2016).
44. M. Fittipaldi, R. Mercatelli, S. Sottini, P. Ceci, E. Falvo, and D. Gatteschi, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **18**, 3591 (2016).
45. A. Cini, P. Ceci, E. Falvo, D. Gatteschi, and M. Fittipaldi, *Z. Phys. Chem.* **231**, 745 (2017).
46. N. E. Domracheva, V. E. Vorobeva, M. S. Gruzdev, Y. N. Shvachko, and D. V. Starichenko, *Inorg. Chim. Acta* **465**, 38 (2017).
47. С. А. Альтшулер, Б. М. Козырев, *Электронный парамагнитный резонанс соединений элементов промежуточных групп*, Наука, Москва (1972).
48. C. Marti, R. Romestain, and R. Visocekas, *Phys. St. Sol. (b)* **28**, 97 (1968).
49. V. Clerjaud, *Phys. St. Sol. (b)* **72**, K33 (1975).
50. Дж. Смарт, *Эффективное поле в теории магнетизма*, Мир, Москва (1968).
51. С. Н. Николаев, К. Ю. Черноглазов, А. В. Емельянов, А. В. Ситников, А. Н. Талденков, Т. Д. Пацаев, А. Л. Васильев, Е. А. Ганьшина, В. А. Демин, Н. С. Аверкиев, А. Б. Грановский, В. В. Рыльков, *Письма в ЖЭТФ*, **118**, 46 (2023).

ВЛИЯНИЕ МАГНИТНОГО ПОЛЯ НА ПРОВОДИМОСТЬ ТУННЕЛЬНОЙ СТРУКТУРЫ СВЕРХПРОВОДНИК–ИЗОЛЯТОР–НОРМАЛЬНЫЙ МЕТАЛЛ

А. Б. Ермаков^а, М. А. Тарасов^а, В. С. Эдельман^{б*}

^а Институт радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова Российской академии наук
125009, Москва, Россия

^б Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук
119334, Москва, Россия

Поступила в редакцию 27 октября 2023 г.,
после переработки 1 марта 2024 г.
Принята к публикации 25 апреля 2024 г.

Проанализированы результаты экспериментов по влиянию магнитного поля на проводимость туннельных структур сверхпроводник–изолятор–нормальный металл при температурах, много меньших критической температуры сверхпроводника T_c , и при малых напряжениях, при которых одноэлектронный ток I_{single} сравним или меньше подщелевого андреевского тока $I_{Andreev} = I_n + I_s$. Эти две компоненты андреевского тока связаны с диффузионным движением коррелированных пар электронных возбуждений в нормальном и соответственно сверхпроводящем слоях структуры. При ориентации поля перпендикулярной к структуре с латеральными размерами больше глубины прикиновения прослежен переход от неоднородного распределения поля к вихревой структуре. При ориентациях поля как в плоскости структуры, так и перпендикулярно к ней, одноэлектронный ток растет из-за влияния поля на сверхпроводящую щель Δ_c . Проводимость, обязанная андреевскому току $I_n = k_n \text{th}(eV/2kT_{eff})$, уменьшается из-за роста эффективной температуры T_{eff} . Уменьшение вклада I_s связано с уменьшением щели. Нам не известны работы, в которых рассматривается влияние магнитного поля на эту составляющую туннельного тока. Показано, что при малых напряжениях так называемый ток Дайнса, обязанный мнимой добавке к энергии щели из-за влияния дефектов в сверхпроводнике, не дает вклада в проводимость туннельной структуры.

Памяти А. Ф. Андреева посвящается

DOI: 10.31857/S0044451024090098

1. ВВЕДЕНИЕ

Несмотря на большое число работ, посвященных исследованию проводимости тонкопленочных микроструктур сверхпроводник–изолятор–нормальный металл (СИН) при низких температурах, остаются вопросы, связанные с влиянием постоянного магнитного поля. Этой теме посвящено довольно много теоретических работ, но количество экспериментальных работ весьма ограничено. Из известных публикаций можно упомянуть статьи [1–3], в которых прослежен эффект распаривания в сверх-

проводящем электроде СИН под действием магнитного поля, приводящий к уменьшению энергетической щели и возрастанию туннельного тока при смещении V , близком к напряжению $V_c = \Delta_c/e$, где Δ_c — щель в спектре сверхпроводника. В частности, в [3] этот эффект исследован для структуры алюминий–изолятор–медь. Появление вихрей Абрикосова в пленках алюминия в нормальном поле прослежено в [4, 5]. Подавление аномальной дифференциальной проводимости при $V = 0$ магнитным полем, приложенным в плоскости структуры, приведено в [6, 7]. Однако нет работ, в которых все эти явления, а также влияние поля на другие компоненты подщелевого тока, наблюдались на одном образце и при разных ориентациях магнитного поля. Цель предлагаемой работы — описание и анализ экспери-

* E-mail: vsedelman@yandex.ru

ментов, удовлетворяющих этому требованию. При этом мы ограничиваемся областью малых смещений $V \leq 0.5V_c$, при которых тепловые эффекты — нагрев или электронное охлаждение, сильно усложняющие анализ результатов, практически не влияют на туннельный ток.

Ток СИН складывается из одноэлектронного тока и подщелевого тока. Одноэлектронный ток обязан туннелированию термически возбужденных выше уровня Ферми электронов из нормального металла на свободные состояния выше щели сверхпроводника с сохранением энергии (при другом знаке смещения туннелированию возбуждений сверхпроводника на свободные состояния ниже уровня Ферми). При электронной температуре $T_e \ll T_c$ и $V \leq 0,7V_c$ он с точностью порядка 1 процента описывается формулой [8]

$$I_{single} = \frac{1}{eR_n} \sqrt{2\pi kT_e \Delta_c} \exp\left\{-\frac{\Delta_c}{kT_e}\right\} \text{sh} \frac{eV}{kT_e}. \quad (1)$$

При $V \leq V_\Delta/2$ и температуре $T \leq 0.2T_c$ (T_c — критическая температура сверхпроводимости) этот ток становится мал и основным становится подщелевой андреевский ток и ток Дайнса. Андреевская проводимость много меньше проводимости СИН при нормальном состоянии сверхпроводника, но сохраняется на заметном уровне в «грязных» металлах, когда электронные пары диффундируют на большие расстояния, сохраняя когерентность, и в тонких пленках многократно возвращаются к границе между металлами, что увеличивает вероятность их туннелирования. Эта составляющая тока описывается формулой, предложенной в [9]:

$$I_{Andreev} = I_n + I_s = \frac{\hbar}{e^2 R_n^2 S \nu_n d_n} \text{th} \frac{eV}{2kT_e} + \frac{\hbar}{e^2 R_n^2 S \nu_s d_s} \frac{eV/\sqrt{1 - eV/\Delta_c}}{2\pi \Delta_c}. \quad (2)$$

Токи I_n и I_s отвечают диффузии пар в объеме нормального металла и сверхпроводника соответственно, R_n — сопротивление перехода в нормальном состоянии, S — его площадь, d_n, d_s — толщина слоев, а ν_n, ν_s — плотности состояний. Хотя все фигурирующие в этой формуле величины или известны, или могут быть измерены, измеряемые токи обычно сильно отличаются от теоретических значений. Считается, что основная причина в неоднородности запорного слоя, из-за чего его прозрачность для одноэлектронного туннелирования выше, чем для двух электронного. Исходя из этого, в [7] предложено для

описания экспериментальных результатов использовать формулу

$$I_{Andreev} = I_n + I_s = k_n \hbar \frac{eV}{2kT_{eff}} + k_s \frac{eV/\sqrt{1 - eV/\Delta_c}}{\Delta_c}, \quad (3)$$

в которой параметры k_n, k_s и T_{eff} определяются при подгонке экспериментальной ВАХ. Работа [9] не единственная, в которой вычислялся андреевский ток. Так, в [10] получен похожий результат, но с некоторыми отличиями. И это не только другие численные коэффициенты, но другая зависимость тока I_s от напряжения смещения:

$$I_{Andreev} = I_n + I_s = \frac{3\pi\hbar}{2e^2 R_n^2 S \nu_n d_n} \text{th} \frac{eV}{2kT_e} + \frac{2\hbar}{e^2 R_n^2 S \nu_s d_s} \frac{eV/\sqrt{1 - (eV/\Delta_c)}}{\Delta_c}. \quad (4)$$

В этом случае в выражении для тока I_s под знаком корня стоит напряжение смещения не в первой степени, как в (2), а в квадрате. В первом случае дифференциальная проводимость dI/dV при малых напряжениях линейно возрастает, а во втором — практически постоянна. Функционально, согласно (4), этот вклад в ток совпадает с током Дайнса, который в большинстве известных работ считается ответственным за избыточный ток. Это одноэлектронный подщелевой ток, обязанный при $T \ll T_c$ размытию спектра возбуждений сверхпроводника из-за дефектов. На основе экспериментальных данных показано, что спектр приобретает вид [11]

$$\rho(E, \gamma) = \frac{E - i\gamma}{\sqrt{(E - i\gamma)^2 - \Delta_c^2}},$$

где $\gamma \ll \Delta_c$ — эмпирический параметр, описывающий это размытие. Исходя из этого спектра, получается выражение для тока (например, [12])

$$I_{Dynes} = \frac{\gamma}{\Delta_c} \frac{V/\sqrt{1 - (eV/\Delta_c)^2}}{R_n}. \quad (5)$$

В этой работе проведен более подробный, чем в [7], анализ экспериментов по исследованию проводимости СИН при охлаждении их до температуры порядка 0.1 К в магнитном поле до 30 мТл. В поле, нормальном к поверхности СИН, в структуре с латеральными размерами много большими глубины проникновения λ в сверхпроводник, прослежен переход от неоднородного распределения поля к структуре

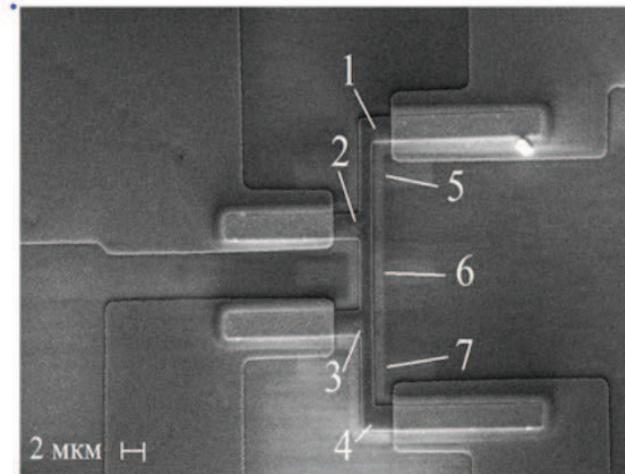


Рис. 1. Изображение с помощью сканирующего электронного микроскопа СИНИС-структур. 1, 2, 3, 4 — туннельные переходы, 5, 6, 7 — подвешенные нормальные мостики

из вихрей Абрикосова. Это позволило оценить λ и длину корреляции ξ . В [7] в основном рассматривалось влияние поля только на компоненту андреевского тока I_n . Здесь с опорой на результаты работы [3] изучено воздействие однородного поля, лежащего в плоскости СИН с толщиной сверхпроводящей пленки $d < \lambda$, на одноэлектронную проводимость. Установлено, что распаривание приводит к более быстрому, чем найдено в [3], квадратичному уменьшению параметра Δ_c , при этом формула (1) по-прежнему описывает одноэлектронный ток. Показано, что при $G_{single} \leq 0.2G_N$ (G_N — нормальная проводимость) происходит переход от тока Дайнса (5) к току, экспоненциально падающему с уменьшением напряжения. Знание одноэлектронного тока позволило надежно выделить компоненты андреевского тока I_n и I_s . Результаты, относящиеся к току I_n , практически совпадают с полученными в [7]. Ток I_s зависит от поля слабее, чем I_n . Эту зависимость можно описать как обязанную квадратичному уменьшению щели с полем. Дано на качественном уровне объяснение изменений компонент тока при нормальном поле при его неоднородном распределении.

2. МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ

Большая часть экспериментов проведена с тест-структурами, описанными в работе [7]. На рис. 1 представлено изображение такой структуры. Она содержит 4 туннельных перехода (1–4) медь–алюминий, соединенных медной полоской,

напыленной на окисленную поверхность алюминия, напыленного непосредственно на кремниевую подложку. На участках 5–7 алюминий, находящийся под медью, вытравлен. Толщины пленок 20 нм (медь) и 80 нм (алюминий), площади СИН1 и СИН2 8 и 10 мкм соответственно. На чип с 16 контактными площадками по краям расположены 4 таких структуры. Были протестированы 20 СИН на двух чип. Полученные для них результаты близки друг к другу. Чтобы не перегружать изложение, далее большая часть результатов приведена для одного из СИН1, у которого наиболее выражен андреевский ток.

Вольт–амперные характеристики измерялись на постоянном токе по четырехзондовой схеме. Для защиты туннельных переходов от паразитного излучения в цепи подводящих проводов были включены резисторы номиналом 0.8 М Ом, охлаждаемые до 0.4 К. Топология структуры позволяла измерять как характеристики СИНИС переходов, например, при пропускании тока через переходы 1 и 4 и измерении напряжения на них, так и одиночного СИН, например, при измерении напряжения на контактах 1–2 и токе через контакты 1–4. Использовалась автоматизированная система сбора данных на основе портативного компьютера ноутбук и NI USB блока ЦАП–АЦП. Ток I задавался 16-разрядным ЦАП. Усиленное маломощным усилителем напряжение V преобразовывалась 16-разрядным АЦП. Дифференциальная проводимость $G(V) = dI/dV$ или дифференциальное сопротивление R_d определялись численным дифференцированием вольт–амперных харак-

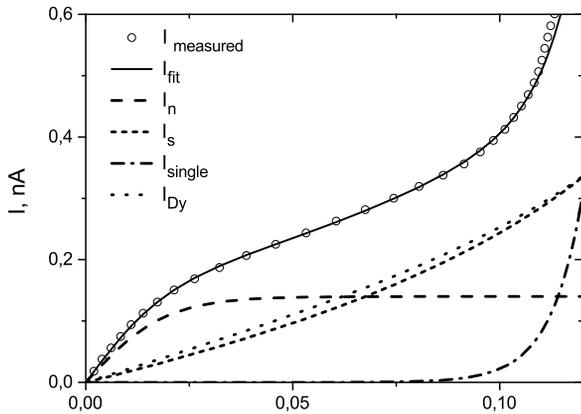


Рис. 2. Измеренная вольт-амперная характеристика СИН и ее фитирование теоретическими моделями. При подгонке используются значения $\Delta_c/k = 2.18$ К и $R_n = 29$ Ом, определяемые из зависимостей туннельного тока от температуры, и величины $k_n = 0.135$ нА, $k_s = 0.32$ нА или $\gamma/\Delta = 6.2 \cdot 10^{-5}$, $T_{eff} = 0.11$ К и $T_e = 0.094$ К. Электронная температура T_e оценивается по одноэлектронному току при температуре чипа $T \approx 0.09$ К. Обычно T_e несколько выше T из-за проникновения излучения из окружения

теристик. Измерения проводились с использованием работающего под управлением компьютера погружного криостата растворения [13], в котором образцы размещаются внутри экрана с температурой 0.4–0.5 К на верху прибора на охлаждаемом держателе. Образцы устанавливались горизонтально или вертикально. Направленное вертикально магнитное поле, создаваемое соленоидом, установленным снаружи криостата, прикладывается примерно по нормали или по касательной к плоскости туннельного перехода с погрешностью в несколько градусов. Для изменения направления поля можно наклонять соленоид в пределах $\pm 10^\circ$.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 2 и 3 приведены измеренные без магнитного поля ВАХ для этой структуры и их фитирование при температуре чипа $T_{chip} = 0.09$ К и составляющие тока (рис. 2), и при нескольких температурах, рис. 3. Это позволило определить исходные значения всех параметров: Δ_c , R_n , k_n , k_s (для андреевского тока по [9]) или γ (для тока Дайнса), T_{eff} и электронную температуру T_e , которая несколько выше T_{chip} из-за нагрева паразитным излучением, проникающим из комнаты. Непосредственно измерить небольшое сопротивление R_n и определить Δ_c по положению максимума проводимости при $V \approx V_c$ оказалось невозможно, так как оно включено после-

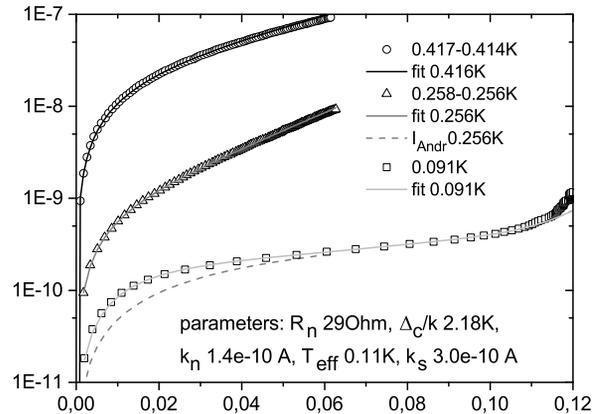


Рис. 3. Определение параметров Δ_c и R_n по ВАХ, измеренных при разных температурах, с учетом малой поправки на андреевский ток. Параметры андреевского тока установлены при $T = 0.09$ К

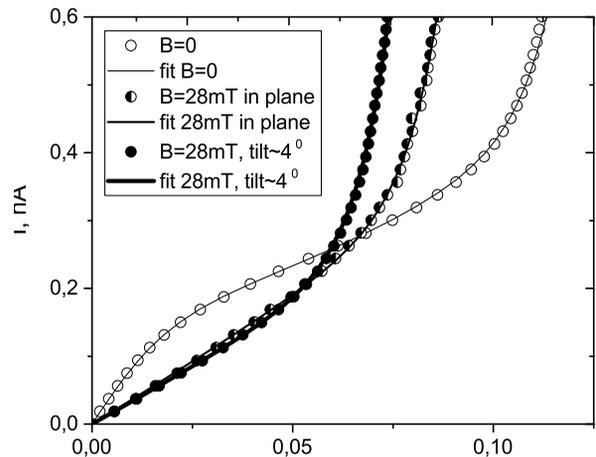


Рис. 4. ВАХ при воздействии магнитного поля, приложенного в плоскости структуры и под углом примерно 4° к ней

довательно с сопротивлением подводящих ток дорожек примерно той же величины. Из-за этого максимум на экспериментальных зависимостях дифференциальной проводимости от напряжения вообще не проявлялся даже в отсутствие магнитного поля. Его можно было выявить только после оценки сопротивления токоподводов, исходя из вычисленного значения R_n и введения поправки на падение напряжения.

На рис. 4 приведены ВАХ, измеренные в нулевом поле и в поле 28 мТл и их фитирование с использованием формул (1) и (3). В наклонном магнитном поле оно влияет на изменение тока сильнее, чем при его приложении в плоскости. Именно это позволяет, наклоняя соленоид, добиться юстировки поля относительно плоскости СИН с точностью поряд-

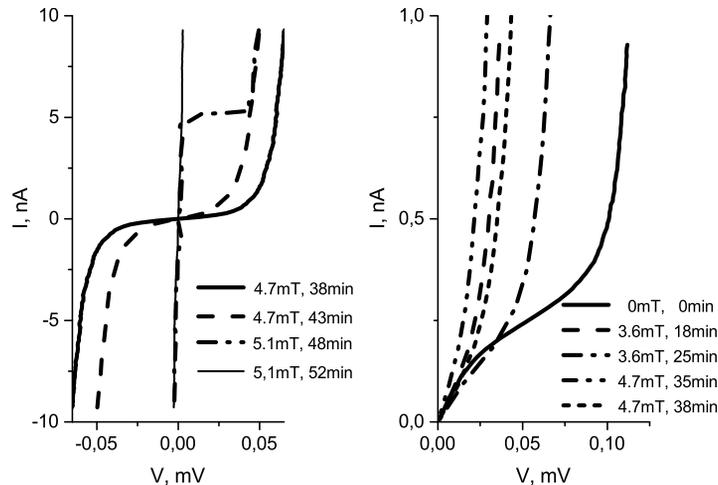


Рис. 5. ВАХ при разных значениях магнитного поля, нормального к поверхности СИН-структуры. Последовательность регистрации ВАХ указана в минутах от начала регистрации соответствующей характеристики, длительность записи каждой из них примерно 2 мин. При регистрации ВАХ при поле 5.1 мТл на 48 минуте произошел скачкообразный переход от неоднородного поля в сверхпроводнике к вихревому состоянию. Таким образом, $B_{c1} < 5$ мТл. Отметим, что ВАХ, измеренные при внешнем поле 3.6 мТл на 18 и 25 минутах и 4.7 мТл на 35 и 38 минутах, свидетельствуют о возможности различных конфигураций неоднородного поля в сверхпроводнике с близкой энергией

ка 1° . Как видно, использованные функциональные зависимости хорошо описывают экспериментальные результаты, что подтверждает отсутствие тепловых эффектов при пропускании тока и позволяет установить влияние магнитного поля на параметры как подщелевого, так и одноэлектронного тока.

3.1. Поле по нормали к поверхности СИН

На рис. 5 приведены ВАХ при разных значениях магнитного поля, нормального к поверхности СИН-структуры. Последовательность регистрации ВАХ указана в минутах от начала регистрации соответствующей характеристики, длительность записи каждой из них примерно 2 мин. При регистрации ВАХ при поле 5.1 мТл на 48 минуте произошел переход от неоднородного поля в сверхпроводнике к вихревому состоянию, о чем свидетельствует резкое изменение дифференциальной проводимости $G(V = 0, B = 0)$ от $1.15 \cdot 10^{-5} \text{ Ом}^{-1}$ до 0.003 Ом^{-1} . По-видимому, это состояние не отвечает максимальному заполнению вихрями области туннельного перехода, так как в опыте с охлаждением образца от $T > T_c$ до 0.1 К в поле 4.7 мТл проводимость при нулевом смещении составила 0.01 Ом^{-1} . При этом она остается значительно меньше $1/R_N = 0.032 \text{ Ом}^{-1}$. Вихревое состояние есть прямое свидетельство того, что тонкие пленки алюминия сверхпроводники второго рода [4, 5]. Для исследуемой структуры $B_{c1} < 5$ мТл. Отметим, что ВАХ, измеренные при

внешнем поле 3.6 мТл на 18 и 25 минутах и при 4.7 мТл на 35 и 38 минутах демонстрируют «отскок» как бы к меньшему полю. Это свидетельствует о возможности различных конфигураций неоднородного поля в сверхпроводнике с близкой энергией. Эти состояния распределения поля метастабильны с большим гистерезисом. Так, вихревая структура сохраняется неизменной при выключении поля и разрушается только в поле противоположного направления или при нагреве выше T_c .

В чистом алюминии при $T \ll T_c$ критическое поле $B_c \simeq 11$ мТл, длина когерентности $\xi_0 \simeq 1500$ нм, глубина проникновения магнитного поля $\lambda_0 = 15$ нм. На рис. 6 показано изменение дифференциальной проводимости СИН-структуры в магнитном поле. Видно, что при 14 мТл еще сохраняется минимум проводимости, обусловленный сверхпроводимостью алюминия. Это говорит о том, что $B_{c2}/B_c > 1.3$. Из соотношения $B_{c2}B_{c1} = B_c^2$ при $B_{c1} = 5$ мТл имеем $B_{c2}/B_c \simeq 2.2$. Используя оценку $B_{c2} = \Phi_0/2\pi\xi^2$ (Φ_0 — квант магнитного потока) получим, что ξ лежит в интервале 115–150 нм. Из соотношения $\xi^2 = \xi_0 l$ для длины пробега электронов в пленке алюминия получим $l = 9 - 15$ нм. И наконец, для глубины проникновения из соотношения $B_{c1}/B_c = \xi/\lambda$ следует, что λ лежит в интервале 200–250 нм. Таким образом, выполнен критерий сверхпроводимости второго рода. (Используемые здесь соотношения взяты из [14, 15].)

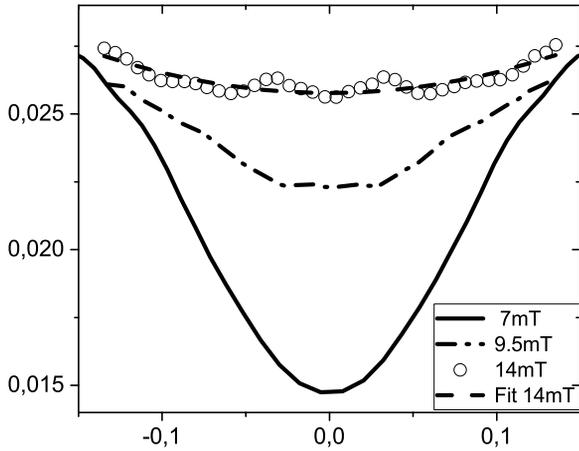


Рис. 6. Зависимости дифференциальной проводимости СИН1 от напряжения при разных значениях индукции магнитного поля, перпендикулярного поверхности СИ

Используя формулу для зависимости локальной проводимости квантового вихря от расстояния от его центра, полученную при туннельной спектроскопии в работе [16],

$$G(x) = G_0 - \frac{G_N - G_0}{1 - \text{th}(x/\xi)},$$

считая вихрь аксиально симметричным, получим для проводимости одного вихря 0.0009 Ом^{-1} (для $\xi = 100 \text{ нм}$) и 0.0019 Ом^{-1} (для $\xi = 150 \text{ нм}$). При проводимости СИН в поле 4.7 мТл равной 0.01 Ом^{-1} это соответствует включению 11 или 5 вихрей. Максимальное число вихрей на площади СИН $S = 8 \text{ мкм}^2$ в поле 4.7 мТл в соответствии с соотношением $n = SB/\Phi_0 = 18$. Согласно работе [17], для образцов микронных размеров такое заполнение не достигается из-за сохранения мейснеровского состояния по краям пленки на размерах порядка λ . Так, для круга диаметром 2 мкм вместо 6 помещается только 2–3 вихря. Таким образом, проводимость СИН в поле, большем B_{c1} , согласуется с картиной вихревой структуры.

3.2. СИН в касательном поле

3.2.1. Одноэлектронная проводимость

Как видно на рис.1, область перехода имеет сложную геометрию: она имеет участок с размерами $2 \times 3 \text{ мкм}^2$, от которого под прямым углом отходит полоска $\simeq 1 \times 2 \text{ мкм}^2$. Эти размеры превышают глубину проникновения. Поэтому в нормальном к поверхности СИН магнитном поле из-за эффекта Мейснера–Оксенфельда его распределение сильно

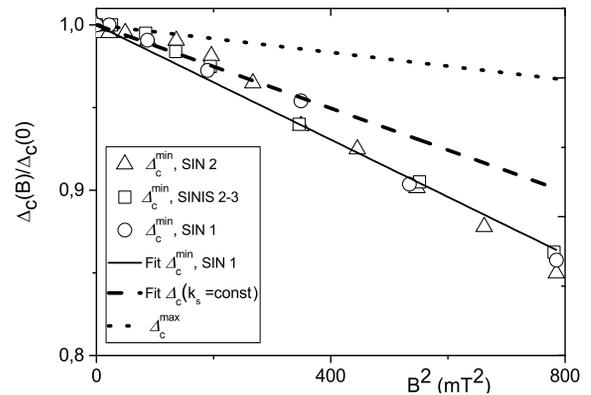


Рис. 7. Изменение сверхпроводящей щели в касательном магнитном поле. Δ^{min} — значение, определенное по зависимости от поля одноэлектронной компоненты тока, $\Delta(k_s = \text{const})$ соответствует постоянному значению k_s в формуле (3) для андреевского тока, Δ^{max} соответствует результатам работы [4] при $\xi = 150 \text{ нм}$

неоднородно — практически отсутствует в середине, а на краях перехода в разы превышает поле на бесконечности. Как оказалось, и в этом случае измеренные ВАХ можно аппроксимировать формулами (1)–(5). Однако полученные в этом случае результаты позволяют делать только качественные выводы. При поле в плоскости ситуация обратная — толщина сверхпроводящей пленки 80 нм значительно меньше λ . Используя соответствующую формулу распределения поля в тонкой пластине [15], можно оценить, что поле в середине пленки меньше, чем на бесконечности, на 1–1.5 %. Это позволяет получить количественные результаты.

Согласно рис. 4, магнитное поле приводит к изменению одночастичного тока аналогично повышению температуры. Но поскольку постоянное поле не может нагревать СИН, то рост тока означает уменьшение сверхпроводящей щели из-за эффекта распиривания. На рис. 7 приведены зависимости Δ_c для двух СИН и для СИНИС в касательном к поверхности поле. Все три зависимости совпадают в пределах погрешности определения этого параметра.

Эти зависимости можно аппроксимировать формулой вида

$$\Delta_c(B)/\Delta_c(0) = 1 - aB^2. \tag{6}$$

Согласно [3], щель изменяется как

$$\Delta_c(B)/\Delta_c(0) = 1 - 0.75(B/B_T)^2. \tag{7}$$

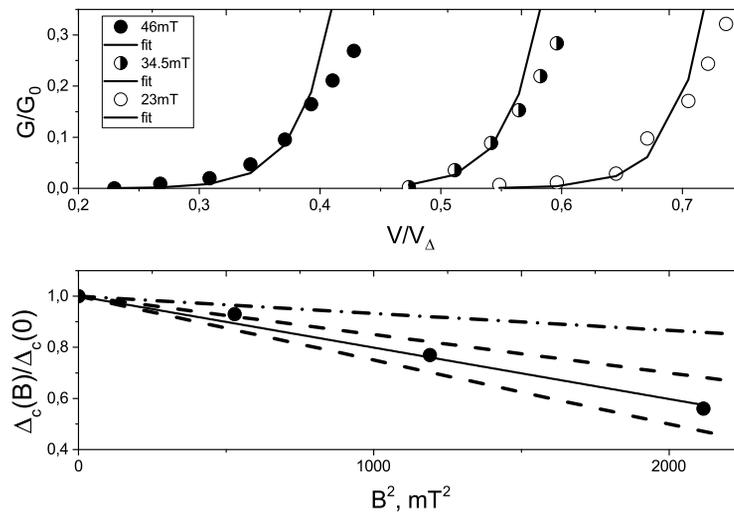


Рис. 8. Вверху: экспериментальные точки, перенесенные с рис. 3 работы [3], линии — фит с использованием формулы (1). Внизу: кружки — значения $\Delta_c(B)/\Delta_c(0)$, сплошная линия — фит линейной функцией, штриховые линии ограничивают снизу и сверху область, соответствующую результатам, представленным на рис. 7 с учетом возможного изменения масштаба по B^2 из-за различия параметров $L \times \xi$ в нашей работе и в [3], штрихпунктир — зависимость $\Delta_c(B)/\Delta_c(0)$, установленная в [3] по результатам измерений в области значений напряжения вблизи V_c

В работе [3] показано, что характерное поле B_Γ равно

$$B_\Gamma = \sqrt{6\hbar e/d\xi} = 0.78\Phi_0/(d\xi), \quad (8)$$

где Φ_0 — квант магнитного потока, а d и ξ — размеры поперек направления магнитного поля (если $d < \xi$). Фитируя экспериментальные значения для СИН1 выражением (6), получим $B_\Gamma = 66$ мТл. При толщине сверхпроводящей пленки $d = 80$ нм, согласно (8), получаем, что длина корреляции $\xi = 340$ нм. Однако, как установлено в разд. 3.1, значение ξ лежит в интервале 115–150 нм. Отметим, что при $\xi = 340$ нм алюминий является сверхпроводником первого рода, что явно противоречит экспериментам в нормальном магнитном поле.

Таким образом, изменение Δ_c сверхпроводника, определяемое по изменению одноэлектронного тока под воздействием поля, не соответствует модели, построенной в [3]. Как отмечено выше, в нашем случае было невозможно получить достаточно достоверные сведения о проводимости исследуемых структур при $V \simeq V_c$. Однако можно показать, что наши экспериментальные зависимости дифференциальной проводимости от напряжения «сшиваются» с приведенным в этой публикации. Так, приведенные в [3] зависимости $G(V)$ при $G(V)/G_n < 0.2$ можно фитировать с использованием формулы (1), верхний рис. 8. Полученные таким способом значения $\Delta_c(B)/\Delta_c(0)$ представлены на нижнем рис. 8. Чтобы сопоставить

эти данные с нашими результатами (рис. 7), надо учесть изменение масштаба по магнитному полю. Значения $L * \xi$ в нашей работе и в [3] равны соответственно 0.014–0.018 и 0.015 мкм². Исходя из этого, результаты для СИН 1 должны лежать в области, ограниченной снизу и сверху штриховыми линиями на нижнем рис. 8.

Как видно, в этой области находятся и результаты нашего анализа данных из работы [3] при малых значениях проводимости. Однако значения $\Delta_c(B)/\Delta_c(0)$, отвечающие максимуму проводимости вблизи V_c , (штрихпунктирная линия), демонстрируют значительно меньшее изменение $\Delta_c(B)/\Delta_c(0)$ и соответствуют теории. Таким образом, есть два параметра, изменяющихся квадратично с полем, характеризующие сверхпроводник: Δ_c^{min} , описывающее экспоненциальное уменьшение одноэлектронного туннельного тока при уменьшении напряжения, и Δ_c^{max} , описывающее проводимость в области максимума проводимости вблизи V_c . В отсутствие поля они совпадают. Соответственно Δ_c^{min} имеет смысл параметра обрезания в спектре Дайнса, и, как следствие, при малых значениях напряжения происходит переход при описании одноэлектронного тока от формулы (5) к формуле (1). Влияние поля, наклонного к поверхности или приложенного по нормали, можно описать формулой (6), однако коэффициент при B^2 больше соответственно примерно в два раза и почти на 2

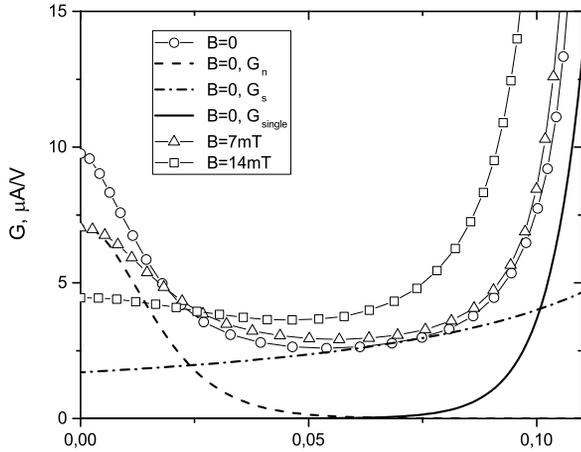


Рис. 9. Дифференциальная проводимость при нескольких значениях индукции касательного магнитного поля и расчетные составляющие проводимости в отсутствие поля

порядка. Качественно это можно объяснить влиянием двух факторов. Во-первых, при нормальном поле вместо размера d надо использовать ξ , что приведет к увеличению коэффициента a в формуле (6) в 4.5 раз. Во-вторых, при сохранении полного потока поле в центральной области пленки мало, а на периферии значительно превышает поле далеко от сверхпроводника. Поэтому именно там, где распаривание, пропорциональное квадрату поля, сильнее, сосредоточен практически весь ток. Это с лихвой перекрывает уменьшение эффективной площади перехода.

3.2.2. Андреевская проводимость, компонента I_n

На рис. 9 приведены зависимости дифференциальной проводимости G СИН от напряжения при нескольких значениях индукции касательного магнитного поля и компонент тока, полученных при фитировании ВАХ в нулевом поле в соответствии с формулами (1) и (3), рис. 2. Согласно рис. 9, значение dI_n/dV при напряжении $V = 0$ соответствует значению $G_A(V = 0) - G_{min}$, использовавшемуся при анализе влияния касательного магнитного поля на андреевскую проводимость в работе [6]. Авторы цитируемой работы со ссылкой на теоретические публикации [18] для описания влияния магнитного поля применяли формулу

$$G_A(V = 0, B) = G_A(V = 0, B = 0) \text{th}(b)/b, \quad (9)$$

$$b = 2^{1/2} \lambda L e B / \hbar = B/B_0,$$

где L — длина нормальной полоски, в пределах ко-

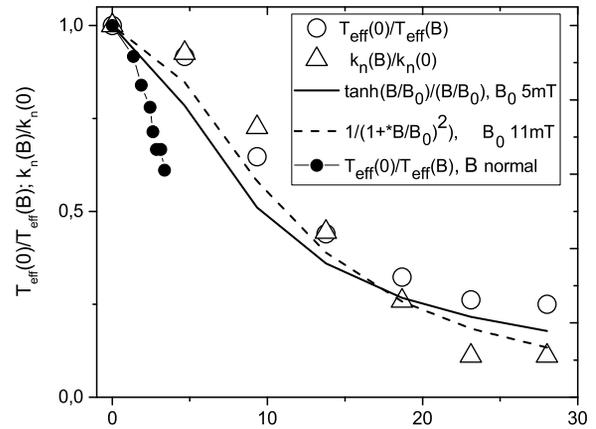


Рис. 10. Зависимости от индукции касательного и нормального к поверхности СИН магнитного поля, приведенных значений параметров k_n (при $T_{eff} = \text{const}$) и T_{eff} (при $k_n = \text{const}$), описывающих компоненту I_n андреевского тока, формула (3)

торой диффундируют электроны. Значение λ в [6] не приведено. Согласно этой формуле, поле влияет на k_n . Примнимость этого подхода вызывает вопросы. Для пленки алюминия, как показано выше и известно из публикаций, λ составляет 150–200 нм. В [6] на рис. 3 в поле 0.28 Тл на порядок больше, чем в настоящей статье (рис. 9), при той же электронной температуре 0.1 К не видно вклада одноэлектронного тока. Исходя из результатов разд. 3.2.1, можно утверждать, что толщина пленки меньше 80 нм примерно в 3 и более раз. Используя формулу (9), можно оценить $B_0 \approx 0.7 - 0.8$ Тл, и при $L = 5$ мкм на второй размер остается около 1 нм. Похоже, авторы [6] ошиблись в расчетах, поэтому нельзя признавать, что теория подтверждена экспериментом. Заметим так же, что представляется странным использовать параметр, описывающий сверхпроводник, для описания процессов в нормальном металле.

На рис. 10 приведены результаты определения $k_n(B)/k_n(0)$ для СИН1 в предположении, что значение $T_{eff}(B = 0) = 0.11$ К не зависит от поля и $k_n(0) = 0.135$ нА в касательном магнитном поле, и расчет дифференциальной проводимости при $V = 0$ по формуле (9) с $B_0 = 5$ мТл. Если в формуле (9) вместо λ подставить толщину пленки 20 нм, то для L получаем значение 5 мкм, что близко к латеральным размерам нормальной пленки.

Альтернативный подход, использованный в работе [7], основан на качественных аргументах. В формуле андреевского тока I_n (2) коэффициент k_n не содержит величин, зависящих от магнитного поля или температуры. А изменение температу-

ры приводит к тому, что при $V = 0$ дифференциальная проводимость, согласно теории, изменяется пропорционально $1/T_e$ (формулы (2) и (4)). В [7] установлено, что реально надо использовать вместо T_e несколько большее значение T_{eff} , что связано с наличием дефектов в пленке металла. Это подтверждают результаты, полученные в [7] и приведенные ниже для многоэлементной структуры из последовательно включенных СИН алюминий-окись алюминия-алюминий с тонким подслоем железа, подавляющим сверхпроводимость. В последнем случае T_{eff} в несколько раз превышает значение $T_e \simeq 0.1$ К. Естественно предположить, что и магнитное поле приводит к изменению эффективной температуры. Поэтому при фитировании ВАХ с использованием формулы (3) считалось, что магнитное поле приводит к изменению T_{eff} . На рис. 10 представлены результаты определения $1/T_{eff}(B)$ при постоянном $k_n(0) = 0.135$ нА для СИН1 в касательном магнитном поле и расчет дифференциальной проводимости при $V = 0$ по формуле

$$T_{eff}(B) = T_{eff}(0)(1 + (B/B_0)^2) \quad (10)$$

с $B_0 = \Phi_0/(dl_\phi) = 11$ мТ, где d — толщина пленки 20 нм, а $l_\phi \approx 9$ мкм пробег электрона с потерей фазы. Эта формула предложена по аналогии с описанием в работе [19] подавления эффекта близости мезоскопической пленки, контактирующей со сверхпроводником. Полученное значение l_ϕ имеет разумное значение по порядку величины, особенно с учетом того, что формула (10) получена из качественных соображений. Согласно рис. 10, в обоих случаях достигается согласие в пределах погрешности определения dI_n/dV при $V = 0$. Однако в следующем разделе показано, что можно предпочесть модель изменения эффективной температуры под воздействием магнитного поля на основании изменения $I_s(B)$ или $I_{Dynes}(B)$. Наряду с результатами, полученными в касательном поле, на рис. 10 представлены результаты измерений в нормальном поле. В этом случае андреевская проводимость изменяется быстрее. Аномальная андреевская проводимость подавляется полем, и основную роль начинает играть центральная область, размеры которой уменьшаются при росте поля. Однако такой локальный подход вряд ли применим, поскольку латеральные размеры $L \ll l_\phi$. Чтобы провести корректное сравнение воздействия на андреевский ток поля при разных его ориентациях нужны эксперименты со структурами, ширина и толщина которых сравнимы и заметно меньше глубины проникновения, чтобы обеспечить однородность поля в сверхпроводнике.

3.2.3. Андреевская проводимость, компонента I_s

Согласно формулам (2), (4), этот ток должен зависеть от магнитного поля, в первую очередь, из-за изменения $\Delta_c(B)$. Возникает вопрос, какое значение надо брать — $\Delta_c^{min}(B)$, $\Delta_c^{max}(B)$ или специфическое значение, описывающее ток $I_s(B)$ при условии $k_s = \text{const}$. Как и в случае тока $I_n(B)$, коэффициент k_s в формулах (2), (4) не содержит величин, зависящих от поля. Нам не известно работ, обсуждающих зависимость от поля тока I_s . Более того, в большинстве работ, посвященных исследованию СИН, за исключением [7], считается, что эта компонента андреевского тока пренебрежимо мала, и вместо нее при анализе вольт-амперных характеристик используется ток Дайнса I_{Dynes} (5). На рис. 11 представлены результаты определения параметров этих токов при фитировании вольт-амперных характеристик с использованием формул (1), (3), (5) при следующих предположениях.

1. При вычислении тока I_n принимаем $k_n = \text{const}$, T_{eff} зависит от поля B .

1.1. k_s ((1), рис. 11 а), альтернативно γ ((5), рис. 11 б), изменяются с полем, щель $\Delta_c^{min}(B)$.

1.2. k_s ((2), рис. 11 а), альтернативно γ ((6), рис. 11 б), изменяются с полем, щель $\Delta_c^{max}(B)$.

1.3. $k_s = \text{const}$ ((9), рис. 11 с) альтернативно $\gamma = \text{const}$ ((10) рис. 11 с) значения щели подбираются при фитировании ВАХ такими, чтобы удовлетворялось это условие.

2. При вычислении тока I_n принимаем $T_{eff} = \text{const}$, k_n зависит от поля B .

2.1. k_s (3), альтернативно γ (7), изменяются с полем, щель $\Delta_c^{min}(B)$.

2.2. k_s (4), альтернативно γ (точки на рис. 8), изменяются с полем, щель $\Delta_c^{max}(B)$.

2.3. $k_s = \text{const}$ (точки на рис. 11 с) альтернативно $\gamma = \text{const}$ (точки на рис. 12 с) значения щели подбираются при фитировании ВАХ такими, чтобы удовлетворялось это условие.

В принципе, не исключена «гибридная» модель с подбором соотношения вкладов от изменения как k_n , так и T_{eff} , обеспечивающих постоянство k_s . Однако при имеющейся точности измерения токов и напряжений делать это не имеет смысла.

Согласно рис. 11, можно исключить из рассмотрения все варианты, отвечающие пункту 2 и некоторые из вариантов пункта 1. Для увеличения с полем андреевского тока I_s (зависимости 2, 3, 4) нет оснований. Ток Дайнса (зависимости 6, 7, 8), в принципе, мог бы увеличиться, но не на десятки процентов, а в несколько раз из-за значительного ушире-

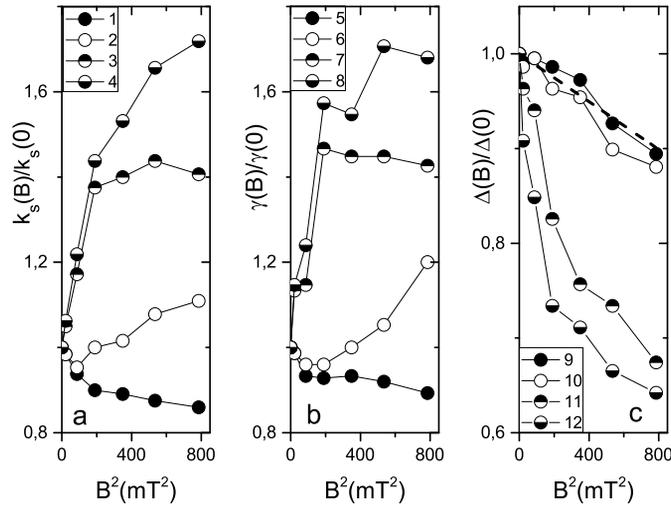


Рис. 11. Зависимость от индукции магнитного поля, приложенного в плоскости СИН, приведенных коэффициентов: *a* — k_s (компонента андреевского тока); *b* — γ (ток Дайнса); *c* — щель $\Delta(k_s = \text{const})$ и $\Delta(\gamma = \text{const})$. Кривые 1, 2, 5, 6, 9, 10 при $k_n = \text{const}$, кривые 3, 4, 7, 8, 11, 12 при $T_{eff} = \text{const}$, кривые 1, 3, 5, 7 при Δ^{min} , кривые 2, 4, 6, 8 при Δ^{max}

ния пика проводимости в области максимума вблизи щели [3]. Уменьшение сверхпроводящей щели, соответствующее постоянству k_s (зависимость 11) или γ (зависимость 12), значительно превышает изменение Δ^{min} . При этом вопреки здравому смыслу во всех этих случаях и вариантов 1.2 (зависимости 1, 5) параметры быстро изменяются в области полей $B < 10$ мТ, а при дальнейшем увеличении поля изменение замедляется или даже прекращается (зависимости 3, 7).

Таким образом, остается всего 2 варианта, отвечающие приемлемому описанию картины — $k_n = \text{const}$, T_{eff} зависит от поля B , $\Delta(k_s = \text{const})$ (рис. 11), зависимость 9, альтернативно $\Delta(\gamma = \text{const})$ (рис. 11), зависимость 10, и эти значения щели, как и Δ^{min} , Δ^{max} квадратично уменьшаются с полем B (рис. 7, 11).

4. ПРОВОДИМОСТЬ МНОГОЭЛЕМЕНТНОЙ СТРУКТУРЫ

В [4, 5, 7] описаны результаты влияния нормального к поверхности магнитного поля и вклад андреевского тока в проводимость «электронного термометра» — структуры, содержащей 100 последовательно включенных идентичных цепочек из 5 параллельно соединенных СИН. Каждый СИН содержит алюминиевый электрод толщиной 80 нм, окись алюминия, нормальный электрод из алюминия с подслоем железа, подавляющим его сверхпроводимость. Площадь СИН-перехода $1.8 \mu\text{м}^2$. Каждый переход

связан с соседними пленками золота с размерами $14 \times 100 \times 0.1 \mu\text{м}^3$. При такой конфигурация структуры подавляются тепловые эффекты.

На рис. 12 приведены вольт-амперная характеристика и полученная ее численным дифференцированием проводимость термометра и ее фитирование с использованием формул (1) и (3). Фитирующая кривая с использованием формулы Дайнса на графике для тока неотличима от фитирования андреевским током по формуле (3). Однако для проводимости

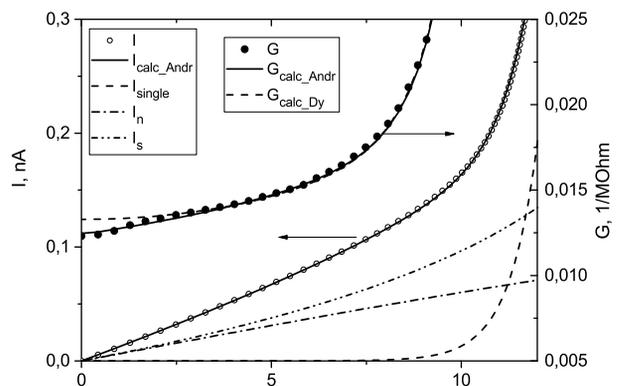


Рис. 12. Измеренные ВАХ и дифференциальная проводимость электронного «термометра» из 100 последовательно включенных СИН и их фитирование с использованием формул (1), (3), (5). Параметры фитирования: $R_n/100 = 90 \text{ Ом}$; $\Delta_c/k = 2.07 \text{ К}$; $T_e = 0.087 \text{ К}$. Для андреевского тока $I_{Andreev}$: $T_{eff} = 1 \text{ К}$; $k_n = 0.098 \text{ нА}$; $k_s = 0.12 \text{ нА}$. Для тока Дайнса I_{Dynes} : $T_e = 0.0865 \text{ К}$; $T_{eff} = 1 \text{ К}$; $k_n = 0.022 \text{ нА}$; $\gamma/\Delta_c = 1.07 \cdot 10^{-4}$

видно различие при малых смещениях, заметно превышающее погрешность измерения. Оно составляет порядка 8% и проявляется потому, что измеряемое напряжение в сто раз больше, чем для одиночного СИН и поэтому отношение сигнал/шум значительно выше.

Отметим, что аномалия дифференциальной проводимости — максимум при $V = 0$, обязанная андреевскому току I_n , не видна. Это связано с тем, что $T_{eff} = 1 \pm 0.3$ К. Очевидно, это связано с магнитным моментом атомов железа, что говорит в пользу модели влияния магнитного поля на эффективную температуру.

5. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Исследование проводимости тонкопленочных СИН-структур в магнитном поле, нормальном к их поверхности, позволило оценить параметры сверхпроводящей пленки — корреляционную длину ξ и глубину проникновения поля λ . Благодаря этому удалось выявить особенность влияния магнитного поля, ориентированного в плоскости структуры с толщиной, много меньшей глубины проникновения, на ее проводимость. При малом напряжении на структуре, когда ее сопротивление при низкой температуре много больше R_n , одноэлектронный ток, как и в отсутствие поля, описывается формулой (1). Однако фигурирующее в ней значение Δ_c изменяется с полем значительно быстрее, чем следует из теоретического рассмотрения распаривания и экспериментов в работе [3]. Такое поведение можно трактовать как обрезание спектра Дайнса и переход от формулы (5) к экспоненциальному спаду тока при уменьшении напряжения.

Двухчастичный андреевский ток (3), определяется как разность измеренного тока и вычисленного одноэлектронного тока. В поле изменение компоненты I_n описывается изменением эффективной температуры T_{eff} при постоянном значении коэффициента k_n . Изменение I_s можно описать, если считать, что k_s не зависит от поля, а квадратично с полем изменяется Δ .

Хотя в этой картине нет места для тока Дайнса, используемого в большинстве работ по исследованию СИН-структур, в настоящей работе такая модель рассматривалась как альтернатива андреевскому току I_s . Почти во всех случаях, за исключением многоэлементного «электронного термометра», в пределах погрешности измерений удавалось фитировать измеренные вольт-амперные характери-

сти в рамках и той, и другой моделей с близкими результатами, касающимися изменения параметров СИН в магнитном поле. Однако благодаря высокой точности измерений для многоэлементной структуры выявлен линейный рост проводимости при малых напряжениях (рис. 12), который характерен для описываемого формулами (2), (3) андреевского тока и противоречит проводимости, определяемой током Дайнса (5).

Ток Дайнса обязан мнимой добавке в спектре возбуждений в сверхпроводнике, связанной с их рассеянием. Это приводит к уширению максимума при $V \simeq \Delta_c/e$. Естественно ожидать, что значительное, в несколько раз, уширение этого пика в магнитном поле [3], должно настолько же увеличить и ток Дайнса. Но этого не происходит. Наконец, в работе [6] для структур, изготовленных по одной и той же технологии, отличающихся только толщиной изолирующего слоя, оказалось, что в модели Дайнса параметр γ , зависящий только от параметров сверхпроводящей пленки, изменяется на порядок. При этом, как видно на рис. 3 этой работы, отношение андреевской проводимости, связанной току I_n , к дополнительной подщелевой проводимости, практически сохраняется, что естественно для компонент андреевского тока. Отметим, что в [7] для разных образцов соотношение этих вкладов также изменяется весьма умеренно — не более чем втрое.

Основная причина, почему игнорируется ток I_s , та, что по теоретической формуле (2) отношение $k_s/k_n \ll 1$. А согласно эксперименту [7] оно для разных структур лежит в пределах 2–7, в десятки раз больше, чем по теории. Правда, если для оценки использовать формулу (4), то расхождение с экспериментом уменьшится примерно втрое. Согласно измерениям в [6] (рис. 4), для пленок с толщиной $d > l$ в соответствующих формулах вместо d надо использовать длину пробега l . Для сверхпроводящей пленки с $d = 80$ нм и длиной пробега $l = 9–15$ нм (разд. 3.1), это приведет к увеличению расчетного значения k_s в 5–9 раз. Медная пленка имеет $d = 20$ нм и $l \approx 10$ нм [7], так что k_n изменится незначительно. Учет этого обстоятельства делает различие теории и эксперимента не столь драматичным.

Таким образом, для описания проводимости туннельных СИН-структур как в магнитном поле, так и без него, при температурах, много меньших T_c , и при напряжениях, при которых туннельный ток много меньше тока в нормальном состоянии сверхпроводящей пленки, достаточно трех компонент: одноэлектронного тока, формула (1), и двух составляющих андреевского тока, формула (3). При этом

независимо от ориентации магнитного поля относительно плоскости структуры, вклад одноэлектронного тока растет пропорционально квадрату поля из-за его влияния на сверхпроводящую щель. Проводимость, обязанная андреевскому току I_n , уменьшается из-за роста эффективной температуры. Изменение тока I_s можно описать уменьшением щели. Нам не известно работ, в которых рассматривается влияние магнитного поля на эту составляющую туннельного тока.

Чтобы сделать эти выводы еще более аргументированными, целесообразно провести эксперименты с аналогичными СИН-структурами с более тонким сверхпроводящим слоем и с шириной меньше глубины проникновения. Это позволит за счет ослабления влияния магнитного поля на одноэлектронный ток расширить область напряжений, в которой доминирует подщелевой ток и провести измерения при ортогональной ориентации поля при его однородности в пределах структуры.

Благодарности. Авторы благодарны Александру Федоровичу Андрееву за интерес к работе и полезные обсуждения. При выполнении работ использовано оборудование Уникальной научной установки № 352529 «Криоинтеграл».

Финансирование. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда, грант <https://rscf.ru/project/23-79-00022/>.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. L. Levine, Phys. Rev. **155**, 373 (1967).
2. J. Millstein, M. Tinkham, Phys. Rev. **158**, 325 (1967).
3. A. Anthore, H. Pothier, and D. Esteve, Phys. Rev. Lett. **90**, 127001 (2003).
4. М. А. Тарасов, В. С. Эдельман, Письма в ЖЭТФ, **101**, 136 (2015).
5. М. Tarasov, A. Gunbina, M. Fominsky, A. Chekushkin, V. Vdovin, V. Koshelets, E. Sohina, A. Kalaboukhov, and V. Edelmann, Electronics **10**, 2894 (2021); <https://doi.org/10.3390/electronics10232894>.
6. T. Greibe, M. P.V. Stenberg, C. M. Wilson, T. Bauch, V. S. Shumeiko, and P. Delsing, Phys. Rev. Lett. **106**, 097001 (2011).
7. А. В. Селиверстов, М. А. Тарасов, В. С. Эдельман, ЖЭТФ **151**, 752 (2017).
8. I. Giaever and K. Megerle, Phys. Rev. **122**, 1101 (1961).
9. F. W. J. Hekking and Y. V. Nazarov, Phys. Rev. B **49**, 6847 (1994).
10. T. Faivre, D. S. Golubev, J. P. Pekola, Appl. Phys. Lett. **106**, 182602 (2015).
11. R. C. Dynes, V. Narayanamurti, and J. P. Garno, Phys. Rev. Lett. **41**, 1509 (1978).
12. A. V. Feshchenko, L. Casparis, I. M. Khaymovich, D. Maradan, O.-P. Saira, M. Palma, M. Meschke, J. P. Pekola, and D. M. Zumbühl, Phys. Rev. Appl. **4**, 034001 (2015).
13. В. С. Эдельман, ПТЭ, No 2, 159 (2009).
14. C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, 4 edition, John Wiley and Sons, Inc [Ч. Киттель, Введение в физику твердого тела, Наука, Москва (1978)].
15. В.В. Шмидт, *Введение в физику сверхпроводников*, МЦМНО (2000).
16. M. R. Eskildsen, M. Kugler, G. Levy, S. Tanaka, J. Jun, S. M. Kazakov, J. Karpinski, and O. Fischer, Physica C: Superconductivity **385**, 169 (2003).
17. I. V. Grigorieva, W. Escoffier, J. Richardson, L. Y. Vinnikov, S. Dubonos, and V. Obozнов, Phys. Rev. Lett. **96**, 077005 (2006).
18. A. F. Volkov and T. M. Klapwijk, Phys. Lett. A **168**, 217 (1992); A. F. Volkov, Phys. Lett. A **174**, 144 (1993); A.F. Volkov, A.V. Zaitsev, and T. M. Klapwijk, Physica C **210**, 21 (1993); A. F. Volkov, Physica B **203**, 267 (1994).
19. D. A. Dikin, M. J. Black, and V. Chandrasekhar, Phys. Rev. Lett. **87**, 187003 (2001); <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.87.187003>.

ФОРМИРОВАНИЕ ПОЛУПРОВОДНИКОВОГО СОСТОЯНИЯ В ОКСИСУЛЬФОСТИБНИТАХ $RSbS_2O$ ПРИ $R = Dy, Ho, Er$

С. Т. Байдак , А. В. Лукоянов*

*Институт физики металлов им. М. Н. Михеева
Уральского отделения Российской академии наук
620108, Екатеринбург, Россия*

*Физико-технологический институт,
Уральский федеральный университет им. Б. Н. Ельцина
620002, Екатеринбург, Россия*

Поступила в редакцию 3 февраля 2024 г.,
после переработки 29 апреля 2024 г.
Принята к публикации 7 мая 2024 г.

Исследованы особенности формирования полупроводникового состояния в оксисульфостибнитах редкоземельных металлов $DySbS_2O$, $HoSbS_2O$ и $ErSbS_2O$. Теоретические расчеты, выполненные в рамках метода $GGA+U$ с учетом электронных корреляций в $4f$ -оболочке редкоземельных элементов, показали, что три соединения, $DySbS_2O$, $HoSbS_2O$ и $ErSbS_2O$, являются полупроводниками с малой по величине прямой щелью 0.06, 0.10 и 0.09 эВ для $DySbS_2O$, $HoSbS_2O$ и $ErSbS_2O$ соответственно в высокосимметричной точке X . Обнаружено, что для формирования запрещенной зоны в оксисульфостибнитах редкоземельных металлов важными оказываются как проведение оптимизации кристаллической структуры, так и учет спин-орбитального взаимодействия. Оксисульфостибниты редкоземельных металлов, как и их слоистые структурные аналоги оксисульфиды, благодаря своим свойствам могут найти широкое применение в биомедицине, фотолюминесценции и других областях.

DOI: 10.31857/S0044451024090104

1. ВВЕДЕНИЕ

Соединения редкоземельных металлов обладают огромным разнообразием физических и химических свойств [1], представляющих как фундаментальный, так и прикладной интерес [2]. В ряду редкоземельных металлов разнообразные применения получили соединения гадолиния [3] и металлов конца ряда лантаноидов. В частности, в последние несколько лет активно исследуются соединения редкоземельных металлов и сурьмы, висмута и других p -элементов, такие как $LaBi$, $GdBi$, $GdSb$, RSb ($R = Y, Ce, Gd, Dy, Ho, Tm, Lu$) и подобные, в которых обнаружены топологические эффекты зонной структуры [4–6]. В то время как бинарные соединения RSb уже были исследованы ранее при помощи различных экспериментальных и теоретических мето-

дов [7, 8], более сложные соединения могут представлять еще больший интерес. Серия молекулярных легированных соединений на основе Gd_2SO_2 нашла применение в виде ультратонких пленок для визуализации холодных нейтронов [9], а также в биомедицине [10], благодаря контролируемому размеру частиц [11, 12] и фотолюминесцентным свойствам [10, 13–15]. Вместе с тем, близкие по химическому составу и слоистой структуре молекулярные соединения $RSbS_2O$ на сегодняшний день совершенно не изучены. Соединения $RSbS_2O$ были синтезированы только в одной экспериментальной работе [16], где сообщается, что они являются полупроводниками p -типа, однако других сведений по данным соединениям обнаружено не было. Электронная структура одного из молекулярных соединений $GdSbS_2O$ была исследована нами в предыдущей работе [17], однако кроме гадолиния другие редкоземельные элементы не рассматривались.

* E-mail: baidak@imp.uran.ru

Таблица 1. Оптимизированные параметры структуры соединений DySbS₂O, HoSbS₂O, ErSbS₂O и их экспериментальные значения [16]. Группа симметрии *P4/nmm*

Соединение	<i>a</i> , Å	<i>b</i> , Å	<i>c</i> , Å	<i>a</i> , Å [16]	<i>b</i> , Å [16]	<i>c</i> , Å [16]
DySbS ₂ O	3.879	3.879	13.997	3.88	3.88	13.83
HoSbS ₂ O	3.817	3.817	13.942	3.85	3.85	13.80
ErSbS ₂ O	3.797	3.797	13.755	3.82	3.82	13.80

Таблица 2. Оптимизированные позиции атомов в стандартизованных координатах в соединениях RSbS₂O (R = Dy, Ho, Er)

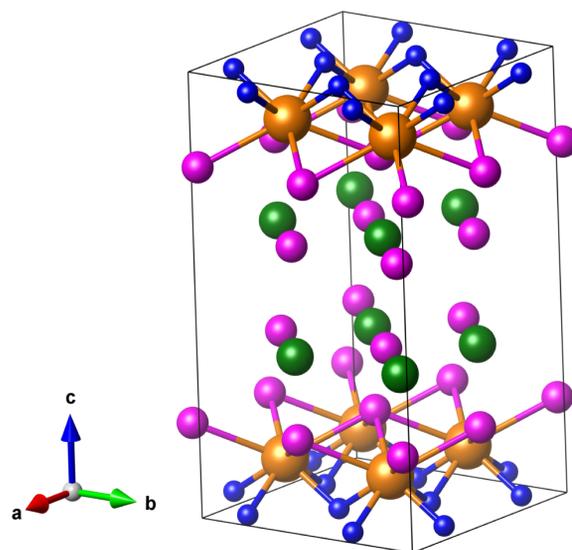
Ион	Символ Вайкоффа	<i>x</i>	<i>y</i>	<i>z</i> (Dy)	<i>z</i> (Ho)	<i>z</i> (Er)
Dy/Ho/Er	2 <i>c</i>	0.25	0.25	0.0864	0.0844	0.0821
Sb	2 <i>c</i>	0.25	0.25	0.6213	0.6155	0.6010
S1	2 <i>c</i>	0.25	0.25	0.390	0.387	0.375
S2	2 <i>c</i>	0.25	0.25	0.846	0.845	0.821
O	2 <i>a</i>	0.75	0.25	0	0	0

2. МЕТОДЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ И КРИСТАЛЛИЧЕСКАЯ СТРУКТУРА

Электронная структура была рассчитана в программном пакете Quantum Espresso [18, 19] с использованием метода DFT+*U*(+SO) [20]. Данный метод широко используется для учета сильных электронных корреляций между электронами 4*f*-оболочки в редкоземельных металлах. Обменно-корреляционный функционал брался в приближении обобщенной градиентной поправки (GGA) версии Perdew – Burke – Ernzerhof (PBE) [21]. Параметры в методе GGA+*U* были выбраны следующие: обменный параметр Хунда $J = 0.7$ эВ и параметр прямого кулоновского взаимодействия $U = 5.8$ эВ для элемента Dy, $U = 5.9$ эВ для элемента Ho, $U = 4.9$ эВ для элемента Er. Для элементов Sb, S и O использовались псевдопотенциалы PAW (projected augmented wave) из библиотеки Quantum Espresso. Для редкоземельных элементов Dy, Ho и Er были взяты PAW-псевдопотенциалы с валентными 4*f*-электронными состояниями [22]. Для получения корректного решения в расчетах были выбраны следующие значения параметров сходимости: отсечение кинетической энергии для волновых функций $E_{cutwfc} = 70$ Ry, отсечение кинетической энергии для электронной плотности и потенциала $E_{cutho} = 700$ Ry, порог сходимости полной энергии для самосогласования 10^{-6} Ry. Представленных значений параметров сходимости достаточно для достижения самосогласования в расчетах.

На рис. 1 представлена кристаллическая структура рассматриваемых соединений, построенная в программе Vesta [23]. Элементарная ячейка соеди-

нений RSbS₂O с группой симметрии *P4/nmm* (номер группы 129) содержит 2 формульные единицы: 2 атома редкоземельной земли, 2 атома сурьмы, 4 атома серы и 2 атома кислорода. Параметры кристаллической структуры соединений по литературным данным [16] и оптимизированные в данной работе показаны в табл. 1; оптимизированные в результате структурной релаксации атомные позиции в стандартизованных координатах приведены в табл. 2. Можно заметить, что кристаллическая структура изученных в данной работе оксисульфидов

**Рис. 1.** (В цвете онлайн) Кристаллическая структура соединений RSbS₂O в программе Vesta [23]. Атомы R показаны оранжевым, атомы Sb — зеленым, атомы S — розовым, атомы O — синим

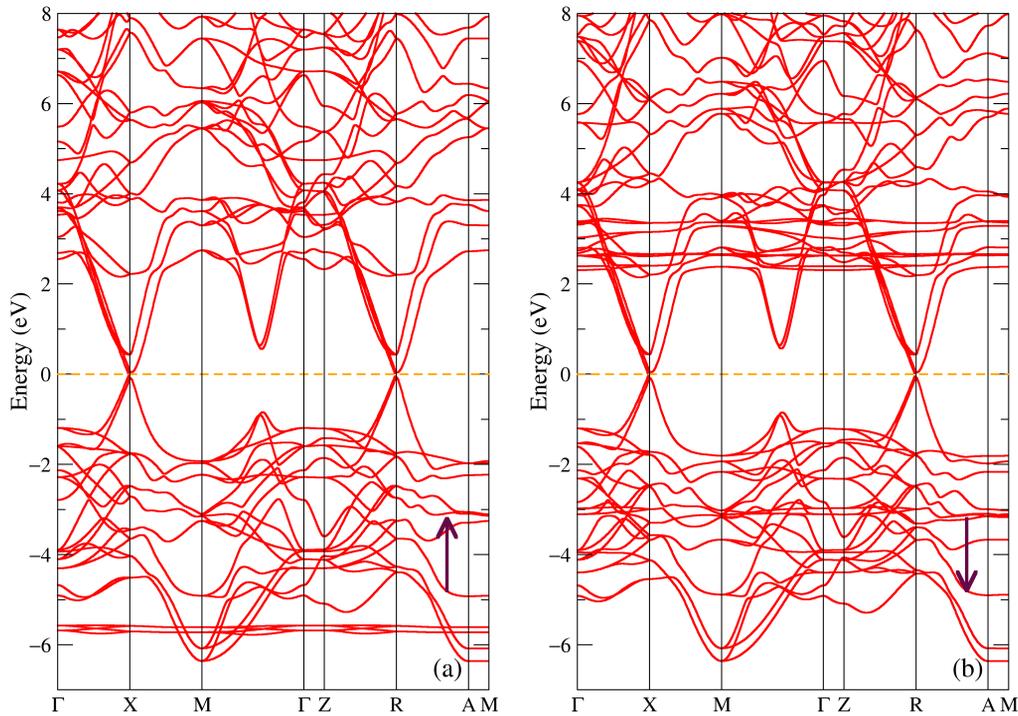


Рис. 2. (В цвете онлайн) Зонная структура соединения DySbS_2O для направлений спиновых проекций вверх (a) и вниз (b)

стибнитов DySbS_2O , HoSbS_2O и ErSbS_2O имеет слоистую структуру с чередованием двух слоев Sb-S и одного слоя S-R-O .

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В работе были проведены расчеты методом $\text{GGA}+U$ для возможных случаев упорядочения магнитных моментов редкоземельных ионов в ячейке, ферромагнитного и антиферромагнитного. Рассчитанные значения полной энергии представлены в табл. 3. Как видно из табл. 3, ферромагнитный порядок оказывается более предпочтительным для всех трех соединений. По причине наибольшей стабильности ниже представлены результаты расчетов именно для данного типа дальнего порядка. Стоит отметить, что в литературе отсутствуют данные о магнитных свойствах оксисульфистибнитов RSbS_2O .

На рис. 2 представлена зонная структура для двух спиновых проекций соединения DySbS_2O . Кристаллическая структура соединения была предварительно оптимизирована в рамках метода $\text{GGA}+U$. На рис. 2 видно, что добавление S_2O к формуле DySb открывает небольшую энергетическую щель в зонной структуре шириной 0.04 эВ для направления спина вверх (рис. 2a) и 0.05 эВ для направления спина вниз (рис. 2b). Наименьшее значение ширины

Таблица 3. Полные энергии DySbS_2O , HoSbS_2O , ErSbS_2O , рассчитанные для случаев ферромагнитного E_{FM} и антиферромагнитного E_{AFM} упорядочений (в эВ/эл. яч.) относительно упорядочения с наименьшей энергией

Соединение	E_{FM}	E_{AFM}
DySbS_2O	0.00	3.02
HoSbS_2O	0.00	6.91
ErSbS_2O	0.00	0.14

щели достигается в высокосимметричной точке X , это говорит о том, что соединение DySbS_2O — полупроводник с узкой прямой щелью шириной 0.04 эВ. Из экспериментов с электрической проводимостью известно, что ширина термической щели в данном соединении равна 1.16 эВ [16]; других экспериментальных данных по соединению DySbS_2O не обнаружено. На рис. 2 также можно заметить присутствие локализованных по энергии зон при энергии -5.7 эВ для одной спиновой проекции и в районе 3.0 эВ для другой спиновой проекции, которые соответствуют состояниям $4f$ -оболочки диспрозия. Полный магнитный момент соединения в расчете оказался равен $10.00 \mu_B$ /форм. ед. и сформирован за счет большого магнитного момента Dy ; о каких-либо исследованиях магнитных свойств в литературе не сообщалось.

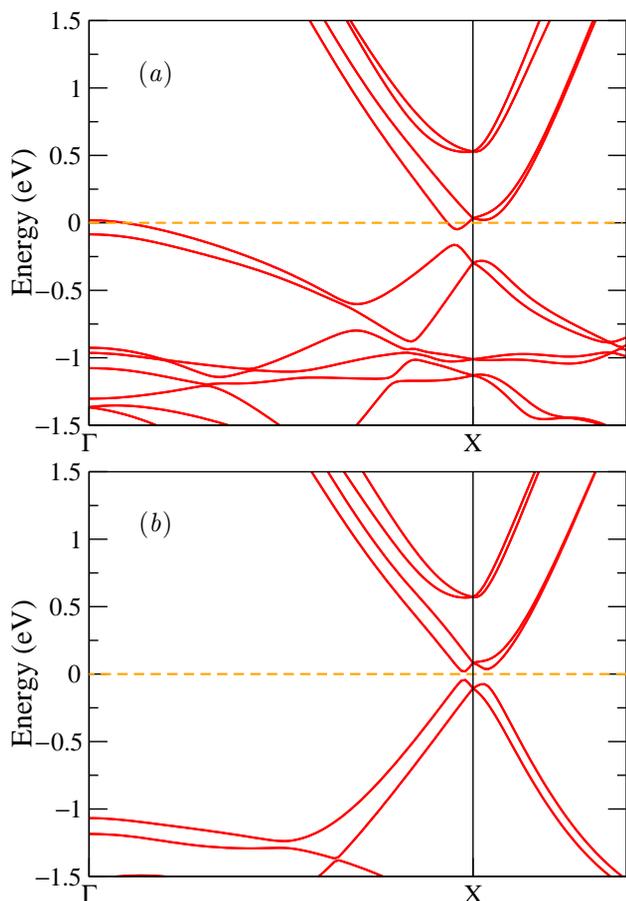


Рис. 3. (В цвете онлайн) Зонная структура соединения DySbS_2O с учетом спин-орбитального взаимодействия без структурной оптимизации (a) и со структурной оптимизацией (b)

На рис. 3a,b представлена небольшая часть зонной структуры возле уровня Ферми, рассчитанная с учетом спин-орбитального взаимодействия. В первом случае (рис. 3a) использовались структурные данные, взятые из литературы [16], а во втором случае (рис. 3b) кристаллическая структура была предварительно оптимизирована в рамках метода $\text{GGA}+U$. Результаты расчетов для случая без оптимизации структуры (рис. 3a) показывают, что соединение является полуметаллом с небольшим дырочным карманом в районе высокосимметричной точки Γ и электронным карманом возле точки X . На рис. 3b (с предварительной релаксацией структуры) зоны, формировавшие дырочный карман в точке Γ , смещаются вниз по энергии на 1 эВ, открывая щель в зонной структуре. Тогда соединение DySbS_2O оказывается полупроводником с прямой щелью шириной 0.06 эВ. Таким образом, сравнивая с рис. 2, можем увидеть, что учет спин-орбитального взаимодействия лишь немного увеличивает ширину запрещенной зоны с 0.04 до 0.06 эВ.

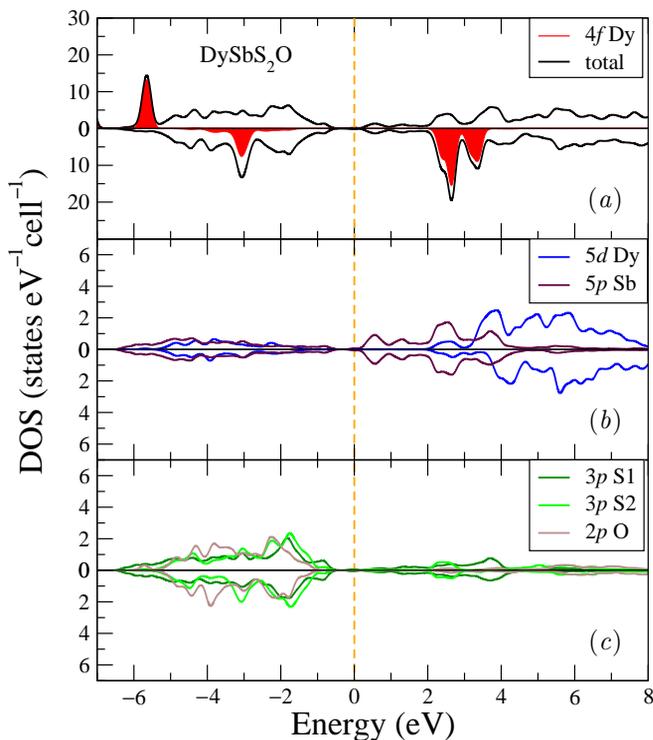


Рис. 4. (В цвете онлайн) Полные и парциальные плотности состояний для соединения DySbS_2O

На рис. 4 представлены полные и парциальные плотности состояний соединения DySbS_2O . Можно заметить несколько пиков интенсивности (рис. 4a) состояний $4f$ Dy при энергии -5.7 эВ для одного спинового направления и при энергиях -3.1 , 2.8 и 3.3 эВ, которые соответствуют локализованным по энергии плоским зонам на рис. 2. Основной вклад в валентную зону дают электронные состояния $3p$ S1, $3p$ S2, $2p$ O, которые появились в структуре с добавлением атомов S и O. Зона проводимости по большей части состоит из электронных состояний $5p$ Sb, которые находились в валентной зоне в бинарном соединении DySb [7], а состояния $5d$ Dy сместились еще выше по энергии относительно того же соединения DySb. Другие (не представленные на рис. 4) электронные состояния имеют пренебрежимо малые вклады в полную плотность состояний.

На рис. 5 и 6 представлена небольшая часть зонной структуры для двух других молекулярных соединений, HoSbS_2O и ErSbS_2O . Предварительно для всех соединений была проведена оптимизация кристаллической структуры. На рис. 5 и 6 видно, что

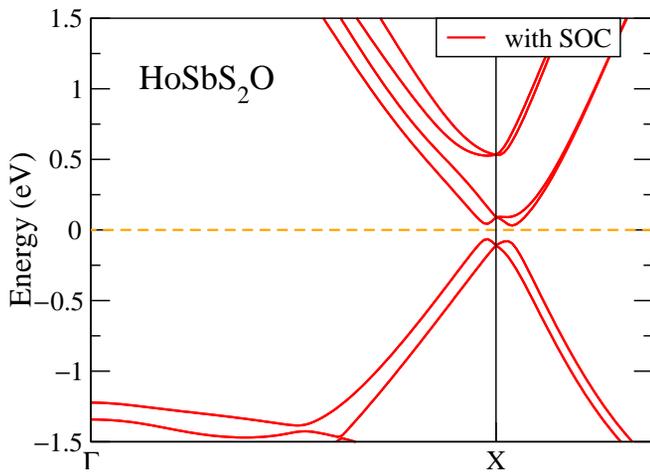


Рис. 5. (В цвете онлайн) Зонная структура соединения HoSbS_2O с учетом спин-орбитального взаимодействия и со структурной оптимизацией

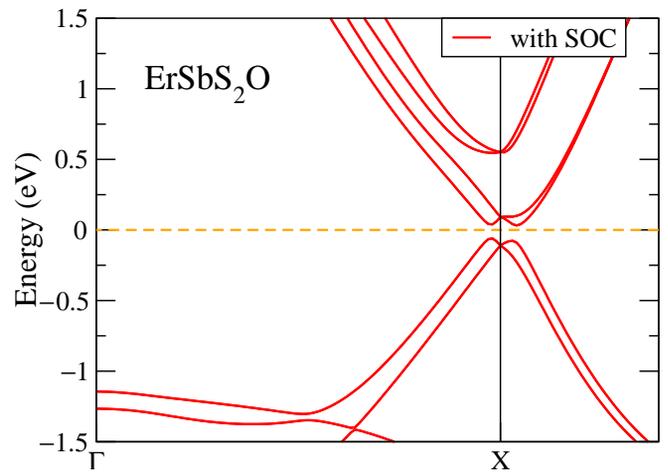


Рис. 6. (В цвете онлайн) Зонная структура соединения ErSbS_2O с учетом спин-орбитального взаимодействия и со структурной оптимизацией

соединения имеют очень похожую зонную структуру. Как и предыдущее рассмотренное соединение DySbS_2O (см. рис. 3*b*), соединения с редкоземельными элементами Ho и Er также оказались полупроводниками с небольшой энергетической щелью в районе высокосимметричной точки X. Ширина запрещенной зоны составила 0.10 эВ для HoSbS_2O (рис. 5) и 0.09 эВ для ErSbS_2O (рис. 6). В литературе приведена только одна оценка термической ширины запрещенной зоны, которая составляет для всех трех оксисульфидистибнитов около 1 эВ [16] и определяется в значительной степени низкой плотностью электронных состояний вблизи уровня Ферми [24], а не их полным отсутствием, см. рис. 4. Однако данная величина вычислена из температурной зависимости удельной электропроводности [16] и требует подтверждения оптическими и спектральными фотоэмиссионными данными, которые по этим соединениям в литературе не представлены. Также были рассчитаны полные магнитные моменты соединений, которые составили 6.09 и 8.08 μ_B /форм. ед. для ErSbS_2O и HoSbS_2O соответственно.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе были впервые теоретически исследованы электронная и зонная структуры трех оксисульфидистибнитов, DySbS_2O , HoSbS_2O и ErSbS_2O . Проведенные расчеты показали, что при использовании метода $\text{GGA}+U$ локализованные электронные $4f$ -состояния редкоземельных элемен-

тов оказываются удалены от уровня Ферми, а потому не должны участвовать в формировании полупроводникового состояния. Все три соединения оказались полупроводниками с небольшой прямой щелью в высокосимметричной точке X. Магнитные моменты соединений достаточно велики и определяются моментами только редкоземельных металлов. Для расчетов с учетом спин-орбитального взаимодействия и с предварительно проведенной оптимизацией кристаллической структуры ширина запрещенной зоны составила 0.06, 0.10 и 0.09 эВ для DySbS_2O , HoSbS_2O и ErSbS_2O соответственно. Можно также отметить, что соединение DySbS_2O оказалось полуметаллом с дырочными и электронными карманами в районе высокосимметричных точек Γ и X в случае, когда релаксация структуры не проводилась. Для формирования запрещенной зоны в оксисульфидистибнитах редкоземельных металлов DySbS_2O , HoSbS_2O и ErSbS_2O необходимо как проведение оптимизации кристаллической структуры, так и учет спин-орбитального взаимодействия. Полученные свойства трех оксисульфидистибнитов свидетельствуют о перспективности их дальнейших исследований для выявления направлений практического использования.

Финансирование. Исследование выполнено в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования РФ (тема «Электрон», № 122021000039-4). Вычисления были выполнены на суперкомпьютере Uran в Институте математики и механики УрО РАН.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. H. L. Voncken, *The Rare Earth Elements*, Springer Briefs in Earth Sciences (2016).
2. V. Balaram, *Geosci. Front.* **10**, 1285 (2019).
3. *Gadolinium: Compounds, Production and Applications*, ed. by C. C. Thompson, Nova Sci. Publ. Inc, UK (2011).
4. J. Nayak, S.-C. Wu, N. Kumar, C. Shekhar, S. Singh, J. Fink, E. E. D. Rienks, G. H. Fecher, S. S. P. Parkin, B. Yan, and C. Felser, *Nat. Commun.* **8**, 13942 (2017).
5. Z. Li, D.-D. Xu, S.-Y. Ning, H. Su, T. Iitaka, T. Tohyama, and J.-X. Zhang, *Int. J. Mod. Phys. B* **31**, 1750217 (2017).
6. Y. Wu, Y. Lee, T. Kong, D. Mou, R. Jiang, L. Huang, S. L. Bud'ko, P. C. Canfield, and A. Kaminski, *Phys. Rev. B* **96**, 035134 (2017).
7. S. T. Baidak and A. V. Lukoyanov, *Materials* **16**, 242 (2023).
8. Yu. V. Knyazev, Yu. I. Kuz'min, S. T. Baidak, and A. V. Lukoyanov, *Sol. St. Sci.* **136**, 107085 (2023).
9. L. Chen, Y. Wu, H. Huo, B. Tang, X. Ma, J. Wang, C. Sun, J. Sun, and S. Zhou, *ACS Appl. Nano Mater.* **5**, 8440 (2022).
10. B. Ortega-Berlanga, L. Betancourt-Mendiola, C. Angel-Olarte, L. Hernández-Adame, S. Rosales-Mendoza, and G. Palestino, *Crystals* **11**, 1094 (2021).
11. J. Lian, X. Sun, J.-G. Li, B. Xiao, and K. Duan, *Mater. Chem. Phys.* **122**, 354 (2010).
12. C. Larquet and S. Carenco, *Inorg. Chem. Front.* **8**, 179 (2020).
13. F. Wang, X. Chen, D. Liu, B. Yang, and Y. Dai, *J. Mol. Struct.* **1020**, 153 (2012).
14. X. Wang, J.-G. Li, M. S. Molokeev, X. Wang, W. Liu, Q. Zhu, H. Tanaka, K. Suzuta, B.-N. Kim, and Y. Sakka, *RSC Adv.* **7**, 13331 (2017).
15. F. Li, M. Jin, Z. Li, X. Wang, Q. Zhu, and J.-G. Li, *Appl. Surf. Sci.* **609**, 155323 (2023).
16. О. М. Алиев и В. С. Танрывердиев, *Ж. неорг. химии* **42**, 1918 (1997).
17. S. T. Baidak and A. V. Lukoyanov, *Int. J. Mol. Sci.* **24**, 8778 (2023).
18. P. Giannozzi, S. Baroni, N. Bonini, M. Calandra, R. Car, C. Cavazzoni, D. Ceresoli, G. L. Chiarotti, M. Cococcioni, and I. Dabo, *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 395502 (2009).
19. P. Giannozzi, O. Andreussi, T. Brumme, O. Bunau, M. B. Nardelli, M. Calandra, R. Car, C. Cavazzoni, D. Ceresoli, and M. Cococcioni, *J. Phys.: Condens. Matter* **29**, 465901 (2017).
20. V. I. Anisimov, F. Aryasetiawan and A. I. Lichtenstein, *J. Phys.: Condens. Matter* **9**, 767 (1997).
21. J. P. Perdew, K. Burke and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865 (1996).
22. M. Topsakal and R. M. Wentzcovitch, *Comput. Mater. Sci.* **95**, 263 (2014).
23. K. Momma and F. Izumi, *J. Appl. Crystallogr.* **44**, 1272 (2011).
24. V. V. Marchenkov, A. V. Lukoyanov, S. T. Baidak, A. N. Perevalova, B. M. Fominykh, S. V. Naumov, and E. B. Marchenkova, *Micromachines* **14**, 1888 (2023).

ОСОБЕННОСТИ τ -ПРИБЛИЖЕНИЯ ДЛЯ ХАОТИЧЕСКИХ ЭЛЕКТРОННЫХ ТРАЕКТОРИЙ НА СЛОЖНЫХ ПОВЕРХНОСТЯХ ФЕРМИ

А. Я. Мальцев*

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

Поступила в редакцию 23 марта 2024 г.,
после переработки 19 апреля 2024 г.
Принята к публикации 20 апреля 2024 г.

Рассматривается особое поведение магнитопроводимости металлов, возникающее при появлении хаотических электронных траекторий на поверхности Ферми. Такое поведение обусловлено рассеянием электронов на особых точках динамической системы, описывающей динамику электронов в \mathbf{p} -пространстве, и вызываемым малоугловым рассеянием электронов на фононах. В этой ситуации система описывается «нестандартным» временем релаксации, которое и играет основную роль в определенном интервале значений температуры и магнитного поля.

DOI: 10.31857/S0044451024090116

1. ВВЕДЕНИЕ

В данной работе мы будем рассматривать гальваномагнитные явления в чистых металлах в пределе сильных магнитных полей. Данный предел можно определить как условие значительного изменения электронных состояний под влиянием поля на временах порядка времени свободного пробега электрона в кристалле, которое предполагается достаточно большим. Как было установлено в 1950–1960-ых гг. (в школе И. М. Лифшица), ключевую роль в описании гальваномагнитных явлений в этом пределе играет геометрия квазиклассических электронных траекторий в присутствии магнитного поля, определяемых системой

$$\dot{\mathbf{p}} = \frac{e}{c} [\mathbf{v}_{\text{gr}}(\mathbf{p}) \times \mathbf{B}] = \frac{e}{c} [\nabla\epsilon(\mathbf{p}) \times \mathbf{B}] \quad (1)$$

(см. [1–4]).

Как хорошо известно, величина \mathbf{p} в системе (1) представляет собой квазиимпульс частицы, определенный с точностью до векторов обратной решетки L^* . Система (1) может при этом рассматриваться и как система в трехмерном торе $\mathbb{T}^3 = \mathbb{R}^3/L^*$ и как система в полном \mathbf{p} -пространстве \mathbb{R}^3 . В последнем

случае, однако, необходимо помнить, что значения \mathbf{p} , различающиеся на векторы обратной решетки, определяют одно и то же квантовое состояние. Дисперсионное соотношение $\epsilon(\mathbf{p})$ может рассматриваться также либо как гладкая функция на торе \mathbb{T}^3 , либо как 3-периодическая функция в \mathbb{R}^3 . В то же самое время движение частицы в \mathbf{x} -пространстве задается соотношением

$$\dot{\mathbf{x}} = \mathbf{v}_{\text{gr}}(\mathbf{p}) = \nabla\epsilon(\mathbf{p}).$$

С точки зрения системы (1) условие сильных магнитных полей может определяться требованием, чтобы электрон успевал пробегать значительную дистанцию ($\gg p_F$) вдоль траекторий системы между двумя последовательными актами рассеяния. Именно в этом пределе большинство эффектов будут определяться геометрией траекторий системы (1), а сам предел можно назвать геометрическим пределом.

Формально, рассматриваемый предел может быть записан как условие $\omega_B\tau \gg 1$, где ω_B играет роль электронной циклотронной частоты в металле, а τ представляет время свободного пробега электронов.

Траектории системы (1) в полном \mathbf{p} -пространстве задаются пересечениями плоскостей, ортогональных магнитному полю и периодических поверхностей $\epsilon(\mathbf{p}) = \text{const}$ (рис. 1). Как также хорошо известно (см., например, [1–6]), основную

* E-mail: maltsev@itp.ac.ru

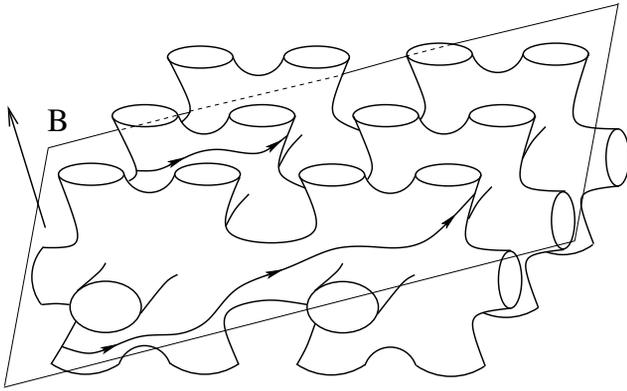


Рис. 1. Траектории системы (1) на периодической поверхности Ферми достаточно сложной формы

роль в физических эффектах играют при этом траектории, лежащие вблизи поверхности Ферми $\epsilon(\mathbf{p}) = \epsilon_F$.

При описании гальваномагнитных явлений (а также и других транспортных электронных явлений) наибольшее различие наблюдается между замкнутыми и открытыми (незамкнутыми) траекториями (1), дающими существенно различные вклады в транспортные явления в пределе $B \rightarrow \infty$. Например, можно видеть огромную разницу во вкладах замкнутых и открытых периодических траекторий в тензор проводимости в этом пределе ([1]):

$$\sigma^{kl} \simeq \frac{ne^2\tau}{m^*} \begin{pmatrix} (\omega_B\tau)^{-2} & (\omega_B\tau)^{-1} & (\omega_B\tau)^{-1} \\ (\omega_B\tau)^{-1} & (\omega_B\tau)^{-2} & (\omega_B\tau)^{-1} \\ (\omega_B\tau)^{-1} & (\omega_B\tau)^{-1} & * \end{pmatrix}, \quad (2)$$

$\omega_B\tau \rightarrow \infty$ (замкнутые траектории),

$$\sigma^{kl} \simeq \frac{ne^2\tau}{m^*} \begin{pmatrix} (\omega_B\tau)^{-2} & (\omega_B\tau)^{-1} & (\omega_B\tau)^{-1} \\ (\omega_B\tau)^{-1} & * & * \\ (\omega_B\tau)^{-1} & * & * \end{pmatrix}, \quad (3)$$

$\omega_B\tau \rightarrow \infty$ (открытые периодические траектории).

В формулах (2), (3) величина n имеет порядок концентрации носителей заряда, а m^* представляет эффективную электронную массу в кристалле. В обоих случаях направление оси z совпадает с направлением магнитного поля, кроме того, во втором случае направление оси x выбрано вдоль среднего направления периодических открытых траекторий в \mathbf{p} -пространстве. Можно видеть, что главное отличие режима (3) заключается в сильной анизотропии проводимости в плоскости, ортогональной \mathbf{B} , что, очевидно, отвечает специфике геометрии периодических открытых траекторий. Формулы (2), (3) определяют при этом асимптотическое поведение

компонент тензора проводимости, в частности, все приведенные компоненты содержат, вообще говоря, еще дополнительные постоянные множители порядка 1. Для величины ω_B можно при этом использовать приближенное соотношение $\omega_B \simeq eB/m^*c$. В целом, приведенные выше режимы наблюдаются в достаточно чистых монокристаллах при довольно низких температурах и достаточно больших значениях B . Оба режима (2), (3) играют при этом важную роль и в более общем случае при появлении траекторий различной формы на поверхности Ферми.

Вместе с тем, как было установлено позднее, режимы (2), (3) не являются единственно возможными, и другие типы открытых траекторий системы (1) могут давать существенно отличающиеся вклады в магнитотранспортные явления в пределе $B \rightarrow \infty$.

Проблема классификации возможных типов траекторий системы (1) с произвольным дисперсионным соотношением была поставлена Новиковым в работе [7]. Эта проблема затем интенсивно исследовалась в его топологической школе (см. [8–15]) и на настоящий момент может считаться решенной в своей главной постановке. В частности, в результате исследований задачи Новикова были описаны все возможные классы открытых траекторий системы (1), которые можно разделить на топологически регулярные (устойчивые и неустойчивые) и хаотические (типа Царева и типа Дынникова). На основании математических результатов стало также возможным введение новых топологических величин, наблюдаемых в проводимости нормальных металлов (см. [16–19]), а также описание новых режимов поведения тензора проводимости в сильных магнитных полях, неизвестных до этого ([20, 21]).

Как можно видеть, например из формул (2), (3), вклад как замкнутых, так и периодических открытых траекторий в тензор проводимости содержит параметр τ , играющий роль общего времени релаксации для кинетического уравнения. Данный факт имеет место и в более общих случаях, и, как мы уже сказали, геометрический предел в магнитотранспортных явлениях отвечает большим временам релаксации и быстрой динамике электронных состояний в магнитном поле. Для вычисления главных показателей в асимптотиках тензора проводимости при этом удобно использовать τ -приближение в кинетическом уравнении, дающее правильные законы убывания компонент $\sigma^{kl}(B)$ при $B \rightarrow \infty$.

При наиболее низких температурах время τ определяется, главным образом, временем рассеяния электронов на примесях τ_{imp} . Интенсивность

электрон-электронного и электрон-фононного рассеяния при этом повышается с ростом температуры, и при более высоких T эти процессы становятся основными. При вычислении проводимости процессы электрон-фононного рассеяния при этом проявляются позже всего, что вызвано малым импульсом фононов при низких T и, как следствие, большими временами импульсной релаксации в этих процессах. Как мы увидим ниже, в наиболее сложных (с эргодической точки зрения) случаях приведенная картина может существенно изменяться. Причиной этого является именно электрон-фононное рассеяние на малые углы, сильно меняющее ситуацию в присутствии траекторий со сложным эргодическим поведением. Как следствие этого, роль электрон-фононных столкновений начинает проявляться значительно раньше, а наиболее естественным в этом случае является, в действительности, введение некоторого эффективного значения $\tau_0(B, T)$, определяемого не только процессами рассеяния, но и особенностями эргодического поведения таких траекторий.

Нам здесь будут интересны наиболее сложные траектории системы (1), а именно хаотические траектории (Дынникова), которые могут возникать лишь на поверхностях Ферми достаточно сложной формы. Эргодическое поведение траекторий Дынникова является наиболее сложным (как в плоскостях, ортогональных \mathbf{V} , так и на поверхности Ферми S_F) и, как мы поясним ниже, имеет важные отличия от поведения траекторий остальных типов. В частности, асимптотическое поведение проводимости при наличии траекторий такого типа на поверхности Ферми существенно отличается от режимов (2) и (3) (см. [20, 21]).

В следующем разделе мы дадим краткое описание общих свойств хаотических траекторий Дынникова, а также соответствующих им особенностей тензора проводимости, необходимое нам для дальнейшего рассмотрения. В разд. 3 мы рассмотрим указанные выше особенности поведения времени релаксации в сильных магнитных полях, свойственные, в действительности, лишь траекториям этого типа.

2. ВОЗНИКНОВЕНИЕ ХАОТИЧЕСКИХ ТРАЕКТОРИЙ И ИХ ГЕОМЕТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА

Хаотические траектории системы (1) могут возникать лишь на достаточно сложных поверхностях Ферми (см., например, рис. 1) при специально подобранных направлениях \mathbf{V} . В частности, ранг поверх-

ности Ферми должен быть равен 3, т. е. поверхность должна простирается в трех независимых направлениях в \mathbf{p} -пространстве.

Поведение траекторий системы (1) на сложных поверхностях Ферми, как правило, довольно сложно зависит от направления магнитного поля. Для их описания при этом удобно использовать угловую диаграмму, указывающую тип траекторий (1) для каждого из направлений \mathbf{V} (т. е. для каждой точки на единичной сфере \mathbb{S}^2).

Почти для каждого направления \mathbf{V} на поверхности Ферми обычно присутствуют замкнутые траектории системы (1). При этом можно отдельно выделить направления \mathbf{V} , при которых на поверхности Ферми присутствуют только замкнутые траектории (1). Соответствующие направления \mathbf{V} образуют открытые области на единичной сфере, объединение которых покрывает обычно большую часть ее площади. Каждую из таких областей при этом можно отнести к «электронному» либо «дырочному» типу, в зависимости от того, имеет ли холловская проводимость электронный или дырочный тип для соответствующих направлений \mathbf{V} .

Угловые диаграммы общего положения можно разделить на два основных типа, а именно, диаграммы, на которых описанные выше области отвечают одному и тому же типу (электронному либо дырочному) и диаграммы, на которых присутствуют области обоих типов. Диаграммы первого типа мы будем называть диаграммами типа А, а диаграммы второго типа — диаграммами типа В.

Кроме областей, отвечающих наличию лишь замкнутых траекторий, угловая диаграмма содержит направления \mathbf{V} , отвечающие появлению открытых траекторий различных типов (периодических, топологически регулярных, хаотических типа Царева, хаотических типа Дынникова) на поверхности Ферми. Как можно показать, для каждого из таких направлений \mathbf{V} возникающие открытые траектории имеют один и тот же тип (см., например, [15]). Именно это обстоятельство делает особенно удобным использование угловых диаграмм при описании траекторий системы (1).

Основу структуры сложных угловых диаграмм составляют зоны устойчивости $\Omega_\alpha \subset \mathbb{S}^2$, отвечающие появлению топологически регулярных открытых траекторий системы (1) на поверхности Ферми. Топологически регулярные открытые траектории устойчивы ко всем малым вращениям направления \mathbf{V} (а также вариациям значения ϵ_F) и имеют сравнительно простой вид в плоскостях, ортогональных \mathbf{V} , а именно, каждая такая траектория ле-

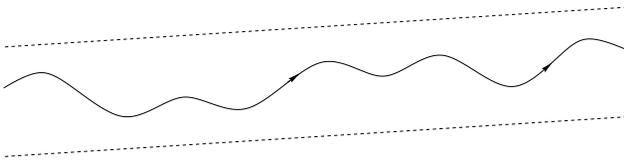


Рис. 2. Вид топологически регулярных открытых траекторий системы (1) в плоскостях, ортогональных \mathbf{B}

жит в некоторой прямой полосе конечной ширины, проходя ее насквозь (рис. 2).

Для вклада топологически регулярных траекторий в тензор $\sigma^{kl}(B)$ в главном порядке можно также пользоваться формулой (3), при условии, что ось x совпадает с их средним направлением в \mathbf{p} -пространстве.

Каждая зона устойчивости Ω_α представляет собой область с кусочно-гладкой границей на сфере S^2 (см. [15]) и отвечает, в действительности, некоторому топологическому инварианту, наблюдаемому в проводимости в сильных магнитных полях (см. [16, 17]).

Важное отличие диаграмм типа А от диаграмм типа В состоит в том, что диаграммы типа А содержат конечное число зон устойчивости (рис. 3). Напротив, диаграммы типа В общего положения содержат бесконечное число зон Ω_α ([22, 23]). Зоны Ω_α на диаграммах типа В образуют квазиодномерные скопления на S^2 , разделяющие области электронной и дырочной холловской проводимости, отвечающие наличию лишь замкнутых траекторий на поверхности Ферми (рис. 3).

В скоплениях зон Ω_α при этом содержатся также бесконечные множества направлений \mathbf{B} , отвечающих появлению хаотических траекторий (1) на поверхности Ферми. Таким образом, именно диаграммы типа В отвечают поверхностям Ферми, на которых возможно появление хаотических траекторий системы (1).

Угловые диаграммы типа В отвечают общей ситуации и для дисперсионных законов $\epsilon(\mathbf{p})$ общего положения возникают в некотором конечном интервале энергий $\epsilon_F \in (\epsilon_1^B, \epsilon_2^B)$. Вместе с тем, ширина интервала $(\epsilon_1^B, \epsilon_2^B)$ может быть весьма невелика для реальных соотношений $\epsilon(\mathbf{p})$. Как следствие этого, поиск материалов, удовлетворяющих условию $\epsilon_F \in (\epsilon_1^B, \epsilon_2^B)$, представляет, в действительности, отдельную задачу. Здесь мы отметим только, что для ряда материалов добиться появления диаграммы типа В, по-видимому, можно, прилагая внешнее воздействие на образец (см. [24]).

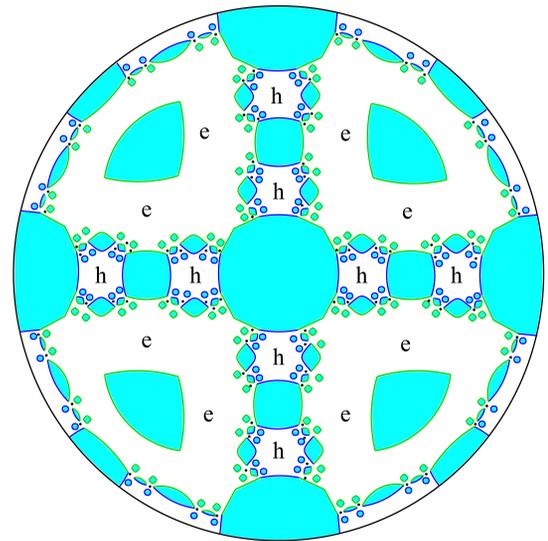
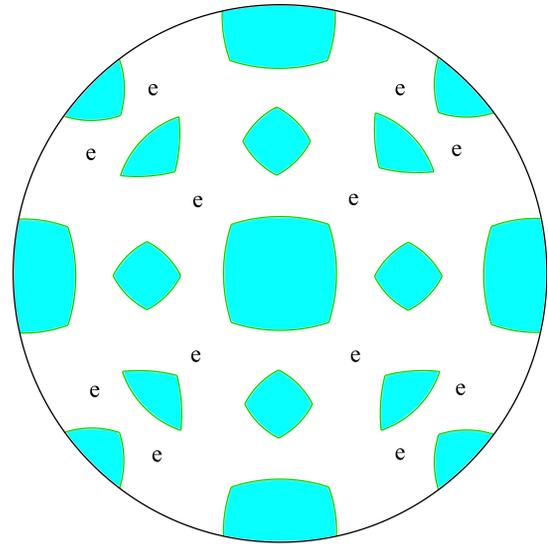


Рис. 3. Угловые диаграммы типа А (вверху) и В (внизу) (схематично). Буквами «e» и «h» отмечены множества направлений \mathbf{B} , отвечающих наличию лишь замкнутых траекторий на поверхности Ферми и холловской проводимости фиксированного типа (электронного и дырочного соответственно)

Как мы уже сказали, хаотические траектории системы (1) разделяются на два основных класса, а именно, траектории типа Царева и траектории типа Дынникова. Траектории типа Царева обладают более простым поведением в \mathbf{p} -пространстве и с этой точки зрения напоминают топологически регулярные открытые траектории (они имеют асимптотическое направление, однако, не могут быть заключены ни в какой прямой полосе конечной ширины в плоскостях, ортогональных \mathbf{B}). Эти траектории, од-

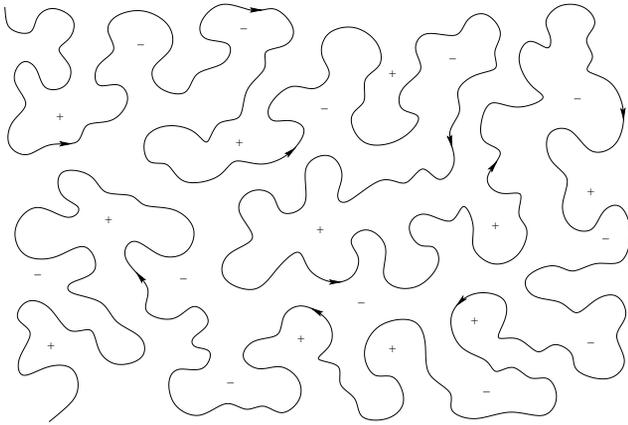


Рис. 4. Вид хаотических траекторий Дынникова в плоскостях, ортогональных \mathbf{V}

нако, обладают довольно сложным поведением на компактной поверхности Ферми $S_F \subset \mathbb{T}^3$ и по этому признаку относятся к хаотическим траекториям системы (1). Отметим здесь также, что как траектории типа Царева, так и траектории типа Дынникова являются неустойчивыми по отношению к малым вращениям направления \mathbf{V} .

Траектории типа Дынникова обладают наиболее сложным поведением, проявляя «хаотические» свойства как в полном \mathbf{p} -пространстве, так и на поверхности $S_F \subset \mathbb{T}^3$. В частности, таким траекториям свойственно «хаотическое» блуждание в плоскостях, ортогональных \mathbf{V} , с постепенным заполнением всех участков таких плоскостей (рис. 4).

При описании траекторий Дынникова на поверхности $S_F \subset \mathbb{T}^3$ надо сразу упомянуть, что такие траектории, вообще говоря, появляются на поверхности Ферми вместе с замкнутыми траекториями системы (1). Замкнутые траектории объединены при этом в конечное число (неэквивалентных) цилиндров, ограниченных сингулярными замкнутыми траекториями (1) (рис. 5). Удаление цилиндров замкнутых траекторий дает нам новую поверхность (с краем) $\hat{S}_F(\mathbf{V})$, содержащую только открытые траектории системы (1).

При наличии траекторий Дынникова на поверхности S_F поверхность $\hat{S}_F(\mathbf{V})$ остается поверхностью довольно большой сложности, в частности, ее род (определяемый после заклейки границы $\hat{S}_F(\mathbf{V})$ плоскими дисками) всегда не менее 3. В подавляющем большинстве случаев можно считать, что $\hat{S}_F(\mathbf{V})$ является в этой ситуации поверхностью рода 3, инвариантной относительно замены $\mathbf{p} \rightarrow -\mathbf{p}$, при этом каждая хаотическая траектория всюду плотно обматывает всю поверхность $\hat{S}_F(\mathbf{V})$. В целом, стохастические свойства траекторий Дынникова облада-

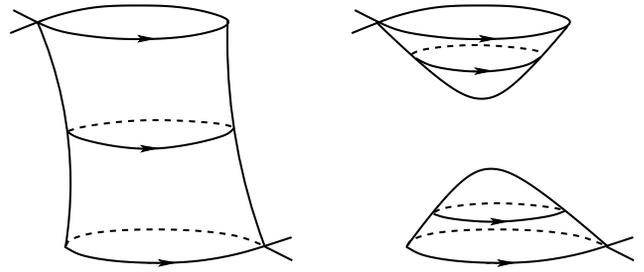


Рис. 5. Примеры цилиндров замкнутых траекторий системы (1) на поверхности Ферми

ют огромным множеством весьма интересных особенностей, которые активно изучаются и в настоящее время (см., например, [12–14, 20, 21, 25–40]).

Одним из следствий столь сложного поведения траекторий Дынникова является их нетривиальный вклад в тензор проводимости в сильных магнитных полях. В частности, этот вклад обращается в нуль в пределе $B \rightarrow \infty$ для всех компонент $\sigma^{kl}(B)$, включая проводимость вдоль направления \mathbf{V} [20]. В интервале $\omega_B \tau \gg 1$ компоненты $\sigma^{kl}(B)$ при этом обладают «скейлинговым» поведением, отражающим скейлинговые свойства хаотических траекторий [20, 21]. Для нас здесь будет также особенно важно, что поверхности такого рода всегда содержат седловые особые точки системы (1), оказывающие важное влияние на динамику электронов в присутствии малолуглового рассеяния.

Скейлинговое поведение хаотических траекторий обладает в общем случае анизотропными свойствами и при подходящем выборе осей x и y для проводимости вдоль главных направлений можно написать

$$\Delta\sigma^{xx}(B) \simeq \frac{n\epsilon^2\tau}{m^*} (\omega_B\tau)^{2\alpha_1-2}, \quad \omega_B\tau \rightarrow \infty, \quad (4)$$

$$\Delta\sigma^{yy}(B) \simeq \frac{n\epsilon^2\tau}{m^*} (\omega_B\tau)^{2\alpha_2-2}, \quad \omega_B\tau \rightarrow \infty, \quad (5)$$

$$\Delta\sigma^{zz}(B) \simeq \frac{n\epsilon^2\tau}{m^*} (\omega_B\tau)^{2\alpha_3-2}, \quad \omega_B\tau \rightarrow \infty \quad (6)$$

($0 < \alpha_1, \alpha_2, \alpha_3 < 1$).

Здесь надо сразу отметить, что, в отличие от соотношений (2), (3), соотношения (4)–(6) не являются главным членом какого-либо асимптотического разложения для $\sigma^{kl}(B)$. Вместо этого, они задают общий «тренд» убывания компонент $\sigma^{kl}(B)$ при $B \rightarrow \infty$, который может обладать также дополнительной (каскадной) структурой в интервале $\omega_B \tau \gg 1$ (рис. 6).

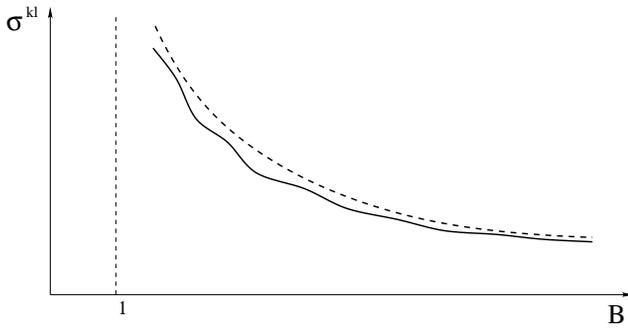


Рис. 6. Поведение компонент тензора проводимости, отвечающего вкладу хаотических траекторий системы (1) типа Дынникова

Можно также отметить, что вклад хаотических траекторий в проводимость должен в общем случае складываться со вкладом замкнутых траекторий (2), которые также, вообще говоря, могут присутствовать на поверхности Ферми. Можно видеть при этом, что вклад хаотических траекторий заметно превышает вклад замкнутых траекторий в проводимость в плоскости, ортогональной \mathbf{B} , и заметно меньше их вклада в проводимость вдоль магнитного поля. С этой точки зрения, возможно, именно исследование проводимости в плоскости, ортогональной \mathbf{B} , является наиболее удобным при изучении геометрии хаотических траекторий.

Как правило, при изучении геометрических свойств траекторий системы (1) исследуется зависимость $\sigma^{kl}(B)$ от величины B при фиксированном (максимальном) значении τ . Здесь нам будет интересна зависимость тензора проводимости от обеих величин B и τ в интервале $\omega_B \tau \gg 1$.

Как можно видеть из формул (4)–(6), величины $\sigma^{ll}(B)$ могут как убывать ($\alpha_l < 1/2$), так и возрастать ($\alpha_l > 1/2$) при увеличении τ . Это обстоятельство, в действительности, вызвано ростом значений σ^{ll} в отсутствие магнитного поля при увеличении τ , и отношение $\sigma^{ll}(B, \tau)/\sigma^{ll}(0, \tau)$ является убывающей функцией τ . Отметим также, что соотношения (4)–(6) должны использоваться в интервале $\sigma^{ll}(B, \tau) \ll \sigma^{ll}(0, \tau)$ ($\omega_B \tau \gg 1$).

В целом, обе зависимости $\sigma^{ll}(B, \tau)$ от обоих аргументов могут использоваться для определения скейлинговых параметров хаотических траекторий. Зависимость от τ (при фиксированном B) при этом является наиболее сильной при α_l , заметно отличающихся от $1/2$, и пропадает при $\alpha_l \simeq 1/2$.

Более подробное рассмотрение соотношений (4)–(6) представлено в работах [16, 17]. Здесь мы отметим лишь главную причину такого поведения компонент $\sigma^{kl}(B)$. Она, как мы уже сказали, лежит в

геометрических свойствах хаотических траекторий в \mathbf{p} -пространстве, а также на компактной поверхности Ферми $S_F \subset \mathbb{T}^3$.

А именно, для поведения проводимости (и других магнитотранспортных явлений) особенно важным оказывается геометрия участков хаотических траекторий длины порядка $v_F \tau$ в координатном пространстве (или $l \sim p_F \omega_B \tau$ в \mathbf{p} -пространстве). Более точно, нам важно знать среднюю величину (модуля) отклонения концов таких участков вдоль каждой из координат x , y и z . Соответствующие средние растут степенным образом с длиной l в \mathbf{p} -пространстве

$$|\Delta p_x(l)| \simeq p_F \left(\frac{l}{p_F}\right)^{\alpha_2}, \quad |\Delta p_y(l)| \simeq p_F \left(\frac{l}{p_F}\right)^{\alpha_1}$$

и, соответственно, согласно закону

$$|\Delta x^i| \sim \frac{v_F}{\omega_B} (\omega_B \tau)^{\alpha_i} \sim \frac{c p_F}{e B} (\omega_B \tau)^{\alpha_i}$$

в координатном пространстве.

Величины α_i лежат в интервале $(0, 1)$, при этом, мы имеем различные степени α_2 и α_1 для некоторых главных направлений p_x и p_y в \mathbf{p} -пространстве, переходящие в координатное пространство (отметим здесь, что проекции траекторий в \mathbf{x} -пространстве на плоскость, ортогональную \mathbf{B} , подобны траекториям в \mathbf{p} -пространстве, повернутым на 90°). Отдельно, скейлинговый параметр α_3 возникает для отклонений вдоль оси z в координатном пространстве. Анизотропное скейлинговое поведение величин $|\Delta x^i|$ выражается в соответствующей анизотропии дрейфа электронов во внешнем электрическом поле, что, в свою очередь, выражается в зависимостях (4)–(6).

При рассмотрении кинетического уравнения в τ -приближении наиболее просто воспользоваться формулой

$$\Delta s^{kl}(B) = e^2 \tau \iint_{\hat{S}_F} \langle v_{\text{gr}}^k \rangle_B \langle v_{\text{gr}}^l \rangle_B \frac{dp_z ds}{(2\pi\hbar)^3}$$

для вклада хаотических траекторий в симметрическую часть тензора проводимости (с учетом спина), где $s = teB/c$ и t — время пробегания по траекториям.

Величины $\langle v_{\text{gr}}^k \rangle_B(p_z, t)$ задаются усреднением на соответствующей траектории

$$\langle v_{\text{gr}}^k \rangle_B(p_z, t) \equiv \frac{1}{\tau} \int_{-\infty}^t v_{\text{gr}}^k(p_z, t') e^{\frac{t'-t}{\tau}} dt',$$

и могут быть приближены формулой

$$\langle v_{gr}^k \rangle_B(p_z, s) \simeq \frac{1}{\tau} \int_{t-\tau}^t v_{gr}^k(p_z, t') dt'$$

при больших значениях параметра τ .

Полагая, непосредственно из системы (1):

$$|\langle v_{gr}^x \rangle_B| = \left| \frac{c\Delta p_y}{eB\tau} \right|, \quad |\langle v_{gr}^y \rangle_B| = \left| \frac{c\Delta p_x}{eB\tau} \right|,$$

мы точно так же получаем связь скейлинговых параметров траектории в \mathbf{p} -пространстве со скейлинговыми параметрами тензора проводимости. (Аналогично, скейлинговый параметр α_z возникает из оценки среднего значения $\langle v_{gr}^z \rangle_B$ вдоль траектории).

Можно видеть, что поведение траекторий Дыникова заметно отличается от обычной диффузии, несмотря на их явное «хаотическое» блуждание в плоскостях, ортогональных \mathbf{V} . До некоторой степени это объясняется отсутствием самопересечений у таких траекторий, а в целом, наличием на них корреляций скорости на сколь угодно больших масштабах, обладающих скейлинговыми свойствами.

Исключительно важным в рассматриваемой ситуации является то, что главные направления, а также скейлинговые параметры α_i (индексы Зорича – Концевича – Форни) являются одними и теми же для каждого фиксированного значения p_z (т.е. во всех плоскостях, ортогональных магнитному полю). Это связано со спецификой поведения таких траекторий на поверхности $\hat{S}_F(\mathbf{V})$, отражающей общие особенности системы (1).

Указанные выше свойства имеют место во всех плоскостях, ортогональных \mathbf{V} , несмотря на множественные перестройки хаотических траекторий при изменении значений p_z . Последние происходят благодаря наличию седловых особых точек системы (1) внутри поверхности $\hat{S}_F(\mathbf{V})$, вызывающих такие перестройки при их пересечении плоскостями, ортогональными \mathbf{V} (рис. 7). Такие точки, повторяясь периодически в \mathbf{p} -пространстве, вызывают перестройки геометрии хаотических траекторий на всех масштабах (рис. 8). Вместе с тем, как мы уже сказали, это не меняет главных направлений и скейлинговых параметров траекторий. Последнее свойство объясняется тем, что перестройки в различных точках при изменении p_z не являются независимыми, а, в действительности, согласованы друг с другом особым (сложным) образом.

Параметр τ , как легко видеть, играет роль времени разрушения корреляций в движении частицы в

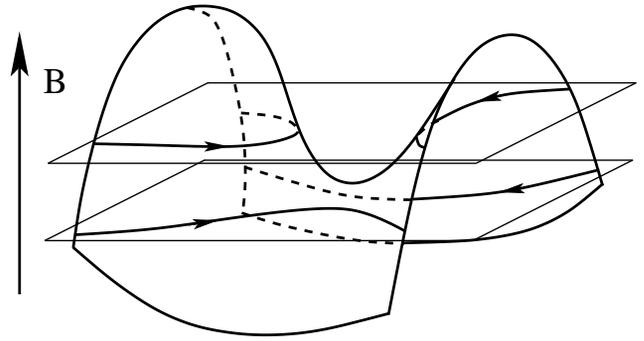


Рис. 7. Перестройка хаотической траектории в \mathbf{p} -пространстве при пересечении седловой особой точки плоскостью, ортогональной \mathbf{V}

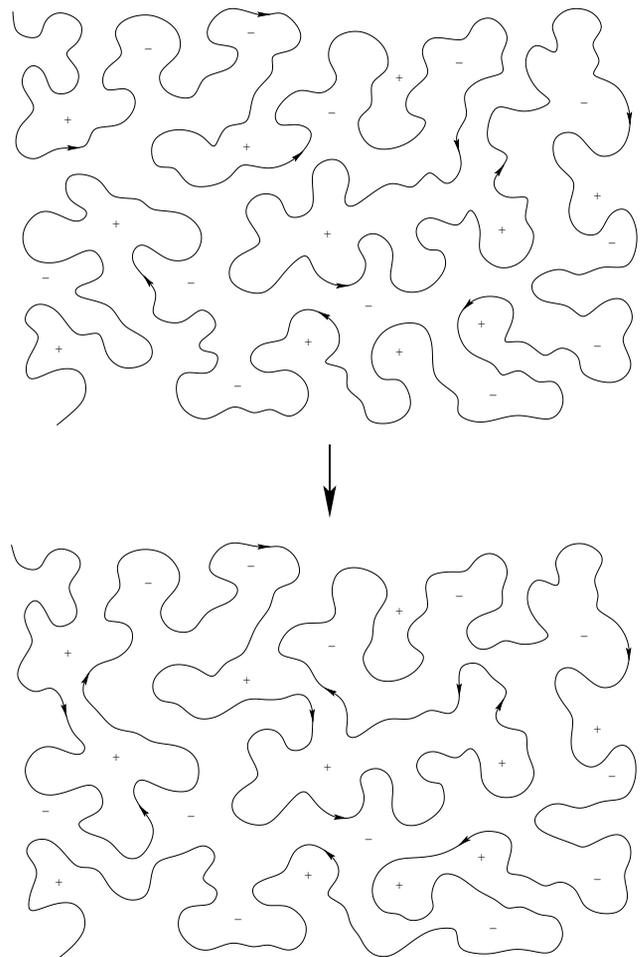


Рис. 8. Множественные перестройки хаотической траектории в \mathbf{p} -пространстве при изменении значения p_z (схематично)

\mathbf{x} - и \mathbf{p} -пространстве. Параметр ω_{BT} определяет при этом масштаб геометрической длины (в \mathbf{p} -пространстве), на которой корреляции еще сохраняются. Забегая вперед, отметим, что нас здесь будут интере-

совать процессы разрушения корреляций в движении электрона, вызванные «дрожанием» значения p_z из-за малоуглового рассеяния на фононах, приводящим к случайным перестройкам хаотических траекторий при прохождении вблизи особых точек системы (1). Этот процесс, как мы увидим, приводит к появлению нового эффективного значения τ , отличающегося в общем случае от времен релаксации за счет других процессов рассеяния.

3. СРЕДНЕЕ ВРЕМЯ СВОБОДНОГО ПРОБЕГА НА ХАОТИЧЕСКИХ ТРАЕКТОРИЯХ

Мы рассмотрим теперь поведение времени свободного пробега электронов на хаотических траекториях в режиме низких температур, где оно становится достаточно большим. Как хорошо известно (см., например, [4–6]), время свободного пробега электронов в монокристалле определяется, главным образом, тремя процессами, а именно, электрон-электронным рассеянием, электрон-фононным рассеянием и рассеянием на примесях. Первым двум процессам при этом свойственна сильная зависимость от температуры, в то время как последний почти не зависит от T .

Для достижения наибольшего времени свободного пробега обычно используются очень чистые образцы при весьма низких температурах, где электрон-электронное и электрон-фононное рассеяние становятся несущественными, а время τ полностью определяется остаточным рассеянием на примесях. В нашем случае, однако, мы будем рассматривать несколько более высокие температуры, где проявляются все три указанных процесса.

Приведем здесь самые приблизительные оценки температурных интервалов, отвечающих интересующим нас интенсивностям указанных процессов, пользуясь самым общими предположениями.

Отметим прежде всего, что в наиболее чистых образцах время электронного рассеяния на примесях τ_{imp} может достигать 10^{-8} с, что соответствует длине свободного пробега $l \sim 1$ см. Эту величину можно, по-видимому, использовать в качестве верхней оценки для τ_{imp} , хотя, в действительности, для рассматриваемых нами эффектов часто достаточно и заметно меньших значений τ (отметим, что при $\tau \sim 10^{-9}$ с значение ω_{BT} в интервале $0.1 \text{ Тл} \leq B \leq 10 \text{ Тл}$ может быть оценено как $10 \leq \omega_{BT} \leq 1000$, что, конечно, достаточно для проявления геометрии сложных траекторий, рассматриваемых нами здесь).

Время электрон-электронного рассеяния может быть оценено (см., например, [6]) по формуле

$$\tau_{ee} \simeq \frac{\hbar}{kT} \frac{\epsilon_F}{kT} \quad (7)$$

(где $\hbar \simeq 6.582 \cdot 10^{-16}$ эВ · с, $\epsilon_F \simeq 5$ эВ), что дает значение $\simeq 10^{-8}$ с при $T = 5$ К.

Таким образом, (грубо) можно полагать, что в рассматриваемой нами ситуации процессы электрон-электронного рассеяния становятся несущественными в сравнении с процессами рассеяния на примесях уже при температурах порядка нескольких кельвинов.

Среднее время между рассеяниями электрона на фононах может быть (см. [6]) оценено как

$$\tau_{ph}^e \simeq \frac{\hbar}{kT} \left(\frac{T_D}{T} \right)^2. \quad (8)$$

Как хорошо известно, однако, это время является временем энергетической релаксации электронов за счет рассеяния на фононах. Время импульсной релаксации τ_{ph}^p при этом значительно больше, поскольку фононы имеют при этом весьма малый импульс

$$p_{ph} \simeq \frac{T}{T_D} p_F \ll p_F,$$

передаваемый электрону в процессе рассеяния. В результате, электрон совершает «диффузионное» движение по поверхности Ферми, многократно рассеиваясь на фононах, а время его импульсной релаксации может быть оценено как

$$\tau_{ph}^p \simeq \tau_{ph}^e \left(\frac{T_D}{T} \right)^2 \simeq \frac{\hbar}{kT} \left(\frac{T_D}{T} \right)^4.$$

Полагая $T_D \simeq 300$ К, для значения $T = 5$ К мы получаем значения $\tau_{ph}^e \simeq 5 \cdot 10^{-9}$ с и $\tau_{ph}^p \simeq 2 \cdot 10^{-5}$ с. Можно видеть, таким образом, что при заданных параметрах область температур, где существенны все три процесса релаксации, лежит вблизи значений $T \simeq 5$ К. Конечно, все приведенные оценки верны лишь по порядку величины, кроме того, сами значения ϵ_F и T_D могут заметно различаться (на порядок) для различных веществ. В целом, можно считать, что интересующий нас интервал лежит вблизи значений T порядка десяти (или десятков) кельвинов и сильно зависит от индивидуальных параметров проводника.

Как также можно видеть, в приведенном выше примере электрон-фононное рассеяние не играет большой роли при вычислении проводимости в стандартной ситуации в силу большого значения τ_{ph}^p по

сравнению с другими временами. (Вместе с тем, оно играет основную роль при вычислении теплопроводности в силу маленького значения τ_{ph}^ϵ .)

Как мы уже сказали выше, мы собираемся рассматривать здесь «нестандартную» ситуацию, а именно, ситуацию появления хаотических траекторий на поверхности Ферми. Как мы также уже говорили, основную роль в этом случае у нас будет играть наличие седловых особых точек внутри носителя хаотических траекторий. Источником особого поведения τ при этом является «дрожание» значения p_z из-за малоуглового рассеяния на фонах, приводящее к неоднозначности движения вдоль траектории при прохождении вблизи особых точек (рис. 7). В этой ситуации малоугловое рассеяние начинает играть весьма существенную роль и, таким образом, время τ_{ph}^ϵ становится существенным при вычислении $\sigma^{kl}(B)$ в сильных магнитных полях.

Нам будет наиболее интересна ситуация, когда данный эффект является основным, что предполагает соотношения

$$\tau_{ph}^\epsilon < \tau_{ee}, \tau_{imp}.$$

Как мы видели выше, для «стандартных» значений ϵ_F (5 эВ) и T_D (300 К) в сверхчистых металлах, это соотношение выполняется при $T \geq 5$ К. Это пороговое значение может быть ниже для материалов со специальными параметрами (условно говоря, высокими значениями ϵ_F и низкими значениями T_D , а также более слабым электрон-электронным взаимодействием и сильным электрон-фононным взаимодействием).

Подходящий нам интервал температур при этом ограничен сверху условием $\omega_B \tau_{ph}^\epsilon \gg 1$. Полагая, например $\omega_B \tau_{ph}^\epsilon \geq 10$, для «стандартного» значения $T_D \simeq 300$ К мы получаем оценки

$$T \leq 40 \text{ К} \quad \text{при} \quad B \simeq 10 \text{ Тл},$$

$$T \leq 20 \text{ К} \quad \text{при} \quad B \simeq 1 \text{ Тл}.$$

(Верхнее пороговое значение T при этом может быть выше для материалов с большим значением T_D , а также больших значениях B .)

Как мы уже сказали, в рассматриваемой нами ситуации, в действительности, появляется еще одно время свободного пробега $\tau_0(B, T)$, обусловленное «рассеянием» электронов на седлах системы (1).

Для оценки времени $\tau_0(B, T)$ мы должны рассмотреть изменения значения p_z при движении вдоль хаотических траекторий системы (1). Поскольку такие изменения вызываются малоугловым

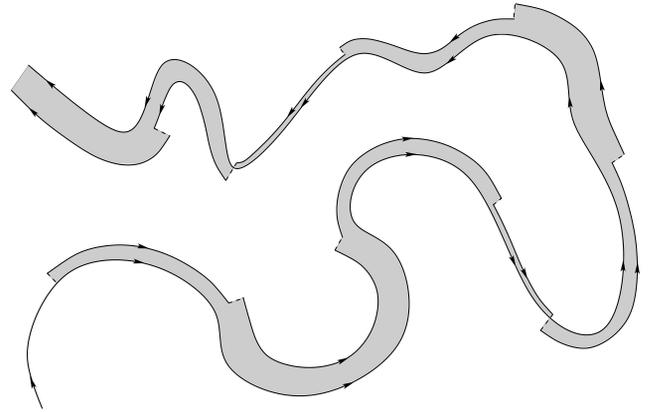


Рис. 9. Узкая полоса, ограниченная исходной и истинной траекториями электрона на сложной поверхности Ферми (схематично)

рассеянием на фонах, мы, во всяком случае, имеем неравенство

$$\tau_0(B, T) \geq \tau_{ph}^\epsilon.$$

Изменение импульса электрона при каждом рассеянии имеет порядок

$$\delta p_0 \simeq \frac{T}{T_D} p_F \ll p_F. \tag{9}$$

Изменение энергии электрона при этом имеет порядок $\delta \epsilon \simeq kT \ll \epsilon_F$. Заметим, что в силу соотношения

$$kT/\epsilon_F \ll T/T_D,$$

можно считать, что электрон фактически все время при этом остается на поверхности Ферми, «дрейфуя» по траекториям системы (1) при многократном рассеянии на фонах.

Траектория движения электрона (в \mathbf{p} -пространстве) почти не меняется при малоугловом рассеянии вдали от седловых особых точек системы (1). Как можно видеть, вместе с исходной траекторией она ограничивает узкую полосу на поверхности Ферми, ширина которой меняется в каждом акте рассеяния (рис. 9). Если при этом в какой-то момент внутрь этой полосы попадает седловая особая точка системы (1), исходная и истинная траектории электрона быстро расходятся в \mathbf{p} -пространстве (рис. 10). В последнем случае можно сказать, что произошло рассеяние электрона на седловой особой точке системы (1), вызванное его малоугловым рассеянием на фонах. Рассеяния на особых точках являются при этом независимыми и разрушают корреляции скорости электрона на временах, превышающих $\tau_0(B, T)$.

Отметим здесь особо, что указанное свойство имеет место именно для особых точек, лежащих

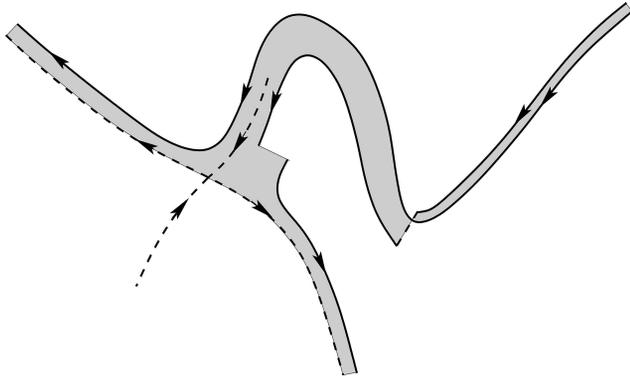


Рис. 10. Рассеяние электрона на седловой особой точке системы (1), вызванное малоугловым рассеянием на фоновых

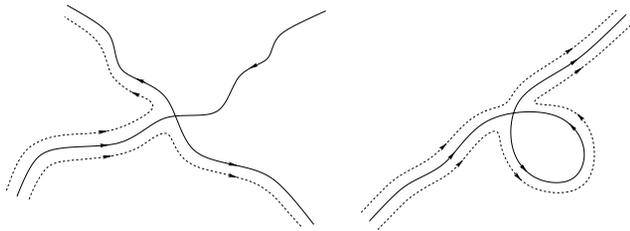


Рис. 11. Траектории, примыкающие к седловым особым точкам системы (1) внутри поверхности $\hat{S}_F(\mathbf{B})$ и на ее границе

внутри носителя открытых траекторий, и не относятся к особым точкам, лежащим на границе $\hat{S}_F(\mathbf{B})$. Данное обстоятельство обусловлено различной геометрией траекторий, примыкающих к таким точкам в первом и во втором случаях (рис. 11). Как можно видеть, перестройка открытых траекторий вблизи точек второго типа не меняет существенно их геометрии на больших масштабах. Отметим также, что наличие особых точек системы (1) внутри носителя открытых траекторий является одной из главных отличительных особенностей хаотических траекторий типа Дынникова и не свойственно траекториям других типов (см. [8, 11, 13–15]).

Как мы уже сказали, электрон испытывает сильное рассеяние в \mathbf{p} -пространстве, если в узкую полосу между исходной (теоретической) и фактической (учитывающей малоугловое рассеяния) его траекториями попадает седловая особая точка системы (1) (рис. 9, 10). Вероятность такого попадания определяется отношением площади соответствующего участка этой полосы к общей площади носителя хаотических траекторий.

Для оценки средней длины l_0 , на которой происходит рассеяние на особой точке, можно приравнять площадь $\Sigma(l_0)$ соответствующей ей полосы на рис. 9

к площади носителя хаотических траекторий (поделенной на количество особых точек внутри него).

Площадь $\hat{S}_F(\mathbf{B})$ равна по порядку величины p_F^2 с некоторым геометрическим коэффициентом, который при этом может быть заметно больше 1. На поверхности $\hat{S}_F(\mathbf{B})$ рода 3, однако, присутствуют 4 различные седловые особые точки системы (1), поэтому для соответствующей площади $\Sigma(l_0)$ мы можем написать приближенно

$$\Sigma(l_0) \simeq p_F^2. \tag{10}$$

Для того чтобы площадь $\Sigma(l_0)$ была ненулевой, конечно, необходимо, чтобы на длине l_0 произошло хотя бы одно рассеяние на фоновом. Длина l_0 , на которой происходит такое рассеяние, равна по порядку величины $\omega_B \tau_{ph}^\epsilon p_F$, при этом типичное отклонение импульса электрона определяется формулой (9).

Можно видеть, таким образом, что время $\tau_0(B, T)$ не может быть меньше времени $\tau_{ph}^\epsilon(T)$, даже если величина $\delta p_0 \cdot \omega_B \tau_{ph}^\epsilon p_F$ превышает площадь носителя хаотических траекторий. В общем случае, между двумя рассеяниями на седлах системы (1) происходит одно либо несколько рассеяний на фоновых.

В частности, условие $\tau_0(B, T) = \tau_{ph}^\epsilon(T)$ (по порядку величины) определяется неравенством

$$\delta p_0 \cdot \omega_B \tau_{ph}^\epsilon p_F \geq p_F^2,$$

т. е.

$$\omega_B \geq \frac{kT}{\hbar} \frac{T}{T_D}$$

(полагая, что на длине $l_0 \simeq \omega_B \tau_{ph}^\epsilon p_F$ происходит лишь одно рассеяние на фоновом).

Вид кривой

$$\omega_B = \frac{kT}{\hbar} \frac{T}{T_D}, \tag{11}$$

разделяющей режимы $\tau_0(B, T) = \tau_{ph}^\epsilon(T)$ и $\tau_0(B, T) > \tau_{ph}^\epsilon(T)$, для «стандартных» параметров металла приведен на рис. 12. Надо сказать, конечно, что эта кривая является в большой степени условной, и скорее можно говорить о некоторой области вблизи нее, разделяющей два указанных режима. Ее положение также, в действительности, сильно зависит от параметров проводника.

Величина $\omega_B \tau_0(B, T)$ на кривой (11) равна

$$\omega_B \tau_0 \simeq \frac{kT}{\hbar} \frac{T}{T_D} \frac{\hbar}{kT} \left(\frac{T_D}{T} \right)^2 = \frac{T_D}{T}$$

и удовлетворяет условию $\omega_B \tau_0 \gg 1$ в интересующем нас интервале. Это условие также хорошо выполняется (в интересующем нас интервале температур) в области $\tau_0(B, T) = \tau_{ph}^\epsilon(T)$ (над кривой).

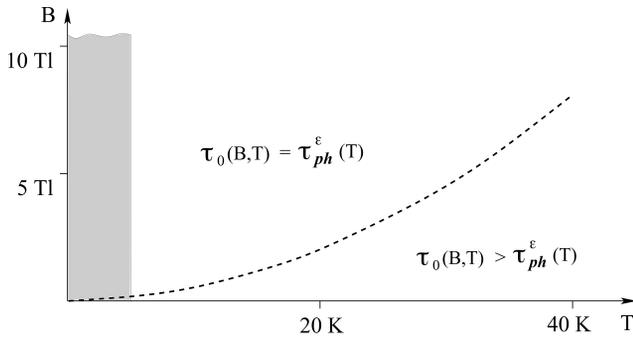


Рис. 12. Условная кривая, разделяющая области с $\tau_0(B, T) = \tau_{ph}^\epsilon(T)$ и $\tau_0(B, T) > \tau_{ph}^\epsilon(T)$ для стандартных значений ϵ_F (5 эВ) и T_D (300 К). Закрашенная область отвечает значениям T , при которых основную роль начинают играть времена τ_{ee} и τ_{imp} (приближенно)

Выполнение условия $\omega_B \tau_0 \gg 1$ в области под кривой (11) требует отдельного исследования (прежде всего, из-за уменьшения значения ω_B в этой области). В общем случае зависимость времени τ_0 от величин B и T здесь может быть довольно сложной.

В пределе $\tau_0(B, T) \gg \tau_{ph}^\epsilon(T)$ (множественное рассеяние на фонах между двумя рассеяниями на особых точках) для определения среднего (по модулю) отклонения Δp вдоль соответствующего участка траектории можно положить

$$\Delta p \simeq \delta p_0 \sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_{ph}^\epsilon}}.$$

Для соответствующей площади полосы на рис. 9, полагая $l_0 \simeq \omega_B \tau_0 p_F$, можно при этом воспользоваться оценкой

$$\Sigma(\tau_0) \simeq \delta p_0 \sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_{ph}^\epsilon}} \omega_B \tau_0 p_F \simeq \frac{T}{T_D} \frac{\tau_0^{3/2}}{\sqrt{\tau_{ph}^\epsilon}} \omega_B p_F^2.$$

Пользуясь соотношением (10), для времени $\tau_0(B, T)$ получим

$$\begin{aligned} \tau_0(B, T) &\simeq \left(\frac{T_D}{T} \frac{\sqrt{\tau_{ph}^\epsilon}}{\omega_B} \right)^{2/3} \simeq \\ &\simeq \left(\frac{T_D}{T} \right)^{4/3} \left(\frac{\hbar \omega_B}{kT} \right)^{1/3} \frac{1}{\omega_B}, \end{aligned} \quad (12)$$

и, таким образом

$$\omega_B \tau_0(B, T) \simeq \left(\frac{T_D}{T} \right)^{4/3} \left(\frac{\hbar \omega_B}{kT} \right)^{1/3}.$$

Надо сказать, однако, что указанный предел, по видимому, может наблюдаться крайне редко, и зависимость $\tau_0(B, T)$ имеет скорее некоторый промежуточный вид между (12) и $\tau_0 = \tau_{ph}^\epsilon$.

Суммируя сказанное выше, можно видеть, что при появлении хаотических траекторий (Дынникова) на поверхности Ферми поведение тензора проводимости в сильных магнитных полях существенно зависит от значения τ_{ph}^ϵ (или $\tau_0(B, T)$). Для ультратонких материалов, более того, можно указать интервалы температур и магнитных полей, где эта зависимость является определяющей для поведения $\sigma^{kl}(B, T)$. В более общей ситуации время релаксации определяется также процессами электрон-электронного рассеяния и рассеяния на примесях, и задается соотношением

$$\tau^{-1} \simeq \tau_0^{-1}(B, T) + \tau_{ee}^{-1}(T) + \tau_{imp}^{-1}.$$

Отметим здесь, что указанное выше свойство связано именно со вкладом хаотических траекторий в тензор $\sigma^{kl}(B, T)$, в частности, в сопутствующем ему вкладе (2) замкнутых траекторий системы (1) время τ определяется соотношением

$$\tau^{-1} \simeq \tau_{ee}^{-1}(T) + \tau_{imp}^{-1}$$

(считая время τ_{ph}^p заметно большим в рассматриваемом интервале температур).

В пределе очень низких температур ($T < 1$ К), где имеют место соотношения

$$\tau_{ph}^\epsilon, \tau_{ee} \gg \tau_{imp},$$

время τ_{imp} при этом играет роль универсального времени релаксации при вычислении тензора проводимости.

Как мы уже отмечали, в силу специфики вклада хаотических траекторий в $\sigma^{kl}(B, T)$, его зависимость от τ проявляется сильнее всего при заметном отличии скейлинговых параметров α_l от 1/2. Эта ситуация, как правило, отвечает также наибольшей анизотропии хаотических траекторий в плоскостях, ортогональных \mathbf{B} (например, $\alpha_1 < 1/2$, $\alpha_2 > 1/2$). При определении зависимости $\tau_0(B, T)$ в рассмотренном нами интервале при этом можно пользоваться значениями α_l , измеренными по зависимости $\sigma^{kl}(B)$ в пределе очень низких температур ($\tau = \tau_{imp}$), где они могут быть определены с наибольшей точностью.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе рассматривается поведение магнитопроводимости металла в особой ситуации, а именно, при возникновении хаотических электронных траекторий на поверхности Ферми. Показано, что в определенном интервале температур и магнитных

полей поведение проводимости в этом случае определяется временем энергетической электрон-фононной релаксации τ_{ph}^ϵ (либо связанным с ним временем $\tau_0(B, T)$), обычно не играющем роли при вычислении проводимости. Причиной этого является рассеяние электронов на особых точках динамической системы, описывающей динамику электрона на поверхности Ферми в присутствии внешнего магнитного поля. Такое рассеяние вызывается, в действительности, малоугловым рассеянием электронов на фононах с малым импульсом, обеспечивая быструю импульсную релаксацию электронов. Общая зависимость тензора проводимости от значений T и B определяется при этом как функцией $\tau_0(B, T)$, так и геометрическими особенностями хаотических траекторий.

ЛИТЕРАТУРА

1. И. М. Лифшиц, М. Я. Азбель, М. И. Каганов, ЖЭТФ **31**, 63 (1956).
2. И. М. Лифшиц, В. Г. Песчанский, ЖЭТФ **35**, 1251 (1958).
3. И. М. Лифшиц, В. Г. Песчанский, ЖЭТФ **38**, 188 (1960).
4. И. М. Лифшиц, М. Я. Азбель, М. И. Каганов, *Электронная теория металлов*, Наука, Москва (1971).
5. Ч. Киттель, *Квантовая теория твердых тел*, Наука, Москва (1967).
6. А. А. Абрикосов, *Основы теории металлов*, Наука, Москва (1987).
7. С. П. Новиков, УМН **37**, 3 (1982).
8. А. В. Зорич, УМН **39**, 235 (1984).
9. И. А. Дынников, УМН **47**, 161 (1992).
10. С. П. Царев, Частное сообщение (1992-1993).
11. И. А. Дынников, Математические заметки **53**, 57 (1993).
12. A. V. Zorich, in: *Proc. Geometric Study of Foliations*, Tokyo, November 1993, ed. by T. Mizutani et al., World Scientific, Singapore (1994), p. 479.
13. I. A. Dynnikov, *Surfaces in 3-Torus: Geometry of Plane Sections*, Proc. of ECM2, BuDA (1996).
14. I. A. Dynnikov, Amer. Math. Soc. Transl. Ser. 2, **179**, AMS, Providence, RI (1997), p. 45.
15. И. А. Дынников, УМН **54**, 21 (1999).
16. С. П. Новиков, А. Я. Мальцев, Письма в ЖЭТФ **63**, 809 (1996).
17. С. П. Новиков, А. Я. Мальцев, УФН **168**, 249 (1998).
18. A. Ya. Maltsev and S. P. Novikov, Solid State Phys., Bulletin of Braz. Math. Society, New Series **34**, 171 (2003).
19. A. Ya. Maltsev and S. P. Novikov, J. Stat. Phys. **115**, 31 (2004).
20. А. Я. Мальцев, ЖЭТФ **112**, 1710 (1997).
21. А. Я. Мальцев, С. П. Новиков, Труды МИАН **302**, 296 (2018).
22. А. Я. Мальцев, ЖЭТФ **154**, 1183 (2018)
23. А. Я. Мальцев, ЖЭТФ **156**, 140 (2019)
24. А. Я. Мальцев, ЖЭТФ **164**, 817 (2023)
25. A. V. Zorich, Annales de l'Institut Fourier **46**, 325 (1996)
26. A. Zorich, *On Hyperplane Sections of Periodic Surfaces., Solitons, Geometry, and Topology: on the Crossroad*, ed. by V. M. Buchstaber and S. P. Novikov, Translations of the AMS, Ser. 2, **179**, AMS, Providence, RI (1997), p. 173, DOI: <http://dx.doi.org/10.1090/trans2/179>.
27. A. Zorich, *How Do the Leaves of Closed 1-Form Wind Around a Surface, Pseudoperiodic Topology*, ed. by V. I. Arnold, M. Kontsevich, A. Zorich, Translations of the AMS, Ser. 2, **197**, AMS, Providence, RI (1999), p. 135, DOI: <http://dx.doi.org/10.1090/trans2/197>.
28. Р. Де Лео, УМН **55**, 181 (2000)
29. Р. Де Лео, УМН **58**, 197 (2003)
30. A. Zorich, *Flat Surfaces, in Collect. Frontiers in Number Theory, Physics and Geometry. Vol. 1: On Random Matrices, Zeta Functions and Dynamical Systems*, Ecole de Physique des Houches, France, March 9-21 (2003) ed. by P. Cartier, B. Julia, P. Moussa, and P. Vanhove, Springer-Verlag, Berlin (2006), p. 439.
31. Р. Де Лео, И. А. Дынников, УМН **62**, 151 (2007)

- 32.** R. De Leo and I. A. Dynnikov, *Geom. Dedicata* **138**, 51 (2009).
- 33.** И. А. Дынников, *Труды МИАН* **263**, 72 (2008)
- 34.** A. Skripchenko, *Discrete Contin. Dyn. Sys.* **32**, 643 (2012).
- 35.** A. Skripchenko, *Ann. Glob. Anal. Geom.* **43**, 253 (2013).
- 36.** I. Dynnikov, A. Skripchenko., *On Typical Leaves of a Measured Foliated 2-Complex of Thin Type; Topology, Geometry, Integrable Systems, and Mathematical Physics: Novikov's Seminar 2012–2014*, *Adv. Math. Sci.*, Amer. Math. Soc. Transl. Ser. 2, **234**, ed. by V. M. Buchstaber, B. A. Dubrovin, I. M. Krichever, *Translations of the AMS*, Providence, RI (2014), p. 173, arXiv: 1309.4884.
- 37.** I. Dynnikov and A. Skripchenko, *Symmetric Band Complexes of Thin Type and Chaotic Sections Which Are Not Actually Chaotic*, *Trans. Moscow Math. Soc.*, **76** (2015), p. 287.
- 38.** A. Avila, P. Hubert, and A. Skripchenko, *Inventiones Mathematicae* **206**, 109 (2016).
- 39.** A. Avila, P. Hubert, and A. Skripchenko, *Bulletin De La Societe Mathematique De France* **144**, 539 (2016).
- 40.** I. Dynnikov, P. Hubert, and A. Skripchenko, *International Mathematics Research Notices IMRN* (2022) (Published online), arXiv 2011.15043.

ИОНОСФЕРНЫЕ ПЛАЗМЕННО-ПЫЛЕВЫЕ ОБЛАКА: ВЛИЯНИЕ НЕУСТОЙЧИВОСТИ РЭЛЕЯ – ТЕЙЛОРА

Ю. С. Резниченко ^{a,b*}, А. Ю. Дубинский ^a, С. И. Попель ^{a**}

^a Институт космических исследований Российской академии наук
117997, Москва, Россия

^b Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет)
141701, Долгопрудный, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 9 февраля 2024 г.,
после переработки 7 апреля 2024 г.
Принята к публикации 26 апреля 2024 г.

Рассмотрены серебристые облака и полярные мезосферные радиоотражения ионосферы Земли, наблюдаемые на высотах около 80–95 км. Представлена самосогласованная модель, описывающая возможный механизм образования таких облаков. Показано, что, в отличие от ионосферы Марса, на Земле снижается влияние таких факторов, как взаимодействие пылевых частиц с налипающими молекулами водяного конденсата и снижение силы вязкого кнудсеновского трения в области нуклеации. Рассчитаны характерные размеры и заряды пылевых частиц облака, предсказываемые моделью. Показано, что важным фактором, влияющим на формирование плазменно-пылевых облаков земной мезосферы, является неустойчивость Рэлея – Тейлора, которая приводит к тому, что имеется ограничение (сверху) на размер микрочастицы облака.

DOI: 10.31857/S0044451024090128

1. ВВЕДЕНИЕ

Пылевая плазма — это ионизированный газ, в состав которого, помимо электронов, ионов и нейтральных атомов и молекул, входят частицы твердого вещества и/или жидкие капли, как правило, микронных или субмикронных размеров. Пылинки и капли, входящие в состав пылевой плазмы, могут как образовываться в ней самопроизвольным образом, так и быть привнесенными извне [1]. За счет взаимодействия с электронами и ионами, а также под действием солнечного излучения пылевые частицы быстро приобретают электрический заряд, чем существенно усложняют динамику плазмы: появляются новые типы волн и неустойчивостей (в частности, возможны наличие пылевой звуковой моды, генерация нелинейных волн за счет развития пылевой звуковой неустойчивости, см. [2,3]), процессы самоорганизации могут приводить к формированию капель, облаков, разного рода структур, плазменно-пылевых кристаллов [1, 4] и т. д.

В природе пылевая плазма распространена очень широко, она встречается в лунной экзосфере [5, 6], в кометных хвостах [7], в планетных ионосферах и магнитосферах [8–10], в межзвездном пространстве [11]. Более того, в Солнечной системе практически невозможно найти область, заполненную плазмой без пылевых примесей (единственным исключением, пожалуй, является само Солнце и зона непосредственно возле него) [1]. Поэтому неудивительно, что с развитием достаточного количества разнообразных методов описания пылевой плазмы [12–16] все больше и больше внимания стало уделяться исследованиям планетных ионосфер. Помимо общетеоретического интереса, такие исследования могут иметь и сугубо прикладное значение, поскольку полезны для физики атмосферы, экологии, геофизики [9]. На Земле, например, нельзя исключать взаимосвязь плазменно-пылевых ионосферных явлений с разного рода климатическими изменениями, в частности, с процессами глобального потепления [10].

Типичными примерами пылевых слоев плазменного происхождения являются земные серебристые облака (noctilucent clouds — NLC) и полярные мезосферные радиоотражения (polar mesosphere summer echoes — PMSE) [17–19]. Эти атмосферные явления регистрируются в летнее время года на близких вы-

* E-mail: reznichenko.yus@phystech.edu

** E-mail: popel@iki.rssi.ru

сотах, причем появления серебристых облаков и полярных мезосферных радиоотражений сильно коррелируют друг с другом. Все это дает основание предположить, что механизм образования и условия появления NLC и PMSE принципиально одинаковы.

Характерный размер частиц NLC составляет несколько сотен нанометров, максимальный размер не превышает одного микрометра. Частицы серебристых облаков в основном состоят из льда, однако возможно наличие примесей, в том числе металлических [17]. Появление серебристых облаков, как уже было сказано выше, ограничено летним сезоном и происходит на мезосферных высотах (около 80–85 км) высоких и средних широт. Характерной особенностью серебристых облаков является возможность их наблюдения на закате невооруженным глазом.

PMSE, в отличие от NLC, никакими известными оптическими методами не обнаруживаются, их регистрация является косвенной: полярные мезосферные радиоотражения проявляются в виде сильных радиоотражений на радарх, чья частота работы находится в диапазоне от 50 до 1000 МГц [18]. Эти облака располагаются выше, чем NLC, на высотах от 85 до 95 км. Характерный размер заряженных частиц PMSE составляет, скорее всего, нанометры [19] или десятки нанометров [20].

В последние два десятилетия, кроме того, было доказано наличие пылевых облаков на Марсе. Так, инфракрасный спектрометр SPICAM (установлен на космическом аппарате Mars Express [21]) зарегистрировал на высотах около 100 км облака, состоящие из частиц с характерным размером около 100 нм. В марте 2021 г. аппарат Mars Science Laboratory Curiosity прислал на Землю снимки подобных облаков, расположенных на высотах, больших 60 км [22]. Фотосъемка проводилась на закате, в то время как солнечные лучи освещали поверхность пылевых частиц и подсвечивали облака на фоне темного неба (ср. с тем, что известно про земные серебристые облака). На более низких высотах (около 80 км над поверхностью планеты) миссией Mars Express с помощью спектрометра OMEGA были обнаружены облака, состоящие из микрометровых частиц [23]. Регистрировались облака и непосредственно над поверхностью планеты, и на высотах около 4 км [24], где по ночам наблюдались тонкие пылевые слои, состоящие из замерзших частиц водяного льда либо углекислого газа [25].

Как было отмечено выше, некоторые модели (см., например, [8–10, 26–28]), описывающие ионосферные пылевые облака, используют методы, раз-

работанные для описания пылевой плазмы. Эти модели показали свою применимость как на Земле, так и на Марсе, дав хорошее соответствие с имеющимися на сегодняшний день экспериментальными данными. Первоначально объектом исследования являлись NLC и PMSE земной ионосферы, в дальнейшем разработанная для Земли модель была адаптирована для пылевых облаков на Марсе. В настоящей статье предлагается развитие модели пылевых облаков в земной атмосфере, предложенной в [8–10], учитывая наработки последних лет. Особое внимание в работе уделяется изучению влияния, которое оказывает на формирование мезосферных плазменно-пылевых структур неустойчивость Рэлея – Тейлора.

2. УСЛОВИЯ В ЛЕТНЕЙ ПОЛЯРНОЙ МЕЗОСФЕРЕ

Плазменно-пылевые мезосферные облака наблюдаются в том высотном диапазоне, где в летнее время года обнаруживается температурная аномалия и, как следствие, резко снижается давление насыщенного водяного пара, что приводит к интенсивному росту пылевых зародышей за счет бурной конденсации атмосферных паров воды.

Пылевые зародыши земной ионосферы представляют собой частицы, чей характерный размер составляет несколько нанометров. Источниками подобного рода частиц являются бомбардировка планеты микрометеоритами, извержения вулканов и лесные пожары. Микрометеориты, попадая в атмосферу планеты, сгорают на высотах 80–120 км с последующей конденсацией метеорного вещества [29], а вулканический пепел и частицы сажи поднимаются из нижних слоев атмосферы. В связи с этим концентрация зародышей сильно зависит от времени года и текущей микрометеоритной активности. Обычно среднее значение концентрации находится в диапазоне $10\text{--}1000\text{ см}^{-3}$. Отметим, что сведения о составе и распределении таких частиц по размерам даются только пролетными ракетными экспериментами [30], так как регистрация подобного рода частиц известными оптическими методами неосуществима. Поэтому указанные числовые данные могут воспроизводить лишь модельные представления о пылевой компоненте в мезосфере Земли [29].

В обычных условиях пылевые частицы не оказывают принципиального влияния на динамику ионосферной плазмы. Ситуация, однако, совершенно меняется в случае, когда присутствующие в атмосфере газообразные вещества становятся пересыщенными. В пересыщенных парах пылевые частицы ак-

тивно растут и, достигнув в определенный момент времени определенного размера, начинают определять ионизационные свойства планетной ионосферы в области своей локализации [9]. Поскольку рост частиц сопровождается взаимодействием с окружающей ионосферной плазмой, частицы быстро приобретают электрический заряд, что в дальнейшем сказывается на их росте. На Земле подобное имеет место на высотах около 80–95 км в летней полярной мезосфере. Здесь снижение температуры окружающего воздуха до 150 К и ниже приводит к тому, что водяной пар, присутствующий в земной ионосфере, становится пересыщенным (см., например, [19]).

На рис. 1 проиллюстрированы условия летней полярной мезосферы Земли, важные с точки зрения физики пылевых облаков. Здесь представлены высотные профили температуры нейтрального газа, давления насыщенных водяных паров и фактического (парциального) давления паров воды. Условия для роста (нуклеации) частиц выполняются в диапазоне высот около 77–94 км, где пары воды пересыщены. Отметим, что именно в этом высотном диапазоне наблюдаются серебристые облака и полярные мезосферные радиоотражения.

Рассматриваемая область земной атмосферы с точки зрения термодинамики водяных паров может быть разделена на три характерные части: сред-

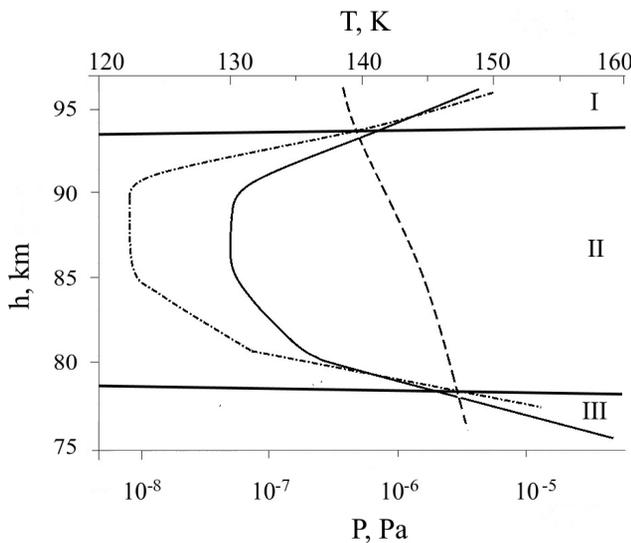


Рис. 1. Качественные высотные профили температуры воздуха (сплошная кривая), парциального давления паров воды (штриховая кривая) и давления насыщенных паров воды (штрихпунктирная кривая). Пары воды пересыщены в диапазоне высот 77–94 км. С точки зрения динамики пылевых микрочастиц рассматриваемая область атмосферы Земли может быть разделена на зоны седиментации с постоянной массой (I), конденсации (II) и сублимации (III)

нюю часть с сильно пересыщенными парами воды и две периферические области ненасыщенных паров. С точки зрения динамики пылевых частиц верхнюю область ненасыщенных паров можно назвать зоной седиментации с постоянной массой, среднюю — зоной конденсации, нижнюю — зоной сублимации. В области конденсации происходит рост пылевых зародышей ионосферы за счет десублимации паров H_2O , вследствие чего оказывается возможным формирование слоистой структуры пылевого облака [8–10, 26]. В зоне сублимации идет процесс испарения ранее сконденсировавшихся водяных паров с поверхности пылевых частиц, приводящий в конечном итоге к исчезновению пылевого облака, время жизни которого, таким образом, определяется временем седиментации микрочастиц в средней зоне.

Вычисление концентрации насыщенных водяных паров $n_{H_2O}^S$ над поверхностью частицы проводится стандартным образом [31]. Для этой цели вводится термодинамический потенциал системы Φ , состоящей из пылевой частицы, на поверхности которой происходит конденсация молекул H_2O , и прилегающего к частице слоя газа указанных молекул. Поскольку пылевые частицы заряжены и, кроме того, наряду с нейтральными молекулами окружены ионами и электронами, экранирующими поле пылевой частицы, необходимо учитывать электростатическое взаимодействие. Таким образом, учитываются зависимости $n_{H_2O}^S$ от размера a и заряда $q_d = Zde$ пылевых частиц ($-e$ — заряд электрона), который также является функцией размера a частицы. Термодинамический потенциал системы Φ имеет вид

$$\Phi = m_d(\tilde{f}_d + Pv_d) + m_g(\tilde{f}_g + Pv_g) + \sigma S + \Psi_E, \quad (1)$$

где P — давление, $\tilde{f}_d(v_d, T)$ — удельная свободная энергия пылевой частицы, $\tilde{f}_g(v_g, T)$ — удельная свободная энергия газа, $v_{d(g)}$ — удельный объем пылевой частицы (газа), T — температура, $m_{d(g)}$ — масса пылевой частицы (газа), σ — коэффициент поверхностного натяжения вещества частицы, S — площадь поверхности пылевой частицы. Что касается электростатической энергии Ψ_E , то она складывается из энергии электрического поля в пределах пылевой частицы (индекс «in») и в остальном пространстве (индекс «out»):

$$\Psi_E = \int_{in} \frac{\epsilon E^2}{8\pi} dV + \int_{out} \frac{E^2}{8\pi} dV. \quad (2)$$

Здесь ϵ — диэлектрическая проницаемость вещества пылевой частицы, E — электрическое поле, V — объем.

Уравнение, связывающее значение давления P_S насыщенных паров H_2O над частицей размера a , обладающей поверхностным зарядом q_d , и значение давления P_0 насыщенных паров H_2O над плоской поверхностью, выводится на основании анализа экстремумов выражения (1) в предположении сферической симметрии пылевой частицы, постоянства величины ε , а также экранировки электрического поля пылевой частицы в соответствии с зависимостью Юкавы. Однако влияние заряда пылевой частицы на процесс конденсации оказывается не очень существенным, в связи с чем можно воспользоваться упрощенной моделью, представленной в [9]. Значение концентрации $n_{\text{H}_2\text{O}}^S$ определяется из P_S с помощью хорошо известного соотношения для идеального газа:

$$n_{\text{H}_2\text{O}}^S = \frac{P_S}{kT}.$$

Рост частиц за счет десублимации пересыщенных паров сопровождается их зарядкой. Особенно сильно ионосферы на рассматриваемых высотах является ее сложный состав (присутствуют электроны, положительные и отрицательные ионы). Все положительные ионы могут быть условно разделены на две группы. Первая группа включает в себя простые (иначе — первичные) ионы азота N_2^+ , кислорода O_2^+ и монооксида азота NO^+ . Образование первичных ионов происходит под действием солнечного излучения, а также в результате ионизации электронным ударом. Во вторую группу входят кластерные (иначе — протон-гидратные) ионы типа $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_n$ (здесь n — степень гидратации, как правило, $n \leq 10$), которые конверсируются из первичных в ходе цепочки реакций перезарядки [32]. Основополагающее влияние на долю того или иного вида положительных ионов в мезосфере оказывает температура окружающей нейтральной компоненты T_n . Обусловлено это тем, что энергия связи протон-гидратных ионов при больших значениях степени гидратации очень мала. Так, например, если температура окружающего воздуха превышает 160 К, то кластерные ионы с параметром гидратации $n \geq 10$ не образуются, так как разрушение подобных ионов при столкновениях с нейтралами идет значительно эффективнее, чем процесс их образования из простых. В результате имеет место преобладание кластерных ионов с малой степенью гидратации и первичных ионов. Отметим, что коэффициент электрон-ионной рекомбинации α_{rec} сильно зависит от вида ионов: легкие простые ионы имеют эффективный коэффициент рекомбина-

ции $\alpha_{rec} \sim 10^{-7} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$, в то время как у кластерных ионов $\alpha_{rec} \sim 10^{-5} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$.

Наличие отрицательных ионов в ионосфере также возможно [33], однако в нашем случае их присутствие несущественно, поскольку, например, характерная концентрация наиболее часто встречающихся ионов O_2^- оказывается равной $N_{\text{O}_2^-} \approx 0.1\text{--}1 \text{ см}^{-3}$ (см. [9]), что значительно меньше характерных концентраций положительных ионов и электронов на исследуемых высотах:

$$n_e \approx n_i \approx (q_e/\alpha_{rec})^{1/2} \approx 10^2\text{--}10^4 \text{ см}^{-3}.$$

Отметим, что представленное в статье рассмотрение учитывает несколько упрощенную модель ионного состава ионосферной плазмы. Дальнейшее усовершенствование модели предполагает использование более детального ионного состава (см., например, [34, 35]).

Зарядка микрочастицы происходит за счет рекомбинации электронов и ионов на ее поверхности, что, в свою очередь, приводит к значительному снижению концентрации заряженной компоненты ионосферы в районе полярных мезосферных облаков [9]. Еще одним фактором, приводящим к зарядке микрочастиц, может быть влияние солнечного излучения [8, 9]. Ионизация пылевой частицы, обусловленная фотоэффектом, характеризуется скоростью q_{photo} и определяется потоком солнечного излучения $F(\lambda)$ [8]:

$$q_{photo} \approx \frac{\pi a^2 \beta}{hc} \int_0^{\lambda^*} \lambda F(\lambda) d\lambda,$$

где λ^* — максимальная длина волны фотона, приводящая к фотоэффекту (определяется минимальной энергией световых квантов), β — вероятность фотоэффекта. Типичные значения β обычно лежат в пределах $10^{-4}\text{--}10^{-2}$, причем, как правило, $\beta < 10^{-3}$ [9].

Минимальная энергия световых квантов $2\pi\hbar c/\lambda^*$, приводящая к фотоэффекту, определяется работой выхода W материала пылевой частицы и ее зарядом:

$$2\pi\hbar c/\lambda^* = W - e^2 Z_d/a.$$

В данном случае можно не учитывать зависимость фототока электронов от размера заряда пылевой частицы, так как энергия фотона $2\pi\hbar c/\lambda^*$ по порядку составляет несколько эВ, а порядок равновесного потенциала микрочастицы равен

$$e^2 |Z_d|/a \sim kT_e \approx 0.01 \text{ эВ} \ll 2\pi\hbar c/\lambda^*,$$

см. [9], при этом $T_e/e \approx T_n/e$, где $T_n \approx 0.03 \text{ эВ}$ — температура нейтрального газа ионосферы. Таким

образом, можно считать, что максимальная длина волны фотона, приводящая к фотоэффекту, определяется только работой выхода материала пылевой частицы.

Влияние фотоэффекта может быть важным для достаточно крупных частиц, для частиц наномасштабных размеров влияние фотоэффекта не столь существенно из-за малого сечения поглощения. Кроме того, высокоэнергетическая часть солнечного спектра с $\hbar\omega \geq 7.3 \text{ эВ}$, что соответствует $\lambda \leq 75 \text{ нм}$, интенсивно поглощается атмосферой на высотах $h \approx 100 \text{ км}$ (см. [9]). Работа выхода льда W_{ice} приблизительно равна 8.7 эВ , поэтому на ледяных частицах фотоэффект отсутствует, и такие частицы имеют отрицательный заряд. В случае же, если частица содержит металлические примеси, что возможно для частиц метеорного происхождения, имеет место снижение работы выхода W (так, например, для железа $W \approx 4.6 \text{ эВ}$), и в зависимости от своего размера подобная частица может нести на себе положительный заряд. Фотоэффект в этом случае играет важную роль в ионизационном балансе, так как темп ионизации, ассоциированный с фотоэффектом, оказывается сопоставимым с темпом ионизации от естественных источников:

$$q_{photo} \approx \pi a^2 \beta \Phi(\lambda^*) \sim 0.1 - 10 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1} \sim q_e,$$

где

$$\Phi(\lambda^*) = \int_0^{\lambda^*} F(\lambda) d\lambda$$

— кумулятивный поток излучения (см. [9]).

3. ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

При построении модели плазменно-пылевых структур описание эволюции функции распределения пылевых частиц $f_d(h, a, v, t)$ на высоте h проводится с помощью кинетического уравнения

$$\frac{\partial f_d}{\partial t} + \frac{\partial f_d}{\partial a} \frac{da}{dt} + \frac{\partial f_d}{\partial h} \frac{dh}{dt} + \frac{\partial f_d}{\partial v} \frac{dv}{dt} = 0, \quad (3)$$

$$\frac{da}{dt} = \frac{\alpha_{\text{H}_2\text{O}} m_{\text{H}_2\text{O}} v_{\text{H}_2\text{O}}^{th} (n_{\text{H}_2\text{O}} - n_{\text{H}_2\text{O}}^S)}{4\rho_d}, \quad (4)$$

$$\frac{dv}{dt} = (mg - F_f + f) \frac{1}{m} = g - \frac{F_f}{m} + \frac{f}{m}, \quad (5)$$

$$F_f = \pi \rho C_S a^2 F_d v, \quad (6)$$

$$f = u \frac{dm}{dt}, \quad (7)$$

$$\frac{dh}{dt} = -v, \quad (8)$$

где $\alpha_{\text{H}_2\text{O}}$ — коэффициент аккомодации молекул

воды при столкновении с пылевой частицей (обычно в сильно пересыщенных парах $\alpha_{\text{H}_2\text{O}} \sim 1$), m и $m_{\text{H}_2\text{O}}$ — массы микрочастицы и молекулы воды соответственно, $n_{\text{H}_2\text{O}}$ и $n_{\text{H}_2\text{O}}^S$ — фактическая и насыщенная концентрации конденсирующихся водяных паров, ρ и ρ_d — плотности атмосферного газа и материала пылевой частицы, $v_{\text{H}_2\text{O}}^{th}$ и C_S — тепловая скорость молекул воды и скорость звука в атмосферном газе, v — скорость пылевой частицы, $u = -v$ в зоне конденсации и $u = 0$ в зоне сублимации, F_d — коэффициент порядка единицы, отражающий влияние формы частицы, g — ускорение свободного падения. Второе слагаемое в левой части (3) описывает рост пылевых частиц в окружающем пересыщенном водяном паре, четвертый член описывает седиментацию (подъем) пылевой частицы при взаимодействии с нейтралами (neutral drag) с учетом слагаемого dm/dt в уравнении движения.

Поскольку скорость звука и средняя тепловая скорость — величины одного порядка, вклад каждого из двух тормозящих факторов (F_f/m и f/m) зависит от параметров ионосферы (плотности конденсирующихся и/или создающих сопротивление газов). Как было показано в [36], в условиях атмосферы Марса режим оседания пылевых частиц, несмотря на изотропное распределение углекислого газа, существенно различен для зон конденсации и сублимации. Действительно, динамика системы «пылевая частица + газ» в зоне конденсации описывается уравнением

$$\frac{dP}{dt} = m \frac{dv}{dt} + v \frac{dm}{dt} = mg - F_f,$$

из которого следует

$$m \frac{dv}{dt} = -v \frac{dm}{dt} + mg - F_f = mg - F_f + f,$$

где dm — масса конденсирующегося газа, P — суммарный импульс пылевой частицы и газа. Концентрации десублимирующего углекислого газа велики, а сила вязкого трения в этом случае обуславливается лишь 5% примесных газов, поэтому $F_f \ll f$ и основным тормозящим фактором оказывается взаимодействие пылевой частицы с налипающими на нее молекулами конденсата. В зоне сублимации член с f исчезает, так как в этом случае испаряющиеся молекулы углекислого газа и микрочастица покоятся друг относительно друга. Физически это означает, что оторвавшиеся от частицы молекулы испарившегося CO_2 тормозятся не за счет ускорения частицы, а за счет передачи кинетической энергии молекулам атмосферы. Кроме того, в зоне сублимации уже весь

газ марсианской атмосферы создает силу вязкого трения и, таким образом, динамика газа и пылевой частицы в этом случае описывается уравнением

$$\frac{dP}{dt} = m \frac{dv}{dt} = mg - F_f.$$

В случае земной атмосферы плотность конденсирующихся водяных паров ничтожна по сравнению с плотностью азота и кислорода, составляющих основную массу атмосферного газа. Так, концентрация нейтрального газа атмосферы около высот в 80 км примерно равна $n_n \approx 5 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$; давление водяных паров на этой высоте $P_{\text{H}_2\text{O}} \approx 10^{-6} \text{ Па}$, что при $T \approx 130 \text{ К}$ дает $n_{\text{H}_2\text{O}} \approx P_{\text{H}_2\text{O}}/kT \approx 5 \cdot 10^8 \text{ см}^{-3}$. Поэтому, во-первых, величина относительной поправки силы вязкого кнудсеновского трения в зоне конденсации составляет $n_{\text{H}_2\text{O}}/n_n \approx 5 \cdot 10^8/5 \cdot 10^{14} = 10^{-6} \ll 1$. Во-вторых, на протяжении всего времени седиментации к поверхности Земли основной вклад в торможение микрочастиц вносит вязкое трение. Действительно, поскольку в зоне конденсации $u \sim v$, $v_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{th}} \sim C_S$, отношение

$$\begin{aligned} f/F_f &= u(dm/dt)/\pi\rho C_S a^2 F_d v = \\ &= u\alpha_{\text{H}_2\text{O}} m_{\text{H}_2\text{O}} v_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{th}} (n_{\text{H}_2\text{O}} - n_{\text{H}_2\text{O}}^S) / \rho C_S F_d v \sim \\ &\sim m_{\text{H}_2\text{O}} (n_{\text{H}_2\text{O}} - n_{\text{H}_2\text{O}}^S) / \rho \sim \rho_{\text{H}_2\text{O}} / \rho \ll 1. \end{aligned}$$

Таким образом, по сравнению с ионосферой Марса, на Земле снижается влияние таких факторов, как взаимодействие пылевых частиц с налипающими молекулами водяного конденсата и снижение силы вязкого кнудсеновского трения в области нуклеации.

Отметим также, что в мезосфере оказывается возможным пренебречь коагуляцией пылевых частиц при их столкновениях друг с другом [9]. Характерное время τ_{coag} такого процесса значительно превышает все остальные значимые характерные времена:

$$\tau_{\text{coag}} \sim (n_d v \pi a^2)^{-1} \geq 10^6 \text{ с.}$$

Кроме того, оказывается возможным пренебречь броуновским движением частиц. Действительно, характерная величина смещения частицы может быть оценена по формуле

$$\langle x^2 \rangle = 2kT B \tau = \frac{2kT\tau}{\pi\rho C_S a^2},$$

где $B = 1/(\pi\rho C_S a^2)$ — подвижность частицы в разреженной газовой среде. При значениях температуры среды $T \sim 100 \text{ К}$, размера частицы $a \sim 20\text{--}100 \text{ нм}$, времени седиментации $\tau \sim 1\text{--}10 \text{ ч}$, типичных

для серебристых облаков, диффузионный дрейф оказывается $\sim 0.01\text{--}10 \text{ м}$, что составляет менее 1% от высоты падения.

Описание влияния пылевых частиц на динамику заряженной компоненты ионосферы проводится с помощью системы уравнений, состоящей из четырех уравнений непрерывности [8, 9] и записывающейся в локальном приближении (использование локального приближения оправдано, так как в ионосфере Земли перенос пылевых частиц происходит существенно быстрее, чем их зарядка). Данная система имеет вид

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = q_e - \alpha_{\text{rec}}^s n_e n_i^s - \alpha_{\text{rec}}^c n_e n_i^c + L_{\text{photo}}^e - L_{\text{dust}}^e, \quad (9)$$

$$\frac{\partial n_i^s}{\partial t} = q_e - \alpha_{\text{rec}}^s n_e n_i^s - \beta_c n_i^s - L_{\text{dust}}^s, \quad (10)$$

$$\frac{\partial n_i^c}{\partial t} = \beta_c n_i^s - \alpha_{\text{rec}}^c n_e n_i^c - L_{\text{dust}}^c, \quad (11)$$

$$\frac{\partial Z_d}{\partial t} = q_{\text{photo}} + \nu_s + \nu_c - \nu_e, \quad (12)$$

где n_e , n_i^s , n_i^c — концентрации электронов, первичных и кластерных положительных ионов соответственно.

Здесь члены L_{dust}^j ($j = e, s, c$) описывают рекомбинацию заряженных частиц ионосферной плазмы (электронов, первичных и протон-гидратных ионов) на пылевых частицах с учетом распределения dn_d микрочастиц по размерам,

$$n_d = \int f_d dv da,$$

причем

$$L_{\text{dust}}^j = \int \nu_j dn_d;$$

L_{photo}^e учитывает рождение электронов в результате фотоэффекта,

$$L_{\text{photo}}^e = \int q_{\text{photo}} dn_d;$$

слагаемые ν_e , ν_s , ν_c описывают скорости зарядки, вызванные рекомбинацией электронов и ионов на поверхности пылевой частицы. Величина β_c есть скорость конверсии первичных ионов в протон-гидратные. Ионизация пылевой частицы, обусловленная фотоэффектом, характеризуется скоростью q_{photo} и определяется потоком солнечного излучения $F(\lambda)$ (см. выше).

Гибель первичных и протон-гидратных ионов и электронов в процессе зарядки за счет их рекомбинации на поверхности микрочастиц приводит к значительному снижению концентрации заряженной компоненты ионосферы в районе полярных мезосферных облаков [9]. Расчет микроскопических

токов положительных ионов и электронов окружающей плазмы на пылевые частицы проводится с помощью зондовой модели (orbit-limited probe model) [37, 38]. Сечения взаимодействия ионов и электронов с заряженной частицей в рамках зондовой модели определяются из законов сохранения энергии и момента импульса. Если пылевые частицы заряжены отрицательно, то зондовое приближение приводит к следующим выражениям для скоростей зарядки:

$$\nu_e \approx \pi a^2 \left(\frac{8T_e}{\pi m_e} \right)^{1/2} n_e \exp \left\{ \left(\frac{eq_d}{aT_e} \right) \right\},$$

$$\nu_i \approx \pi a^2 \left(\frac{8T_i}{\pi m_i} \right)^{1/2} n_i \left(1 - \frac{eq_d}{aT_i} \right).$$

Для положительно заряженных пылевых частиц выражения для ν_e , ν_i принимают вид

$$\nu_e \approx \pi a^2 \left(\frac{8T_e}{\pi m_e} \right)^{1/2} n_e \left(1 + \frac{eq_d}{aT_e} \right),$$

$$\nu_i \approx \pi a^2 \left(\frac{8T_i}{\pi m_i} \right)^{1/2} n_i \exp \left\{ \left(-\frac{eq_d}{aT_i} \right) \right\},$$

где T_e и T_i — температуры электронов и ионов, m_k — масса частицы сорта k .

Уравнения модели выписаны в рамках одномерного приближения (пространственная координата — высота частицы h). Оправданность такого приближения связана с тем, что вертикальный размер мезосферных облаков (~ 1 км) значительно меньше горизонтального (~ 10 – 100 км), а горизонтальные скорости переноса пылевых частиц меньше или порядка вертикальной скорости переноса, поэтому полагаем, что на рассматриваемых временах (часы, см. [8, 9]) горизонтальным смещением частиц можно пренебречь.

Согласно расчетам в рамках приведенной здесь модели характерные размеры пылевых частиц мезосферных облаков составляют $a \simeq 200$ – 250 нм. Соответствующие заряды микрочастиц оказываются $q_d \sim 50e$ при наличии фотоэффекта и $q_d \sim -10e$ в случае его отсутствия [9]. Отметим, что наличие у частицы заряда $|q_d| \sim 10e$ приводит к заметному возмущению заряженной компоненты ионосферной плазмы, поскольку суммарный заряд пылевых частиц становится сопоставимым с равновесными суммарными зарядами электронов и ионов.

Вычисленные параметры пылевых частиц, совпадая по порядку с экспериментальными данными, все же несколько превышают характерные наблюдаемые значения ($a \simeq 100$ нм и $q_d \simeq -2e$ для ночного случая, см. [8, 21]). Данный факт может быть

связан с процессами, не учтенными в расчетах на основе описанной выше модели. Среди таких процессов важной представляется неустойчивость Рэлея–Тейлора [39], развитие которой должно происходить естественным образом на границе раздела в системе «газ + пыль», находящейся в поле силы тяжести, в ситуации, когда верхнее полупространство занято пылью и газом, а нижнее — только газом [28, 40]. Пылевые облака, как это следует из наблюдений, имеют резкую нижнюю границу, ниже которой концентрация пылевых частиц оказывается ничтожной по сравнению с концентрацией частиц в облаках. Механизмы образования подобной резкой границы связаны с плазменно-пылевыми и некоторыми другими физическими процессами, в частности, с наличием в ионосфере воздушных потоков, движущихся со скоростью $v_{wind} \gtrsim 0.1$ см/с, а также с ограниченностью ресурсов водяных паров (см. [8–10]). Вообще говоря, решения в рамках гидродинамического подхода при описании плазменно-пылевых систем, имеющие резкие границы, достаточно типичны (см., например, [41]).

Динамика границы системы газа и пыли, не ограниченной в горизонтальном направлении, в этом случае описывается системой уравнений Эйлера и непрерывности, линеаризация которой при исследовании устойчивости стационарного решения приводит к дисперсионному уравнению

$$\tilde{\gamma}^3 + \tilde{\gamma}^2 \left[\alpha \left(1 + \frac{n_d m}{2\rho} \right) + \frac{|\mathbf{k}|g}{\alpha} \right] + \tilde{\gamma} |\mathbf{k}|g - \frac{n_d m |\mathbf{k}|g \alpha}{2\rho} = 0. \quad (13)$$

Здесь $|\mathbf{k}|$ — волновое число, $\tilde{\gamma}$ — инкремент неустойчивости, n_d — концентрация пылевых частиц,

$$\alpha = 2\sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{G n_{\text{H}_2\text{O}} T}{\rho_d v_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{th}} a},$$

где G — коэффициент порядка единицы, определяемый особенностями взаимодействия нейтралов с поверхностью частицы. Так, например, $G = 1$ в случае полного поглощения или зеркального отражения нейтралов от поверхности частицы при столкновении и $G = 1 + \pi/8$ в случае полной аккомодации [15]. Дисперсионное уравнение (13) получено при условии достаточной малости электрических полей и справедливо, в том числе, при $|\mathbf{E}| \sim 1$ В/м, что, как можно ожидать [8], выполняется в условиях земной ионосферы.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ

Система уравнений (3)–(12) позволяет определить высотное распределение частиц, составляющих серебристые облака. На рис. 2 представлена иллюстрация такого распределения. Начальный размер пылевых частиц облака равен 10 нм. Попадая в зону конденсации, пылевые частицы начинают увеличиваться в размерах за счет десублимации паров H_2O . Верхние слои, находящиеся изначально на границе раздела зон с пересыщенными и ненасыщенными парами, эволюционируют медленнее слоев, изначально располагавшихся непосредственно в зоне конденсации. По наступлении определенного момента времени частицы достигают характерных размеров ≈ 0.2 – 0.3 мкм. Характерное время седиментации пылевого облака по порядку составляет часы/десятки часов.

Как было отмечено выше, результаты, полученные согласно (3)–(12), превышают наблюдаемые данные примерно в 2–3 раза, в связи с чем необходимо отдельно учитывать факторы, не рассматриваемые в системе (3)–(12). В частности, одним из таких факторов является развитие на нижней границе облака неустойчивости Рэлея–Тейлора. Как показывает численный анализ, дисперсионное уравнение (13) при значениях температуры и концентрации нейтралов, типичных для ионосферы, имеет три действительных корня, два из которых являются отрицательными, один — положительным. Для развития неустойчивости интерес представляет положительный корень, соответствующий нарастающей моде.

На рис. 3 представлена зависимость $\tilde{\gamma}(k)$ для разных значений размеров и концентраций пылевых частиц. Параметры ионосферы соответствуют высоте $h = 85$ км, для которой $T = 129.5$ К, $\rho = 8.22 \cdot 10^{-6}$ кг/м³. Величина $\tilde{\gamma}(k)$, как это видно из рисунка, растет вместе с ростом пылевых параметров. Кроме того, видно, что асимптотически $\tilde{\gamma}(k)$ быстро принимает стационарное значение γ , которое определяет характерное время развития неустойчивости, по порядку совпадающее с величиной γ^{-1} . Заметим также, что $\gamma \sim n_d$ и $\gamma \sim a^2$.

Итак, инкремент неустойчивости $\tilde{\gamma}$, начиная с некоторого значения $|k|$, достигает максимума γ . На рис. 4 приведены высотные профили зависимости максимального инкремента γ для различных концентраций и размеров пылевых частиц. Величина γ растет вместе с ростом пылевых параметров и, таким образом, должна ограничивать сверху размер микрочастицы пылевого облака.

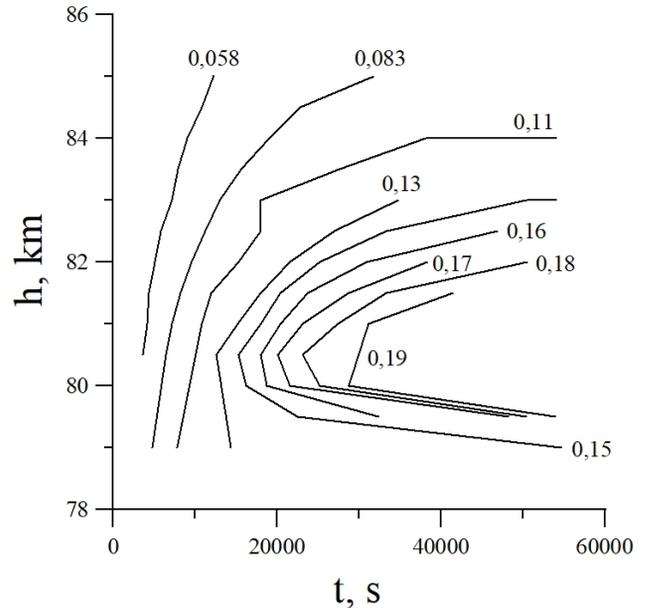


Рис. 2. Временная зависимость высотного распределения пылевых частиц в полярных мезосферных облаках, формирующихся вследствие седиментации пылевого облака зародышей, первоначально составляющего модельный профиль концентраций с начальным размером пылевых частиц 10 нм. Попадая в зону конденсации, пылевые частицы начинают увеличиваться в размерах за счет десублимации паров H_2O , образуя на высотах около 80 км слой частиц с характерным размером ≈ 0.2 – 0.3 мкм. Числа над кривыми обозначают размеры частиц в микрометрах

На рис. 5 представлены графики зависимости характерного времени развития неустойчивости Рэлея–Тейлора $\tau = \gamma^{-1}$ от размера пылевой частицы облака в сравнении с характерным временем седиментации для высот 80, 85, 90 и 95 км. Типичные значения параметров атмосферы на этих высотах равны соответственно (см. [42]):

при $h = 80$ км — $T = 141.3$ К, $\rho = 1.85 \cdot 10^{-5}$ кг/м³;
 при $h = 85$ км — $T = 129.5$ К, $\rho = 8.22 \cdot 10^{-6}$ кг/м³;
 при $h = 90$ км — $T = 130.0$ К, $\rho = 3.42 \cdot 10^{-6}$ кг/м³;
 при $h = 95$ км — $T = 143.2$ К, $\rho = 1.41 \cdot 10^{-6}$ кг/м³.

На рис. 5 видно, что время седиментации не превосходит величину $\tau = \gamma^{-1}$ лишь при достаточно малых размерах пылевых частиц. Так, даже при небольших концентрациях $n_d = 10$ см⁻³ время седиментации сравнивается с $\tau = \gamma^{-1}$ уже при $a \leq 150$ нм, ограничивая тем самым размер микрочастицы облака, так как при больших размерах процесс разрушения слоистой структуры за счет развития неустойчивости оказывается эффективнее ее фор-

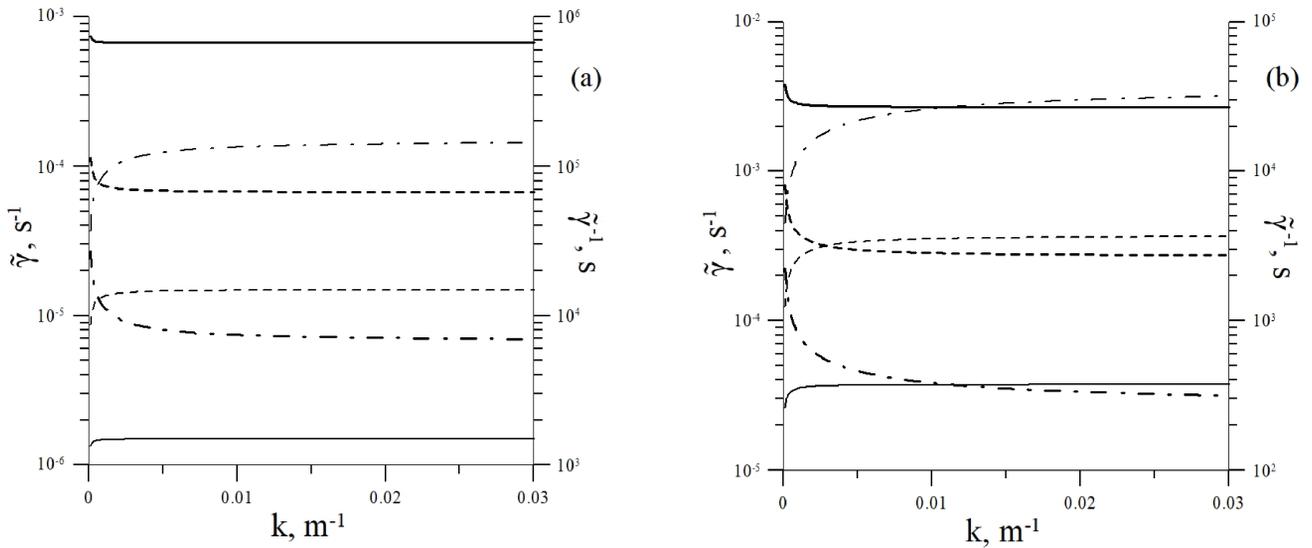


Рис. 3. Зависимости инкремента развития неустойчивости Рэля – Тейлора $\tilde{\gamma}$ (тонкие линии) и величины $\tilde{\gamma}^{-1}$ (жирные линии) от волнового числа $|k|$ для $h = 85$ км. Сплошные кривые соответствуют $n_d = 10 \text{ см}^{-3}$, штриховые — $n_d = 100 \text{ см}^{-3}$, штрихпунктирные — $n_d = 1000 \text{ см}^{-3}$. Панель (a) соответствует размеру пылевых частиц $a = 20$ нм, (b) — размеру пылевых частиц $a = 100$ нм

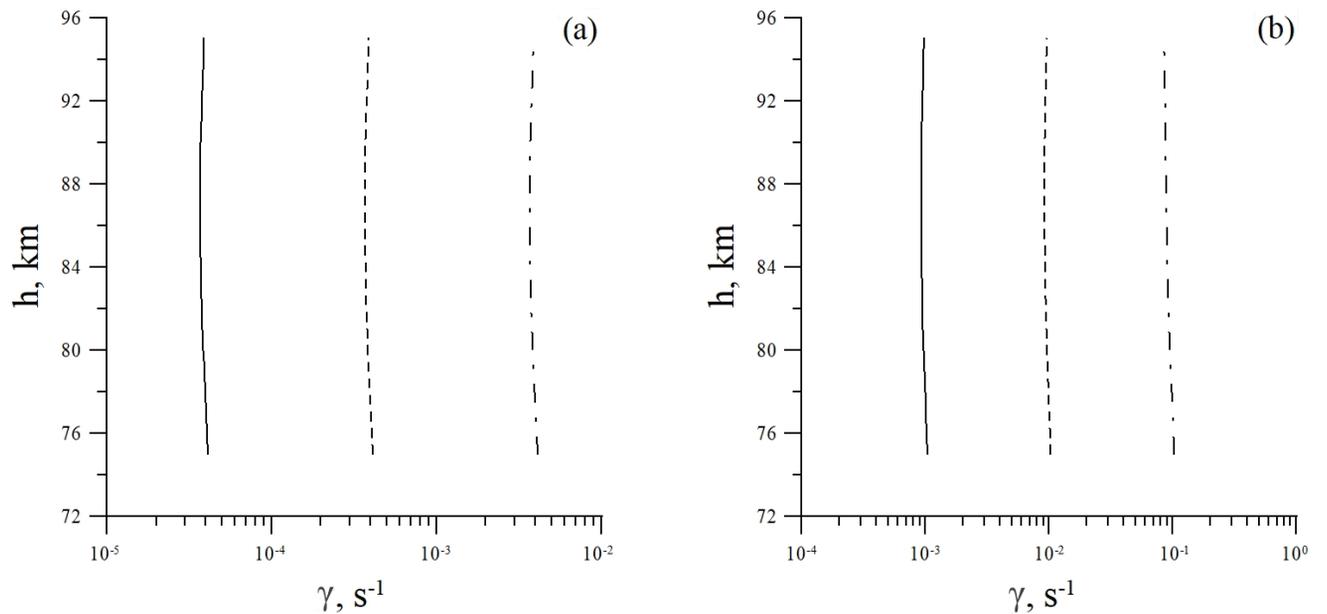


Рис. 4. Зависимости максимального инкремента развития неустойчивости Рэля – Тейлора γ от высоты h для концентраций пылевых частиц $n_d = 10 \text{ см}^{-3}$ (сплошные кривые), $n_d = 100 \text{ см}^{-3}$ (штриховые кривые), $n_d = 1000 \text{ см}^{-3}$ (штрихпунктирные кривые). Панель (a) соответствует размеру пылевых частиц $a = 100$ нм, (b) — размеру пылевых частиц $a = 500$ нм

мирования за счет конденсации водяных паров. Для типичных ионосферных значений $n_d = 100 \text{ см}^{-3}$ верхняя граница a оказывается еще меньшей.

Заметим, что для данной работы важен не сам факт разрушения облака, а то, что в случае развития неустойчивости Рэля – Тейлора это разру-

шение происходит по достижении микрочастицами облака некоторого порогового размера. Действие неустойчивости, таким образом, обосновывает принципиальную невозможность существования облаков крупных частиц, что соответствует данным наблюдений.

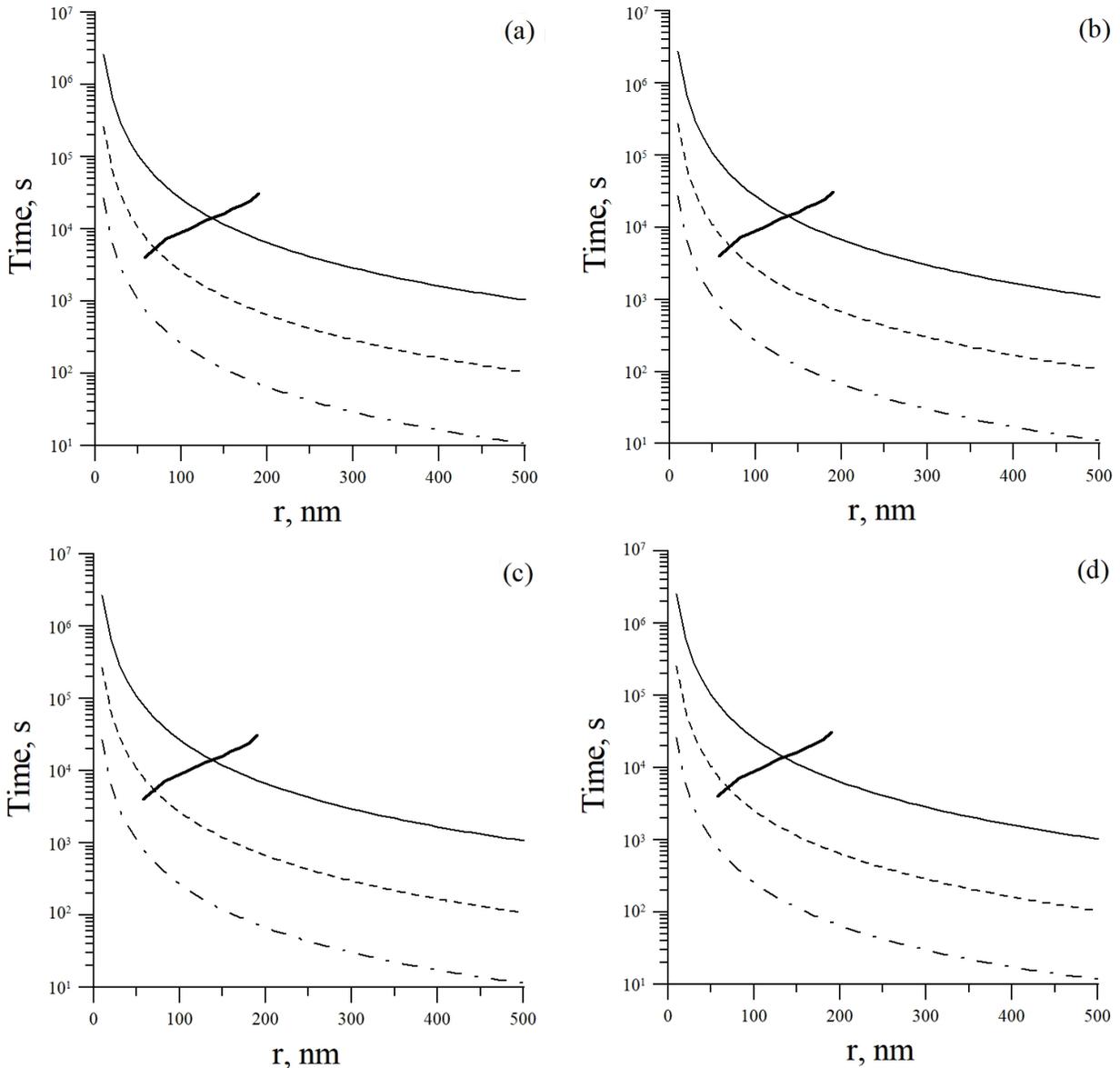


Рис. 5. Зависимости характерного времени развития неустойчивости Рэлея – Тейлора и времени седиментации пылевых частиц от их размеров. Представлены результаты вычислений для высот 80 (a), 85 (b), 90 (c), 95 (d) км. Тонкие сплошные кривые соответствуют концентрациям пылевых частиц $n_d = 10 \text{ см}^{-3}$, штриховые — $n_d = 100 \text{ см}^{-3}$, штрихпунктирные — $n_d = 1000 \text{ см}^{-3}$. Зависимости времени седиментации пылевых частиц представлены жирными сплошными линиями

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Итак, приведены уравнения модели, описывающей самосогласованным образом плазменно-пылевые структуры в ионосфере Земли. Показано, что, в отличие от ионосферы Марса, на Земле снижается влияние таких факторов, как торможение пылевых частиц за счет налипания на них молекул конденсата (аналог реактивной силы) и снижение значения силы вязкого кнудсеновского трения в зоне конденсации. В то же время динамика

заряженной компоненты ионосферы на Земле оказывается более сложной, чем на Марсе.

На основе приведенных уравнений показано, что характерный размер частиц облака, предсказываемый моделью, превышает наблюдаемые значения примерно в 2–3 раза. Оказывается, что важным фактором, влияющим на формирование плазменно-пылевых облаков, который должен быть учтен, является неустойчивость Рэлея – Тейлора, приводящая к тому, что плазменно-пылевые облака могут существовать лишь при достаточно малых значениях размеров составляющих их пылевых частиц.

ЛИТЕРАТУРА

1. С. И. Попель, *Природа* **9**, 48 (2015).
2. S. I. Popel, S. I. Kopnin, I. N. Kosarev, and M. Y. Yu, *Adv. Space Res.* **37**, 414 (2006).
3. Ю. Н. Извекова, Ю. С. Резниченко, С. И. Попель, *Физика плазмы* **46**, 1119 (2020).
4. В. Е. Фортов, Ю. М. Батурич, Г. О. Морфилл, О. Ф. Петров, *Плазменный кристалл. Космические эксперименты*, Физматлит, Москва (2015).
5. S. I. Popel, A. P. Golub', A. I. Kassem, and L. M. Zelenyi, *Phys. Plasmas* **29**, 013701 (2022).
6. S. I. Popel, L. M. Zelenyi, A. P. Golub', and A. Yu. Dubinskii, *Planet. Space Sci.* **156**, 71 (2018).
7. S. I. Popel and A. A. Gisko, *Nonlin. Processes Geophys.* **13**, 223 (2006).
8. В. А. Клумов, S. I. Popel, and R. Bingham, *Письма в ЖЭТФ* **72**, 524 (2000).
9. В. А. Клумов, Г. Е. Морфилл, С. И. Попель, *ЖЭТФ* **127**, 171 (2005).
10. А. Ю. Дубинский, С. И. Попель, *Письма в ЖЭТФ* **96**, 22 (2012).
11. S. I. Popel, S. I. Kopnin, M. Y. Yu, J. X. Ma, and Feng Huang, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **44**, 174036 (2011).
12. V. E. Fortov, A. V. Ivlev, S. A. Khrapak, A. G. Khrapak, and G. E. Morfill, *Phys. Rep.* **421**, 1 (2005).
13. P. K. Shukla and A. A. Mamun, *Introduction to Dusty Plasmas Physics*, Inst. Phys. Publ., Bristol/Philadelphia (2002).
14. В. Н. Цытович, *УФН* **167**, 57 (1997).
15. В. Е. Фортов, А. Г. Храпак, С. А. Храпак, В. И. Молотков, О. Ф. Петров, *УФН* **174**, 495 (2004).
16. V. N. Tsytovich, G. E. Morfill, S. V. Vladimirov, and H. M. Thomas, *Elementary Physics of Complex Plasmas*, Springer, Berlin (2008).
17. U. von Zahn, G. Baumgarten, U. Berger, J. Fiedler, and P. Hartogh, *Atmosph. Chem. Phys.* **4**, 2449 (2004).
18. J. Y. N. Cho and J. Röttger, *J. Geophys. Res.* **102**, 2001 (1997).
19. M. Gadsden and W. Schröder, *Noctilucent Clouds*, Springer-Verlag, Berlin (1989).
20. H. Thomas and G. E. Morfill, *Nature* **379**, 806 (1996).
21. F. Montmessin, J.-L. Bertaux, E. Quémerais, O. Korabely, P. Rannou, F. Forget, S. Perrier, D. Fussen, S. Lebonnois, A. Réberac, and E. Dimarellis, *Icarus* **183**, 403 (2006).
22. https://www.newsru.com/hitech/30may2021/mars_clouds.html.
23. F. Montmessin, B. Gondet, J. P. Bibring, Y. Langevin, P. Drossart, F. Forget, and T. Fouchet, *J. Geophys. Res.* **112**, E11S90 (2007).
24. J. A. Whiteway, L. Komguem, C. Dickinson, C. Cook, M. Illnicki, J. Seabrook, V. Popovici, T. J. Duck, R. Davy, P. A. Taylor, J. Pathak, D. Fisher, A. I. Carswell, M. Daly, V. Hipkin, A. P. Zent, M. H. Hecht, S. E. Wood, L. K. Tampari, N. Renno, J. E. Moores, M. T. Lemmon, F. Daerden, and P. Smith, *Science* **325**, 68 (2009).
25. P. O. Hayne, D. A. Paige, J. T. Schofield, D. M. Kass, A. Kleinböhl, N. G. Heavens, and D. J. McCleese, *J. Geophys. Res.* **117**, E08014 (2012).
26. А. Ю. Дубинский, Ю. С. Резниченко, С. И. Попель, *Физика плазмы* **45**, 913 (2019).
27. Yu. S. Reznichenko, A. Yu. Dubinskii, and S. I. Popel, *J. Phys.: Conf. Ser.* **1556**, 012072 (2020).
28. Ю. С. Резниченко, А. Ю. Дубинский, С. И. Попель, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 420 (2023).
29. R. P. Turco, O. B. Toon, R. C. Whitten, R. G. Keese, and D. Hollenbach, *Planet. Space Sci.* **30**, 1147 (1982).
30. R. A. Goldberg, R. F. Pfaff, R. H. Holzworth, F. J. Schmidlin, H. D. Voss, A. J. Tuzzolino, C. L. Croskey, J. D. Mitchell, M. Friedrich, D. Murtagh, G. Witt, J. Gumbel, U. von Zahn, W. Singer, and U.-P. Hoppe, *Geophys. Res. Lett.* **28**, 1407 (2001).
31. М. А. Леонтович, *Введение в термодинамику*, Гос. изд-во технико-теоретической литературы, Москва–Ленинград (1952).

32. G. C. Reid, *J. Atmosph. Sci.* **32**, 523 (1975).
33. E. Kopp, *Adv. Space Res.* **25**, 173 (2000).
34. A. V. Pavlov, *Surveys in Geophysics* **35**, 259 (2014).
35. А. В. Филиппов, И. Н. Дербенев, Н. А. Дятко, С. А. Куркин, Г. Б. Лопанцева, А. Ф. Паль, А. Н. Старостин, *ЖЭТФ* **152**, 293 (2017).
36. А. Ю. Дубинский, Ю. С. Резниченко, С. И. Попель, *Астрон. вестник* **57**, 225 (2023).
37. F. F. Chen, in *Plasma Diagnostic Techniques*, ed. by R. N. Huddlestone and S. L. Leonard, Academic, New York (1965), Ch. 4.
38. M. S. Barnes, J. H. Keller, J. C. Forster, J. A. O'Neill, and D. K. Coultas, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 313 (1992).
39. C. Völtz, W. Pesch, and I. Rehberg, *Phys. Rev. E* **65**, 011404 (2001).
40. Р. С. Савельев, Н. Н. Розанов, Г. Б. Сочилин, С. А. Чивилихин, *Научно-технический вестник Санкт-Петербургского государственного университета информационных технологий, механики и оптики*, № 3 (73), 18 (2011).
41. В. Н. Цытович, *УФН* **185**, 161 (2015).
42. *Атмосфера стандартная. Параметры*, ИПК Изд-во стандартов, Москва (2004), ГОСТ 4401-81.

ЭВОЛЮЦИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ ПЛАЗМЫ БАРЬЕРНОГО РАЗРЯДА В НЕОНЕ НИЗКОГО ДАВЛЕНИЯ. АТОМНЫЙ СПЕКТР

*В. А. Иванов**, *Ю. Э. Скобло*

*Санкт-Петербургский государственный университет
198504, Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 9 марта 2024 г.,
после переработки 21 апреля 2024 г.
Принята к публикации 21 апреля 2024 г.

Представлены результаты спектроскопического исследования плазмы, создаваемой барьерным разрядом в неоне низкого давления, отражающие эволюцию механизмов заселения возбужденных уровней атома Ne^* и иона Ne^{+*} в зависимости от времени наблюдения по отношению к началу разряда. Анализ спектра излучения, соотнесенный с измерениями временных зависимостей интенсивностей спектральных линий, позволяет указать четыре стадии эволюции спектра: прямое заселение электронным ударом в активной стадии (разряде), сменяющееся ступенчатым по его окончании с переходом, по мере релаксации температуры электронов, к рекомбинационному послесвечению. Последнее в зависимости от давления газа и начальной плотности электронов также может содержать две стадии — начальную, с преобладанием механизма ударно-радиационной рекомбинации ионов Ne^{++} и Ne^+ с электронами как источника заселения всех наблюдаемых в эксперименте возбужденных уровней иона Ne^{+*} и атома неона, и конечную, излучение в которой связано с заселением ограниченной группы уровней вследствие диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов Ne_2^+ с электронами. Основное внимание в работе уделено кинетике населенностей уровней конфигураций $2p53p$ и $2p54p$ атома неона.

DOI: 10.31857/S004445102409013X

1. ВВЕДЕНИЕ

Настоящая работа является продолжением серии экспериментов [1–3] по использованию диэлектрического барьерного разряда (DBD) низкого давления как источника плазмы для исследования элементарных процессов. В отличие от традиционно DBD, различные варианты которого успешно используются в последние десятилетия в множестве приложений, таких, например, как создание активных сред квантовых генераторов [4] или эффективных источников эксимерного излучения [5], мы используем периодический низкочастотный разряд, в котором длительность послесвечения многократно превышает время стадии создания плазмы, что позволяет исследовать механизмы электрон-ионной рекомбинации. В излучении такой плазмы впервые в практике эксперимента было обнаружено послесвечение [1], связанное с двукратно заряженными ионами, рекомбинация которых с электронами радикаль-

но меняет спектр плазмы в ближнем ультрафиолете [1, 3] и позволяет по интенсивностям ионных линий оценить константу скорости процесса [6]. Задача данной работы заключалась в выяснении на основе анализа спектров и временных зависимостей интенсивностей спектральных линий механизмов заселения возбужденных уровней атома неона как в разряде, так и в стадии распада плазмы.

2. ПОСТАНОВКА И РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Использованный в работе способ создания плазмы подробно описан в [1], так что ниже мы остановимся только на тех его особенностях, которые важны для данной работы. Как и в [1–3, 6], мы использовали цилиндрическую разрядную трубку достаточно большого диаметра (рис. 1), чтобы амбиполярная диффузия не была основным механизмом распада плазмы, по крайней мере в его начальной фазе. В схеме разряда рис. 1 энергия, запасенная в трансформаторе при открытом транзисторе, так передается во вторичную обмотку по окончании им-

* E-mail: v.a.ivanov@spbu.ru

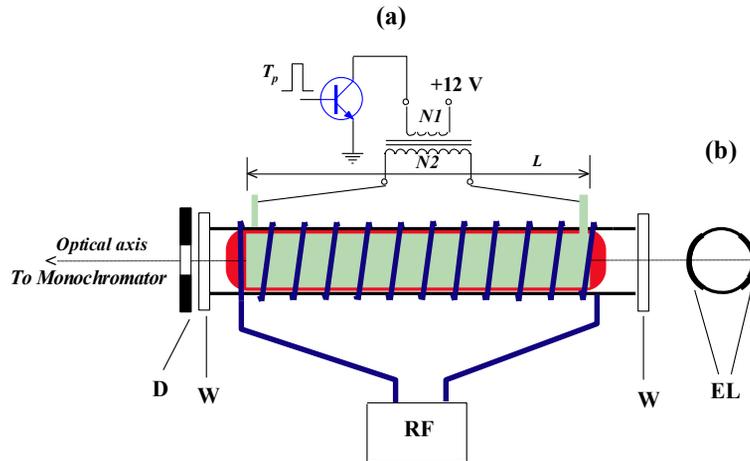


Рис. 1. *a* — Схема совмещения барьерного и импульсного высокочастотного разрядов (RF) в стеклянной трубке диаметром 4 см. *D* — диафрагма диаметром 5 мм, *W* — кварцевые окна. *b* — Расположение электродов DBD на поверхности разрядной трубки

пульса T_p на его базе, что напряжение на электродах представляет собой две полуволны разной полярности при несколько отличающихся (это отличие зависит от условий эксперимента) амплитуде и длительности. Давление неона $P = 0.4 - 1.7$ Торр. При таких давлениях использование барьерного разряда по сравнению с импульсным разрядом между внутренними электродами обладает тем преимуществом, что избавляет от проблемы загрязнения газа трудно устранимым распылением электродов (в основном катода). К тому же разряд используемой конфигурации создает практически однородное плазменное образование как по продольной координате — нитевидный (стримерный) характер пробоя проявляется, как показывает практика эксперимента, при давлениях газа $P \geq 15$ Торр, — так и по радиусу [2].

Частота разряда устанавливалась равной 80 или 500 Гц в зависимости от исследуемой стадии.

Световые потоки регистрировались методом многоканального счета фотонов с временной шириной канала от 40 нс. Для получения информации о конкуренции рекомбинационных процессов с участием атомных и молекулярных ионов осуществлялся импульсный «подогрев» электронов распадающейся плазмы. В отличие от подобного эксперимента при значительно более высоком давлении газа [7], в данном эксперименте в условиях сравнительно медленной релаксации температуры электронов T_e вследствие упругих столкновений с атомами оказалось целесообразнее обратиться к

технике высокочастотного нагрева: в послесвечении на время $\delta t \approx 1$ мкс на катушку индуктивности, намотанную поверх электродов DBD, подавалось высокочастотное напряжение. Выбор указанной длительности δt , много меньшей характерного времени установления температуры τ_{T_e} , удобен тем, что позволяет быстро нагреть электроны и наблюдать возвращение интенсивностей линий атома неона к своим начальным значениям, оценивая тем самым характерное время «остывания» электронов. По остроте реакции интенсивностей линий $J(T_e)$ на изменение температуры электронов можно было судить о механизме заселения возбужденных уровней: для ударно-радиационной рекомбинации $J(T_e) \propto T_e^{-9/2}$ [8], тогда как поток диссоциативной рекомбинации следует значительно более слабой зависимости, близкой к T_e^{-k} с коэффициентом k в пределах от $3/2$ до $1/2$ для разных ионов [9]. По результатам такого эксперимента можно также оценивать плотность электронов $[e]$, анализируя отклик населенности атомов неона в резонансных состояниях $\text{Ne}(3s(^3P_1))(t)$ на изменение T_e [1]. Величина $[e]$ в начальной стадии распада плазмы составляла приблизительно 10^{11} см^{-3} .

При записи спектров, помимо числа периодов N_p (т. е. времени регистрации), задавались скорость сканирования, число точек по спектру, а также промежутки времени (Δt) стробирования сигнала фотоэлектронного умножителя.

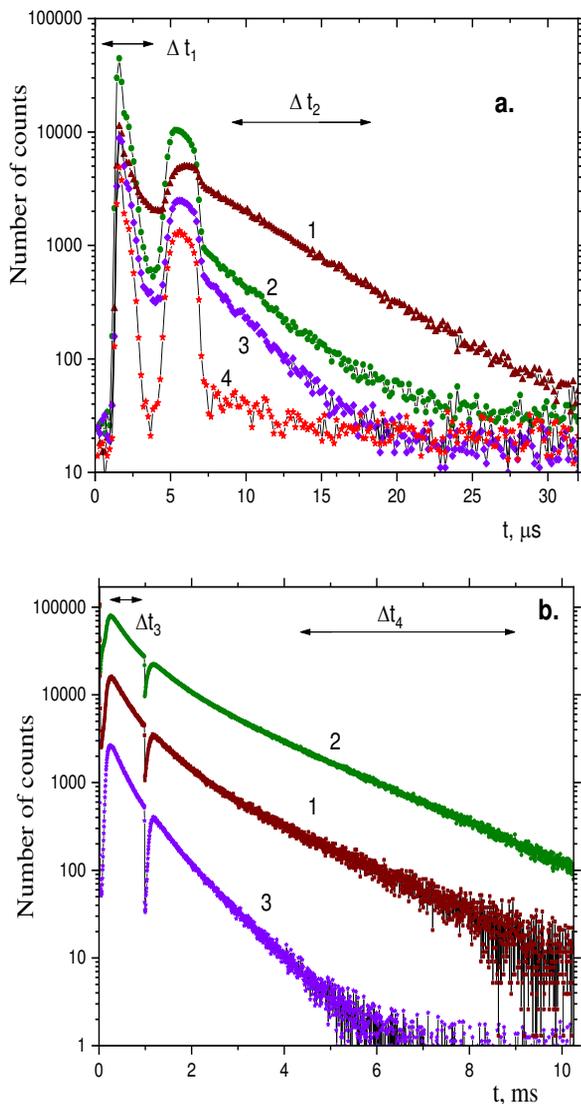


Рис. 2. Интенсивности спектральных линий в разряде и раннем послесвечении (a) и в рекомбинационной стадии (b). 1 — 724.5 нм (верхний уровень $2p_{10}$), 2 — 585.2 нм ($2p_1$), 3 — 576.4 нм (переход $4d \rightarrow 3p$), 4 — ионная линия 439.2 нм. $t = 0$ — начало разряда. Давление неона 1.7 Торр

Характерные временные зависимости интенсивностей спектральных линий в разряде и послесвечении показаны на рис. 2. Отрезки линий со стрелками указывают положение и длительности интервалов стробирования (Δt) при записи спектров. Уровни конфигурации $2p^5 3p$ указаны в обозначениях Пашена. Данные рис. 2 получены при разных N_p и поэтому не допускают сравнения абсолютных величин интенсивностей. Такое сравнение для линий переходов $3p \rightarrow 3s$ можно провести по записям спектров излучения разряда и послесвечения, показанных на

рис. 3 и 4. Видно, что со временем происходит радикальное изменение относительных интенсивностей некоторых линий неона. Заметим, что весь интервал времени рис. 2 a, как будет видно, меньше характерного времени t_{Te} релаксации температуры электронов за счет упругих столкновений с атомами, так что в течение первых 30 мкс свечение плазмы в атомном спектре связано с возбуждением электронным ударом. Поведение ионных линий (мы показали его на примере линии 439.2 нм, переход $4f \rightarrow 3d$, для полноты картины излучения барьерного разряда) существенно иное.

На высокую степень чистоты газа в эксперименте указывает малая интенсивность линии водорода $H\alpha$, положение которой отмечено на рис. 3 a. Как следует из данных рис. 2 b, рекомбинационное заселение возбужденных уровней атома неона начинается при временах $t \geq 100$ мкс и сопровождается также заметным изменением со временем спектра послесвечения (рис. 4). На рис. 2 b показана реакция спектральных линий атома неона на нагрев электронов импульсами ВЧ-поля. Скорость релаксации интенсивностей позволяет оценить характерное время «остывания» электронов в этой стадии послесвечения: $t_{Te} \approx 50$ мкс.

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

3.1. Возбуждение электронами

Различие спектров на рис. 3 в отношении наиболее показательных в плане наблюдаемых изменений относительных интенсивностей линий объясним, обращаясь к результатам исследований процессов прямого и ступенчатого заселения $3p$ -уровней атома неона. Во-первых, укажем на отношение $J_{640.2}/J_{585.2}$. В таблице размещены представленные в [10] данные об отношениях сечений прямого возбуждения линий неона и сечений прямого возбуждения уровней $2p^5 3p$ [11] к соответствующим величинам для линии 585.2 нм (верхний уровень $2p_1$) при энергии электронов 30 эВ. Эти данные предсказывают максимальную яркость линии 585.2 нм в случае прямого возбуждения уровней из основного состояния атома неона 1S_0 , что согласуется с отношениями интенсивностей линий в спектре при интервале стробирования Δt_1 (пересчитаны в соответствии с зависимостью чувствительности схемы регистрации $S(\lambda)$ от длины волны и коэффициентами ветвления вероятностей переходов). Аналогичные изменения в

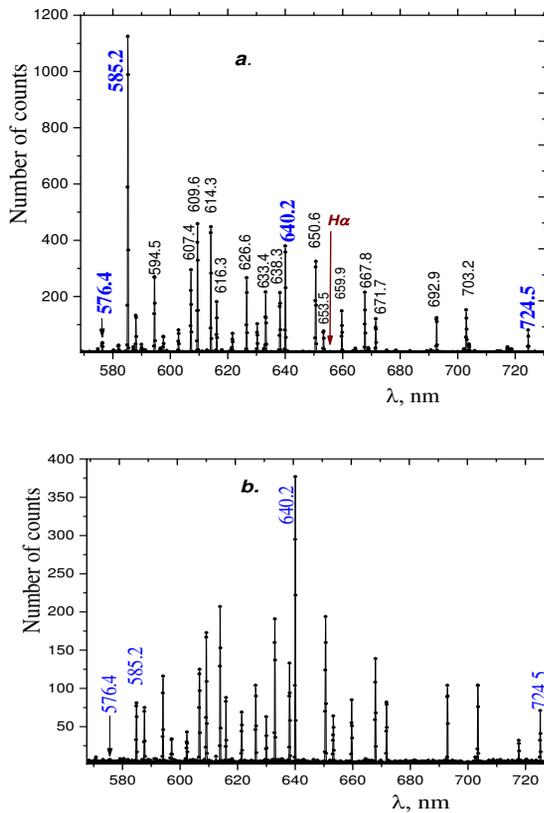


Рис. 3. Спектры излучения разряда (a) и ранней стадии послесвечения (b). Интервалы стробирования Δt_1 (a) и Δt_2 (b). Выделены линии, показанные на рис.2 или упомянутые в тексте. H α на рис. a — положение линии водорода H α

спектре наблюдали авторы [12] при исследовании механизма пробоя в длинной разрядной трубке, наполненной неоном при давлении $P_{Ne} \approx 1$ Торр.

Что касается ступенчатого возбуждения, то, согласно [13, 14], отношение сечений возбуждения уровней $2p_1$ и $2p_9$ (верхний уровень линии 640.2 нм) с наиболее населенного уровня $1s_5$ конфигурации $2p53s1s_5 \rightarrow 2p_9$ и $1s_5 \rightarrow 2p_1$ (оптически запрещенный переход) более 10. Эксперимент показывает близкое к отношению сечений отношение $J_{640.2}/J_{585.2}$ в спектре рис. 3 b (коэффициенты ветвления вероятностей переходов для уровней $2p_9$ (= 1) и $2p_1$ (≈ 0.98) близки).

Не менее значимо для прояснения механизма возбуждения также и отношение потоков ступенчатого и прямого возбуждения отдельных уровней. Как видно из данных рис. 2, по окончании второй полуволны разряда интенсивность $J_{585.2}$ уменьшается на порядок величины, в то время как $J_{724.5}$

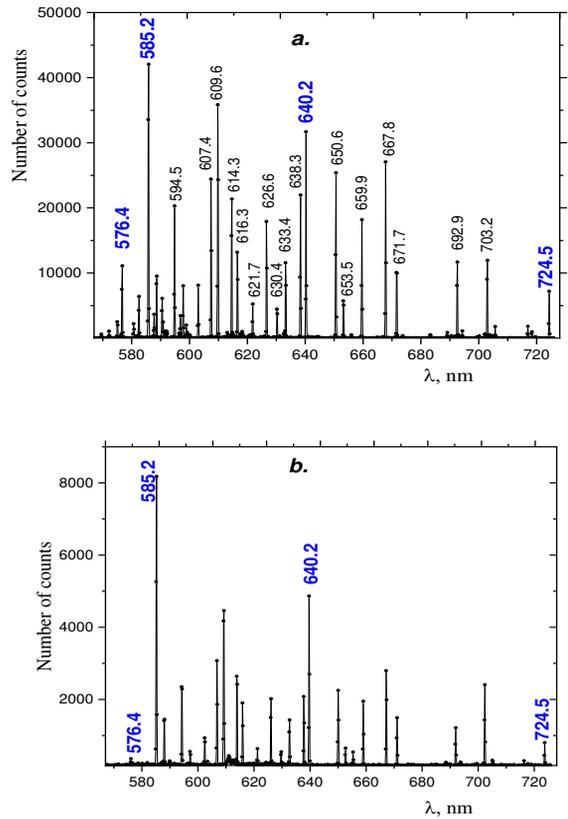


Рис. 4. Спектры рекомбинационной стадии послесвечения. Интервалы стробирования Δt_3 (a) и Δt_4 (b)

(верхний уровень $2p_{10}$) претерпевает лишь незначительные изменения. Такое различие в поведении линий 585.2 и 724.4 нм согласуется с наблюдениями [15], по которым заселение уровня $2p_1$ в разрядах обычно более чем на 90% обусловлено прямым возбуждением. Авторы [15] связывают эффект с различием сечений возбуждения вследствие запрета оптических переходов в наиболее населенные метастабильные состояния 3P_0 (уровень $1s_3$) и 3P_2 (уровень $1s_5$).

Важно подчеркнуть, что смена режима возбуждения как атомных, так и ионных уровней после второй полуволны разряда происходит за время δt менее 0.5 мкс. Скорость релаксации населенности возбужденного уровня при условии, что его собственное радиационное время (например, для $2p_1$ — $1.7 \cdot 10^{-8}$ с [16]) мало по сравнению с наблюдаемыми изменениями, определяется параметрами источника, т. е. в данном случае скоростью релаксации температуры электронов $T_e(t)$ и сопутствующим уменьшением потока $F_D(T_e)$ прямого заселения. Нетрудно показать, что баланс температуры электронов в

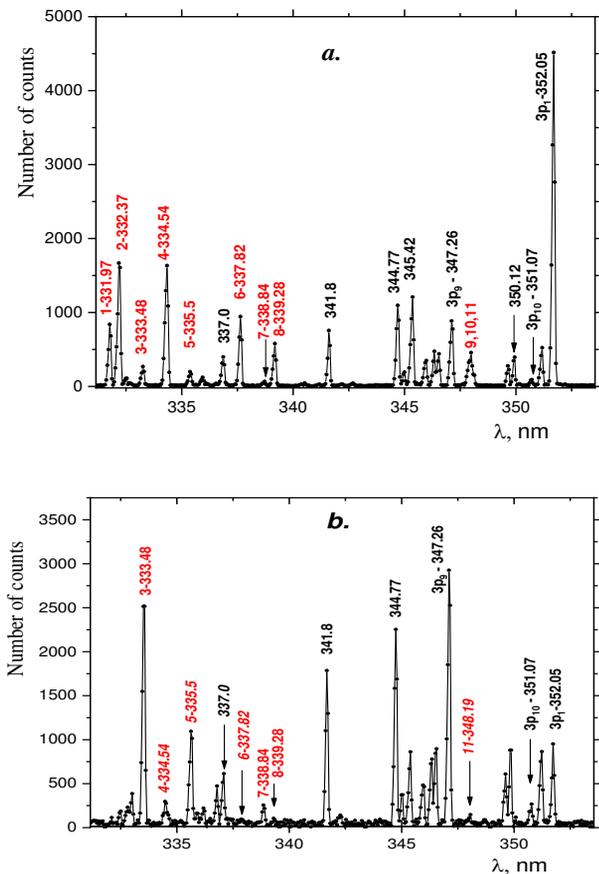


Рис. 5. Спектры прямого возбуждения (*a*, Δt_1) и рекомбинации (*b*, Δt_3) в области ближнего ультрафиолета. Давление неона 0.4 Торр. Длинам волн ионных линий предшествуют числа от 1 до 11 (например, 3-333.48 нм)

разряде и непосредственно по окончании разряда обусловлен потерей энергии при неупругих столкновениях электронов с атомами неона, тогда как упругие столкновения, обращения к которым достаточно для объяснения явлений в рекомбинационном послесвечении, играют незначительную роль. Для этого сравним энергию, затраченную за время t_d разряда (несколько мкс) на ионизацию $[e]eV_i$ (для неона $eV_i = 21.56$ эВ) и возбуждение атомов в метастабильных $1s_3$, $1s_5$ и резонансных $1s_2$, $1s_4$ состояниях с суммарной плотностью, близкой к $[e]$, и энергией около 16.5 эВ, с потерей энергии электронами при упругих столкновениях за это же время $\delta E \approx [e]m_e/M_{Ne}\nu_{ea}T_e t_d$, где $\nu_{ea} = [Ne]\nu_e\sigma_e$ — частота столкновений электронов с атомами неона. Поскольку транспортное сечение электрона невелико ($\sigma_e \approx 2 \cdot 10^{-16}$ см²) и слабо зависит от энергии [17], такая оценка для плотности атомов неона $[Ne] \approx 5.5 \cdot 10^{-16}$ см⁻³ при температуре T_e несколь-

ко эВ относит на счет упругих столкновений не более 1/20 доли потери энергии. Таким образом, ориентируясь на $t_{Te} \approx 50$ с в позднем послесвечении при давлении 1.7 Торр, оцениваем характерное время релаксации энергии электронов непосредственно по окончании разряда как $t_{Te} \approx 2.5$ мкс, что на качественном уровне (учитывая близкий к экспоненциальному характер зависимости потока прямого возбуждения от температуры электронов при пороге $E_{th} \approx 18$ эВ) объясняет крутизну начального уменьшения интенсивности $J_{585.2}(t)$ и других линий на рис. 2 *a*.

Заметим, что при обсуждении зависимостей скоростей рассматриваемых процессов от температуры электронов мы обращаемся только к их качественному характеру. Вычисление $T_e(t)$ (в идеале — функции распределения электронов по энергии) в плазме, создаваемой барьерным разрядом, — непростая задача, требующая, в частности, учета электрического поля, создаваемого зарядами на внутренних поверхностях диэлектрических стенок разрядной трубки вблизи электродов. На этом уровне анализа можем лишь предположить, что, вследствие радиальной симметрии свечения плазмы по окончании стадии ее создания (две полуволны тока разряда разной полярности длительностью несколько мкс) [2], их влияние невелико.

Мы провели аналогичные измерения в области ближнего ультрафиолета (рис. 5). Видно, что обычно формируемый исключительно линиями переходов $4p \rightarrow 3s$ атома неона спектр используемого барьерного разряда в этой области длин волн содержит яркие ионные линии. Как и можно было ожидать, переход из области прямого возбуждения $4p$ уровней к ступенчатому сопровождался характерным для красно-желтой области спектра изменением относительных интенсивностей линий в переходах с уровнями $3p_1$, $3p_9$ и $3p_{10}$ (обозначения по Пашену). Поэтому в данном случае мы ограничились сопоставлением потоков возбуждения при временах Δt_1 и Δt_3 .

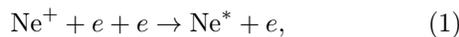
3.2. Стадия рекомбинационного заселения

Рекомбинационные механизмы заселения возбужденных уровней атомов инертных газов хорошо изучены в многочисленных исследованиях (основные перечислены в обзоре [9]), в том числе в послесвечении барьерного разряда [18]. На их основе можно интерпретировать различие спектров на рис. 4 *a* и

Таблица. Интенсивности J_λ -линий в спектре рис. 3, отнесенные к интенсивности линии 582.5 нм и отношения соответствующих сечений прямого возбуждения σ_d [10, 11] при энергии электрона 30 эВ и сечений ступенчатого возбуждения [13, 14] из метастабильного состояния $2p^5 3s(^3P2)$ (уровень $1s_5$ в обозначениях Пашена)

λ , нм	$J_\lambda, \Delta t_1$	σ_d [10, 11]	$J_\lambda, \Delta t_2$	σ_{step}
585.2 ($2p_1$)	1	1	1	1
640.2 ($2p_9$)	0.46	0.4, 0.5	6.2	> 10 [13]
724.5 ($2p_{10}$)	0.37	0.1, 0.3	7	> 10 [14]

рис. 4 *b*, из данных которого видно, что к началу интервала времени Δt_4 интенсивности линий, связанных с ударно-радиационной рекомбинацией ионов Ne^+ с электронами, на что указывает сильная зависимость интенсивности от T_e (рис. 2 *b*) (показана на примере 576.4 нм, верхний уровень принадлежит конфигурации $2p^5 4d$):



настолько уменьшаются по сравнению с линиями переходов $3p \rightarrow 3s$, что в спектре плазмы они становятся едва различимыми на фоне переходов с уровней конфигурации $2p^5 3p$. И в то же время относительные интенсивности линий переходов $3p \rightarrow 3s$ в стадии позднего послесвечения (Δt_4) коррелируют с характерным для диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов распределением населенностей $3p$ -уровней атома неона [9]:



Отметим, что более быстрое угасание в послесвечении линий, появляющихся вследствие (1), несмотря на его несопоставимо малую скорость по сравнению с (2), связано не только с различием зависимостей числа актов (1) и (2) от плотности электронов, но и с особенностями ионного состава плазмы [3], развивающегося с начальным условием

$$[Ne_2^+]/[Ne^+] \ll 1$$

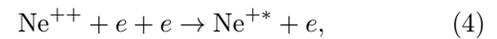
и увеличением со временем относительной плотности молекулярных ионов за счет конверсии при тройных столкновениях



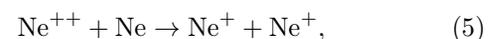
Процессы (1), (2) формируют также и рекомбинационный спектр переходов $4p \rightarrow 3s$, с тем лишь отличием от уровней $3p$, что со временем вместе с линиями, переносящими поток ударно-радиационной рекомбинации (отчетливо видно на примере линии

576.4 нм, рис. 4), быстрее угасают и линии, излучаемые тремя верхними уровнями конфигурации $2p^5 4p$. Это обусловлено спецификой процесса диссоциативной рекомбинации в неоне [18], для которого указанные уровни, расположенные в шкале энергии выше основного колебательного уровня v иона $Ne_2^+(v=0)$, оказываются в послесвечении недоступны и заселяются в основном благодаря процессу (1). В этом состоит единственное принципиальное различие характеров заселения уровней $3p$ и $4p$ атома неона в распадающейся плазме.

В заключение несколько слов о ионном спектре. На рис. 5 мы впервые представляем данные, допускающие сопоставление ионного спектра, возбуждаемого ударно-радиационной рекомбинацией двукратно заряженного иона



с хорошо изученным во множестве экспериментов спектром возбуждения электронным ударом. В таких экспериментах (в качестве источника возбуждения традиционно используется разряд с полым катодом [19]) идентифицированы около 2000 линий переходов из возбужденных состояний с главным квантовым числом вплоть до $n=8$ [16]. В экспериментах с барьерным разрядом низкого давления в стадии распада плазмы мы наблюдали линии переходов из состояний с энергией возбуждения от 30.5 эВ вплоть до уровней конфигурации $2s^2 2p^4 f$ с энергией возбуждения около 37.5 эВ. Наибольший интерес, на наш взгляд, представляет исследование рекомбинационного механизма заселения ионных уровней. Это и объясняет выбор пониженного до 0.4 Торр давления для анализа спектра в коротковолновой области: согласно [20, 21] в неоновой плазме существует эффективный механизм преобразования ионов



подавление которого заметно уменьшает разрушение ионов Ne^{++} за время перехода $\Delta t_1 - \Delta t_3$.

Характер изменения относительных интенсивностей некоторых ионных линий с переходом от Δt_1 к Δt_3 заметно отличается от наблюдаемого в атомном спектре. Например, соседствующие в спектре рис. 5 а линии 332.7 (наиболее яркая по NIST [16], 31.51 эВ) и 333.48 (30.88 эВ) изменяются многократно, причем в разные стороны; из тройки близких по яркости [16] линий 9, 10, 11 (347.95, 348.07 и 348.19 нм) в рекомбинационной стадии заметна лишь одна — 348.19 нм. Еще более впечатляющее поведение демонстрирует линия 439.2 нм (переход $4f \rightarrow 3d$) — в рекомбинационном максимуме ее интенсивность близка к интенсивности в разряде, тогда как в атомном спектре это различие составляет не менее порядка величины. Интерпретация этих явлений требует существенного расширения экспериментального материала.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В области длин волн 310–730 нм исследован спектральный состав и временные характеристики излучения в атомном спектре низкочастотного импульсного барьерного разряда в неоне низкого давления. Сопоставление результатов эксперимента с литературными данными о механизмах образования возбужденных атомов указывает на их отчетливое разделение в зависимости от времени наблюдения по отношению к началу разряда. На смену прямому и ступенчатому возбуждению электронным ударом с преобладанием неупругих столкновений в балансе энергии электронов в активной стадии (разряде) и раннем послесвечении приходит рекомбинационное заселение, сопровождающееся образованием характерного максимума населенностей всех возбужденных состояний с преимущественной ролью процесса ударно-радиационной рекомбинации ионов Ne^+ . Анализ эволюции спектра и хода $J(t)$ вместе с наблюдением реакции интенсивностей линий на импульсный «подогрев» электронов высокочастотным полем приводит к выводу, что в конечной стадии распада плазмы излучение связано в основном с механизмом диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов Ne_2^+ с электронами с формированием характерного для этого процесса распределения населенностей по ограниченному набору возбужденных уровней атома неона. Приведенные фрагменты ионного спектра, заметно обогащающие область переходов $4p \rightarrow 3s$, указывают на перспективность барьерного разряда использованной конфигурации для изучения роли двукратно заряженных ионов в формировании оптических свойств распадающейся плазмы.

ЛИТЕРАТУРА

1. V. A. Ivanov, *Plasma Sources Sci. Technol.* **29**, 045022 (2020); DOI: [org/10.1088/1361-6595/ab7f4c](https://doi.org/10.1088/1361-6595/ab7f4c).
2. В. А. Иванов, *Опт. и спектр.* **130**, 996 (2022); DOI: [10.21883/OS.2022.07.52718.3076-21](https://doi.org/10.21883/OS.2022.07.52718.3076-21) [V. A. Ivanov, *Opt. Spectr.* **130**, 799 (2022); DOI: [10.21883/EOS.2022.07.54719.3076-21](https://doi.org/10.21883/EOS.2022.07.54719.3076-21)].
3. В. А. Иванов, *Опт. и спектр.* **129**, 992 (2021); DOI: [10.21883/OS.2021.08.51193.1987-21](https://doi.org/10.21883/OS.2021.08.51193.1987-21) [V. A. Ivanov, *Opt. Spectr.* **129**, 1104 (2021); DOI: [10.1134/S0030400X21080099](https://doi.org/10.1134/S0030400X21080099)].
4. U. Kogelschatz, *Plasma Chem. Plasma Proc.* **23**, 1 (2003).
5. V. F. Tarasenko, E. B. Chernov, M. V. Erofeev, M. L. Lomaev, A. N. Panchenko, V. S. Skakun, E. A. Sosnin, and D. V. Shitz, *Appl. Phys. A* **69**, 327 (1999).
6. В. А. Иванов, *Опт. и спектр.* **131**, 1537 (2023).
7. В. А. Иванов, Ю. Э. Скобло, *ЖЭТФ* **106**, 1704 (1994).
8. A. V. Gurevich and L. P. Pitaevskii, *Sov. Phys. JETP* **19**, 870 (1964).
9. В. А. Иванов, *УФН* **162**, 35 (1992) [V. A. Ivanov, *Usp. Fiz. Nauk* **162**, 35 (1992)].
10. L. J. Kieffer, *Atomic Data* **1**, 121 (1969); URL: <https://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/linesform.html>.
11. J. E. Chilton, M. D. Stewart, Jr., and Chun C. Lin, *Phys. Rev. A* **61**, 052608 (2000).
12. А. И. Шишпанов, П. С. Бажин, В. В. Залетов, *Сборник материалов Всероссийской конференции*, Наука, СПбГУ (2022), с. 421.
13. J. B. Boffard, M. L. Keeler, G. A. Piech, L. W. Anderson, and C. C. Lin, *Phys. Rev. A* **64**, 032708 (2001); DOI: [10.1103/PhysRevA.64.032708](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.64.032708).
14. S. S. Baghel, S. Gupta, R. K. Gangwar, and R. Srivastava, *Plasma Sources Sci. Technol.* **28**, 115010 (2019).

15. V. M. Donnelly, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **37**, R217 (2004); DOI:10.1088/0022-3727/37/19/R01.
16. NIST Atomic Spectra Database Lines Form [Electronic source], URL: https://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html.
17. M. Adibzadeh and C. E. Theodosiou, *Atom. Data Nucl. Data Tables* **91**, 8 (2005); DOI:10.1016/j.adt.2005.07.004.
18. С. В. Гордеев, В. А. Иванов, Ю. Э. Скоб-ло, *Опт. и спектр.* **127**, 396 (2019); DOI:10.21883/OS.2019.09.48190.106-19 [S. V. Gordeev, V. A. Ivanov, and Yu. E. Skob-
lo, *Opt. Spectr.* **127**, 418 (2019); DOI:
10.1134/S0030400X19090133].
19. A. E. Kramida and G. Nave, *Eur. Phys. J. D* **39**, 331 (2006); DOI: 10.1140/epjd/e2006-00121-4.
20. F. J. de Hoog and H. J. Oskam, *J. Appl. Phys.* **44**, 3496 (1973).
21. R. Johnsen and M. A. Biondi, *Phys. Rev. A* **18**, 996 (1978).

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 на русском 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

К СВЕДЕНИЮ АВТОРОВ

Редакция ЖЭТФ просит авторов при направлении статей в печать руководствоваться приведенными ниже правилами.

1. 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.

2. Статьи должны быть изложены с предельной краткостью, совместимой с ясностью изложения, и окончательно обработаны. Следует избегать повторения данных таблиц или графиков в тексте статьи, а также представления численных результатов в виде таблиц и графиков одновременно. Не следует злоупотреблять введением новых аббревиатур в дополнение к общепринятым, таким как ЯМР, УФ и т. д.

3. К статье необходимо прилагать короткую аннотацию, в которой должны быть четко сформулированы цель и результаты работ (аннотация и раздел «Выводы» не должны дублировать друг друга).

4. Редакция принимает статьи:

а) по электронной почте по адресу JETP@kapitza.ras.ru;

б) в «on-line» режиме на веб-странице журнала (www.jetp.ras.ru);

В электронном варианте текст должен быть представлен в формате L^AT_EX или Word, рисунки — в формате EncapsulatedPostScript (*.eps), каждый рисунок отдельным файлом.

5. Подстрочные примечания должны иметь сплошную нумерацию по всей статье. Цитируемая литература должна даваться не в виде подстрочных примечаний, а общим списком в конце статьи с указанием в тексте статьи ссылки порядковой цифрой в прямых скобках (например, [1]). Литература дается в порядке упоминания в статье. Порядок оформления литературы виден из следующих примеров:

1. В. Б. Берестецкий, Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Квантовая электродинамика*, Наука, Москва (1984), с. 1.

2. А. М. Сергеев, Р. И. Чернова, А. Я. Сергиенко, ФТТ **30**, 835 (1988).

3. R. Brewer, J. M. Faber, C. N. Malleson et al., Phys. Rev. A **18**, 1632 (1978).

4. A. N. Stirling and D. Watson, in *Progress in Low Temperature Physics*, ed. by D. F. Brewer, North Holland, Amsterdam (1986), Vol. 10, p. 683.

5. К. Д. Громов, М. Э. Ландсберг, в сб. *Тез. докл. X Всесоюзн. конф. по физике низких температур* (Ташкент, 1986), Наука, Москва (1987), с. 434.

6. M. P. Elliot, V. Rumford, and A. A. Smith, Preprint TH 4302-CERN (1988).

7. Л. Н. Шалимова, А. С. Крюков, Препринт ОИЯИ № P-16-22 (1987).

8. Н. В. Васильев, Дисс. ... канд. физ.-матем. наук, МГУ, Москва (1985).

9. A. Fang and C. Howald, E-print archives, condmat/0404452.

6. Все рисунки должны быть выполнены четко, в формате, обеспечивающем ясность понимания всех деталей. Надписи на рисунках следует по возможности заменять цифрами и буквенными обозначениями, разъясняемыми в подписи к рисунку или в тексте.

7. Редакция посылает автору одну корректуру по электронной почте в виде *.pdf-файла. Список исправлений должен быть отправлен автором на электронный адрес журнала в течение недели.

9. К рукописи необходимо приложить электронный адрес (e-mail), почтовый адрес места работы с индексом, фамилию, полное имя и отчество автора, с которым предпочтительно вести переписку, а также номер контактного телефона.

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