



# ЖУРНАЛ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ и ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ



НАУКА

— 1727 —

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК  
**ЖУРНАЛ**  
**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ**  
**И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ**

ОСНОВАН В МАРТЕ 1873 ГОДА

ТОМ 166, ВЫПУСК 6 (12)

ВЫХОДИТ 12 РАЗ В ГОД

ДЕКАБРЬ 2024

МОСКВА

РАН

ЖУРНАЛ ИЗДАЕТСЯ ПОД РУКОВОДСТВОМ ОТДЕЛЕНИЯ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК РАН

**СОДЕРЖАНИЕ**

**АТОМЫ, МОЛЕКУЛЫ, ОПТИКА**

- Динамика разлета молекулы воды в интенсивном поле высокочастотного излучения ..... Бибииков А. В., Юдин С. Н.,  
Попова М. М., Киселев М. Д., Грум-Гржимайло А. Н., Грызлова Е. В. 759
- Световой контроль распределения наночастиц в коллоидах с усилением и поглощением ..... Жаров А. А., Жарова Н. А. 771

**ЯДРА, ЧАСТИЦЫ, ПОЛЯ, ГРАВИТАЦИЯ И АСТРОФИЗИКА**

- Фазовый переход в точке Большого взрыва в решеточной теории гравитации . . Вергелес С. Н. 781

**ТВЕРДЫЕ ТЕЛА И ЖИДКОСТИ**

- Квазидвумерный органический проводник  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl. Конформационный беспорядок и зарядовая структура проводящих слоев ..... Кузьмин А. В., Хасанова Э. И., Мелетов К. П., Зверев В. Н., Хасанов С. С. 795

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

- Наблюдение возвратной зависимости критического тока джозефсоновских переходов Nb–PdFe–Nb от толщины PdFe-барьера и температуры ..... Большинов В. В., Карпович А. Л., Карелина Л. Н., Шуравин Н. С., Рязанов В. В. 813
- Роль магнитоупругих взаимодействий в сплаве FeRh при антиферро-ферромагнитном фазовом переходе ..... Козвонин И. С., Терещенко А. А., Овчинников А. С., Баранов Н. В., Валиев Э. З. 822

Туннельная спектроскопия $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ с вариацией степени допирования в сверхпроводящем и нормальном состояниях .....	Никитченко И. А., Кузьмичев С. А., Ильина А. Д., Перваков К. С., Власенко В. А., Кузьмичева Т. Е.	834
Процесс полного намагничивания и магнитная фазовая диаграмма редкоземельных ферримагнетиков $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ .....	Костюченко Н. В., Плохов Д. И., Терешина И. С., Политова Г. А., Кудасов Ю. Б., Платонов В. В., Сурдин О. М., Маслов Д. А., Стрелков И. С., Козабаранов Р. В., Катенков П. Ю., Коршунов А. С., Макаров И. В., Быков А. И., Филиппов А. В., Бычкова Е. А., Репин П. Б., Селемир В. Д., Горбачевич А. А., Звездин А. К.	846

### ЭЛЕКТРОННЫЕ СВОЙСТВА ТВЕРДЫХ ТЕЛ

Частотная зависимость гистерезиса движения вакансий в закрытом мемристоре на основе точно решаемой модели управляемой нелинейной диффузии ....	Бойло И. В., Метлов К. Л.	858
Вигнеровская кристаллизация в двумерных структурах в магнитном поле. Акустические исследования	Дричко И. Л., Смирнов И. Ю., Суслов А. В., Лидли Д. Р., Гальперин Ю. М.	868

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

Эффекты длинной памяти при развитии неустойчивости в случайной среде .....	Очир-Горяева А. П., Соколов Д. Д., Илларионов Е. А.	878
Фрактальная структура еловой лапы .....	Григорьев С. В., Шнырков О. Д., Пшеничный К. А., Яшина Е. Г.	888
Решеточная упругость голубых фаз холестерических жидких кристаллов .....	Чижигов В. А., Мамонова А. В., Дмитриенко В. Е.	900
Алфавитный указатель тома 166 за 2024 г. ....		910
Предметный указатель тома 166 за 2024 г. ....		918

# ДИНАМИКА РАЗЛЕТА МОЛЕКУЛЫ ВОДЫ В ИНТЕНСИВНОМ ПОЛЕ ВЫСОКОЧАСТОТНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

*А. В. Бибиков<sup>а\*</sup>, С. Н. Юдин<sup>а</sup>, М. М. Попова<sup>а</sup>, М. Д. Киселев<sup>а, b, c</sup>,*

*А. Н. Грум-Гржимайло<sup>а, c</sup>, Е. В. Грызлова<sup>а</sup>*

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

*<sup>б</sup> Лаборатория моделирования квантовых процессов,  
Тихоокеанский государственный университет  
680035, Хабаровск, Россия*

*<sup>с</sup> Физический факультет,  
Университет ИТМО  
197101, Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 16 мая 2024 г.,  
после переработки 16 мая 2024 г.  
Принята к публикации 10 сентября 2024 г.

В связи с развитием источников интенсивного высокочастотного излучения и совершенствованием техник детектирования заряженных фрагментов стали возможны эксперименты по кратной ионизации внутренних молекулярных оболочек, когда на совпадения регистрируются импульсы и заряды продуктов фрагментации. В данной работе исследована динамика разлета фрагментов молекулы воды, возникающих в результате взаимодействия с интенсивным излучением рентгеновского диапазона. Рассчитано распределение ионов кислорода по зарядам, построены диаграммы Ньютона для фрагментов — протонов и иона кислорода — при различных зарядовых состояниях последнего, определена высвобожденная кинетическая энергия. Расчеты выполнялись с использованием оригинального кода [1] для параметров, приближенных к эксперименту [2], реализованному в 2021 г. на EuXFEL.

DOI: 10.31857/S0044451024120010

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Исследования молекулы воды, ввиду ее распространенности во Вселенной и значимости для биологии, представляют область особого практического интереса для физики взаимодействия небольших квантовых объектов с излучением. Знание эволюции молекулы воды, доли образовавшихся ионов и радикалов в ионизирующем электромагнитном поле критически важно для таких приложений, как изучение радиационных повреждений в экспериментах по дифракции рентгеновских лучей, химии радикалов в растворах [3, 4] и даже для объяснения некоторых явлений, происходящих в атмосферах планет [5, 6] и в кометах [7].

При взаимодействии атомов или молекул с рентгеновским излучением, как правило, происходит фотоэмиссия. Чаще всего потеря первого электрона не приводит к развалу молекулы, так как оставшихся электронов на валентной оболочке может быть достаточно, чтобы сформировать молекулярную связь, тем более, что в высокочастотном диапазоне доминирует ионизация из внутренней  $K$ -оболочки. Образовавшееся дырочное состояние быстро релаксирует за счет оже-распада или, напротив, образуется еще более возбужденное состояние за счет последующей фотоэмиссии. Таким образом, первый акт ионизации запускает сложную цепочку конкурирующих процессов, таких как флуоресценция, оже-распад, диссоциация и, наконец, кулоновский взрыв молекулы, а эволюция разряда зависит от параметров полей: интенсивности, длительности, поляризации и т. д. [8, 9]. При

\* E-mail: bibikov@sinp.msu.ru



этом система может оказаться полностью лишенной электронов [10].

Оже-процесс в катионе воды  $\text{H}_2\text{O}^+$  с  $K$ -вакансией (SCH, single core hole) исследовался теоретически и экспериментально [11–13]. Расчеты предсказали увеличение угла раскрытия катиона примерно до  $120^\circ$  и время жизни около 5 фс. Дикатион воды  $\text{H}_2\text{O}^{2+}$  не наблюдался в стабильном состоянии, однако он эффективно образуется при оже-распаде внутренней вакансии [14] или, например, при двойной ионизации [15]. Диссоциация дикатиона воды в низших возбужденных состояниях исследовалась в работах [16, 17]. Схожесть оже-спектров, соответствующих распаду  $1s$ -вакансии, локализованной на атоме кислорода, для различных кислородо-содержащих молекул обсуждалась в работе [18].

Если интенсивность излучения высока, то успевает образоваться дикатион с двойной вакансией на  $K$ -оболочке (DCH, double core hole). Впервые особенности оже-распада молекулярного DCH обсуждались в работе [19] и с тех пор были объектом многочисленных исследований — см., например, обзор [20]. Первый расчет спектров оже-электронов с единичной и двойной вакансиями во внутренней оболочке [21] показал, что ядерная динамика в DCH, в отличие от SCH, оказывает сильное влияние на спектры электронной эмиссии, а время жизни такого состояния составляет всего около 2 фс.

Одной из проблем экспериментов в газовой фазе является случайная ориентация молекулы в пространстве, приводящая к усреднению и, как следствие, размытию многих физических эффектов. Измерение на совпадения фотоэлектронов и заряженных фрагментов определяет ось (ориентацию) молекулы в пространстве, что, в частности, позволяет наблюдать особенности угловых распределений фотоэлектронов, неразличимые в традиционной постановке [22]. Измерение на совпадения заметно усложняет набор статистики и, соответственно, повышает требования к чувствительности детекторов. В результате таких экспериментов характеристики происходящих процессов регистрируются намного более детально, давая возможность связать электронную и ядерную динамику [23, 24]: так, например, было показано, как измерение угловых распределений в «зафиксированной» с помощью эксперимента на совпадения молекулярной системе позволяет найти длину молекулярной связи [25] или даже определить, через какой канал диссоциации произошел разлет молекулы [26, 27].

Развитие методов теоретического описания вероятностей и угловых распределений фотоэмиссии

из молекул началось с работ [28], и с тех пор для описания состояний непрерывного спектра использовались самые разные методы: от  $R$ -матрицы [29] и численного решения уравнения Шредингера [30] до очень популярного в настоящее время подхода ХСНЕМ [31].

Данная работа стимулирована экспериментом по изучению динамики разлета молекулы воды, выполненном в 2021 г. на европейском лазере на свободных электронах EuXFEL, в котором импульсы протонов, образовавшихся в результате кулоновского взрыва молекулы, измерялись вместе с импульсом и зарядовым состоянием иона кислорода [2].

Везде, где не отмечено иное, используется атомная система единиц.

## 2. ОСНОВНЫЕ ПОЛОЖЕНИЯ ТЕОРЕТИЧЕСКОГО МЕТОДА

Взаимодействие молекулы с электромагнитным полем может вызвать различные цепочки событий, которые мы будем называть *траекториями*. Упрощенная эволюция молекулы воды, включающая конфигурационные состояния и их геометрию, представлена на рис. 1. Первым событием при облучении молекулы воды  $\text{H}_2\text{O}$  синхротронным излучением обязательно является ионизация, при этом ионизация  $1s$ -оболочки на полтора порядка более вероятна, чем ионизация валентной оболочки. Геометрия положительно заряженного иона  $\text{H}_2\text{O}^+$  (катиона) отличается от геометрии нейтральной молекулы чуть большим (примерно на  $10^\circ$ ) углом раскрытия вне зависимости от того, произошла ионизация со внутренней  $ph(i)$  или с валентной  $ph(v)$  оболочки. Дальнейшая траектория, напротив, критически зависит от того, где образовалась вакансия.

Если ионизация произошла с внутренней оболочки  $ph(i)$ , то геометрия молекулы, определяемая положением ядер, не успевает перестроиться и происходит оже-распад (Auger decay, *au*) с характерным временем около 5 фс в дважды заряженный ион (дикатион)  $\text{H}_2\text{O}^{2+}$ , равновесная конфигурация которого является линейной молекулой. Существенное отклонение положений ядер в нейтральной молекуле  $\text{H}_2\text{O}$  и в молекулярном ионе  $\text{H}_2\text{O}^{2+}$  приводит к возбуждению ножничных, симметричных и асимметричных мод колебаний. Если интенсивность излучения высока, т. е. вероятность того, что повторная ионизация внутренней оболочки произойдет раньше, чем оже-распад, то образуется молекулярный ион с двойной  $K$ -вакансией. Как показали наши рас-

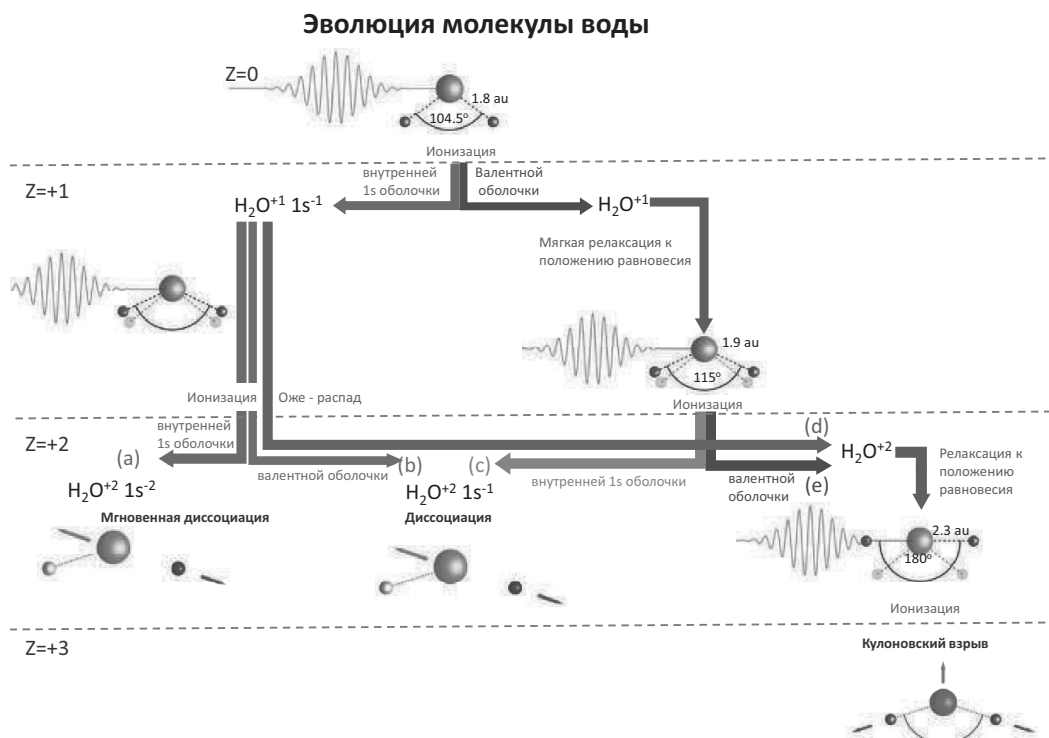


Рис. 1. Эволюция молекулы воды в интенсивном электромагнитном поле

четы, DCH-конфигурация не имеет равновесного состояния и быстро разваливается.

Если ионизация произошла с валентной оболочки, то ион  $\text{H}_2\text{O}^+$  мягко релаксирует в конфигурацию, равновесную для однократно заряженного иона, и возможна повторная ионизация. Отметим, что две примерно равновероятные траектории,  $ph(i)-ph(v)$  и  $ph(v)-ph(i)$  (соответственно (b) и (c) на рис. 1), приводят к одному и тому же состоянию с одиночной вакансией на 1s-оболочке, для которого также есть канал диссоциации на фрагменты  $\text{HO}^+$  и  $\text{H}^+$ , хотя и с меньшей скоростью, чем для DCH-состояния.

Траектории  $ph(i)-au$  и  $ph(v)-ph(v)$  (соответственно (d) и (e) на рис. 1) приводят к самому стабильному из дикатионов воды в его основной конфигурации, но следующий акт ионизации, вне зависимости от оболочки, приводит к кулоновскому взрыву молекулы.

Мы будем моделировать величины в соответствии с измерениями, сделанными в работе [2]: распределение ионов кислорода по зарядам, кинетическую энергию, приобретенную фрагментами молекулы в результате кулоновского отталкивания, и распределение импульсов фрагментов молекулы, измеренных на совпадении.

Далее мы более подробно рассмотрим следующие аспекты подхода: в разд. 2.1 мы приводим уравнения классического движения частиц в потенциале, описывающие динамику разлета; в разд. 2.2 мы рассматриваем квантовохимические аспекты: поверхности потенциальной энергии и частоты колебаний; в разд. 2.3 — вероятности реализации различных траекторий.

## 2.1. Динамика разлета заряженных фрагментов

Чтобы найти пространственные траектории атомов — фрагментов молекулы, мы, следуя изложенному в предыдущем разделе, принимаем следующую модель разрушения молекулы  $\text{H}_2\text{O}$  под действием высокоинтенсивного излучения. До приобретения молекулярным ионом заряда  $Z = +2$  атомы находятся в конфигурации нейтральной воды, испытывая нулевые колебания относительно равновесного положения. Это оправдано тем, что равновесное положение молекулярного иона с зарядом +1 не сильно отличается от равновесного положения нейтральной воды (см. разд. 2.2). Для определения временной эволюции положения атомных ядер молекулярного иона  $\text{H}_2\text{O}^{2+}$  решаются уравнения классического движения частиц в потенциале:

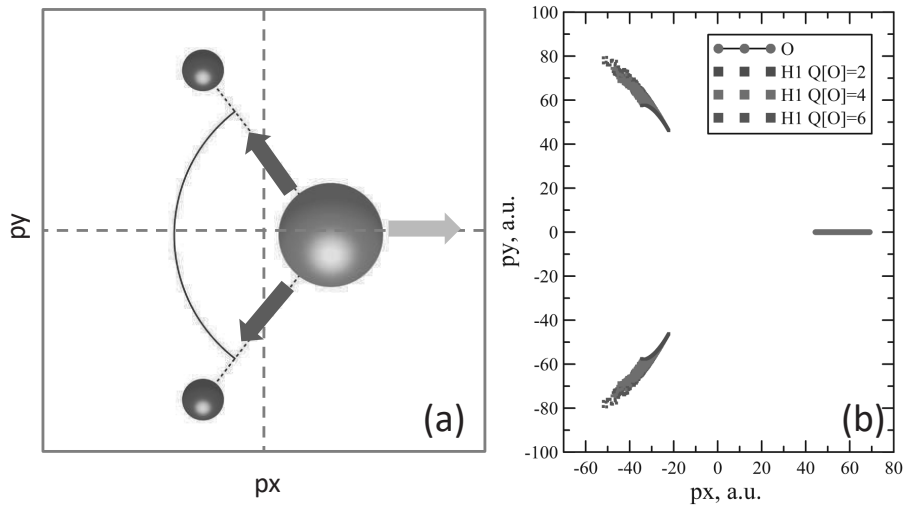


Рис. 2. *a* — Диаграмма Ньютона для трехчастичного разлета молекулы; *b* — диаграмма Ньютона, рассчитанная в простейшей модели кулоновского трехчастичного разлета молекулы воды

$$\begin{aligned} \frac{d\mathbf{p}_1}{dt} &= -\partial_{r_{01}} \mathcal{P} \frac{\mathbf{r}_{01}}{r_{01}} - \partial_f \mathcal{P} \left( \frac{\mathbf{r}_{02}}{r_{01}r_{02}} - f \frac{\mathbf{r}_{01}}{r_{01}^2} \right), \\ \frac{d\mathbf{p}_2}{dt} &= -\partial_{r_{02}} \mathcal{P} \frac{\mathbf{r}_{02}}{r_{02}} - \partial_f \mathcal{P} \left( \frac{\mathbf{r}_{01}}{r_{01}r_{02}} - f \frac{\mathbf{r}_{02}}{r_{02}^2} \right), \\ \frac{d\mathbf{p}_0}{dt} &= -\frac{d\mathbf{p}_1}{dt} - \frac{d\mathbf{p}_2}{dt}. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь  $\mathcal{P}$  — поверхность потенциальной энергии (ППЭ),  $\mathbf{p}_{0,1,2}$  — импульсы иона кислорода и каждого из атомов водорода соответственно. Для плоской трехатомной молекулы поверхность потенциальной энергии является функцией модулей двух векторов и угла между ними. Для молекулы воды естественно выбрать радиус-векторы от атома кислорода до атомов водорода ( $r_{01}$ ,  $r_{02}$ ) и угол  $\theta$  между ними. Тогда

$$\begin{aligned} \mathcal{P} &= V(r_{01}, r_{02}, f), \\ f &= \cos \theta = \frac{\mathbf{r}_{01} \cdot \mathbf{r}_{02}}{r_{01}r_{02}}. \end{aligned} \quad (2)$$

Поверхность потенциальной энергии рассчитывается квантовохимическими программными комплексами (см. разд. 2.2), при этом для системы с зарядом  $Z \geq +3$  или на асимптотически больших расстояниях она переходит в потенциал кулоновского отталкивания.

В результате моделирования системы (1) определяются импульсы протонов и ионов кислорода. Они могут быть представлены в разных видах, для удобства сравнения с экспериментом мы следуем представлению, используемому в работе [2], а именно в виде диаграмм Ньютона. На рис. 2 *a* изображена схема построения диаграммы Ньютона для разлета

молекулы воды: импульсы протонов и иона кислорода конкретной зарядности  $Q$  определены на совпадение, импульс кислорода откладывается по оси  $x$ , а импульсы протонов показываются относительно этого направления.

На рис. 2 *b* приведена диаграмма Ньютона, рассчитанная в самой простой модели, когда начальные условия для численного решения системы (1) определяются равновесной геометрией нейтральной молекулы воды, а ППЭ для системы с зарядом  $Z = +3$  сводится к кулоновскому потенциалу. Полученный график далек от экспериментального, подробно обсуждаемого в разд. 3. Поэтому далее для системы с зарядом  $+2$  берутся квантовохимические ППЭ, а в качестве начальных условий для численного решения системы (1) выбираются случайно сгенерированные координаты и импульсы атомов молекулы  $\text{H}_2\text{O}$ , соответствующие распределению вероятности нулевых колебаний гармонического осциллятора (см. разд. 2.2).

Как уже было отмечено выше, ППЭ катиона  $\text{H}_2\text{O}^+$  в любой конфигурации слабо отличается от ППЭ нейтральной воды. ППЭ дикатиона  $\text{H}_2\text{O}^{2+}$ , напротив, существенно отличается от ППЭ нейтральной воды и при этом зависит от электронного состояния. Нами рассматриваются три случая: DCH, SCH и две вакансии в валентной оболочке (основное состояние дикатиона). Мы не учитываем ППЭ с возбужденными валентными электронами, так как нижние возбужденные ППЭ слабо отличаются от ППЭ основного состояния.

Таблица. Частоты колебаний нейтральной воды, иона и дикатиона [см<sup>-1</sup>]

Mode	H <sub>2</sub> O (Z = +2)					H <sub>2</sub> O (Z = +2)1s <sup>-1</sup>				H <sub>2</sub> O (Z = +1)1s <sup>-1</sup>				H <sub>2</sub> O (Z = 0)			
	GAMESS	harm	anh	cub	qu	harm	anh	cub	qu	harm	anh	cub	qu	harm	anh	cub	qu
scis	686	677	729	13	38	735	718	-7	-10	1314	1249	-69	4	1626	1608	-21	3
sym	1673	1679	957	-998	276	907	-4*	-437	-474	3603	3404	-418	218	3846	3673	-363	190
asym	1144	1155	533	-1111	489	-	-	-	-	3628	3427	-441	240	3973	3807	-369	203

Дальнейшая ионизация в состояние с зарядом +3 приводит к чисто кулоновскому разлету заряженных фрагментов молекулы, т.е. уравнения движения (1) остаются прежними, но  $\mathcal{P}$  заменяется кулоновским потенциалом. При переходе на этот этап численного решения каждому фрагменту задается заряд +1. Таким образом, для канала диссоциации  $\text{O}^+ + \text{H}_2^+$  упускается возможность перехода в состояние  $\text{O}^{2+} + \text{H}_2^+$ . Подчеркнем, что квантовохимические расчеты предсказывают, что вклад такого канала незначителен (см. разд. 2.2). После разлета и до окончания воздействия электромагнитного импульса остается возможность дальнейшей эволюции зарядовой конфигурации иона кислорода.

2.2. Квантовохимическая основа подхода

Для катиона и дикатиона воды  $\text{H}_2\text{O}^{+,2+}$  мы выполнили расчеты ППЭ с использованием оригинальной программы [1, 32–35], апробированной на расчетах кристаллов BeO, Be(OH)<sub>2</sub> и более сложных молекул Be@C<sub>36</sub>. Энергия электронов в поле трех тяжелых ядер молекулы H<sub>2</sub>O рассчитывалась в неограниченном приближении Хартри–Фока (unrestricted Hartri–Fock, UHF) с учетом электрон-электронных корреляций во втором порядке теории возмущений (MP2). Использовался расширенный, учитывающий корреляции и валентную поляризацию, набор молекулярных базисных функций quadruple zeta aug-cc-pVQZ [36, 37]. Для контроля результатов вычислений проводилась сверка некоторых из них с вычисленными с использованием программного пакета GAMESS методом ROHF с учетом корреляций методом MP2 в базисе aug-cc-pVQZ.

На рис.3 представлены результаты расчетов ППЭ для катиона  $\text{H}_2\text{O}^+$  и дикатиона  $\text{H}_2\text{O}^{2+}$  воды. Символы представляют собой результаты расчетов, а сплошные кривые — фитирование комбинацией потенциалов Морзе и кулоновского. Приведены кривые, соответствующие симметричному расположению атомов водорода ( $r_1 = r_2$ ), и для фиксированного положения одного из атомов. На рис. 3 *a, b* приведены расчеты для катиона в основном состоянии и с вакансией на 1s-оболочке. Можно видеть, что как при симметричном, так и при асиммет-

ричном отклонении ядер водорода от равновесного состояния формируется существенная потенциальная яма, обеспечивающая равновесную конфигурацию. На рис. 3 *c, d, e* приведены ППЭ для дикатиона  $\text{H}_2\text{O}^{2+}$  воды в основном состоянии, с однократной вакансией на 1s-оболочке (SCH) и с двухкратной (DCH). Рисунки 3 *a–e* приведены для оптимального угла между направлениями на атомы водорода (115° для катиона и 180° для дикатиона). На рис. 3 *f* приведена ППЭ (рис. 3 *e*) для оптимального расстояния между атомами водорода как функция угла между ними.

Как показывает анализ расчетов ППЭ с одной или двумя вакансиями на 1s-оболочке (рис. 3 *d, e*), связанного состояния для такого дикатиона воды не существует, причем диссоциация происходит по асимметричному каналу (малиновая кривая) во фрагменты  $\text{OH}^+$  и  $\text{H}^+$ . Для основного состояния дикатиона (рис. 3 *c*) даже для асимметричной моды колебаний есть небольшой барьер 0.1 эВ (малиновая кривая). Этот барьер ниже, чем энергия нулевых колебаний нейтральной воды, поэтому молекула диссоциирует, что согласуется с выводами [38]. Таким образом, движение системы вдоль синих кривых отвечает за канал диссоциации в  $\text{O} + 2\text{H}^+$ , а вдоль малиновой и коричневой кривых — в  $\text{H}^+ + \text{OH}^+$ . Преимущественной является диссоциация по асимметричному каналу  $\text{H}^+ + \text{OH}^+$ , что соответствует результатам [39].

В таблице приведены частоты ножничных (scis), симметричных (sym) и асимметричных (asym) колебаний для различных ионов воды. Мы выделили составляющую частоты, соответствующую гармоническому осциллятору (harm), ангармоническую частоту (anh), кубическую (cub) и биквадратичную (qu) поправки к гармонической частоте. Наблюдается существенный ангармонизм симметричных и асимметричных мод, заметно возрастающий для SCH-состояния. Отметим, что для дикатиона меняется соотношение частот радиальных мод — жесткость симметричной моды становится больше, чем асимметричной. Для SCH-состояния асимметричная мода становится неустойчивой, симметричная мода существует на грани погрешности расчетов

(отмечено звездочкой), а для DCH-состояния связанное состояние вообще отсутствует.

Расчеты, результаты которых приведены в таблице, находятся в разумном согласии с экспериментальными данными [11]:  $1645, 3831, 3944 \text{ см}^{-1}$  для нейтральной воды и  $3710, 1121 \text{ см}^{-1}$  для катиона с *K*-вакансией. Слабое изменение равновесного состояния нейтральной молекулы и катиона (около  $10^\circ$ ) также находится в согласии с экспериментом и расчетами [11].

Как отмечено в разд. 2.2, положение и импульс атомов водорода испытывают колебания. При этом для нейтральной воды не существует физически определенного начального момента времени. Поэтому колебания для каждой моды учитываются случайным образом с гауссовым распределением ширины, связанной с частотами соотношением  $\sqrt{m_i \omega_i}$  и  $1/\sqrt{m_i \omega_i}$  для координаты и импульса соответственно [40] ( $m_i$  — приведенная масса атома водорода). Например, амплитуда радиальных колебаний оценивается примерно равной 0.3 ат. ед., т. е. является существенной (около 15%) поправкой к равновесной длине связи. Переданный фотоном атому кислорода импульс (около 6 ат. ед.) может вызвать в системе центра масс колебания с энергией  $2 \cdot 10^{-4}$  ат. ед., что на полтора порядка меньше энергий низших возбужденных состояний молекулы воды, связанных с движением ядер (см. таблицу).

Для дальнейшего анализа важно понимать, успеет ли дикатион воды развернуться от положения  $105^\circ$ , равновесного для нейтральной воды, к положению  $180^\circ$ , характеризующему равновесие для дикатиона воды. Характерное время разворачивания приблизительно равно 10 фс, что для рассматриваемого электромагнитного поля (см. разд. 2.3) близко к времени повторной фотоионизации.

### 2.3. Зарядовое состояние кислорода

Эволюция зарядовой конфигурации молекулы воды и ее фрагментов по конкретной траектории моделируется с помощью развитого аналога генеалогической схемы с использованием вероятностей атомных переходов (фотоионизация, оже-переходы, радиационные переходы [19]). Этот упрощенный подход считается оправданным при исследовании ионизации высокочастотным излучением, когда вероятности процессов выходят на асимптотическое поведение [41, 42]. Вероятность ионизации различных оболочек атома и ионов кислорода получена с использованием алгоритма Германа–Скиллмана [43] и находится в полном соответствии с расчетами [44,

45]. Вероятности оже-распадов и флуоресценции были взяты из работы [42]. Оже-распад можно классифицировать по участвующим в нем  $2s$  (L) и валентным (V) электронам, как (LL), (LV) и (VV). Вероятность первого из них практически совпадает с вероятностью оже-распада иона кислорода. Используемые в данном исследовании скорости оже-распадов (в ат. ед.) SCH-состояния  $7.01 \cdot 10^{-4}$  (LL),  $1.36 \cdot 10^{-3}$  (LV),  $2.04 \cdot 10^{-3}$  (VV) и DCH-состояния  $2.164 \cdot 10^{-3}$  (LL),  $4.62 \cdot 10^{-3}$  (LV),  $6.39 \cdot 10^{-3}$  (VV) отличаются от приведенных в работе [21] соответствующих значений  $1.51 \cdot 10^{-4}$ ,  $1.4 \cdot 10^{-3}$ ,  $3.8 \cdot 10^{-3}$  и  $7.65 \cdot 10^{-4}$ ,  $3.6 \cdot 10^{-3}$ ,  $11.6 \cdot 10^{-3}$ , однако полная ширина для этих двух расчетов находится в разумном согласии. Систематически меньшая ширина VV-канала, когда фото- и активный электроны принадлежат валентной оболочке, связана с пренебрежением в нашей модели межатомным оже-распадом (interatomic Auger decay).

Многочастицный атом, например, кислород, может формировать ионы различной зарядности, от  $O^+$  до  $O^{8+}$ , причем иону одного заряда может соответствовать много различных конфигураций. Надо подчеркнуть, что при определенных условиях некоторые экзотические «полые» конфигурации (например,  $O^{6+}, 1s^0 2s^2$ ) могут образовываться с большей вероятностью, чем основные состояния данного иона [8].

Зарядовая конфигурация определяется на каждом временном интервале, исходя из вероятности перехода от текущего состояния к следующему, методом Монте-Карло — посредством генерации случайного числа с постоянной вероятностью

$$P_{a \rightarrow b} = w_{a \rightarrow b} dt$$

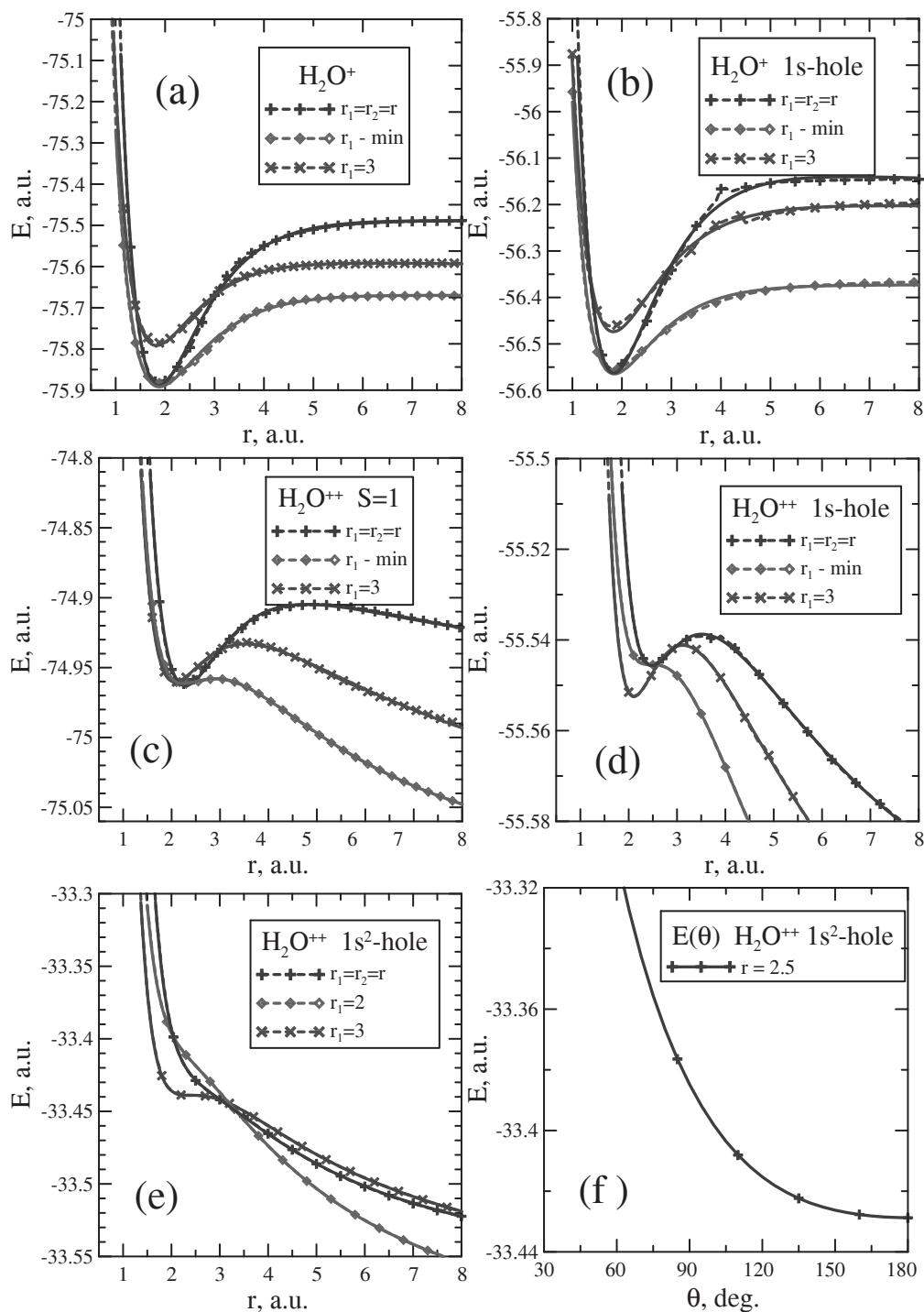
для оже-распада и флуоресценции, и с зависящей от времени вероятностью фотоионизации

$$P_{a \rightarrow b} = j(t) \sigma_{a \rightarrow b} dt.$$

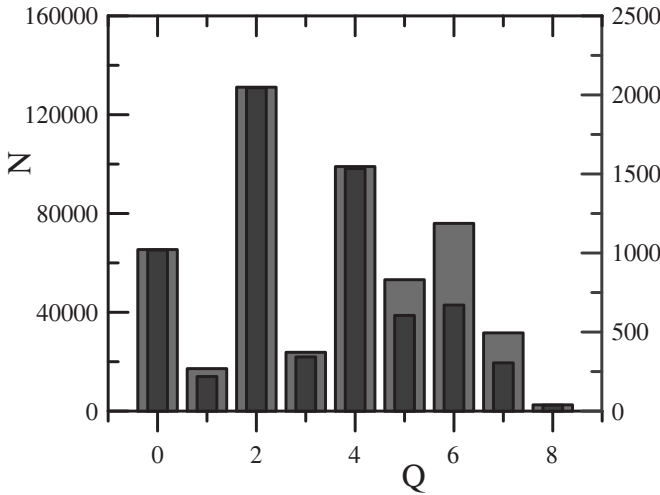
Здесь  $w_{a \rightarrow b}$  — скорость перехода из конфигурации  $a$  в конфигурацию  $b$ ,  $\sigma_{a \rightarrow b}$  — сечение фотоионизации,  $j(t)$  — плотность потока падающего излучения. Таким образом набирается необходимое для статистики количество траекторий разлета (100000–250000).

Настоящую форму импульса электромагнитного поля трудно определить, и для ее аппроксимации используются степенные функции косинуса или гауссово распределение. Определенными параметрами считаются флюенс — интегральный поток фотонов в импульсе, и ширина (full width at half-maximum — FWHM). Для большей части расчетов мы использовали импульсы излучения следующей формы:





**Рис. 3.** Сечение поверхности потенциальной энергии ионов воды  $\text{H}_2\text{O}^+$  и  $\text{H}_2\text{O}^{2+}$ : (a,b) однократный ион  $\text{H}_2\text{O}^+$  в основном состоянии и с 1s-вакансией, локализованной на атоме кислорода; (c–e) двукратный ион  $\text{H}_2\text{O}^{2+}$  в основном состоянии (c), с одной (d) и двумя (e) вакансиями в 1s-оболочке при фиксированном значении угла; (f) случай (e) при фиксированных значениях координат протонов как функция угла между направлениями на них. Разные кривые соответствуют разным отклонениям от равновесного положения: симметричное расположение атомов водорода ( $r_1 = r_2$ , синяя кривая), фиксированное положение одного из атомов в минимуме потенциальной энергии ( $r_1 = \text{min}$ , малиновая кривая) и в  $r_1 = 3$  ат. ед. (коричневая кривая). Точки показывают результаты расчетов, сплошные кривые — результат их фитирования комбинацией потенциалов Морзе и кулоновского



**Рис. 4.** Распределение выходов ионов кислорода по зарядам, рассчитанное для импульса с энергией фотонов 1000 эВ, флюенсом  $2 \cdot 10^{11}$  фотонов/мкм<sup>2</sup> и длительностью 40 фс. Красным представлены текущие расчеты (левая шкала), синим — расчеты из работы [2] (правая шкала)

$$j(t) = j_0 \cos^4(\pi t/t_p), \quad (3)$$

где  $j_0$  — амплитуда плотности потока в импульсе,  $t_p$  — полная длительность импульса. Характерная длительность импульсов, генерируемых лазерами на свободных электронах, составляет FWHM 10–25 фс [46, 47]. Для импульса (3) флюенс  $F$  для фотонов с энергией  $E_\gamma$ :

$$F = 3 t_p j_0 / 8 E_\gamma. \quad (4)$$

Можно выделить базовые траектории эволюции молекулы, начинающиеся с ионизации внутренней оболочки (рис. 1):

- (a)  $ph(i) \rightarrow ph(i) \rightarrow$  мгновенная диссоциация ( $Z = +2$ );
- (b)  $ph(i) \rightarrow ph(v) \rightarrow$  диссоциация ( $Z = +2$ );
- (c)  $ph(v) \rightarrow ph(i) \rightarrow$  диссоциация ( $Z = +2$ );
- (d)  $ph(i) \rightarrow au \rightarrow ph(i, v) \rightarrow$  кулоновский взрыв ( $Z = +3$ );
- (e)  $ph(v) \rightarrow ph(v) \rightarrow ph(i, v) \rightarrow$  кулоновский взрыв ( $Z = +3$ ).

На рис. 4 представлены результаты наших расчетов выходов  $N$  кислорода различной зарядности  $Q$  в сопоставлении с расчетами [2]. Наблюдается отмечавшееся ранее для других систем [48] преимущественное формирование ионов с четными зарядами,

так как траектории  $ph(i)-au$  — ионизация внутренней оболочки с последующим оже-распадом — реализуются с большей вероятностью. Наблюдающееся в текущих расчетах несколько большее образование ионов с  $Z > 4$ , по-видимому, указывает на чуть большую эффективную длительность импульса.

### 3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

#### 3.1. Диаграммы Ньютона

На рис. 5 представлены результаты расчетов импульсов протонов и иона кислорода  $O^{2+}$  с различными начальными условиями для решения системы уравнений (1): (a) — начальное состояние определяется равновесной геометрией нейтральной молекулы воды; (b) — начальное состояние является случайным и определяется ее ножничными колебаниями; (c) — то же самое, но для симметричных колебаний; (d) — то же самое, но для асимметричных колебаний; (e) — при учете всех трех мод колебаний для нейтральной воды.

Характерной и важной особенностью измерений, сделанных в работе [2], является заметное количество протонов, зарегистрированных в той же полусфере, что и ион кислорода. Чтобы подобное стало в принципе возможным, необходимо, чтобы молекулярный ион разлетался из сильно развернутой конфигурации, когда угол между направлениями на атомы водорода составляет примерно  $180^\circ$ , при этом ион должен быть существенно несимметричен. Можно показать, что при распаде молекулы воды из симметричной геометрии невозможен вылет иона водорода в переднюю полуплоскость по отношению к иону кислорода. Поэтому для появления событий в передней полуплоскости необходимо наличие асимметричной моды. В отличие от симметричных и ножничных колебаний, которые возникают за счет различия равновесных геометрий нейтральной воды и дикатиона, асимметричные колебания, хоть и автоматически учитываются в расчетах с квантово-химической ППЭ, но не могут возбудиться, если их не было в нейтральной молекуле. Поэтому подобных событий на рис. 5 а не наблюдается. Можно видеть, что учет нулевых колебаний нейтральной молекулы воды решает эту проблему.

#### 3.2. Влияние эволюции кислорода на динамику разлета

Для исследования различия между ранними и поздними развалами молекулы на рис. 6 мы приве-

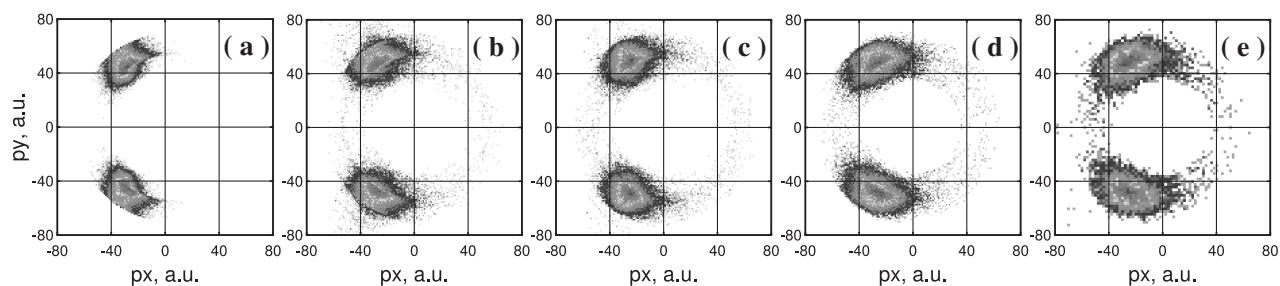


Рис. 5. Диаграммы Ньютона для протонов, измеренных на совпадение с ионом кислорода  $O^{2+}$ , для различных мод, разрешенных для начального состояния нейтральной молекулы воды  $H_2O$ : (a) — равновесная конфигурация; (b) — разрешены только ножничные колебания; (c) — разрешены только симметричные колебания; (d) — разрешены только асимметричные колебания; (e) — разрешены ножничные, симметричные и асимметричные колебания

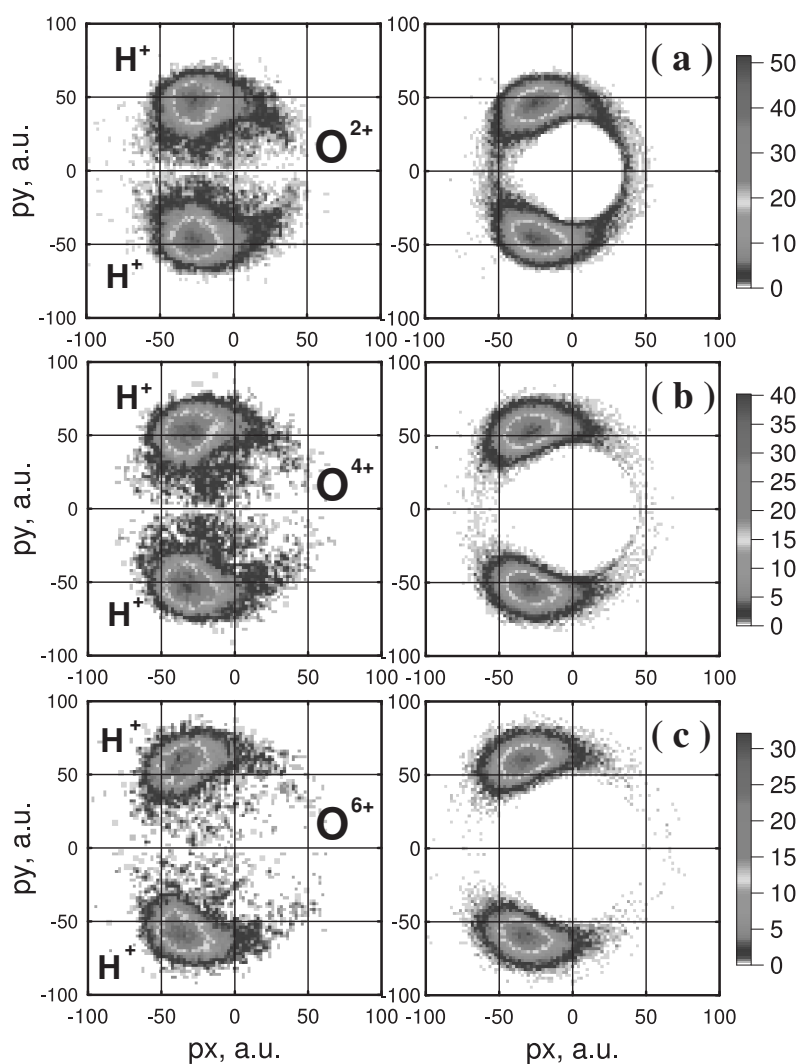
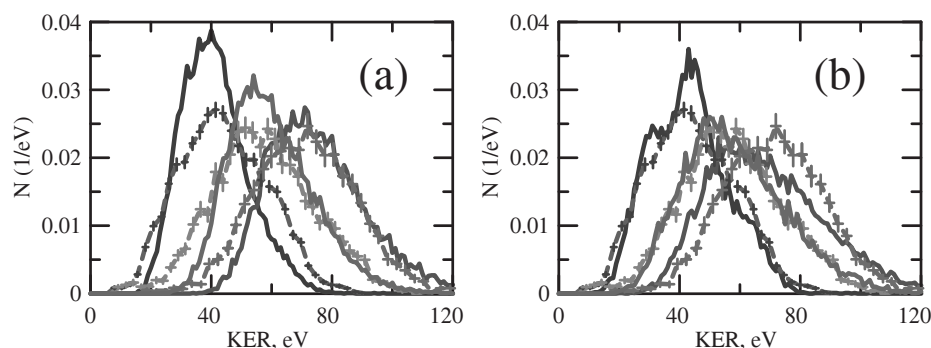


Рис. 6. Диаграммы Ньютона для протонов, измеренных на совпадение с ионом кислорода  $O^{2+}$  (a),  $O^{4+}$  (b) и  $O^{6+}$  (c). Слева — экспериментальные данные [2], справа — результаты расчета





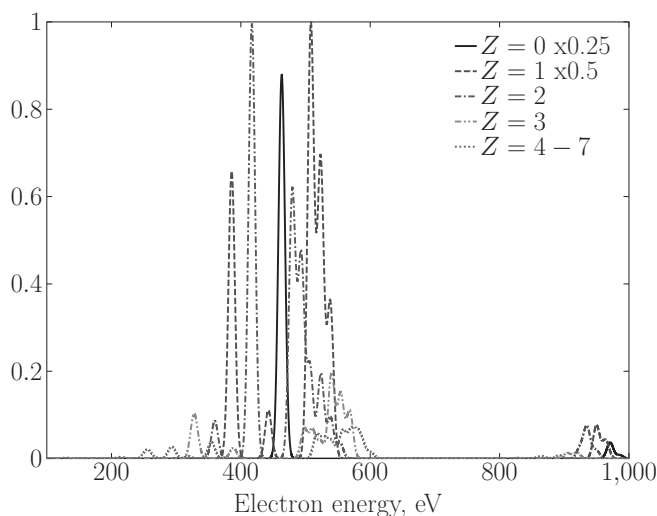
**Рис. 7.** Высвобожденная кинетическая энергия (kinetic energy release, KER) для ионов  $O^{2+}$  — синие линии,  $O^{4+}$  — красные линии и  $O^{6+}$  — зеленые линии. Экспериментальные данные [2] показаны точками с ошибками и штриховой линией, сплошные линии соответствуют текущим расчетам: (а) — для импульса формы (3), (б) — для импульса более сложной формы, а именно суммы узкого (10 фс) и широкого (50 фс) импульсов с отношением интенсивностей 1:1

ли сравнение диаграмм Ньютона для протонов, измеренных на совпадение с ионами кислорода зарядности  $O^{2+}$ ,  $O^{4+}$  и  $O^{6+}$ . В этих зарядовых состояниях в конце импульса оказывается наибольшее число ионов (см. рис. 4). Очевидно, что событиям с большим зарядом соответствует более ранняя ионизация нейтральной воды и более быстрый распад молекулярного иона. Это приводит к уменьшению числа протонов, регистрируемых в одной полусфере с кислородом, и увеличению среднего импульса протонов, что наблюдается в эксперименте и подтверждается расчетами.

Рисунок 7 представляет собой интегральную характеристику ньютоновских диаграмм рис. 6, а именно общее количество событий с данной суммарной кинетической энергией фрагментов. Ионам меньшей зарядности соответствуют кривые, сдвинутые в низкоэнергетическую область, а ионам большей зарядности — в высокоэнергетическую. Разница приобретенной кинетической энергии для ионов с  $\Delta Z = 2$  составляет порядка 10 эВ. Синяя кривая на рис. 7, соответствующая меньшей зарядности, претерпевает меньше статистических флуктуаций и более чувствительна к форме импульса, в то время как зеленая кривая, соответствующая большему заряду, существенно усредняется (размывается). На рис. 7 б представлены расчеты для импульса более сложной формы: суммы узкого (10 фс) и широкого (50 фс) импульсов с отношением интенсивностей 1:1.

### 3.3. Спектры фотоэлектронов

На рис. 8 представлены спектры электронов, испущенных при облучении молекулы воды интенсивным электромагнитным излучением. Различные



**Рис. 8.** Фотоэлектронный спектр при ионизации воды импульсом с энергией фотонов 1000 эВ, флюенсом  $2 \cdot 10^{11}$  фотонов/мкм<sup>2</sup> и длительностью 40 фс. Вклады от ионизации нейтральной ( $Z = 0$ ) и однократно заряженной ( $Z = 1$ ) молекулы воды отмасштабированы относительно остальных вкладов на 4 и на 2 соответственно.

кривые соответствуют разным зарядам (иона) кислорода, из которого испускается электрон. Группа линий в области 900–950 эВ соответствует фотоэмиссии с валентных оболочек, группа линий в области 300–600 эВ включает в себя как линии фотоэмиссии из внутренней  $K$ -оболочки, так и оже-электроны. Черная линия при 460 эВ соответствует ионизации  $K$ -оболочки нейтральной молекулы воды. Подчеркнем, что разница в потенциалах ионизации этой оболочки атома кислорода (536 эВ) и молекулы воды (539 эВ) находится за пределами

разрешающей способности предполагаемого детектора, для которых разрешающая способность  $0.01E_e$  считается очень хорошей ( $E_e$  – энергия электрона). Все линии, расположенные ниже по энергии, чем этот фотопик, соответствуют фотоионизации  $K$ -оболочки, причем для однократно заряженного иона доминирует ветвь  $1s^1 \rightarrow 1s^0$ , а для дважды заряженного иона —  $1s^2 \rightarrow 1s^1$ . Объясняется это нехваткой ионов в соответствующем начальном состоянии, а именно, однократные ионы, в основном имеют  $K$ -вакансию, а в двухзарядных она уже заполнена за счет оже-распада. Структуры выше по энергии, чем фотопик 460 эВ, соответствуют оже-электронам. Структура трезубца, наблюдаемая для оже-спектра иона фиксированной зарядности, происходит из-за участия в распаде двух  $2s$ -электронов LL (меньшая энергия), одного  $2s$ -электрона и одного валентного V, и двух валентных VV (большая энергия). Предсказанная нами структура оже-спектра находится в соответствии с расчетами [18].

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе рассмотрена динамика разлета фрагментов молекулы воды, инициированная взаимодействием с интенсивным электромагнитным импульсом. Получено распределение ионов кислорода по зарядам, промоделированы импульсы, приобретаемые протонами и кислородом после разлета при различных зарядовых траекториях эволюции молекулы. Результаты представлены в виде диаграмм Ньютона, то есть диаграмм импульсов протонов, детектируемых на совпадение с импульсом кислорода. Рассчитана высвобожденная кинетическая энергия (KER) за счет кулоновского взрыва молекулы. Все расчеты выполнены для условий, приближенных к эксперименту [2], и сопоставлены с его результатами. Согласие экспериментальных данных и расчетов показывает применимость предложенного метода.

Рассчитанные и измеренные диаграммы Ньютона демонстрируют максимумы и шлейф событий, соответствующих протону, вылетевшему в ту же полуплоскость, что и ион кислорода. В то время как основные максимумы формируются за счет кулоновского трехчастичного разлета, шлейф определяется различными колебательными модами нейтральной молекулы воды, ее катиона и дикатиона. Расчеты показали существенную чувствительность приобретаемой кинетической энергии от формы электромагнитного импульса.

**Финансирование.** Разработка подхода к описанию динамики разлета молекулы воды, составление соответствующих диаграмм Ньютона и анализ поверхностей потенциальной энергии ионов воды выполнены при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации, грант № 075-15-2021-1353. Анализ фотоэлектронных спектров при ионизации молекулы воды поддержан Российским Научным Фондом, проект № 23-62-10026 [49]. Вычислительная часть поддержана Министерством науки и высшего образования Российской Федерации в рамках проекта № FEME-2024-0005.

**Благодарности.** Авторы выражают благодарность профессорам Renaud Guillemin и Marc Simon за предоставление оригинальных экспериментальных данных из работы [2].

#### ЛИТЕРАТУРА

1. A. Artemyev, A. Bibikov, V. Zayets, and I. Bodrenko, J. Chem. Phys. **123**, 024103, (2005).
2. T. Jahnke et al. Phys. Rev. X **11**, 041044 (2021).
3. B. Boudaiffa, P. Cloutier, D. Hunting, M. A. Huels, and L. Sanche, Science **287**, 1658 (2000).
4. B. C. Garrett et al., Chem. Rev. **105**, 355 (2005).
5. R. W. Carlson et al., Science **283**, 2062 (1999).
6. M. Blanc, D. J. Andrews, A. J. Coates, D. C. Hamilton, C. M. Jackman, X. Jia, A. Kotova, M. Morooka, H. T. Smith, and J. H. Westlake, Space Sci. Rev. **192**, 237 (2015).
7. I. G. Draganic, Radiat. Phys. Chem. **72**, 181 (2005).
8. S. Serkez, G. Geloni, S. Tomin, G. Feng, E. V. Gryzlova, A. N. Grum-Grzhimailo, and M. Meyer, J. Opt. **20**, 024005 (2018).
9. E. V. Gryzlova, M. D. Kiselev, M. M. Popova, and A. N. Grum-Grzhimailo, Phys. Rev. A **107**, 013111 (2023).
10. F. Braube, Phys. Rev. A **97**, 043429 (2018).
11. A. Sankari, C. Stråhlman, R. Sankari, L. Partanen, J. Laksman, J. A. Kettunen, I. F. Galvin, R. Lindh, P.-Å. Malmqvist, and S. L. Sorensen, J. Chem. Phys. **152**, 074302 (2020).
12. H. Siegbahn, L. Asplund, and P. Kelfve, Chem. Phys. Lett. **35**, 330 (1975).
13. H. Ågren and O. Vahtras, J. Phys. B **26**, 913 (1993).

14. A. Moddeman, J. A. Carlson, M. O. Krause, B. P. Pullen, W. E. Bull, and G. K. Schweitzer, *J. Chem. Phys.* **55**, 2317 (1971).
15. S. W. J. Scully, *Phys. Rev. A* **73**, 040701R (2006).
16. Z. L. Streeter, F. L. Yip, R. R. Lucchese, B. Gervais, T. N. Rescigno, and C.W. McCurdy, *Phys. Rev. A* **98**, 053429 (2018).
17. D. Reedy et al., *Phys. Rev. A* **98**, 053430 (2018).
18. P. Wang, T. X. Carroll, T. D. Thomas, L. J. Søthre, K. J. Børve, *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena* **251**, 147103 (2021).
19. L. S. Cederbaum, F. Tarantelli, A. Sgamellotti, and J. Schirmer, *J. Chem. Phys.* **85**, 6513 (1986).
20. M. N. Piancastelli, *Eur. Phys. J. Special Topics* **222**, 2035 (2013).
21. L. Inhester, C. F. Burmeister, G. Groenhof, and H. Grubmüller, *J. Chem. Phys.* **136**, 144304 (2012).
22. R. Dorner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer, and H. Schmidt-Böcking, *Phys. Rep.* **330**, 95 (2000).
23. M. N. Piancastelli, A. Hempelmann, F. Heiser, O. Gessner, A. Rüdell, and U. Becker, *Phys. Rev. A* **59**, 300 (1999).
24. A. Sankari, C. Stråhlman, R. Sankari, L. Partanen, J. Laksman, J. A. Kettunen, I. F. Galván, R. Lindh, P.-Å. Malmqvist, and S. L. Sorensen, *J. Chem. Phys.* **152**, 074302 (2020).
25. H. Fukuzawa et al., *J. Chem. Phys.* **150**, 174306 (2019).
26. T. Severt, Z. L. Streeter, W. Iskandar, K. A. Larsen, A. Gatton, D. Trabert, B. Jochim, B. Griffin, E. G. Champenois, M. M. Brister, D. Reedy, D. Call, R. Strom, A. L. Landers, R. Dörner, J. B. Williams, D. S. Slaughter, R. R. Lucchese, T. Weber, C. W. McCurdy, and I. Ben-Itzhak, *Nat. Commun.* **13**, 5146 (2022).
27. J. Howard, M. Britton, Z. L. Streeter, C. Cheng, R. Forbes, J. L. Reynolds, F. Allum, G. A. McCracken, I. Gabalski, R. R. Lucchese, C. W. McCurdy, T. Weinacht, and P. H. Bucksbaum, *Commun. Chem.* **6**, 81 (2023).
28. D. Dill and J. L. Dehmer, *J. Chem. Phys.* **61**, 692 (1974).
29. L. Moore, M. Lysaght, L. Nikolopoulos, J. Parker, H. van der Hart, and K. Taylor, *J. Mod. Opt.* **58**, 1132 (2011).
30. R. R. Lucchese, K. Takatsuka, and V. McKoy, *Phys. Rep.* **131**, 147 (1986).
31. C. Marante, M. Klinker, I. Corral, J. Gonzalez-Vazquez, L. Argenti, and F. Martin, *J. Chem. Theory Comput.* **13**, 499 (2017).
32. E. V. Tkalya, A. V. Bibikov, and I. V. Bodrenko, *Phys. Rev. C* **81**, 024610, (2010).
33. E. V. Tkalya, A. V. Avdeenkov, A. V. Bibikov, I. V. Bodrenko, and A. V. Nikolaev, *Phys. Rev. C* **86**, 014608, (2012).
34. A. V. Bibikov, A. V. Avdeenkov, I. V. Bodrenko, A. V. Nikolaev, and E. V. Tkalya, *Phys. Rev. C* **88**, 034608, (2013).
35. А. В. Биби́ков, Г. Я. Коренман, С. Н. Ю́дин, *Вестн. Моск. ун-та. Сер. 3. Физ. Астрон.* **78(1)**, 2310602 (2023).
36. T. H. Dunning, *J. Chem. Phys.* **90**, 1007 (1989).
37. K. L. Schuchardt, B. T. Didier, T. Elsethagen et al., *J. Chem. Inf. Model.* **47**, 1045 (2007), doi:10.1021/ci600510j
38. B. Gervais, E. Giglio, L. Adoui, A. Cassimi, D. Duflot, and M. E. Galassi, *J. Chem. Phys.* **131**, 024302 (2009).
39. H. B. Pedersen et al., *Phys. Rev. A* **87**, 013402 (2013).
40. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифши́ц, *Квантовая механика: нерелятивистская теория*, Физматлит, Москва (2004).
41. V. Y. Lunin, A. N. Grum-Grzhimailo, E. V. Gryzlova, D. O. Sinitsyn, T. E. Petrova, N. L. Lunina, N. K. Balabaev, K. B. Tereshkina, A. S. Stepanov, Y. F. Krupyanskii, *Acta Cryst. D* **71**, 293 (2015).
42. Kengo Moribayashi, *J. Phys. B* **41**, 085602 (2008).
43. F. Herman and S. Skillman, *Atomic Structure Calculations*, Englewood Cliffs: Prentice-Hall Inc. (1963).
44. J. J. Yeh and I. Lindau, *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **32**, 1 (1985).
45. Sang-Kil Son, L. Young, and R. Santra, *Phys. Rev. A* **83**, 033402 (2011).
46. E. Allaria, R. Appio, L. Badano et al., *Nat. Phot.* **6**, 699 (2012).
47. P. Finetti et al., *J. Opt.* **19**, 114010 (2017).
48. C. Buth, R. Beerwerth, R. Obaid, N. Berrah, L. S. Cederbaum, and S. Fritzsche, *J. Phys. B* **51**, 055602 (2018).
49. <https://rscf.ru/en/project/23-62-10026/>.

# СВЕТОВОЙ КОНТРОЛЬ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ НАНОЧАСТИЦ В КОЛЛОИДАХ С УСИЛЕНИЕМ И ПОГЛОЩЕНИЕМ

А. А. Жаров <sup>a</sup>, Н. А. Жарова <sup>b\*</sup>

<sup>a</sup> Институт физики микроструктур Российской академии наук  
603950, Нижний Новгород, Россия

<sup>b</sup> Институт прикладной физики Российской академии наук  
603950, Нижний Новгород, Россия

Поступила в редакцию 5 июня 2024 г.,  
после переработки 4 августа 2024 г.  
Принята к публикации 14 августа 2024 г.

Изучается воздействие света на композитную систему, которая представляет собой сбалансированный по поглощению/усилению коллоидный раствор поглощающих наночастиц в усиливающей жидкости. Рассмотрена модель плоского слоя коллоида, на который по нормали падает плоская (ТЕМ) электромагнитная волна. Совместное действие стрикции и силы увлечения (сила, возникающая вследствие передачи поглощающим частицам импульса фотонов) вызывает пространственное перераспределение концентрации частиц, в результате чего локальный баланс поглощения и усиления в слое нарушается, и выделяются пространственные области, в которых происходит усиление и поглощение света. Показано, что в зависимости от интенсивности падающего излучения могут реализоваться как плавные, так и почти ступенчатые профили концентрации наночастиц. Соответствующие распределения эффективной диэлектрической проницаемости коллоида обладают РТ (Parity-Time)-симметрией (отвечает условию  $\varepsilon(z) = \varepsilon^*(-z)$ ) при малой интенсивности поля накачки, но отличаются от РТ-симметричных распределений при умеренных и высоких интенсивностях. Создание контролируемого профиля локального усиления и поглощения света может служить платформой для изучения специфических неэрмитовых оптических эффектов, а также расширяет возможности оптической диагностики распределения наночастиц в коллоидных растворах со скомпенсированным поглощением.

DOI: 10.31857/S0044451024120022

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Управление потерями и особенно создание условий для распространения незатухающих оптических мод является давней, но до сих пор актуальной проблемой в оптике. Полная компенсация неоднородных в пространстве потерь за счет включения в систему активных оптических элементов (накачки) носит индивидуальный характер: для каждой моды в принципе нужно подбирать свой профиль накачки. Однако существует целый класс РТ (Parity-Time)-симметричных систем (инвариантных по отношению к инверсии пространственных координат и обращению времени [1]), в которых такая компенсация (для РТ-симметричных мод) достигается автоматически.

Концепция РТ-симметрии происходит из квантовой механики [2], где было показано, что гипотетический комплексный РТ-симметричный потенциал может иметь состояния (также РТ-симметричные собственные функции) с действительными собственными значениями. В оптике для квазимонохроматических ( $\propto \exp(i\omega t)$ ) процессов обращение времени соответствует обращению знака при мнимой единице, и РТ-симметрия отвечает условию, определяющему специфическое пространственное распределение действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости,  $\varepsilon(\mathbf{r}) = \varepsilon^*(-\mathbf{r})$  [3].

Теоретические и экспериментальные исследования показали, что изменение параметров в РТ-симметричной системе (обычно это рост мнимой части проницаемости, как положительной, так и отрицательной) может приводить к нарушению РТ-симметрии моды и трансформации ее спектра из чисто действительного в комплексный. Соответствующую

\* E-mail: zhani@appl.sci-nnov.ru

щую точку перехода, в которой происходит вырождение собственных значений, принято называть «исключительной» (exceptional point), а сам переход от действительных к комплексным собственным значениям можно трактовать как фазовый переход второго рода [4].

Экспериментальная доступность оптических РТ-симметричных систем и, в частности, эффект исключительных точек дали толчок для ряда новых приложений, таких как устройства для индуцированного поглощения и усиления [1,5,6], невзаимный транспорт фотонов [7], сенсинг [8] и т.д. В настоящее время оптические РТ-симметричные структуры получают на основе полупроводниковых материалов III–V групп [6] или допированного кристалла кремния [9].

В этой работе мы предлагаем модель неэрмитовой оптической системы на основе перестраиваемого и конфигурируемого жидкого метаматериала (коллоидный раствор поглощающих частиц в усиливающей жидкости [10]), который под действием света может демонстрировать как РТ-симметричные, так и отличные от РТ-симметричных распределения диэлектрической проницаемости.

Аналогичная постановка задачи применялась в недавней работе авторов [11], где в качестве метаматериальной среды рассматривался коллоид со взвешенными в нем частицами двух типов (усиливающие и поглощающие), которые обеспечивали нулевой баланс усиления–поглощения. Под действием света в такой системе поглощающие частицы испытывают силу увлечения, которая направлена вдоль волнового вектора и связана с передачей импульса фотона, в то время как сила, действующая на активные частицы, направлена в противоположную сторону и появляется в результате стимулированного излучения [12–14]. В [11] было показано, что перераспределение под действием этих сил пространственной плотности усиливающих и поглощающих частиц всегда приводит к образованию РТ-симметричного профиля эффективной диэлектрической проницаемости.

Более реалистичная модель среды, используемая в настоящей работе, предполагает, что усиление света достигается за счет фотоактивного геля [15] и остается однородным в пространстве, а структурная неоднородность среды появляется из-за сил увлечения и стрикции, действующих на поглощающие частицы. В отличие от [11], здесь мы не ограничиваемся линейным приближением при расчете динамики частиц.

Как будет показано ниже, при высокой интенсивности излучения устанавливается сильно нелинейный режим, в котором возмущение концентрации частиц может стать порядка и больше невозмущенной плотности. Это приводит к возможности формирования как плавных, так и квазиступенчатых профилей концентрации частиц, которые могут обладать РТ-симметрией, а могут и отличаться от нее. Это дает основание рассматривать такую перестраиваемую систему в качестве платформы для изучения специфических неэрмитовых оптических эффектов, а также для диагностики пространственных распределений наночастиц с помощью пробных волн.

## 2. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Рассмотрим рассеяние электромагнитного излучения плоским слоем композитной среды, которая представляет собой коллоидный раствор поглощающих наночастиц в активной жидкости (геле). Жидкость обеспечивает усиление электромагнитных волн такое, что в равновесном состоянии, когда частицы равномерно распределены по объему, потери и усиление оказываются скомпенсированы, и в среднем среда не усиливает и не ослабляет проходящее через нее излучение.

Эффективную диэлектрическую проницаемость среды в дипольном приближении при достаточно низкой концентрации наночастиц можно записать в виде

$$\varepsilon \cong \varepsilon_0 + V[\alpha(1+n) + i\tilde{\alpha}n], \quad (1)$$

где  $\varepsilon_0$  — действительная часть проницаемости жидкости без частиц,  $V = 4\pi b^3 N_0/3$  — объемная доля частиц в жидкости,  $N_0$  — средняя по объему концентрация наночастиц,  $b$  — радиус частиц (для простоты будем полагать, что частицы имеют сферическую форму),  $\alpha$  и  $\tilde{\alpha}$  — действительная и мнимая части поляризуемости частиц, и мы ввели безразмерную переменную  $n = N/N_0 - 1$ , характеризующую отклонение локальной плотности частиц  $N$  от равновесного значения  $N_0$ . Здесь также учтено, что в однородной среде ( $n = 0$ ) поглощение и усиление скомпенсированы,  $\text{Im } \varepsilon = 0$ .

Жидкостная компонента среды обеспечивает усиление, а наночастицы отвечают за поглощение. Однако каждая отдельная частица в процессе поглощения электромагнитной волны получает не только ее энергию, но и импульс. В результате на частицу действует эффективная сила увлечения



(drag, or scattering force). Эта сила и связанный с ней эффект радиационного давления проявляются в экспериментах по лазерному охлаждению и захвату нейтральных частиц [16], разделению, обнаружению и сортировке наночастиц [17, 18]. Очевидно, что сила увлечения пропорциональна произведению плотности потока энергии электромагнитного поля на коэффициент поглощения (мнимую часть дипольного момента частицы).

В квазистатическом приближении выражение для силы увлечения имеет вид

$$F^{sc} = -i\tilde{\alpha}\frac{b^3}{6}\left(E\frac{\partial E^*}{\partial z} - E^*\frac{\partial E}{\partial z}\right) = \tilde{\alpha}\frac{b^3}{3}\text{Im}\left(E^*\frac{\partial E}{\partial z}\right). \quad (2)$$

Кроме того, на частицы также действует ponderomotive (стрикционная) сила

$$F^{grad} = \alpha\frac{b^3}{3}\text{Re}\left(E^*\frac{\partial E}{\partial z}\right) = \alpha\frac{b^3}{6}\nabla|E|^2. \quad (3)$$

Градиентная сила не связана с поглощением, но приводит в зависимости от знака  $\alpha$  либо к втягиванию частиц в область сильного поля, либо к выталкиванию из этой области <sup>1)</sup>.

Под действием этих сил и градиента теплового давления частицы начинают двигаться, и в вязкой среде их скорость  $u$  определяется из уравнения движения

$$\frac{\partial u}{\partial t} + \frac{u}{\tau} = \frac{F^{grad} + F^{sc}}{m} - V_T^2 \frac{\partial n / \partial z}{1 + n}, \quad (4)$$

где  $\tau$  — характерное время релаксации скорости частиц в вязкой жидкости,  $m$  — масса частицы,  $V_T = \sqrt{k_B T / m}$  — тепловая скорость,  $k_B$  — постоянная Больцмана,  $T$  — температура.

При распространении электромагнитного излучения в среде произойдет перераспределение концентрации наночастиц, что, в свою очередь, приведет к появлению внутри слоя локальных областей с усилением и поглощением. В стационарном состоянии распределение концентрации частиц будет удовлетворять уравнению

$$\frac{F^{grad} + F^{sc}}{m} = V_T^2 \frac{n'}{1 + n}, \quad (5)$$

где штрих обозначает пространственную производную  $\partial/\partial z$ .

<sup>1)</sup> Наночастицы поглощают световое излучение, поэтому коэффициент  $\tilde{\alpha}$  должен быть положительным,  $\tilde{\alpha} > 0$ . Положительный знак стрикционного параметра  $\alpha$  означает, что частицы должны втягиваться в область сильного поля. Это справедливо для диэлектрических частиц, однако знак  $\alpha$  может меняться в случае металлических наночастиц.

### 3. ГРАНИЧНАЯ ЗАДАЧА: СЛОЙ КОНЕЧНОЙ ТОЛЩИНЫ

Рассмотрим нормальное падение плоской (ТЕМ) электромагнитной волны на слой толщиной  $L$  ( $-L/2 \leq z \leq L/2$ ). Будем считать, что снаружи слоя диэлектрическая проницаемость  $\varepsilon = 1$ . Под действием электромагнитного излучения (стрикции и силы увлечения) устанавливается стационарное состояние с неоднородной концентрацией частиц,  $n \neq 0$ . Важно отметить, что перераспределение частиц в слое не меняет их полное число, так что возмущение концентрации, усредненное по толщине слоя, равно нулю,

$$\int_{-L/2}^{L/2} n dz = 0.$$

В приближении медленно меняющихся амплитуд поле внутри слоя является суперпозицией плоских волн, распространяющихся в прямом и обратном направлениях вдоль  $z$ ,

$$E = A_+(z) \exp(ikz) + A_-(z) \exp(-ikz),$$

где комплексные амплитуды

$$A_{\pm} \equiv a_{\pm} \exp(i\phi_{\pm})$$

слабо меняются на длине волны,

$$|A'_{\pm}| \ll k|A_{\pm}|, \quad k = k_0 \sqrt{\varepsilon_0 + V\alpha},$$

$k_0 = \omega/c$ ,  $c$  — скорость света. В этом случае можно приближенно записать <sup>2)</sup>

$$E^* E' \approx ika_+^2 + a_+ a'_+ + i\phi'_+ a_+^2 - ika_-^2 + a_- a'_- + i\phi'_- a_-^2$$

и, подставляя это выражение в (5), получить соотношение <sup>3)</sup>

$$\frac{n'}{1 + n} = \alpha(a_+^2 + a_-^2)' + \tilde{\alpha}[k(a_+^2 - a_-^2) + \phi'_+ a_+^2 + \phi'_- a_-^2], \quad (6)$$

<sup>2)</sup> В дальнейшем мы считаем электрическое поле нормированным на величину  $E_c = \sqrt{6k_B T / b^3}$ .

<sup>3)</sup> Хотя, как отмечалось выше, концентрация наночастиц предполагается малой, но относительное возмущение концентрации может оказаться значительным, вплоть до полного выталкивания частиц из некоторой локальной области. Поэтому мы учитываем слагаемое  $n$  в знаменателе выражения (6).

причем вклад от слагаемых  $\phi'_\pm a_\pm^2$  в изменение концентрации можно не учитывать, поскольку  $\phi'_\pm \ll k$ .

Распространение светового излучения в слое описывается волновым уравнением,

$$d^2 E/dz^2 + k_0^2 \varepsilon E = 0,$$

которое в первом порядке малости по амплитуде возмущений принимает форму

$$\pm 2ik(a'_\pm + i\phi'_\pm a_\pm) + k_0^2 V(\alpha(1+n) + i\tilde{\alpha}n)a_\pm = 0. \quad (7)$$

Разделяя в уравнении (7) действительную и мнимую части, получаем

$$\begin{aligned} \frac{(a_+^2)'}{a_+^2} &= -\Gamma n, \quad \frac{(a_-^2)'}{a_-^2} = \Gamma n, \\ \phi'_\pm &= \pm \Gamma(\alpha/2\tilde{\alpha})(1+n), \end{aligned} \quad (8)$$

где

$$\Gamma = k_0^2 \tilde{\alpha} V/k.$$

Суммируя первые два из уравнений (8), мы найдем, что в рамках использованных приближений произведение амплитуд волн, распространяющихся вдоль  $z$  и в противоположном направлении, не зависит от  $z$ :

$$a_+^2 a_-^2 = C. \quad (9)$$

Здесь  $C$  — константа, которая, как будет показано ниже, определяется условиями непрерывности электрического и магнитного полей на границах слоя.

Основную систему уравнений удобно представить в безразмерном виде с минимальным числом коэффициентов. Соответствующая нормировка пространственной переменной,  $\tilde{z} = \Gamma z$  (в дальнейшем мы опускаем знак  $\sim$ ), позволяет записать первое уравнение системы (7) в виде

$$\frac{s'}{s} = -n, \quad (10)$$

где мы ввели величину  $s \equiv a_+^2$ . Уравнение для концентрации (6) переписывается с учетом локальной связи амплитуд (9),  $a_-^2 = C/s$ , как

$$\begin{aligned} \frac{n'}{1+n} &= \gamma \left[ (s - C/s) + \frac{\alpha}{k\tilde{\alpha}} (s + C/s)' \right] = \\ &= \gamma (s - C/s)(1 - \beta n) \end{aligned} \quad (11)$$

с коэффициентами

$$\gamma = k\tilde{\alpha}/\Gamma, \quad \beta = \alpha\Gamma/(k\tilde{\alpha}).$$

Деление выражения (10) на (11) дает дифференциальную связь между  $s$  и  $n$ :

$$\gamma \frac{(s - C/s)ds}{s} = - \frac{ndn}{(1+n)(1-\beta n)}. \quad (12)$$

Это соотношение можно проинтегрировать и получить в результате

$$\begin{aligned} \frac{\log|1+n| + (1/\beta)\log|1-\beta n|}{\gamma(1+\beta)} - \\ - \left( s + \frac{C}{s} \right) = \text{const.} \end{aligned} \quad (13)$$

Заменив в последней формуле  $n$  на  $-s'/s$ , найдем зависимость  $s'(s)$ :

$$\begin{aligned} \frac{\log|1-s'/s| + (1/\beta)\log|1+\beta s'/s|}{\gamma(1+\beta)} - \\ - \left( s + \frac{C}{s} \right) = \text{const}, \end{aligned} \quad (14)$$

и таким образом получим фазовую плоскость исходной системы.

Для анализа решения на фазовой плоскости прежде всего отметим, что для значений  $n = -1$  и  $n = 1/\beta$  выражение в левой части уравнения (13) обращается по абсолютной величине в бесконечность. Соответственно, на плоскости  $(s', s)$  прямые линии, задаваемые уравнениями  $s' = s$  и  $s' = -s/\beta$ , делят фазовую плоскость на три сектора:  $s' < -s/\beta$ ,  $-s/\beta < s' < s$  и  $s < s'$ . Фазовые траектории не могут пересечь границы между секторами, поэтому физический смысл имеют лишь решения, относящиеся к центральному сектору, где фазовые траектории проходят через области как с положительными, так и с отрицательными значениями  $s'$ . В двух других секторах  $s'$  (и соответственно  $n = -s'/s$ ) не меняет знак, в результате чего невозможно удовлетворить условию равенства нулю концентрации, усредненной по какому-либо отрезку фазовой траектории.

На рис. 1 приведена в качестве примера фазовая плоскость системы уравнений для параметров  $C = 2$ ,  $\beta = 2$ ,  $\gamma = 0.0125$ . Соответствующие значения константы в (14) равны  $-10$  (кривая 1),  $-20$  (кривая 2) и  $-30$  (кривая 3).

Приближение медленных амплитуд предполагает, что волны, распространяющиеся в положительном и отрицательном направлениях по оси  $z$ , не взаимодействуют внутри слоя, они могут обмениваться энергией лишь на границах. В задаче о рассеянии падающего излучения на слое граничные условия при  $z = L/2$  записываются как

$$a_-/a_+(z = L/2) = \mu,$$

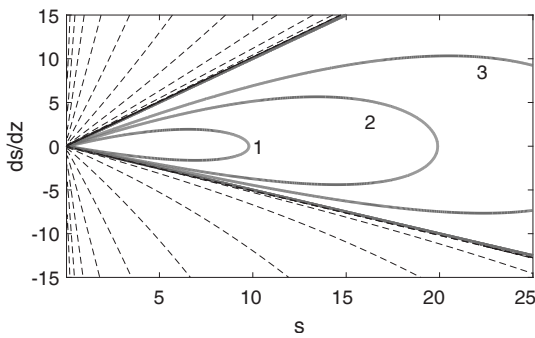


Рис. 1. Фазовая плоскость системы уравнений (10), (11) для параметров  $C = 2$ ,  $\beta = 2$ ,  $\gamma = 0.0125$ . Соответствующие значения константы в (14) равны  $-10$  (кривая 1),  $-20$  (кривая 2),  $-30$  (кривая 3). Фазовые траектории, относящиеся к верхнему и нижнему секторам фазовой плоскости, не имеют физического смысла, поскольку на любом отрезке таких траекторий интеграл от  $s'/s$  (от концентрации частиц) отличен от нуля

где  $\mu = (k - 1)/(k + 1)$  и  $k = \sqrt{\epsilon}$ . Таким образом, на границе слоя отношение амплитуд гармоник, распространяющихся в положительном и отрицательном направлениях, определяется материальными параметрами слоя и окружающей среды (напомним, что диэлектрическая проницаемость окружающей среды равна 1). С другой стороны, для любой точки внутри слоя, в том числе и на границе, мы имеем из соотношения (9)

$$a_+^2 a_-^2 = C.$$

Из соотношений (8) можно найти зависимость амплитуд от  $z$ ,

$$a_{\pm}^2(z) = a_{\pm}^2(-L/2) \exp\left(\mp \Gamma \int_{-L/2}^z ndz\right),$$

и заметить, что амплитуды на границах равны

$$a_+(z = L/2) = a_+(z = -L/2),$$

$$a_-(z = L/2) = a_-(z = -L/2),$$

поскольку

$$\int_{-L/2}^{L/2} ndz = 0$$

(число частиц в слое сохраняется). Таким образом, слой не усиливает и не ослабляет излучение.

Решая линейную задачу рассеяния падающей волны с амплитудой  $A_{inc}$  на слое, получим связь между  $a_{\pm}$  и  $A_{inc}$ :

$$2A_{inc} = \sqrt{s_0}(1 + k)|1 - \mu^2 \exp(2ikL)|, \quad (15)$$

$$a_-(z = \pm L) = \mu a_+(z = \pm L), \quad C = \mu^2 s_0^2,$$

где

$$s_0 = a_+^2(z = -L/2).$$

Эти соотношения полностью определяют связь между константами задачи и физическими параметрами. Еще раз отметим, что коэффициенты отражения и прохождения даже в сильно нелинейном случае оказываются такими же, как при рассеянии излучения на слое с невозмущенной диэлектрической проницаемостью, и для стороннего наблюдателя нелинейные эффекты внутри слоя никак не проявляются.

#### 4. ПРИБЛИЖЕННОЕ РЕШЕНИЕ

В случае  $\beta = 1$ , когда задача является РТ-симметричной, нетрудно найти в линейном приближении по параметрам  $s - s_0$ ,  $n$  полное решение. Упрощенная система уравнений

$$s' = -ns_0, \quad n' = \gamma(s - C/s)$$

сводится к гармоническому уравнению для величины  $\nu$ <sup>4)</sup>,

$$\nu = \int_{-L/2}^z ndz,$$

$$\nu'' = \gamma s_0(1 - \nu - (1 + \nu)\mu^2) \quad (16)$$

и имеет решение в виде

$$\nu = A + B \cos(\kappa z)$$

с параметрами

$$\kappa = \sqrt{\gamma s_0(1 + \mu^2)},$$

$$A = (1 - \mu^2)/(1 + \mu^2),$$

$$B = -A/\cos(\kappa L/2).$$

В итоге для  $n = \nu'$  получаем

$$n = \frac{1 - \mu^2}{1 + \mu^2} \kappa \frac{\sin(\kappa z)}{\cos(\kappa L/2)}.$$

Очевидно, что если  $\kappa L = m\pi$  ( $m = 1, 2, 3, \dots$ ), то это решение неприменимо. На первый взгляд, для малых  $\kappa \ll 1$ , исключив резонансные точки,  $\kappa L \neq m\pi$ ,

<sup>4)</sup> Если  $\beta \neq 1$ , то в тех же приближениях основное уравнение заменяется на уравнение гармонического осциллятора с затуханием ( $\beta > 1$ ) или с накачкой ( $\beta < 1$ ), и аналитическое решение выглядит довольно громоздко.



этой формулой можно пользоваться, поскольку все условия применимости выполняются, но это не так. При получении упрощенного уравнения (16) мы использовали условие  $\nu \ll 1$ , и в этом случае правая часть формулы будет почти постоянной и не меняет знак, а в левой части стоит производная от концентрации по координате. Таким образом, фактически мы полагали, что  $n'(z)$  — знакопостоянная функция, и соответственно  $n(z)$  — монотонная функция. С другой стороны, формальное использование полученного аналитического решения говорит, что при увеличении параметра  $\kappa L > \pi$  профиль  $n(z)$  становится немонотонным (при больших  $L$  может включать даже несколько периодов синуса). Численное исследование подтверждает, что такого рода немонотонные распределения концентрации не реализуются, так что грубая оценка применимости найденного решения сводится к неравенству  $\kappa L/\pi < 1$ .

Приближенное решение можно найти также в другом предельном случае сильных возмущений концентрации и сильных полей. Полученная в результате структура может при этом существенно отличаться от РТ-симметричной. Численное исследование (см. ниже) показывает, что при больших  $L$  и  $s_0$  плотность частиц  $N$  имеет вид ступеньки с почти нулевой концентрацией в области слоя  $-L/2 < z < z_{st}$  (вблизи от точки входа излучения) и постоянной плотностью в оставшейся части слоя. Предполагая, что профиль концентрации имеет ступенчатую структуру

$$N \approx \begin{cases} 0, & -L/2 < z < z_{st}, \\ N_{max}, & z_{st} < z < L/2, \end{cases}$$

где  $z_{st}$  — координата скачка плотности, а  $N_{max}$  — максимальная плотность в слое, можно найти оба этих параметра. Положение ступеньки

$$z_{st}/L = 0.5(1 - \beta)/(1 + \beta)$$

определяется из условия сохранения числа частиц, а величина

$$N_{max} = 1 + 1/\beta$$

находится из формулы (11), если в ней положить  $n' = 0$ . Заметим, что при малых  $\beta$  область локализации частиц сжимается, приближаясь к выходной границе слоя. Экспоненциальный рост поля в области  $z < z_{st}$ ,

$$s = s_0 \exp(z + L/2),$$

при  $z > z_{st}$  сменяется его экспоненциальным убыванием,

$$s = s_0 \exp[z_{st} - (N_{max}/N_0 - 1)z].$$

## 5. ЧИСЛЕННОЕ РЕШЕНИЕ

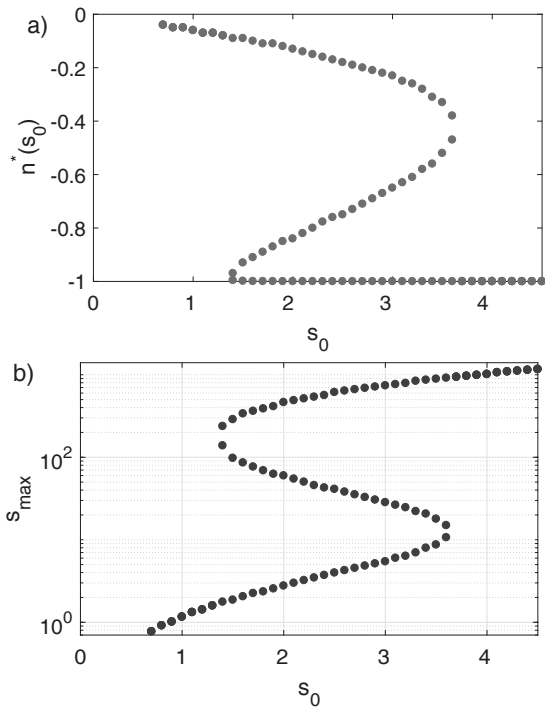
Для нахождения стационарного распределения интенсивности поля и концентрации численно решалась система дифференциальных уравнений первого порядка (10), (11). На входной границе слоя  $z = -L/2$  задавались значения

$$a_+^2(-L/2) = s_0, \quad a_-^2(-L/2) = C/s_0$$

(см. (15)), найденные из решения задачи рассеяния падающей волны на невозмущенном слое, а также возмущение концентрации частиц  $n_0 = n(-L/2)$ . В отличие от параметров  $s_0$  и  $C$ , величина  $n_0$  не может быть прямо определена через физические (внешние) параметры задачи, но очевидно также, что она не может быть произвольной. Дополнительным условием, определяющим  $n_0$ , является сохранение числа частиц в слое,  $\langle n \rangle = 0$ . Однако для того, чтобы проверить выполнение этого условия, нужно сначала решить задачу и найти зависимость  $n(z)$  на всем интервале от  $-L/2$  до  $L/2$ . Поэтому численное решение приходится находить для массива значений  $n_0$  (от  $-1$  до  $0$ ) и затем выбирать из этого множества решений те, которые удовлетворяют условию  $\langle n \rangle = 0$ .

При фиксированной толщине слоя и (нормированных) материальных параметрах  $\gamma$ ,  $\beta$  (см. систему уравнений (10), (11)), характеризующих усиление в активной среде и роль стрикции по отношению к силе увлечения, интересно найти зависимость стационарного решения от интенсивности падающей волны. Чтобы получить ответ на этот вопрос, следует многократно повторить описанную выше процедуру для двумерного массива параметров  $(n_0, s_0)$  и получить в результате кривую  $n^*(s_0)$  на плоскости  $(n_0, s_0)$ .

Такая процедура была проделана для набора параметров  $L = 9$ ,  $\gamma_0 = 1.25 \cdot 10^{-2}$ ,  $k = 2$ ,  $\beta = 0.6$ , и результаты вычислений показаны на рис. 2. Оказывается, что стационарное решение не всегда является единственным. Существует диапазон значений интенсивности падающей волны (на рисунке это примерно отвечает интервалу  $s_0$  от 1.5 до 3.5), в котором таких стационарных решений три, а зависимость  $n^*(s_0)$  имеет характерный вид гистерезисной кривой (см. рис. 2 а). Эффект гистерезиса проявляется также в зависимости максимального значения интенсивности поля внутри слоя от входной интенсивности, которая изображена в качестве примера на рис. 2 б. Соответствующая структура трех потенциально возможных стационарных решений приведена на рис. 3: для одной входной мощности падаю-

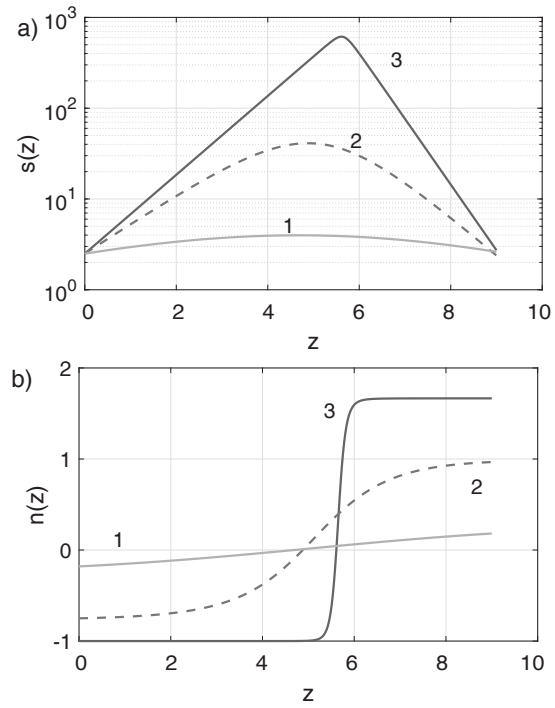


**Рис. 2.** *a* — Найденная численно зависимость  $n^*(s_0)$ : для каждого значения входной мощности (и в соответствии с (15) для каждого  $s_0$ ) стационарное распределение поля и частиц устанавливается, если возмущение плотности частиц при  $z = -L/2$  будет равно  $n^*(s_0)$ . *b* — Максимальное значение интенсивности излучения внутри слоя в зависимости от  $s_0$ . Неоднозначный характер зависимости говорит об эффекте гистерезиса. Для численного моделирования использовались следующие параметры:  $L = 9$ ,  $\gamma_0 = 1.25 \cdot 10^{-2}$ ,  $k = 2$ ,  $\beta = 0.6$

щего излучения  $P_{in}$  ( $P_{in}$  пропорциональна величине  $s_0$ , см. (15)) стационарные распределения плотности частиц и интенсивности поля внутри слоя сильно различаются, причем максимальное усиление интенсивности поля может в этих решениях отличаться на порядки (здесь примерно в 100 раз). Кроме того, в разных стационарных состояниях значительно меняется профиль концентрации  $N(z)$  и нарушение РТ-симметрии становится заметным.

Для того чтобы определить, какое из этих стационарных состояний реализуется, нужно решить динамическую задачу, в которой на невозмущенный начальный профиль  $N(z) = N_0$  падает внешнее излучение. Эволюция плотности частиц при этом описывается нелинейным уравнением диффузии, следующим из уравнения движения частиц и уравнения непрерывности,

$$\frac{1}{\tau} \frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left[ \frac{\partial n}{\partial z} - \gamma(s - C/s)(1 + n)(1 - \beta n) \right], \quad (17)$$



**Рис. 3.** Структура мультистабильного решения с параметром  $s_0 = 2.5$ . При соответствующей интенсивности (см. (15)) существует не одно, а три стационарных решения, которые сильно различаются по максимальной амплитуде поля и профилю концентрации частиц. *a* — Зависимость  $s(z)$  (логарифмический масштаб): в то время, как для кривых 1 и 2 усиление поля относительно небольшое, кривая 3 демонстрирует локальное усиление интенсивности в максимуме  $s_{\max}/s_0 \approx 200$ . Следует также отметить для этого случая заметное нарушение РТ-симметрии, которое, однако, не приводит к какому-либо усилению поля на полной длине слоя. *b* — Зависимость  $n(z)$  для трех стационарных решений: почти линейно растущее с увеличением координаты  $z$  слабое возмущение концентрации отвечает решению с минимальным усилением поля, а максимальное усиление достигается, когда практически все поглощающие частицы вытесняются в область  $z > L/(1 + \beta)$ , и формируется ступенчатый профиль концентрации. Для численного моделирования использовались следующие параметры:  $L = 9$ ,  $\gamma_0 = 1.25 \cdot 10^{-2}$ ,  $k = 2$ ,  $\beta = 0.6$

которое является (нормированным) уравнением непрерывности

$$\partial N / \partial t + \partial / \partial z (Nu) = 0,$$

где скорость частиц  $u$  дается выражением (4).

При вычислениях мы считаем, что величина  $s_0$  постоянна во времени (падающее излучение скачком «включается» в момент времени  $t = 0$  и мощность его в дальнейшем не меняется), а интенсивность излучения внутри слоя, как и раньше, определяется выражением (10), т. е. зависит от профиля концен-

трации поглощающих частиц в каждый заданный момент времени.

Бистабильность достаточно частое явление в нелинейных системах [19]. В стандартной постановке задачи предполагается медленное изменение (рост или уменьшение) входной мощности. Исследование временной динамики системы показывает, что при увеличении входной мощности реализуется стационарное решение с наименьшим из возможных реализаций возмущением концентрации и соответствующим (наименьшим из возможных) усилением интенсивности поля внутри слоя. Аналогично, если медленно уменьшать интенсивность падающего излучения (величину  $s_0$ ), то будет устанавливаться максимально возмущенное распределение частиц и поля. Промежуточная ветвь решений неустойчива, так что в области параметров, где решение не единственное, система бистабильна. Очевидно, что при этом выход за границу бистабильности (на рис. 2 при  $s_0 \approx 1.5$  и  $s_0 \approx 3.5$ ) сопровождается резкой перестройкой структуры стационарного решения.

Следует отметить, что на результаты существенно может влиять эффект насыщения усиления, если внутри слоя достигаются большие поля. Для учета этого эффекта можно использовать следующую приближенную формулу для локального коэффициента усиления:

$$\gamma = \frac{\gamma_0}{1 + P/P_{\text{sat}}},$$

где  $\gamma_0$  — усиление слабых сигналов (инкремент без учета насыщения),  $P$  — локальная мощность,  $P_{\text{sat}}$  — мощность насыщения. В нашем случае эту зависимость можно переписать как

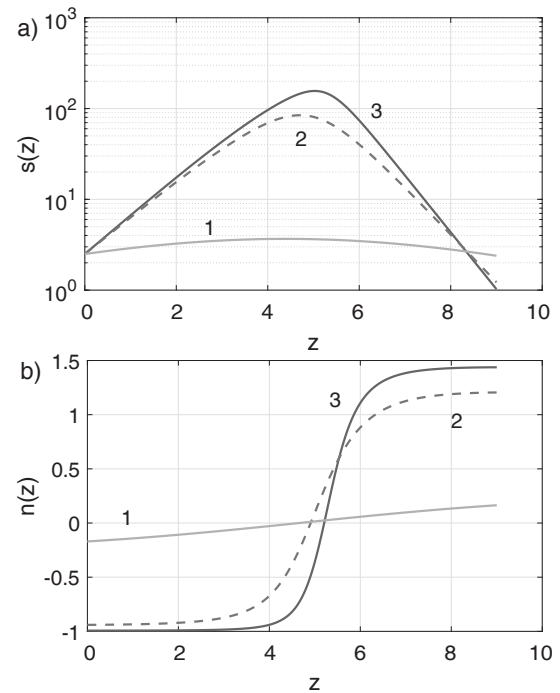
$$\gamma = \frac{\gamma_0}{1 + \mu_{\text{sat}}(s + C/s)},$$

и в исходных соотношениях формулы (9) и (11) останутся неизменными, а уравнение (10) следует заметить на

$$\frac{s'}{s} = - \left( \frac{\mu_{\text{sat}}(s + C/s)}{1 + \mu_{\text{sat}}(s + C/s)} + n \right). \quad (18)$$

Очевидно, что в области с большой интенсивностью излучения эффективная среда окажется несбалансированной, и слой будет поглощать проходящее через него излучение.

В качестве примера на рис. 4 приведена структура решения с учетом эффекта насыщения усиления для тех же параметров, что и на рис. 3, и параметра насыщения  $\mu_{\text{sat}} = 0.003$ . Этот нелинейный эффект заметно влияет на решения с высокой интенсивностью поля, где нарушается баланс между



**Рис. 4.** Структура бистабильного решения с учетом эффекта насыщения усиления: *a* — зависимость  $s(z)$  (логарифмический масштаб); *b* — зависимость  $n(z)$  для трех стационарных решений с минимальным (кривые 1), средним (кривые 2, неустойчивое решение) и максимальным (кривые 3) усилением поля и возмущением концентрации частиц внутри слоя. Сравнение с результатами на рис. 3 показывает заметное сглаживание неоднородности поля и концентрации в слое и нарушение баланса поглощение–усиление для проходящего сквозь слой интенсивного излучения (см. кривые 2 и 3 на панели *a*). Для численного моделирования использовались те же параметры, что и на рис. 3, и параметр насыщения  $\mu_{\text{sat}} = 0.003$

поглощением и усилением. С точки зрения эксперимента в области РТ-симметрии эту проблему можно решить за счет увеличения мощности накачки так, чтобы интенсивности поля на входе и выходе из слоя сравнялись. Однако это приведет к разбалансировке усиления–поглощения для решения со слабыми усилением и возмущением плотности, и такую коррекцию входной мощности нужно будет проводить в каждом индивидуальном случае.

## 6. ОБСУЖДЕНИЕ

Кроме одностороннего ввода излучения в слой можно также рассмотреть постановку задачи с его запуском с обеих сторон слоя, причем здесь возможно контролировать не только амплитуды, но и фа-

зовый сдвиг  $\Delta\phi$  падающих справа и слева волн. В таком случае можно получить почти любое отношение амплитуд  $a_+/a_-$  на границе слоя, поскольку оно будет определяться не только диэлектрическими проницаемостями слоя и среды, но также и этими дополнительными входными параметрами.

Интересный вариант получается, если параметр  $\beta = 1$ . В этом случае решение будет обладать РТ-симметрией (диэлектрическая проницаемость нечетная, а интенсивность поля четная функция  $z$ ) независимо от толщины слоя и амплитуды падающего излучения. При больших амплитудах стационарное распределение концентрации частиц будет приближаться к ступенчатому с нулевой плотностью во входной половине слоя,

$$N(-L/2 < z < 0) \approx 0,$$

$$n(-L/2 < z < 0) \approx -1,$$

и удвоенной средней концентрацией частиц в выходной половине,

$$N(0 < z < L/2) \approx 2N_0,$$

$$n(0 < z < L/2) \approx 2.$$

Область перехода между этими значениями имеет некоторую конечную толщину  $\Delta$ , причем рост мощности падающей волны приводит к уменьшению  $\Delta$ . Соответственно, как по отношению к распределению концентрации частиц, так и относительно профиля интенсивности поля режим взаимодействия излучения с частицами выходит на насыщение, а распределение  $\text{Im}\varepsilon$  стремится к ступенчатому.

В стандартной задаче с заранее заданным ступенчатым профилем мнимой части проницаемости [20],

$$\text{Im}\varepsilon \sim \theta(z) - 1/2$$

( $\theta(z)$  — функция Хевисайда), рост толщины слоя приводит к нарушению РТ-симметрии и возникновению неустойчивости, причем граница между устойчивым и неустойчивым режимами представляет собой исключительную точку (exceptional point) в пространстве параметров (здесь параметром является толщина слоя). Многие важные для приложений эффекты обусловлены наличием исключительной точки и проявляются непосредственно вблизи от нее. В рассматриваемой здесь постановке задачи эффект исключительной точки сложно реализовать, поскольку он связан с обменом энергией между двумя модами  $a_+$  и  $a_-$  на скачке  $\text{Im}\varepsilon$ , а для оптического излучения масштаб скачка (области перехода от поглощающей среды к усиливающей)  $\Delta$

должен быть порядка длины волны. С другой стороны, если ввести в слой в некоторой точке  $z_{def}$  дефект, который вызывает частичное отражение и тем самым взаимодействие мод, то при изменении величины дефекта в системе возникнет исключительная точка. Причем в этом случае эффект исключительной точки легко контролировать, но он не будет связан с нарушением РТ-симметрии, а лишь с появлением комплексных собственных значений в спектре и развитием неустойчивости.

## 7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В заключение отметим, что в настоящей работе изучено взаимодействие света со слоем жидкого метаматериала, представляющего собой коллоидный раствор поглощающих наночастиц в усиливающей жидкости (геле) со скомпенсированными поглощением и усилением. В результате воздействия пондеромоторных сил, градиентной и силы увлечения, происходит перераспределение концентрации наночастиц, что приводит к появлению пространственно-разделенных областей поглощения и усиления света. Показано, что в зависимости от интенсивности падающей световой волны могут иметь место как плавные, обладающие РТ-симметрией, распределения эффективной диэлектрической проницаемости коллоида, так и квазиступенчатые, для которых РТ-симметрия нарушена. Также показана возможность возникновения бистабильных состояний, реализация которых зависит от предыстории процесса. Во всех рассмотренных случаях величины коэффициентов отражения и прохождения света через слой не зависят от его интенсивности света и совпадают с «невозмущенным» пределом исчезающе малых амплитуд падающей электромагнитной волны из-за отсутствия взаимодействия встречных мод внутри слоя. Возможность управляемого создания заданных профилей концентрации наночастиц и, как следствие, перестраиваемых пространственных областей поглощения и усиления дает надежду, что рассматриваемая оптическая система может оказаться полезным объектом для изучения неэрмитовых оптических эффектов и диагностики распределения концентрации наночастиц с помощью пробных волн.

**Финансирование.** Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ: государственные задания FFUF-2023-0002 (разд. 4, 5) и FFUF-2024-0019 (остальные разделы).

## ЛИТЕРАТУРА

1. R. El-Ganainy, K. G. Makris, M. Khajavikhan et al., *Non-Hermitian Physics and Pt Symmetry*, Nature Phys. **14**, 11 (2018).
2. C. M. Bender and S. Boettcher, *Real Spectra in Non-Hermitian Hamiltonians Having Pt Symmetry*, Phys. Rev. Lett. **80**, 5243 (1998).
3. А. А. Зябловский, А. П. Виноградов, А. А. Пухов, А. В. Дорофеенко, А. А. Лисянский, *PT-симметрия в оптике*, УФН **184**, 1177 (2014) [A. A. Zyablovsky, A. P. Vinogradov, A. A. Pukhov, A. V. Dorofeenko, and A. A. Lisyansky, *Pt-Symmetry in Optics*, Phys. Uspekhi **57**, 1063 (2014)].
4. W. D. Heiss, J. Phys. A **37**, 2455 (2004).
5. Y. D. Chong, L. Ge, and A. D. Stone, *Pt-Symmetry Breaking and Laser-Absorber Modes in Optical Scattering Systems*, Phys. Rev. Lett. **106**, 093902 (2011).
6. Z. J. Wong, J. Kim, K. O'Brien, Y. Wang, L. Feng, and X. Zhang, *Lasing and Anti-Lasing in a Single Cavity*, Nature Photon. **10**, 796 (2016).
7. X. Zhu, L. Feng, P. Zhang, X. Yin, and X. Zhang, *One-Way Invisible Cloak Using Parity-Time Symmetric Transformation Optics*, Opt. Lett. **38**, 2821 (2013).
8. W. Chen, S. K. Ozdemir, G. Zhao, J. Wiersig, and L. Yang, *Exceptional Points Enhance Sensing in an Optical Microcavity*, Nature **548**, 192 (2017).
9. M. A. Noginov, G. Zhu, A. M. Belgrave, R. Bakker, V. M. Shalaev, E. E. Narimanov, S. Stout, E. Herz, T. Suteewong, and U. Wiesner, *Demonstration of a Spacer-Based Nanolasers*, Nature Lett. **460**, 1110 (2009).
10. Y. Wu, Zh. Huang, Qi Sun, V. D. Ta, S. Wang, and Y. Wang, *A New Generation of Liquid Lasers from Engineered Semiconductor Nanocrystals with Giant Optical Gain*, Laser Photon. Rev. **17**, 2200703 (2023).
11. A. A. Zharov and N. A. Zharova, *Light-Driven Pt-Symmetry in Colloids with Gain and Loss Nanoparticles*, J. Opt. Soc. Am. B **40**, 2618 (2023).
12. D. Gao, R. Shi, Y. Huang, and L. Gao, *Fano-Enhanced Pulling and Pushing Optical Forces on Active Nanoparticles*, Phys. Rev. A **96**, 043826 (2017).
13. H. Chen, L. Gao, C. Zhong, G. Yuan, Y. Huang, Z. Yu, M. Cao, and M. Wang, *Optical Pulling Force on Nonlinear Nanoparticles with Gain*, AIP Advances **10**, 015131 (2020).
14. X. Bian, D. L. Gao, and L. Gao, *Tailoring Optical Pulling Force on Gain Coated Nanoparticles with Nonlocal Effective Medium Theory*, Opt. Express **25**, 24566 (2017).
15. Y. Wu, Z. Huang, Q. Sun, V. D. Ta, S. Wang, and Y. Wang, *A New Generation of Liquid Lasers from Engineered Semiconductor Nanocrystals with Giant Optical Gain*, Laser Photon. Rev. **17**, 2200703 (2023).
16. B. Yang, H. Sun, C.-J. Huang, H.-Y. Wang, Y. Deng, H.-N. Dai, Z.-S. Yuan, and J.-W. Pan, *Cooling and Entangling Ultracold Atoms in Optical Lattices*, Science **369**, 550 (2020).
17. H. Xin, Y. Li, Y.-C. Liu, Y. Zhang, Y.-F. Xiao, and B. Li, *Optical Forces: from Fundamental to Biological Applications*, Adv. Mater. **32**, 2001994 (2020).
18. A. A. Zharov, Jr., A. A. Zharov, I. V. Shadrivov, and N. A. Zharova, *Grading Plasmonic Nanoparticles with Light*, Phys. Rev. A **93**, 013814 (2016).
19. Х. Гиббс, *Оптическая бистабильность. Управление светом с помощью света*, Мир, Москва (1988).
20. Y. D. Chong, Li Ge, and A. D. Stone, *Pt-Symmetry Breaking and Laser-Absorber Modes in Optical Scattering Systems*, Phys. Rev. Lett. **106**, 093902 (2011).



# ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД В ТОЧКЕ БОЛЬШОГО ВЗРЫВА В РЕШЕТОЧНОЙ ТЕОРИИ ГРАВИТАЦИИ

С. Н. Вергелес<sup>a,b\*</sup>

<sup>a</sup> Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау Российской академии наук  
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия

<sup>b</sup> Московский физико-технический институт, кафедра теоретической физики  
141707, Долгопрудный, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 11 апреля 2024 г.,  
после переработки 6 августа 2024 г.  
Принята к публикации 9 августа 2024 г.

Решеточная регуляризация теории гравитации дает новые возможности для изучения физики Большого взрыва. Доказано, что в изучаемой здесь 4D-решеточной модели гравитации существует высокотемпературная фаза, которая характеризуется обращением в нуль среднего тензора энергии-импульса материи и коллапсом пространства в точку. Показано также существование низкотемпературной фазы в длинноволновом пределе, геометрические свойства которой и динамика соответствуют известным представлениям: расширение Вселенной сначала идет по экспоненциальному закону, а затем плавно переходит на степенной режим.

DOI: 10.31857/S0044451024120034

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В работах автора [1–5] изучалась модель дискретной гравитации на симплицииальном комплексе. Эта модель включала степени свободы чистой гравитации (тетрады, связность), а также фермионные дираковские поля, минимально связанные с гравитацией. В частности, в работе [5] была описана дискретная симметрия действия  $\mathbb{Z}_2$ , названная РТ-симметрией. Это РТ-преобразование меняет знак тетрад на противоположный и взаимно заменяет дираковские поля с их эрмитово-сопряженными, т. е. взаимно переставляет частицы и античастицы.

В настоящей работе делается следующий шаг: мы показываем, что при ультравысоких температурах РТ-симметрия не нарушена, но она нарушена при достаточно низких температурах. В высокотемпературной фазе средние значения тензора энергии-импульса материи, так же как тетрад, равны нулю. Напротив, в низкотемпературной фазе эти величины отличны от нуля. Поле тетрады является параметром порядка.

Как известно, в Минимальной стандартной модели (MSM) число фермионных степеней свободы кратно превышает число бозонных степеней свободы (даже с учетом двух гравитонов). Отсюда следует, что полная энергия вакуумных нулевых колебаний отрицательна. Мы предполагаем, что некоторые свойства MSM вблизи точки Большого взрыва могут быть описаны в рамках изучаемой здесь дискретной гравитации. Здесь нас интересует следующий вопрос: может ли продолжение решений континуальных уравнений Эйнштейна в окрестность точки Большого взрыва содержать некоторую информацию о свойствах высокотемпературной фазы в решеточной теории? Для ответа на этот вопрос мы решаем уравнения Эйнштейна в рамках парадигмы Фридмана, но с затравочной космологической постоянной положительного знака. Положительная космологическая постоянная компенсирует огромную отрицательную энергию вакуума. А поскольку мы рассматриваем континуальную теорию как длинноволновый предел дискретной теории гравитации, все величины в уравнениях (плотность вакуумной энергии  $\varepsilon$ , затравочная космологическая постоянная  $\Lambda_0$  и т. д.) конечны. Поэтому как сами уравнения Эйнштейна, так и их решения, математически корректны. Более того, полученные решения

\* E-mail: vergeles@itp.ac.ru

демонстрируют необходимые общие для космологии свойства: вблизи точки Большого взрыва имеет место экспоненциальный режим расширения Вселенной (фаза инфляции), но затем расширение переходит на степенной режим. Интересно также, что в найденном решении модуль энергии вакуума  $|\varepsilon|$  уменьшается при приближении к точке Большого взрыва. Иными словами, тензор энергии-импульса материи в континуальной теории стремится к нулю при приближении к точке Большого взрыва. По нашему мнению, эта тенденция говорит о том, что рассматриваемое континуальное уравнение Эйнштейна действительно моделирует дискретную теорию гравитации в длинноволновом пределе. Однако нужно иметь в виду, что по мере уменьшения абсолютного значения тензора энергии-импульса роль квантовых флуктуаций растет, и классические уравнения Эйнштейна становятся неприменимыми (см. разд. 4).

Статья организована следующим образом.

Для облегчения чтения работы в разд. 2 приводится определение того варианта решеточной теории гравитации, который здесь изучается.

В разд. 3 устанавливается главный результат работы: в изучаемой модели решеточной гравитации дискретная РТ-симметрия не нарушена при сверхвысоких температурах. Но при низких температурах имеет место спонтанное нарушение этой симметрии.

В разд. 4 рассматривается решение уравнений Эйнштейна в рамках парадигмы Фридмана. Такое рассмотрение имеет смысл, поскольку решеточная теория переходит в обычную теорию гравитации в длинноволновом пределе. Показано, что решение классических уравнений возможно лишь на некотором удалении от точки Большого взрыва. Причина этого в том, что при приближении к особенности квантовые флуктуации становятся существенными.

Настоящая работа носит модельный характер.

## 2. ВВЕДЕНИЕ В РЕШЕТОЧНУЮ ТЕОРИЮ ГРАВИТАЦИИ

### 2.1. Определение решеточной теории

Нам необходимо определить ту модель решеточной гравитации, которая здесь изучается. Более полная информация по этому предмету содержится в работах [1–5].

В этом разделе используется евклидова сигнатура. Пусть  $\gamma^a$  есть эрмитовы  $4 \times 4$ -матрицы Дирака, так что

$$\gamma^a \gamma^b + \gamma^b \gamma^a = 2\delta^{ab}, \quad \sigma^{ab} \equiv \frac{1}{4}[\gamma^a, \gamma^b], \quad a = 1, 2, 3, 4, \\ \gamma^5 \equiv \gamma^1 \gamma^2 \gamma^3 \gamma^4 = (\gamma^5)^\dagger. \quad (1)$$

Рассмотрим ориентируемый 4-мерный симплицальный комплекс  $\mathfrak{K}$ . Предположим, что каждый его 4-симплекс принадлежит такому подкомплексу  $\mathfrak{K}' \in \mathfrak{K}$ , который имеет геометрическую реализацию в  $\mathbb{R}^4$ , топологически эквивалентную диску без пустот. Вершины обозначаются  $a_V$ , индексы  $V$  и  $W$  нумеруют вершины и 4-симплексы  $s_W^4$  соответственно. Необходимо использовать локальную нумерацию вершин принадлежащих заданному 4-симплексу: все 5 вершин 4-симплекса  $s_W^4$  нумеруются как  $a_{V(W)i}$ ,  $i = 1, 2, 3, 4, 5$ . В дальнейшем обозначения с дополнительным нижним индексом ( $W$ ) указывают на то, что соответствующие величины принадлежат 4-симплексу  $s_W^4$ . Заметим, что величина, принадлежащая 4-симплексу  $s_W^4$ , может принадлежать также соседнему 4-симплексу  $s_{W'}^4$ , если эти 4-симплексы имеют общие симплексы меньшей размерности. Символ Леви-Чивита с попарно различными индексами

$$\varepsilon_{V(W)1V(W)2V(W)3V(W)4V(W)5} = \pm 1$$

в зависимости от того, определяет ли порядок вершин  $s_W^4 = a_{V(W)1}a_{V(W)2}a_{V(W)3}a_{V(W)4}a_{V(W)5}$  четную или нечетную ориентацию 4-симплекса  $s_W^4$ . Элемент компактной группы  $\text{Spin}(4)$  и элемент алгебры Клиффорда,

$$\Omega_{V_1 V_2} = \Omega_{V_2 V_1}^{-1} = \exp(\omega_{V_1 V_2}) = \\ = \exp\left(\frac{1}{2}\sigma^{ab}\omega_{V_1 V_2}^{ab}\right) \in \text{Spin}(4), \quad \sigma^{ab} \equiv \frac{1}{4}[\gamma^a, \gamma^b], \\ \hat{e}_{V_1 V_2} \equiv e_{V_1 V_2}^a \gamma^a \equiv -\Omega_{V_1 V_2} \hat{e}_{V_2 V_1} \Omega_{V_1 V_2}^{-1}, \quad (2)$$

$$|e_{V_1 V_2}| < 1, \quad |e_{V_1 V_2}| \equiv \sqrt{\sum_a (e_{V_1 V_2}^a)^2},$$

определены на каждом ориентированном 1-симплексе  $a_{V_1} a_{V_2}$ . Ограниченность тетрады согласно (2) необходима для сходимости функционального интеграла статистической суммы. Этим ограничением, накладываемым на тетраду, настоящая работа отличается от предыдущих работ автора по теории дискретной гравитации. По предположению множество переменных  $\{\Omega, \hat{e}\}$  является множеством независимых динамических переменных. Фермионные степени свободы (дираковские спиноры) определены на вершинах комплекса:

$$\Psi_V^\dagger, \quad \Psi_V. \quad (3)$$

Множество переменных  $\{\Psi^\dagger, \Psi\}$  взаимно независимы, причем спиноры  $\Psi_\nu^\dagger$  и  $\Psi_\nu$  находятся во взаимной инволюции (или антиинволюции) относительно операции эрмитова сопряжения.

Рассмотрим модель с действием

$$\mathfrak{A} = \mathfrak{A}_g + \mathfrak{A}_\Psi + \mathfrak{A}_{\Lambda_0}. \quad (4)$$

$$\mathfrak{A}_g = -\frac{1}{5! \cdot 2l_P^2} \sum_{\mathcal{W}} \sum_{\sigma} \varepsilon_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})1})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})2})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})3})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})4})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})} \times \\ \times \text{Tr} \gamma^5 \left\{ \Omega_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})1})} \Omega_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})1})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})2})} \Omega_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})2})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})} \hat{e}_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})3})} \hat{e}_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})4})} \right\}, \quad (5)$$

$$\mathfrak{A}_\Psi = \frac{1}{5 \cdot 24^2} \sum_{\mathcal{W}} \sum_{\sigma} \varepsilon_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})1})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})2})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})3})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})4})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})} \times \\ \times \text{Tr} \gamma^5 \left\{ \hat{\Theta}_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})1})} \hat{e}_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})2})} \hat{e}_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})3})} \hat{e}_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})4})} \right\}, \quad (6)$$

$$\hat{\Theta}_{\nu_1 \nu_2} \equiv \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a \gamma^a = \hat{\Theta}_{\nu_1 \nu_2}^\dagger, \quad \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a = \frac{i}{2} \left( \Psi_{\nu_1}^\dagger \gamma^a \Omega_{\nu_1 \nu_2} \Psi_{\nu_2} - \Psi_{\nu_2}^\dagger \Omega_{\nu_2 \nu_1} \gamma^a \Psi_{\nu_1} \right). \quad (7)$$

Каждая  $\sigma$  является одной из  $5!$  перестановок вершин  $\mathcal{V}_{(\mathcal{W})i} \rightarrow \sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})i})$ . Можно проверить, что (ср. с (2))

$$\hat{\Theta}_{\nu_1 \nu_2} \equiv -\Omega_{\nu_1 \nu_2} \hat{\Theta}_{\nu_2 \nu_1} \Omega_{\nu_1 \nu_2}^{-1}. \quad (8)$$

Вклад в решеточное действие от космологической постоянной имеет вид

$$\mathfrak{A}_{\Lambda_0} = -\frac{1}{5! \cdot 12} \frac{\Lambda_0}{l_P^2} \varepsilon_{abcd} \sum_{\mathcal{W}} \sum_{\sigma} \varepsilon_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})1})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})2})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})3})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})4})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})} \times \\ \times e_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})1})}^a e_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})2})}^b e_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})3})}^c e_{\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})5})\sigma(\mathcal{V}_{(\mathcal{W})4})}^d. \quad (9)$$

Статистическая сумма представляется интегралом

$$Z = \prod_{1\text{-simplices } |e_{\nu_1 \nu_2}| < 1} \int \prod_a de_{\nu_1 \nu_2}^a \int d\mu\{\Omega_{\nu_1 \nu_2}\} \times \\ \times \prod_{\nu} \int d\Psi_{\nu}^\dagger d\Psi_{\nu} \exp(\mathfrak{A}). \quad (10)$$

Везде  $d\mu\{\Omega_{\nu_1 \nu_2}\}$  есть инвариантная мера на группе  $\text{Spin}(4)$ .

Действие (4), а также интеграл (10) инвариантны относительно калибровочных преобразований

$$\tilde{\Omega}_{\nu_1 \nu_2} = S_{\nu_1} \Omega_{\nu_1 \nu_2} S_{\nu_2}^{-1}, \quad \tilde{e}_{\nu_1 \nu_2} = S_{\nu_1} e_{\nu_1 \nu_2} S_{\nu_1}^{-1},$$

$$\tilde{\Psi}_{\nu} = S_{\nu} \Psi_{\nu}, \quad \tilde{\Psi}_{\nu}^\dagger = \Psi_{\nu}^\dagger S_{\nu}^{-1}, \quad (11)$$

$$S_{\nu} \in \text{Spin}(4).$$

Здесь  $\mathfrak{A}_g$  и  $\mathfrak{A}_\Psi$  являются действиями чистой гравитации и дираковского поля соответственно:

Проверка этого факта облегчается при использовании соотношения (ср. с соотношением для  $\hat{e}_{\nu_1 \nu_2}$  в (11))

$$\tilde{\hat{\Theta}}_{\nu_1 \nu_2} = S_{\nu_1} \hat{\Theta}_{\nu_1 \nu_2} S_{\nu_1}^{-1}, \quad (12)$$

которое непосредственно следует из (11).

Рассматриваемая решеточная модель инвариантна относительно глобальной дискретной  $\mathbb{Z}_2$ -симметрии, которая является аналогом комбинированной РТ-симметрии. Обозначим оператор этого преобразования как  $\hat{\mathcal{U}}_{PT}$ . Тогда преобразованные динамические переменные выражаются через исходные переменные следующим образом:

$$\hat{\mathcal{U}}_{PT}^{-1} \Psi_{\nu} \hat{\mathcal{U}}_{PT} = U_{PT} \left( \Psi_{\nu}^\dagger \right)^t,$$

$$\hat{\mathcal{U}}_{PT}^{-1} \Psi_{\nu}^\dagger \hat{\mathcal{U}}_{PT} = -(\Psi_{\nu})^t U_{PT}^{-1},$$



$$U_{PT} = i\gamma^1\gamma^3, \quad (13)$$

$$\hat{U}_{PT}^{-1}e_{\nu_1\nu_2}^a\hat{U}_{PT} = -e_{\nu_1\nu_2}^a,$$

$$\hat{U}_{PT}^{-1}\omega_{\nu_1\nu_2}^{ab}\hat{U}_{PT} = \omega_{\nu_1\nu_2}^{ab}.$$

Здесь верхний индекс  $t$  обозначает транспонирование дираковских матриц и спиноров. Имеем

$$\begin{aligned} U_{PT}^{-1}\gamma^a U_{PT} &= (\gamma^a)^t, \\ U_{PT}^{-1}\sigma^{ab} U_{PT} &= -(\sigma^{ab})^t. \end{aligned} \quad (14)$$

Из (13) и (14) следует, что

$$U_{PT}^{-1}\Omega_{\nu_1\nu_2} U_{PT} = (\Omega_{\nu_2\nu_1})^t, \quad (15)$$

$$\hat{U}_{PT}^{-1}\Theta_{\nu_1\nu_2}^a\hat{U}_{PT} = -\Theta_{\nu_1\nu_2}^a. \quad (16)$$

## 2.2. Длинноволновый предел

Перейдем к длинноволновому пределу, т. е. к пределу медленно изменяющихся при движении вдоль решетки полей. В этом пределе действие (4) трансформируется в хорошо известное континуальное действие гравитации в форме Палатини и дираковского поля, минимально связанного с гравитацией, плюс вклад космологической постоянной. Этот предельный переход имеет смысл вместе с переходом к сигнатуре Минковского. В результате компактная калибровочная группа  $\text{Spin}(4)$  преобразуется в некомпактную группу  $\text{Spin}(3, 1)$ . Далее в этом разделе все решеточные переменные в случае евклидовой сигнатуры снабжены штрихом. Для полевых переменных в случае сигнатуры Минковского используются старые обозначения.

Для указанной трансформации действия необходимы следующие деформации контуров интегрирования в интеграле (10):

$$\begin{aligned} \omega'_{\nu_1\nu_2}{}^{4\alpha} &= i\omega_{\nu_1\nu_2}^{0\alpha}, & \omega'_{\nu_1\nu_2}{}^{\alpha\beta} &= -\omega_{\nu_1\nu_2}^{\alpha\beta}, \\ e'_{\nu_1\nu_2}{}^4 &= e_{\nu_1\nu_2}^0, & e'_{\nu_1\nu_2}{}^{\alpha} &= ie_{\nu_1\nu_2}^{\alpha}. \end{aligned} \quad (17)$$

Переменные  $\omega_{\mathcal{W}ij}^{ab}$ ,  $e_{\mathcal{W}ij}^a$  в сигнатуре Минковского являются вещественными и их индексы принимают значения

$$a, b, \dots = 0, 1, 2, 3, \quad \alpha, \beta, \dots = 1, 2, 3. \quad (18)$$

В ортонормированном базисе (ОНБ) метрический тензор  $\eta^{ab} = \text{diag}(1, -1, -1, -1)$ . Дираковские матрицы преобразуются как

$$\begin{aligned} \gamma'^4 &= \gamma^0, & \gamma'^\alpha &= i\gamma^\alpha, & \gamma'^5 &= \gamma^5 = i\gamma^0\gamma^1\gamma^2\gamma^3, \\ \frac{1}{2}(\gamma'^a\gamma'^b + \gamma'^b\gamma'^a) &= \eta^{ab}, \end{aligned} \quad (19)$$

$$\text{Tr}\gamma'^5\gamma'_a\gamma'_b\gamma'_c\gamma'_d = 4i\varepsilon_{abcd}, \quad \varepsilon_{0123} = 1.$$

Таким образом, для спинорных матриц  $\sigma^{ab} = (1/4)[\gamma^a, \gamma^b]$  имеем

$$\sigma'^{4\alpha} = i\sigma^{0\alpha}, \quad \sigma'^{\alpha\beta} = -\sigma^{\alpha\beta}. \quad (20)$$

При помощи (17)–(20) находим

$$\omega'_{\nu_1\nu_2} = \frac{1}{2}\omega_{\nu_1\nu_2}^{ab}\sigma_{ab} \equiv \omega_{\nu_1\nu_2}, \quad (21)$$

$$\hat{e}'_{\nu_1\nu_2} = \gamma_a e_{\nu_1\nu_2}^a \equiv \hat{e}_{\nu_1\nu_2},$$

$$\begin{aligned} \Omega'_{\nu_1\nu_2} &= \exp\left(\frac{1}{2}\omega'_{\nu_1\nu_2}{}^{ab}\sigma'^{ab}\right) = \\ &= \exp\left(\frac{1}{2}\omega_{\nu_1\nu_2}^{ab}\sigma_{ab}\right) \equiv \Omega_{\nu_1\nu_2} \in \text{Spin}(3, 1). \end{aligned} \quad (22)$$

При переходе к сигнатуре Минковского дираковские спиноры преобразуются следующим образом:

$$\Psi'_\nu = \Psi_\nu, \quad \Psi'^\dagger_\nu = \Psi^\dagger_\nu\gamma^0 = \overline{\Psi}_\nu. \quad (23)$$

Переход к длинноволновому пределу возможен для таких конфигураций полей, которые достаточно медленно изменяются при переходах от симплекса к симплексу, т. е. при небольших или значительных перемещениях по решетке. Это правило касается любых решеток. В нашей теории именно на этапе перехода к длинноволновому пределу возникает необходимость введения локальных координат. Локальные координаты — это маркеры вершин решетки. Рассмотрим некоторый 4D-подкомплекс  $\mathfrak{K}' \in \mathfrak{K}$  с тривиальной топологией четырехмерного диска и геометрической реализацией в  $\mathbb{R}^4$ . Таким образом, каждая вершина подкомплекса приобретает координаты  $x^\mu$ , являющиеся координатами образа вершины в  $\mathbb{R}^4$ :

$$x^\mu_\nu \equiv x^\mu(a_\nu), \quad \mu = (0, 1, 2, 3) = (0, i). \quad (24)$$

На этом этапе координаты являются безразмерными. Рассмотрим некоторый симплекс  $s^4_{\mathcal{W}} \in \mathfrak{K}'$ . Обозначим все пять вершин этого 4-симплекса как  $\mathcal{V}_i$ ,  $i = 1, 2, 3, 4$  и  $\mathcal{V}_m \neq \mathcal{V}_i$ . Свойства геометрической реализации таковы, что четыре бесконечно малых вектора

$$dx^\mu_{\mathcal{V}_m\mathcal{V}_i} \equiv x^\mu_{\mathcal{V}_i} - x^\mu_{\mathcal{V}_m} = -dx^\mu_{\mathcal{V}_i\mathcal{V}_m} \in \mathbb{R}^4, \quad i = 1, 2, 3, 4, \quad (25)$$

линейно независимы.

В работах [1–5] доказано, что в  $\mathbb{R}^4$  существуют 1-формы  $\omega_\mu(x)$  и  $\hat{e}_\mu(x)$  такие, что справедливы равенства

$$\omega_\mu\left(\frac{1}{2}(x_{\mathcal{V}_m} + x_{\mathcal{V}_i})\right) dx^\mu_{\mathcal{V}_m\mathcal{V}_i} = \omega_{\mathcal{V}_m\mathcal{V}_i}, \quad (26)$$

$$\hat{e}_\mu \left( \frac{1}{2} (x_{\nu_m} + x_{\nu_i}) \right) dx_{\nu_m \nu_i}^\mu = \hat{e}_{\nu_m \nu_i}. \quad (27)$$

Далее предполагается, что 1-формы гладко зависят от точек в  $\mathbb{R}^4$ , являющихся образами вершин комплекса. В длинноволновом пределе элементы  $\Omega_{\nu_m \nu_i}$  близки к единице и с точностью до  $O((dx)^2)$  включительно имеет место формула

$$\begin{aligned} & \Omega_{\nu_m \nu_i} \Omega_{\nu_i \nu_j} \Omega_{\nu_j \nu_m} = \\ & = \exp \left[ \frac{1}{2} \mathfrak{R}_{\mu\nu} (x_{\nu_m}) dx_{(\nu_m \nu_i)}^\mu dx_{(\nu_m \nu_j)}^\nu \right], \end{aligned} \quad (28)$$

$$\mathfrak{R}_{\mu\nu} = \partial_\mu \omega_\nu - \partial_\nu \omega_\mu + [\omega_\mu, \omega_\nu]. \quad (29)$$

Выпишем длинноволновый предел действия (4):

$$\begin{aligned} \mathfrak{A}'_g & \longrightarrow i \mathfrak{A}_g, \quad \mathfrak{A}_g = -\frac{1}{4l_P^2} \varepsilon_{abcd} \int \mathfrak{R}^{ab} \wedge e^c \wedge e^d, \\ \mathfrak{R}^{ab} & = \mathfrak{R}_{\mu\nu}^{ab} dx^\mu \wedge dx^\nu, \end{aligned} \quad (30)$$

$$\begin{aligned} \mathfrak{A}'_\Psi & \longrightarrow i \mathfrak{A}_\Psi, \quad \mathfrak{A}_\Psi = \frac{1}{6} \varepsilon_{abcd} \int \Theta^a \wedge e^b \wedge e^c \wedge e^d, \\ \Theta^a & = \frac{i}{2} [\bar{\Psi} \gamma^a \mathcal{D}_\mu \Psi - (\overline{\mathcal{D}_\mu \Psi}) \gamma^a \Psi] dx^\mu, \\ \mathcal{D}_\mu & = (\partial_\mu + \omega_\mu), \end{aligned} \quad (31)$$

$$\mathfrak{A}'_{\Lambda_0} \longrightarrow i \mathfrak{A}_{\Lambda_0}, \quad \mathfrak{A}_{\Lambda_0} = -\frac{2\Lambda_0}{l_P^2} \int e^0 \wedge e^1 \wedge e^2 \wedge e^3. \quad (32)$$

Все остальные слагаемые при таком переходе будут содержать дополнительные множители в положительной степени  $l_P/\lambda \longrightarrow 0$ , поэтому они опускаются. Здесь  $\lambda$  — характерная длина волн физической подсистемы. Эта ситуация типична при переходе к длинноволновому пределу в любой решеточной теории.

Действие (30)–(32) является действием Гильберта–Эйнштейна, минимально связанным с дираковским полем и записанным в форме Палатини. Оно инвариантно относительно диффеоморфизмов. Этот факт не случаен, так как в (24) сам способ введения координат таков, что уже на этом этапе видна независимость действия от произвола введения координат. Мы говорим “почти произвольно”, так как и диффеоморфизмы — это не произвольные замены координат, а локально взаимно однозначные и дифференцируемые нужное число раз.

Для ясности укажем на тот факт, что на решетке все переменные и константы безразмерны и порядка единицы. В частности, безразмерна константа

$l_P' \sim 1$  в (5) и (9), а также дифференциалы  $dx_{\nu_m \nu_i}^\mu$  в (25). При переходе к размерным величинам мы полагаем

$$dx_{\nu_m \nu_i}^\mu = dx^\mu / l_P \sim 1, \quad (33)$$

где дифференциал  $dx^\mu$  измеряется в сантиметрах и  $l_P \sim 10^{-32}$  см (см. (53)). Из (33) видно, что шаг нерегулярной решетки имеет размер порядка  $l_P$ . И при этом все слагаемые действия безразмерны, но переменные величины и константы приобретают размерность. Например, в слагаемом (32) космологическая постоянная  $\Lambda_0 \sim l_P^{-2}$ .

В сигнатуре Минковского РТ-симметрия действия определяется формулами (13), (14), (16) с той лишь разницей, что в этих формулах следует сделать замену  $\Psi^\dagger \longrightarrow \bar{\Psi}$ .

### 3. СВЕРХВЫСОКИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ В РЕШЕТОЧНОЙ ТЕОРИИ ГРАВИТАЦИИ

Рассмотрим состояние решеточной теории при сверхвысоких температурах. Как известно, статистическая сумма  $\text{Tr} \exp(-\beta \mathcal{H})$  в квантовой теории отличается от амплитуды перехода за конечное время  $\Delta t$ , представленной в форме функционального интеграла, переходом к мнимому времени  $\Delta t = -i\beta$ ,  $\beta = 1/T$ , и взятием следа. Мы должны изучить некоторые свойства статистической суммы (10) в случае сверхвысоких температур, т. е.  $\beta \longrightarrow 0$ .

В приложении к изучаемой здесь решеточной теории это означает следующее.

Пусть 4D-решетка имеет две 3D-подрешетки  $\Sigma_1$  и  $\Sigma_2$ , которые образуют ее границу. Для простоты мы предполагаем, что между  $\Sigma_1$  и  $\Sigma_2$  имеется  $N < \infty$  4D-решеточных слоев, каждый толщиной в одно ребро. Подрешетки  $\Sigma_1$  и  $\Sigma_2$  считаются тождественными, т. е. между всеми элементами этих подрешеток имеется взаимно однозначное соответствие. Последнее свойство дает возможность вычислить статистическую сумму.

Обозначим через  $\Phi_{1\xi}$  и  $\Phi_{2\xi}$  голоморфные функции фермионных переменных с вещественными коэффициентами, определенные соответственно на  $\Sigma_1$  и  $\Sigma_2$ . Чтобы вычислить след по фермионным переменным, необходимо использовать полный набор голоморфных волновых функций

$$\Phi_{1\xi} \equiv \Phi_{1\xi} \{ \Psi_\nu^\dagger \}$$

и их эрмитово-сопряженных функций

$$\Phi_{2\xi}^\dagger \equiv \left( \Phi_{2\xi} \{ \Psi_\nu^\dagger \} \right)^\dagger = \Phi_{2\xi} \{ \Psi_\nu \}.$$

Индекс  $\xi$  перечисляет независимые ортонормированные функции из их полного набора. Функционал

$$\Phi_{2\xi}^\dagger \exp(\beta \mathfrak{A}) \Phi_{1\xi} \quad (34)$$

должен быть помещен под интеграл (10) и должна быть вычислена сумма по  $\xi$ . В интеграле (10) на отождествленных между собою 1-симплексах, принадлежащих  $\Sigma_1$  и  $\Sigma_2$ , должны быть отождествлены переменные  $\{\Omega\}$  и  $\{e^a\}$ .

Нас интересует случай  $\beta \ll 1$ . Докажем, что дискретная РТ-симметрия (13)–(16) не нарушена при сверхвысоких температурах.

Имеет место следующее

**Утверждение.** В некой конечной окрестности точки  $\beta = 0$  свободная энергия статистической суммы (10), за исключением слагаемого вида  $-(C_1 \mathfrak{M} + 4 \mathfrak{N} \nu_\Psi) \ln \beta$  (см. (42)), является голоморфной функцией переменной  $\beta$ . Все симметрии действия (4), включая дискретную РТ-симметрию, сохранены.  $\square$

Приведем некоторые аргументы в пользу Утверждения. Рассмотрим высокотемпературное разложение статистической суммы в 2D-модели Изинга, которая есть сумма по всем замкнутым путям с самопересечениями на решетке. Пусть решетка содержит  $\mathfrak{L} \rightarrow \infty$  ребер и на ней зафиксирован путь (возможно, несколько не пересекающихся путей) суммарно из  $\mathfrak{l}$  ребер. Заметим, что  $\mathfrak{l}$  — четное число и  $\mathfrak{l} \geq 4$ . При вычислении статистической суммы удобно выделить множитель  $(\operatorname{ch} \beta)^\mathfrak{L}$ , который не дает особенность в свободной энергии. Тогда каждому ребру пути следует приписать вес  $\operatorname{th} \beta$ . Пусть  $g_\mathfrak{l}$  есть число таких замкнутых путей. Имеем строгое неравенство

$$g_\mathfrak{l} < \frac{\mathfrak{L}!}{\mathfrak{l}!(\mathfrak{L}-\mathfrak{l})!}, \quad (35)$$

так как число в правой части неравенства (35) включает в себя также и число всех незамкнутых путей веса  $(\operatorname{th} \beta)^\mathfrak{l}$ . Поэтому статистическая сумма Изинга  $Z$

$$\begin{aligned} \frac{Z}{(\operatorname{ch} \beta)^\mathfrak{L}} &= 1 + \sum_{\mathfrak{l}} g_\mathfrak{l} (\operatorname{th} \beta)^\mathfrak{l} < \\ &< \sum_{\mathfrak{l}=0}^{\mathfrak{L}} \frac{\mathfrak{L}!}{\mathfrak{l}!(\mathfrak{L}-\mathfrak{l})!} (\operatorname{th} \beta)^\mathfrak{l} = \\ &= (1 + \operatorname{th} \beta)^\mathfrak{L} \equiv Z_M. \end{aligned} \quad (36)$$

Отсюда видно, что удельная свободная энергия на одно ребро,

$$f_M = -\ln Z_M / \mathfrak{L} = -\ln(1 + \operatorname{th} \beta),$$

является голоморфной функцией в конечной окрестности точки  $\beta = 0$  и в случае  $\mathfrak{L} \rightarrow \infty$ . Это наблюдение является следствием того, что величина  $Z_M$  по сути является локальной при малых  $\beta$ , т.е. эффективно  $Z_M$  есть произведение локальных голоморфных функций. Иными словами, дальний порядок отсутствует при малых  $\beta$ . Но если из суммы  $Z_M$  устранить незамкнутые контуры, то дальнего порядка не возникнет. Однако размер окрестности голоморфности может измениться. Это значит, что предел  $f = -\ln Z / \mathfrak{L}$  при  $\mathfrak{L} \rightarrow \infty$  существует. Действительно, величина в левой части (36) может быть представлена как

$$Z/(\operatorname{ch} \beta)^\mathfrak{L} = [1 + \rho(\operatorname{th} \beta)]^\mathfrak{L}, \quad (37)$$

причем голоморфная функция  $\rho(\operatorname{th} \beta) \rightarrow 0$  при  $\beta \rightarrow 0$ . Поэтому и

$$f = -\ln \operatorname{ch} \beta - \ln[1 + \rho(\operatorname{th} \beta)] \quad (38)$$

является голоморфной функцией в некоторой конечной окрестности точки  $\beta = 0$ .

Аналогичные рассуждения могут быть проведены и в случае статистической суммы (10), хотя этот случай качественно сложнее. Как фермионные, так и бозонные интегралы в (10) хорошо определены. Рассмотрим качественно результаты этих интегрирований.

Пусть  $\mathfrak{N} \rightarrow \infty$  и  $\nu_\Psi$  обозначают числа вершин комплекса и дираковских полей соответственно. Интегрирование в (10) по дираковскому полю дает фактор под оставшимися интегралами вида

$$\beta^{4\mathfrak{N}\nu_\Psi} \mathfrak{P}\{\Omega, e^a\}, \quad (39)$$

где  $\mathfrak{P}\{\Omega, e^a\}$  есть калибровочно инвариантный однородный полином переменных  $\Omega$  и  $e^a$  степеней  $4\mathfrak{N}\nu_\Psi$  и  $12\mathfrak{N}\nu_\Psi$  соответственно.

Далее рассмотрим интегралы по бозонным переменным. Сначала рассмотрим интегрирование по переменным  $\Omega$ .

Рассмотрим в полиноме  $\mathfrak{P}\{\Omega, e^a\}$  слагаемое, являющееся нечетным относительно переменной  $\Omega_{\nu_1 \nu_2}$ . Интеграл  $\int d\mu \{\Omega_{\nu_1 \nu_2}\} \dots$  от тензорного произведения нечетного числа элементов  $\Omega_{\nu_1 \nu_2}$  равен нулю. Разложим экспоненту по слагаемым, содержащим элемент  $\Omega_{\nu_1 \nu_2}$ . Предположим, что в результате конечного числа таких шагов (для конечного подкомплекса) мы будем иметь тензорное произведение четного числа элементов  $\Omega_{\nu_1 \nu_2}$  на каждом 1-симплексе  $a_{\nu_1} a_{\nu_2}$ . Поэтому в результате

интегрирования по калибровочной группе первое ненулевое слагаемое получит дополнительный фактор  $\beta^C \mathfrak{M}$ , где  $\mathfrak{M} \rightarrow \infty$  есть число 1-симплексов комплекса и  $0 \leq C \sim 1$ . Все остальные слагаемые этого разложения в результате интегрирования по калибровочной группе дают дополнительное калибровочно инвариантное слагаемое  $\mathfrak{F}\{e^a; \beta\}$  в статистическую сумму. Это слагаемое является функционалом переменных  $\{e^a\}$  и хорошо сходящейся голоморфной функцией параметра  $\beta$  в окрестности нуля, причем

$$\frac{\mathfrak{F}\{e^a; \beta\}}{\beta^C \mathfrak{M} + 4 \mathfrak{N} \nu_\Psi} \rightarrow 0 \quad \text{при} \quad \beta \rightarrow 0.$$

Имеется всего два типа инвариантов относительно действия калибровочной группы (11) и связанных с вершиной  $a_\nu$ :

$$e_{\nu\nu_1}^a e_{\nu\nu_2}^a, \quad (40)$$

$$\varepsilon_{abcd} e_{\nu\nu_1}^a e_{\nu\nu_2}^b e_{\nu\nu_3}^c e_{\nu\nu_4}^d. \quad (41)$$

В (40) вершины  $a_{\nu_1}$  и  $a_{\nu_2}$  необязательно разные, и в (41) 1-симплексы  $(a_\nu a_{\nu_1})$ ,  $(a_\nu a_{\nu_2})$ ,  $(a_\nu a_{\nu_3})$ ,  $(a_\nu a_{\nu_4})$  необязательно принадлежат одному 4-симплексу.

Коротко рассмотрим интеграл по переменным  $\{e^a\}$ . Заметим, что если под интегралом содержится выражение (40) в первой степени и с разными  $a_{\nu_1}$  и  $a_{\nu_2}$  и оно не пересекается с другими аналогичными выражениями, то интеграл тождественно равен нулю. Аналогичное утверждение справедливо в отношении выражения (41). Следовательно, выражения (40) и (41) должны быть под интегралом в таких степенях и комбинациях, чтобы переменная  $e_{\nu\nu_1\nu_2}^a$  на каждом 1-симплексе  $(a_{\nu_1} a_{\nu_2})$  была в четной (возможно, нулевой) степени. Возможно, что для этого разложение в (34) по вкладу в действие от  $\beta \mathfrak{A}_{\Lambda_0}$  (см. (9)) необходимо.

Действие (4) локально, т. е. оно состоит из слагаемых (локальных операторов), каждое из которых определено на ближайших элементах решетки. Назовем один из таких операторов  $A$ , другой —  $B$ , и будем считать, что операторы  $A$  и  $B$  разнесены на значительное расстояние вдоль решетки. Рассмотрим коррелятор  $\langle AB \rangle$ . Чтобы этот коррелятор был отличен от нуля, необходимо разлагать экспоненту по этим операторам так, чтобы между операторами  $A$  и  $B$  оказалось достаточное количество смежных локальных операторов. Но такое разложение даст параметр  $\beta \ll 1$  в достаточно высокой степени, по меньшей мере пропорциональной числу 1-симплексов между  $A$  и  $B$ , и с коэффициентом поряд-

ка единицы. Поэтому статистическая сумма в высокотемпературной фазе носит локальный характер.

Сделаем вывод из проведенного рассмотрения. При сверхвысокой температуре ( $\beta = 1/T \rightarrow 0$ ) интеграл статистической суммы (10) является голоморфной функцией в окрестности точки  $\beta = 0$  и имеет форму (ср. с (37))

$$Z = \text{const} \beta^{C_1 \mathfrak{M} + 4 \mathfrak{N} \nu_\Psi} (1 + \mathfrak{f}(\beta))^{C_2 \mathfrak{M}}, \quad (42)$$

$$\mathfrak{f}(\beta) \rightarrow 0 \quad \text{при} \quad \beta \rightarrow 0,$$

$$C_1 \sim C_2 \sim 1.$$

Отсюда следует справедливость Утверждения. В свою очередь, из Утверждения следует, что в высокотемпературной фазе не нарушены никакие симметрии, включая и дискретную РТ-симметрию.

Исходя из справедливости Утверждения, займемся вычислением средних некоторых операторов.

Дискретное РТ-преобразование (13)–(16) не изменяет меру и подынтегральное выражение (за исключением, возможно, усредняемой величины), но меняет местами начальное и конечное состояния:

$$\left(\Phi_{2\xi}^\dagger\right)' \equiv \Phi_{2\xi}^\dagger \hat{U}_{PT}^\dagger = \Phi_{2\xi} \{U_{PT}(\Psi_\nu^\dagger)^t\},$$

$$\Phi'_{1\xi} \equiv \hat{U}_{PT} \Phi_{1\xi} = \Phi_{1\xi} \{-\Psi_\nu^t U_{PT}^{-1}\}, \quad (43)$$

$$\left(\Phi_{2\xi}^\dagger\right)' \Phi'_{1\xi} = \Phi_{1\xi} \{\Psi_\nu^t U_{PT}^{-1}\} \Phi_{2\xi} \{U_{PT}(\Psi_\nu^\dagger)^t\}.$$

Здесь штрих над символом волновой функции означает, что она РТ-преобразована. Из последнего равенства видно, что начальная и конечная волновые функции переставляются местами в результате РТ-преобразования, и при этом их скалярное произведение сохраняется. Это означает, что оператор  $\hat{U}_{PT}$  является антиунитарным.

Согласно общему правилу, интеграл не изменяется при замене переменных интегрирования. В нашем случае представляет интерес интеграл по фермионным и тетрадным переменным и сумма по фермионным состояниям  $\xi$ . Интеграл по переменным связности  $\{\Omega\}$  следует исключить. В противном случае дальнейшее рассуждение потеряет смысл. Рассмотрим два интеграла.

Первый случай:

$$Z\{\Omega\} = \sum_{\xi} \int_e \int_{\Psi^\dagger \Psi} \Phi_{2\xi}^\dagger \exp(\beta \mathfrak{A}) \Phi_{1\xi} \xrightarrow{PT} Z\{\Omega\}.$$

Второй случай:

$$\langle \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a \rangle_{e, \Psi} = N \sum_{\xi} \int_e \int_{\Psi^\dagger \Psi} \Phi_{2\xi}^\dagger \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a \exp(\beta \mathfrak{A}) \Phi_{1\xi} \xrightarrow{PT} -\langle \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a \rangle_{e, \Psi}.$$

Второй случай рассмотрим подробнее. Имеем цепочку равенств:

$$\begin{aligned} \langle \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a \rangle_{e, \Psi} &= N \sum_{\xi} \int_e \int_{\Psi^\dagger \Psi} \Phi_{2\xi}^\dagger \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a \exp(\beta \mathfrak{A}) \Phi_{1\xi} = \\ &= N \sum_{\xi} \int_e \int_{\Psi^\dagger \Psi} \left( \Phi_{2\xi}^\dagger \right)' \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a \exp(\beta \mathfrak{A}) \Phi_{1\xi}' = \\ &= N \sum_{\xi} \int_e \int_{\Psi^\dagger \Psi} \Phi_{1\xi}^\dagger \left\{ \hat{\mathcal{U}}_{PT}^{-1} \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a \exp(\beta \mathfrak{A}) \hat{\mathcal{U}}_{PT} \right\}^\dagger \Phi_{2\xi} = \\ &= -N \sum_{\xi} \int_e \int_{\Psi^\dagger \Psi} \Phi_{1\xi}^\dagger \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a \exp(\beta \mathfrak{A}) \Phi_{2\xi} = \\ &= -\langle \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a \rangle_{e, \Psi}. \end{aligned} \quad (44)$$

Здесь  $N\{\Omega\}$  — нормировочная константа, интеграл вычисляется лишь по переменным тетрадь и дираковского поля, но не по переменным связности. Если бы интегрирование включало также интеграл по переменным  $\{\Omega\}$ , то любая калибровочно неинвариантная величина, как  $\Theta_{\nu_1 \nu_2}^a$ , обращалась бы в нуль тождественно. Но интеграл (44) содержателен, так как в нем калибровка фиксирована. В (44) первое равенство является определением среднего значения, второе равенство является следствием Утверждения, третье и четвертое равенства являются следствиями равенств (43) и (16) соответственно.

Из цепочки равенств (44) вытекает главный вывод настоящей работы:

$$\langle \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a \rangle_{e, \Psi} \equiv \langle \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a \rangle_{\text{Gauge Fix}} = 0. \quad (45)$$

Вакуумное среднее величины  $\Theta_{\nu_1 \nu_2}^a$  в длинноволновом пределе в сигнатуре Минковского при нулевой температуре было вычислено в [6]:

$$\begin{aligned} \langle 0 | \Theta_{\mu}^a | 0 \rangle &= \frac{2}{\pi^2 l_P^4} e_{\mu}^a \neq 0, \\ \Theta_{\mu}^a &= \frac{i}{2} [\bar{\Psi} \gamma^a \mathcal{D}_{\mu} \Psi - (\overline{\mathcal{D}_{\mu} \Psi}) \gamma^a \Psi], \end{aligned} \quad (46)$$

$$\mathcal{D}_{\mu} = (\partial_{\mu} + \omega_{\mu}).$$

Сравнение уравнений (45) и (46) показывает, что в решеточной теории гравитации, связанной с дираковским полем, имеется фазовый переход по температуре.

Фазовый переход из фазы с нулевым значением среднего величины  $\Theta_{\mu}^a$  в фазу с ненулевым значением этой величины и физическое значение этого перехода рассматривался в работе [7]. Работа [8] также может быть интересна в этой связи.

#### 4. УРАВНЕНИЯ ЭЙНШТЕЙНА И ИХ РЕШЕНИЯ

Здесь мы используем стандартную пространственно-плоскую метрику Робертсона – Уокера:

$$ds^2 = dt^2 - a^2(t)(dx^{\alpha})^2, \quad \alpha = 1, 2, 3, \quad (47)$$

$H = \dot{a}/a$  и  $a(t)$  — параметр Хаббла и космический масштабный фактор. Мы полагаем  $c = 1$ . В формулах с восстановленной размерностью делаются соответствующие замечания.

Прежде всего покажем, что в конце фазы инфляции и далее квантовые вакуумные флуктуации несущественны при рассмотрении динамики макроскопических областей пространства и содержащейся в них материи.

Наш подход предполагает, что все физические величины определены с учетом вакуумных нулевых колебаний квантованных полей. В частности, плотность энергии и давление вакуума включают энергию и давление вакуума. Известно, что имеют место следующие одновременные коммутационные соотношения для компонент тензора энергии-импульса в пространстве Минковского [9]:

$$\begin{aligned} [T^{00}(\mathbf{x}), T^{00}(\mathbf{y})] &= \\ &= -i\hbar (T^{0k}(\mathbf{x}) + T^{0k}(\mathbf{y})) \partial_k \delta^{(3)}(\mathbf{x} - \mathbf{y}) + \\ &+ \text{Schwinger Terms}, \end{aligned} \quad (48)$$

и так далее. Швингеровы члены являются высшими производными от  $\delta$ -функций и они здесь не интересны. Такие же коммутационные соотношения имеют место в искривленном пространстве, если они записаны вблизи центра нормальных координат Римана.

Обозначим  $l_P$  порядок размеров шага решетки, который назовем планковским масштабом. Тогда  $\delta^{(3)}(\mathbf{0}) \sim l_P^{-3}$ . При помощи (48) и известного пра-



вила мы находим порядок квантовых флуктуаций плотности энергии на длинах волн порядка  $\lambda \gg l_P$ :

$$\Delta\varepsilon \sim \sqrt{\frac{\hbar|\varepsilon|}{l_P^3\lambda}}, \quad \frac{\Delta\varepsilon}{|\varepsilon|} \sim \sqrt{\frac{\hbar}{l_P^3\lambda|\varepsilon|}}. \quad (49)$$

В настоящую эпоху, а также в значительной части фазы инфляции температура вакуума  $T_{vac} \sim \hbar H$  (см. разд. 5) весьма мала по сравнению с максимальной (по модулю) энергией частиц в дираковском море  $|\epsilon| \sim \hbar/l_P$ . Поэтому плотность вакуумной энергии  $|\varepsilon| \sim \hbar/l_P^4$ , и мы получаем оценку

$$\Delta\varepsilon/|\varepsilon| \sim \sqrt{l_P/\lambda} \sim 10^{-16} \quad (50)$$

для  $\lambda \sim 1 \text{ см}$ ,  $l_P \sim 10^{-32} \text{ см}$ .

Заметим, что при условии справедливости длинноволнового предела имеет смысл полагать  $\lambda/a \sim \text{const}_1$ ,  $l_P/a \sim \text{const}_2$ , и поэтому  $l_P/\lambda \sim \text{const}$ . Следовательно, оценка (50) остается справедливой в очень широком диапазоне, включая значительную часть фазы инфляции. В этом же диапазоне оказывается оправданным использование классических уравнений Эйнштейна для описания макроскопической динамики. Однако при приближении к точке Большого взрыва температура вакуума становится слишком большой. В результате этого плотность энергии  $|\varepsilon|$  быстро уменьшается по абсолютной величине вследствие заселения фермионами уровней положительной энергии. Оценки (49) и (50) становятся неправильными, и в ситуации  $\Delta\varepsilon/|\varepsilon| \sim 1$  классические уравнения неприменимы. Динамика становится полностью квантовой. Более детальное изучение границы перехода от классического описания к квантовому не входит в задачи настоящей работы.

Продemonстрируем тенденцию стремления средней энергии к нулю при росте температуры на простом примере. Рассмотрим одну ферми-частицу, которая может быть лишь в двух состояниях с энергиями  $\pm\epsilon$ . Пусть частица помещена в термостат с нулевым химическим потенциалом и такой температурой, что  $\epsilon/T \rightarrow 0$ . Тогда  $\varepsilon = \langle\epsilon\rangle \rightarrow 0$ .

#### 4.1. Решение уравнений Эйнштейна с затравочной космологической постоянной

Мы полагаем, что тензор энергии-импульса идеальной релятивистской жидкости подходит для решения поставленной задачи:

$$T_b^a = (\varepsilon + p)U^a U_b - p\delta_b^a. \quad (51)$$

Мы работаем в ортонормальном базисе, в котором метрический тензор

$$\eta_{ab} = \text{diag}(1, -1, -1, -1).$$

В правой части уравнения (51) символы  $\varepsilon$  и  $p$  обозначают соответственно плотность энергии и давление, и эти величины включают свои вакуумные значения. Так как фермионные поля, в отличие от бозонных, дают отрицательный вклад в энергию вакуума и согласно стандартной модели фермионных полей кратно больше бозонных, то мы полагаем  $\varepsilon < 0$ . Кроме того, решеточная регуляризация означает, что  $|\varepsilon|, |p| < \infty$ .  $U^a$  является средней 4-скоростью макроскопической области решетки. В нашем случае  $U^a = (1, 0, 0, 0)$ . Для компенсации вакуумной энергии в уравнения Эйнштейна вводится конечная положительная космологическая постоянная  $\Lambda_0$ :

$$\mathfrak{K}_b^a - \frac{1}{2}\delta_b^a \mathfrak{K} = 8\pi G T_b^a + \Lambda_0 \delta_b^a. \quad (52)$$

В решеточной теории космологическая постоянная вводится естественным образом (см. (9)). Мы полагаем, что космологическая постоянная (восстановленной размерности)

$$\Lambda_0 = \text{const} \sim l_P^{-2}, \quad (53)$$

$$l_P \sim \sqrt{\frac{8\pi G \hbar}{c^3}} \sim 10^{-32} \text{ см}.$$

Заметим, что затравочная космологическая постоянная на решетке, как и все прочие константы и переменные, является безразмерной и порядка единицы. Для метрики мы используем анзац (47). Чтобы не перегружать формулы, введем обозначения

$$8\pi G \varepsilon = \tilde{\varepsilon}, \quad 8\pi G p = \tilde{p}. \quad (54)$$

Все компоненты уравнений Эйнштейна сводятся к двум независимым:

$$3\frac{\dot{a}^2}{a^2} = \Lambda_0 + \tilde{\varepsilon}, \quad 2\frac{\ddot{a}}{a} + \frac{\dot{a}^2}{a^2} = \Lambda_0 - \tilde{p}. \quad (55)$$

Уравнение  $\nabla_a T_b^a = 0$  является следствием уравнений (55), и поэтому оно излишне. При помощи параметра Хаббла  $H(t)$  уравнения (55) переписываются следующим образом:

$$2\dot{H} + (\tilde{\varepsilon} + \tilde{p}) = 0, \quad 3H^2 - (\Lambda_0 + \tilde{\varepsilon}) = 0. \quad (56)$$

Таким образом, мы имеем три неизвестных функции  $\{\tilde{\varepsilon}(t), \tilde{p}(t), H(t)\}$  и два уравнения (56). Недостающее уравнение есть уравнение состояния, связывающее

плотность энергии и давление. В отношении уравнения состояния релятивистской материи известны следующие факты: (i) в случае реальной пылевидной материи  $p = 0$ ; (ii) в случае реальной ультрарелятивистской материи  $p = \varepsilon/3$ ; (iii) в случае плотности энергии и давления вакуума в пространстве де Ситтера  $p = -\varepsilon$ . Во всех трех случаях плотность энергии и давление связаны линейно. Кроме того, эти величины имеют одинаковую размерность. Поэтому для плотности энергии и давления, включающих вакуумные значения, мы принимаем следующую гипотезу линейной связи:

$$\tilde{p} = \varkappa\Lambda_0 + (\varkappa - 1)\tilde{\varepsilon} \longleftrightarrow \tilde{\varepsilon} + \tilde{p} = \varkappa(\tilde{\varepsilon} + \Lambda_0). \quad (57)$$

Это уравнение является линейным и неоднородным с неизвестной безразмерной функцией  $\varkappa(t)$ , асимптотики которой далее определяются исходя из известной динамики. Система уравнений (56) и (57) имеет следующее решение:

$$\dot{H} = -\frac{3}{2}\varkappa H^2 \longrightarrow H(t) = H_0 \left( 1 + \frac{3}{2}H_0 \int_{t_0}^t \varkappa(t')dt' \right)^{-1}, \quad (58)$$

$$\tilde{\varepsilon}(t) = -\Lambda_0 + 3H_0^2 \left( 1 + \frac{3}{2}H_0 \int_{t_0}^t \varkappa(t')dt' \right)^{-2}, \quad (59)$$

$$\tilde{p}(t) = \Lambda_0 + 3(\varkappa(t) - 1)H_0^2 \left( 1 + \frac{3}{2}H_0 \int_{t_0}^t \varkappa(t')dt' \right)^{-2}. \quad (60)$$

Здесь  $H_0$  — константа интегрирования, играющая роль параметра Хаббла в начале фазы инфляции и  $t_0 > 0$ .

Из решений (58)–(60) видно, что случаю (i) соответствует значение  $\varkappa(t) = 1$ , случаю (ii) — значение  $\varkappa(t) = 4/3$ , случаю (iii) — значение  $\varkappa(t) = 0$ .

Укажем некоторые свойства решения (58)–(60). Приводимые ниже оценки весьма грубы, они носят модельный характер. Примем следующие оценки для продолжительности фазы инфляции  $t_{inf}$  и для константы  $H_0$ :

$$t_{inf} \cong 10^{-37} \text{ с}, \quad H_0 \cong 10^{39} \text{ с}^{-1}. \quad (61)$$

Отсюда  $H_0 t_{inf} \cong 100$ .

Оценки значения параметра Хаббла сильно расходятся в различных источниках. Мы приняли значение  $H \sim 1.7 \cdot 10^{15} \text{ ГэВ}$ , что эквивалентно значению (61) [10]. В работе [11] дана оценка значения параметра Хаббла в конце фазы инфляции:  $\sqrt{G}H < 10^{-5}$ . Это значение соответствует  $H \sim 10^{38} \text{ см}^{-1}$ , что близко к значению (61).

Возьмем  $\varkappa(t_0) \cong 1/150$  и предположим, что в течение времени  $t_{inf}$  функция  $\varkappa$  изменяется несущественно. Это предположение означает (см. первое из уравнений (58)), что в фазе инфляции  $|\dot{H}| \ll H^2$ . Последнее неравенство является необходимым условием инфляции [12]. Тогда в промежутке времени  $t_0 < t < t_0 + t_{inf}$  решения (58)–(60) принимают вид

$$H(t) \cong H_0, \quad \tilde{\varepsilon}(t) \cong -\tilde{p} \cong -\Lambda_0 + 3H_0^2. \quad (62)$$

Таким образом, в течение инфляции масштабный фактор  $a(t)$  увеличивается в  $\exp(H_0 t_{inf}) \approx \exp 100 \approx 10^{43}$  раз.

Предположим, что когда  $t > t_0 + t_{inf}$ , функция  $\varkappa(t)$  становится равной  $\varkappa = 4/3$ . В этом случае решения (58)–(60) трансформируются в решения, расширяющиеся по степенному закону:

$$\begin{aligned} H(t) &\cong \frac{1}{2t}, \\ \tilde{\varepsilon}(t) &\cong -\Lambda_0 + \frac{3}{4t^2}, \\ \tilde{p} &\cong \Lambda_0 + \frac{1}{4t^2}. \end{aligned} \quad (63)$$

Решение (63) показывает, что масштабный фактор и плотность реальной материи изменяются в соответствии с хорошо известным законом, так же как и правильное уравнение состояния в случае ультрарелятивистской материи:

$$\begin{aligned} a(t) &\propto \sqrt{t}, \\ \rho_{real} &= \frac{3}{32\pi G t^2}, \\ p_{real} &= \frac{1}{3}\varepsilon_{real}. \end{aligned} \quad (64)$$

Здесь размерность восстановлена.

Из равенств (59) и (60) видно, что по мере приближения к точке Большого взрыва величины  $|\tilde{\varepsilon}|$  и  $\tilde{p}$  уменьшаются и становятся равными

$$\tilde{\varepsilon} = -(\Lambda_0 - 3H_0^2),$$

$$\tilde{p} = \Lambda_0 - 3(1 - \varkappa(t_0))H_0^2$$

при  $t = t_0$ . Если предположить, что при  $t \rightarrow 0$  функция  $\varkappa \rightarrow 0$  и  $3H_0^2 \rightarrow \Lambda_0$ , тогда тензор

энергии-импульса стремится к нулю в точке Большого взрыва. Однако выше было показано, что такое продолжение классического решения в непосредственную окрестность точки Большого взрыва невозможно вследствие развития квантовых флуктуаций. Тем не менее тенденция стремления к нулю тензора энергии-импульса в классическом решении по мере приближения к точке Большого взрыва показывает согласованность представленных квантового и классического подходов.

Оценим температуру  $T_c$  фазового перехода, нарушающего РТ-симметрию. Для этого воспользуемся результатом Воловика [13–16], вычислившим точно локальную температуру «вакуума» в пространстве де Ситтера:

$$T_{vac} = \frac{\hbar H}{\pi}. \quad (65)$$

Хотя в изучаемой теории параметр Хаббла, в отличие от случая пространства де Ситтера, не является постоянным, здесь мы примем формулу (65) для оценки температуры.

Было показано, что в точке фазового перехода классические уравнения Эйнштейна (56) не имеют силы. Однако мы их используем лишь для проведения качественной оценки. Так как в точке фазового перехода среднее тензора энергии-импульса фермионов равно нулю ( $\varepsilon = 0$ ), то согласно второму уравнению (56) имеем  $H_c \sim \sqrt{\Lambda_0}$ . Отсюда и при помощи (65), (53) получаем оценку

$$T_c \sim \frac{\hbar c}{l_P} \sim 10^{18} \text{ ГэВ}, \quad \text{или} \quad T_c \sim 10^{31} \text{ К}. \quad (66)$$

Температуру фазового перехода можно оценить также как энергию дираковского подвала, заключенную в планковский объем

$$V_P \sim l_P^3 : T_c \sim (\hbar c/l_P^4) l_P^3 \sim \hbar c/l_P.$$

Эта температура по порядку величины совпадает с температурой Великого объединения.

Оценим также значение температуры в кельвинах в начале фазы инфляции, когда по некоторым оценкам  $H_0 \sim 10^{39} \text{ с}^{-1}$ . Тогда

$$T_0 \sim \frac{\hbar H_0}{k} \sim 10^{28} \text{ К}. \quad (67)$$

Оценка температуры (67) соответствует известным оценкам температуры в начальной фазе инфляции.

#### 4.2. Короткий обзор проблемы расходящейся космологической постоянной

Проблема космологической постоянной заключается в том, что плотность энергии квантовых нулевых колебаний в вакууме расходится как четвертая степень параметра обрезания в импульсном пространстве, и в настоящее время нет общепринятого решения, как скомпенсировать эту огромную плотность энергии.

Нам представляется, что выше в этом разделе представлено возможное решение проблемы, которое корректно в том случае, когда пространство-время имеет свойство зернистости (решетка) на самых малых масштабах. Действительно, введение конечной затравочной космологической постоянной приводит к осмысленному решению уравнений Эйнштейна: в начальной фазе мы имеем экспоненциальное расширение Вселенной (режим инфляции), которое переходит в известное расширение по степенному закону в режиме ультрарелятивистской материи.

Нам представляется уместным дать здесь весьма короткий и не полный обзор попыток решить эту проблему в рамках традиционной квантовой теории поля.

В фундаментальном обзоре [17] были сделаны следующие утверждения относительно расходящейся энергии вакуума. (i) В плоском пространстве-времени Минковского эти расходимости, вообще говоря, имеют место, но в случае суперсимметричных теорий они полностью сокращаются. (ii) В искривленном пространстве-времени даже в случае супергравитации космологическая постоянная расходится. (iii) Теория суперструн также не спасает ситуацию.

Из более поздних и специализированных работ отметим работы [18–23]. В этих работах усилия направлены на решение проблемы космологической постоянной путем микроскопического анализа. Вычислялись вероятности следующих процессов. Пусть имеется массивная частица в пространстве де Ситтера. Такая частица рождает аналогичные частицы в течение достаточно продолжительного времени. Эта проблема изучалась как для свободных, так и для взаимодействующих полей. Аналогичный процесс имеет место в плоском пространстве-времени для массивных заряженных частиц в постоянном и однородном электрическом поле: рождаются пары частица-античастица, которые умень-



шают начальное электрическое поле. В случае пространства де Ситтера идея заключается в том, что рождение пар также ведет к уменьшению космологической постоянной со временем. К сожалению, в цитированных работах не изучалось обратное влияние квантованных материальных полей на геометрию пространства-времени. Возможно, дальнейшие усилия в этом направлении приведут к решению проблемы космологической постоянной.

В работе [24] вычислялось среднее тензора энергии-импульса квантованного скалярного поля в случае анизотропной и меняющейся во времени классической метрики. Регуляризация проводилась следующим образом: из полученной величины вычиталось среднее тензора энергии-импульса, вычисленное в случае стационарного вакуума.

Авторы работы [25] изучают такие модели теории поля, которые, не являясь суперсимметричными, имеют одинаковое число бозонных и фермионных степеней свободы. В этом случае расходимости высшей четвертой степени сокращаются в квантовом среднем тензора энергии-импульса. Показано, каким условиям должны удовлетворять перенормированные массы полей для сокращения оставшихся расходимостей. Этот подход можно назвать методом тонкой настройки теории, в результате которой бесконечная энергия вакуума исчезает.

Работа [26] представляется нам интересной и комплиментарной к настоящей работе, так как в ней также вводится затравочная космологическая постоянная. Сокращение вакуумной энергии является динамическим эффектом, а не результатом тонкой настройки.

Другой интересный подход к решению проблемы, использующий термодинамическую идеологию, представлен в работе [27] (см. там также ссылки на работы F. R. Klinkhamer and G. E. Volovik). Главная идея заключается в следующем. Предположим, что система приходит в состояние термодинамического равновесия и рассмотрим большой термодинамический потенциал  $\Omega$ , отнесенный к пространственному объему  $V$ :

$$\Omega(\beta, \mu, V) = -P(T, \mu)V. \quad (68)$$

В случае термодинамического равновесия Вселенной (если оно существует), давление в правой части равенства (68) стремится к нулю, так как у Вселенной нет вообще внешнего давления. Но эффективный тензор энергии-импульса материи формируется потенциалом (68). Поэтому эффективная плот-

ность энергии материи, включающая энергию вакуума, оценивается как  $\varepsilon \sim \Omega/V \rightarrow 0$ .

В работе [28] подвергается критике использование метрики (47) по причине сильных флуктуаций всех полей на планковских масштабах частот и длин волн. Это заключение делается на основе изучения корреляторов компонент тензора энергии-импульса квантованных материальных полей. Вычисление показывает, что даже в случае свободных квантованных полей вакуумные средние компонент тензора энергии-импульса и их флуктуации — одного порядка и они расходятся как четвертая степень параметра обрезания. Однако корреляторы между длинноволновыми и коротковолновыми степенями свободы стремятся к нулю. Поэтому длинноволновая динамика может рассматриваться независимо от флуктуаций на планковском масштабе. Поэтому использование метрики (47) законно в случае описания низкочастотной физики. Однако это допущение становится неправильным при уменьшении масштабного фактора, росте температуры и уменьшении среднего значения плотности энергии (см. разд. 3).

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работах [29–32] и [5] было предложено равенство

$$\langle e_{\nu_1 \nu_2}^a \rangle = \kappa_{(\nu_1 \nu_2)}^{(0)} \langle \Theta_{\nu_1 \nu_2}^a \rangle, \quad (69)$$

которое имеет место как в решеточной теории гравитации, идентичной изучаемой здесь, так и в непрерывной теории. Соотношение (69) подтверждается также тем фактом, что величины в нем под знаком среднего преобразуются одинаково под действием всех симметрий теории, включая дискретную РТ-симметрию. Соотношение (46), полученное прямым вычислением в континуальном пределе при нулевой температуре, является еще одним аргументом в пользу справедливости соотношения (69).

Следовательно, если гипотеза (69) верна, тогда в высокотемпературной фазе вследствие (45) и левая часть уравнения (69) исчезает:

$$\langle e_{\nu_1 \nu_2}^a \rangle_{\text{Gauge Fix}} = 0. \quad (70)$$

Этот результат получается и непосредственно, тем же путем, каким был получен результат (45). Последнее равенство означает, что в изучаемой модели решеточной теории гравитации пространство коллапсирует в точку в высокотемпературной фазе.

Однако в длинноволновом пределе при низкой температуре тензор энергии-импульса дираковского поля отличен от нуля (46), квантованное поле тетрады слабо флуктуирует и его среднее не равно нулю.

Изложенное выше означает, что в изучаемой решеточной теории гравитации имеется фазовый переход по температуре (возможно, более одного). В высокотемпературной фазе пространство сворачивается в точку, среднее от тензора энергии-импульса равно нулю и дискретная РТ-симметрия не нарушена. Наоборот, в низкотемпературной фазе эти величины не равны нулю и РТ-симметрия нарушена. Роль параметра порядка играет среднее  $\langle e_\mu^a \rangle$ , становящееся ненулевым в низкотемпературной фазе. В низкотемпературной фазе начинается процесс экспоненциального расширения пространства, переходя на степенной закон расширения. В процессе фазового перехода из высокотемпературной фазы в низкотемпературную могут образоваться домены с противоположными значениями средних  $\langle e_\mu^a \rangle$  и  $\langle \Theta_\mu^a \rangle$ . Доменная стенка между такими доменами изучалась в работе [6].

**Благодарности.** Автор благодарит Г. Е. Воловика за стимулирование интереса к изучению термодинамических свойств физики вакуума и выражает признательность Е. Т. Ахмедову за многочисленные полезные обсуждения работы.

**Финансирование.** Работа выполнена по Государственной программе 0033-2019-0005.

## ЛИТЕРАТУРА

1. S. Vergeles, *One More Variant of Discrete Gravity Having «Naive» Continuum Limit*, Nucl. Phys. B **735**, 172 (2006).
2. S. Vergeles, *Wilson Fermion Doubling Phenomenon on an Irregular Lattice: Similarity and Difference with the Case of a Regular Lattice*, Phys. Rev. D **92**, 025053 (2015).
3. S. Vergeles, *Fermion Zero Mode Associated with Instantonlike Self-Dual Solution to Lattice Euclidean Gravity*, Phys. Rev. D **96**, 054512 (2017).
4. S. Vergeles, *A Note on the Possible Existence of an Instanton-Like Self-Dual Solution to Lattice Euclidean Gravity*, J. High Energy Phys. **2017**, 1 (2017).
5. S. Vergeles, *A Note on the Vacuum Structure of Lattice Euclidean Quantum Gravity: «Birth» of Macroscopic Space-Time and Pt-Symmetry Breaking*, Class. Quant. Gravity **38**, 085022 (2021).
6. S. Vergeles, *Domain Wall Between the Dirac Sea and the «Anti-Dirac Sea»*, Class. Quant. Gravity **39**, 038001 (2021).
7. G. Volovik, *Gravity from Symmetry Breaking Phase Transition*, J. Low Temp. Phys. **207**, 127 (2022).
8. G. Volovik, *Superfluid  $^3\text{He-B}$  and Gravity*, Physica B: Cond. Matt. **162**, 222 (1990).
9. J. Schwinger, *Particles, Sources, and Fields*, Vol. 1, CRC Press (2018).
10. A. Linde, *Recent Progress in Inflationary Cosmology*, arXiv: astro-ph/9601004.
11. A. Starobinsky, *The Future of the Universe and the Future of Our Civilization*, World Scientific (2000), p. 71.
12. H. Motohashi, A. A. Starobinsky, and J. Yokoyama, *Inflation with a Constant Rate of Roll*, J. Cosmol. Astropart. Phys. **2015** (09), 018 (2015).
13. G. Volovik, *On De Sitter Radiation via Quantum Tunneling*, Int. J. Mod. Phys. D **18**, 1227 (2009).
14. G. Volovik, *De Sitter Local Thermodynamics in  $F(R)$  Gravity*, JETP Lett. **119**, 564 (2024).
15. G. Volovik, *Thermodynamics and Decay of De Sitter Vacuum*, Symmetry **16**, 763 (2024).
16. G. Volovik, *Sommerfeld Law in Quantum Vacuum*, arXiv:2307.00860.
17. S. Weinberg, *The Cosmological Constant Problem*, Rev. Mod. Phys. **61**, 1 (1989).
18. D. Krotov and A. M. Polyakov, *Infrared Sensitivity of Unstable Vacua*, Nucl. Phys. B **849**, 410 (2011).
19. A. Polyakov, *Infrared Instability of the De Sitter Space*, arXiv:1209.4135.
20. E. Akhmedov, *Lecture Notes on Interacting Quantum Fields in De Sitter Space*, Int. J. Mod. Phys. D **23**, 1430001 (2014).

21. E. Akhmedov, U. Moschella, and F. Popov, *Characters of Different Secular Effects in Various Patches of De Sitter Space*, Phys. Rev. D **99**, 086009 (2019).
22. E. Akhmedov, *Curved Space Equilibration Versus Flat Space Thermalization: A Short Review*, Mod. Phys. Lett. A **36**, 2130020 (2021).
23. A. Y. Kamenshchik, A. A. Starobinsky, and T. Vardanyan, *Massive Scalar Field in De Sitter Spacetime: A Two-Loop Calculation and a Comparison with the Stochastic Approach*, European Phys. J. C **82**, 1 (2022).
24. Y. B. Zel'Dovich and A. Starobinsky, *Particle Production and Vacuum Polarization in an Anisotropic Gravitational Field*, Sov.J. Exp. Theor. Phys. **34**, 1159 (1972).
25. A. Y. Kamenshchik, A. A. Starobinsky, A. Tronconi, T. Vardanyan, and G. Venturi, *Pauli-Zeldovich Cancellation of the Vacuum Energy Divergences, Auxiliary Fields and Supersymmetry*, European Phys. J. C **78**, 1 (2018).
26. S. Appleby and E. V. Linder, *The Well-Tempered Cosmological Constant: Fugue in B*, J. Cosmol. Astropart. Phys. **2020** (12), 037 (2020).
27. F. Klinkhamer and G. Volovik, *Big Bang as a Topological Quantum Phase Transition*, Phys. Rev. D **105**, 084066 (2022).
28. Q. Wang, Z. Zhu, and W. G. Unruh, *How the Huge Energy of Quantum Vacuum Gravitates to Drive the Slow Accelerating Expansion of the Universe*, Phys. Rev. D **95**, 103504 (2017).
29. D. Diakonov, *Towards Lattice-Regularized Quantum Gravity*, arXiv:1109.0091.
30. A. A. Vladimirov and D. Diakonov, *Phase Transitions in Spinor Quantum Gravity on a Lattice*, Phys. Rev. D **86**, 104019 (2012).
31. A. A. Vladimirov and D. Diakonov, *Diffeomorphism-Invariant Lattice Actions*, Phys. of Particles and Nuclei **45**, 800 (2014).
32. G. Volovik, *Dimensionless Physics*, JETP **132**, 727 (2021).

# КВАЗИДВУМЕРНЫЙ ОРГАНИЧЕСКИЙ ПРОВОДНИК $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl. КОНФОРМАЦИОННЫЙ БЕСПОРЯДОК И ЗАРЯДОВАЯ СТРУКТУРА ПРОВОДЯЩИХ СЛОЕВ

А. В. Кузьмин<sup>a,b\*</sup>, Э. И. Хасанова<sup>a</sup>, К. П. Мелетов<sup>a</sup>, В. Н. Зверев<sup>a</sup>, С. С. Хасанов<sup>a,b</sup>

<sup>a</sup> Институт физики твердого тела имени Ю.А. Осипьяна Российской академии наук  
142432, Черноголовка, Россия

<sup>b</sup> Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики»  
119048, Москва, Россия

Поступила в редакцию 6 апреля 2024 г.,  
после переработки 15 июля 2024 г.  
Принята к публикации 19 июля 2024 г.

Методами рентгеноструктурного анализа (РСА), спектроскопии комбинационного рассеяния света (КРС) и квантово-химического моделирования были исследованы особенности температурного поведения термоактивированного конформационного беспорядка концевых этиленовых групп  $-C_2H_4-$  молекул BEDT-TTF (или ET) в кристаллах квазидвумерного органического проводника  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl при температурах от 112 К до 289 К. При медленном охлаждении со скоростью  $-4$  К/ч и шагом в 10 К были измерены параметры кристаллической решетки и для характерных точек проведен полный структурный анализ. Параметры кристаллической структуры проявляют аномальное поведение по температуре в интервале 175–250 К, в этой же области наблюдается аномалия в поведении частот внутримолекулярных колебаний молекулы ET, что связывается с изменением степени конформационного беспорядка. На основе полученных структурных данных методами квантово-химического моделирования было проанализировано влияние наблюдаемого беспорядка на электронную структуру проводящего слоя. В частности, результаты расчетов полуэмпирическим расширенным методом Хюккеля с оптимизированным под заданную систему базисом позволили установить характер распределения электронной плотности как внутри димера, так и внутри слоя в зависимости от конфигурации концевых этиленовых групп. Были выявлены основные типы перераспределения заряда между молекулами в димере ET<sub>2</sub>. Показано, как заселенность конфигураций и степень поляризации димеров влияют на устойчивость того или иного типа зарядового упорядочения внутри проводящего слоя и, в конечном счете, на проводящие свойства кристалла.

DOI: 10.31857/S0044451024120046

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Металлическая проводимость в низкоразмерных органических кристаллах на основе плоских  $\pi$ -сопряженных молекул BEDT-TTF (или ET) реализуется за счет их особой кристаллической структуры: слоистой укладки донорных молекул [1] с относительно большим перекрытием фронтальных молекулярных орбиталей (МО). Благодаря сильному взаимодействию соседних молекул, в таких слоях могут образовываться узкие энергетические зоны

электронных состояний. Донорные слои, как правило, чередуются со слоями сильных акцепторов — анионов, забирающих часть электронов из донорного слоя. В результате такого перераспределения заряда верхняя зона оказывается частично заполненной и может реализоваться металлическое состояние. Электроны, локализованные в анионном слое, в проводимости не участвуют, а носителями тока являются электроны донорных слоев. Проводимость такого типа носит квазидвумерный характер [2], а анизотропия проводимости вдоль и поперек слоев составляет  $10^3$ – $10^4$ .

\* E-mail: kuzminav@issp.ac.ru

В широком классе ЕТ-проводников металлорганическая соль  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl выделяется нетривиальными физико-химическими свойствами. Соединение может быть получено в двух фазовых состояниях: моттовского диэлектрика (фаза  $\kappa$ -Cl) и так называемой  $\kappa'$ -Cl фазы — металла при нормальных условиях, который переходит в сверхпроводящее состояние при  $T_c = 11.5$  K [3]. Кристаллы  $\kappa$ -Cl и  $\kappa'$ -Cl имеют похожую слоистую структуру [4], причем молекулы ЕТ в проводящем слое димеризуются и образуют треугольную решетку, что характерно для  $\kappa$ -фазы. Одним из примечательных свойств кристаллов  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl является скачкообразное изменение сопротивления в зависимости от приложенного напряжения, что может применяться для создания логических элементов на их основе [5].

Физико-химические свойства соли  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl сильно зависят от деталей внутренней структуры катионных и анионных слоев. Предполагается, что проводимость связана со структурным беспорядком в этиленовых группах —C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>— молекул ЕТ [5], который может влиять на распределение сосредоточенной на ЕТ электронной плотности. Это, в свою очередь, является предпосылкой к появлению экзотических состояний «кристалла с парными электронами» или «квантового дипольного кристалла» [6] и «квантовой дипольной жидкости» [7]. Считается, что беспорядок —C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>— имеет термоактивационную природу и стеклует при температурах около 70 K [8–10]. Очевидно, что упорядочение этиленовых групп — это классический релаксационный процесс, а связанные с ним физико-химические свойства объекта обусловлены кинетическими эффектами и зависят от скоростей охлаждения/нагрева. Такие явления часто наблюдаются в ван-дер-ваальсовых кристаллах «подвижных» макромолекул, в частности фуллеритов — кристаллов квазисферических фуллеренов C<sub>60</sub>, где кинетические эффекты выражены достаточно ярко [11, 12]. В случае же  $\kappa$ -фаз эти вопросы освещены слабо, особенно со структурной точки зрения, и поверхностное описание конфигурационного беспорядка в опубликованных структурах  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl только подтверждает это заключение.

Целью данной работы является устранение пробела в изучении процессов упорядочения в кристаллах  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl, столь важных для прогнозирования их функциональных свойств. На основе структурных данных, собранных в широком диапазоне температур, изучено температурное

поведение беспорядка этиленовых концевых групп ЕТ и проведены квантово-химические расчеты, учитывающие частичную активацию той или иной конфигурации группы в проводящем слое. Результаты расчетов позволили сделать выводы о связи конфигурационной неустойчивости ЕТ и зарядовой структуры слоя, которую невозможно детектировать только стандартными методами рентгеноструктурного анализа.

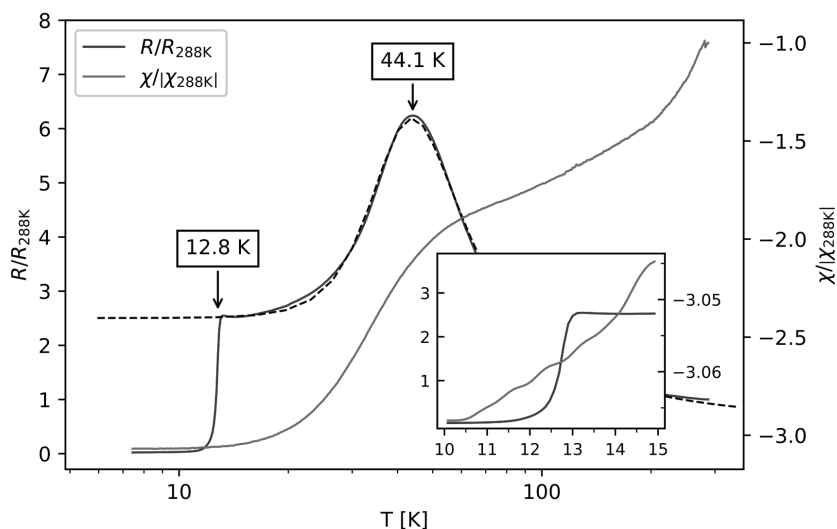
## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Кристаллы  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl были получены методом электрокристаллизации по описанной ранее методике [13]. Образцы высокого качества с хорошей огранкой исследовались методом монокристалльного рентгеноструктурного анализа (PCA) с использованием лабораторного дифрактометра Gemini R Rigaku-Oxford Diffraction и K $\alpha$ -излучения Mo. Дифрактометр оснащен четырехкружным гониометром в  $\kappa$ -геометрии, двухкоординатным CCD-детектором Atlas S2 и криогенной приставкой продувного типа Cryojet от Oxford Instruments. Структурные модели исследуемых образцов были получены прямыми методами при помощи программы SHELXT и уточнены полноматричным методом наименьших квадратов в программе SHELXL (обе входят в программный пакет SHELX [14, 15]). Параметры неводородных атомов были уточнены в анизотропном приближении. Позиции атомов водорода найдены геометрически и уточнены в изотропном приближении с ограничениями  $U_{iso} = 1.2U_{eq}$ , где  $U_{eq}$  — эквивалентные тепловые параметры атома углерода, с которым непосредственно связан атом водорода.

Расчеты электронных характеристик периодической системы были выполнены в рамках теории расширенного метода Хюккеля (PMX или ЕНТ — Extended Huckel Method) с использованием несмещенной сетки специальных  $k$ -точек плотностью  $7 \times 2 \times 7$ , построенной по схеме Монкхорста–Пака [16]. Для уточнения параметров PMX в программе ORCA [17] было выполнено квантово-химическое моделирование электронного спектра изолированных димеров методом теории функционала плотности (ТФП или DFT — Density Functional Theory) и гибридного функционала B3LYP в базисном наборе 6-31G [18].

Спектры комбинационного рассеяния света (КРС) были получены в геометрии обратного рассеяния на спектрографе Acton SpectraPro-2500i с детектором Pixis 2K (рабочий температурный





**Рис. 1.** График измерений нормированного поперечного сопротивления  $R/R_{288\text{ K}}$  и магнитной восприимчивости  $\chi/\chi_{288\text{ K}}$  ( $R_{288\text{ K}}$  и  $\chi_{288\text{ K}}$  — сопротивление и магнитная восприимчивость при соответствующих температурах) кристаллов  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu[N(CN)}_2\text{]Cl}$  (фаза  $\kappa'\text{-Cl}$ )

режим CCD-матрицы составляет около  $-70^\circ\text{C}$ ) и микроскопом Olympus BX51. Для возбуждения КРС использовались непрерывный твердотельный лазер мощностью до 100 мВт и длиной волны  $\lambda = 532\text{ нм}$  с диодной накачкой и краевой фильтр для этой длины волны с полосой пропускания порядка  $60\text{ см}^{-1}$ . Лазерный пучок фокусировался на образец при помощи объектива Olympus  $50\times$  в пятно диаметром около 1.3 мкм. Температурный контроль осуществлялся с помощью азотного криостата с холодной загрузкой образцов, оснащенного регулятором температуры на основе резистивного нагревателя, контроллера температуры ТЕРМОДАТ-08МЗ и силового блока СБ10МЗ.

Температурные зависимости поперечного сопротивления были получены по методике четырехточечного измерения магнитосопротивления с величиной зондового тока 1 мА. Для измерений были выбраны плоские, хорошо ограненные кристаллы с размерами  $0.5 \times 0.1 \times 0.5\text{ мм}^3$ , предварительно прошедшие РСА.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

#### 3.1 Апробация кристаллов $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu[N(CN)}_2\text{]Cl}$

Как упоминалось ранее, соединение  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu[N(CN)}_2\text{]Cl}$  может быть синтезировано в двух различных состояниях: фазах  $\kappa\text{-Cl}$  и  $\kappa'\text{-Cl}$ . Первая является моттовским диэлек-

триком, а последняя демонстрирует металлические свойства с переходом в сверхпроводящее состояние при температурах 11.3–11.9 К и нормальном давлении [4]. Обе эти фазы имеют похожие параметры кристаллической решетки и идентичную структуру вплоть до беспорядка в концевых этиленовых группах ЕТ. Чтобы определить принадлежность наших кристаллов  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu[N(CN)}_2\text{]Cl}$  к одной из этих фаз, были проведены измерения магнитосопротивления. Температурная зависимость магнитной восприимчивости и относительного сопротивления поперек проводящих слоев показаны на рис. 1. Они были получены в условиях нормального давления и скорости охлаждения  $-120\text{ K/ч}$ .

Из графика поперечного сопротивления  $R/R_{288\text{ K}}(T)$  следует, что используемые кристаллы  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu[N(CN)}_2\text{]Cl}$  испытывают плавный переход в сверхпроводящее состояние при температуре около 12.8 К. При этом явного скачка на кривой магнитной восприимчивости  $\chi/\chi_{288\text{ K}}(T)$  не наблюдается (см. вставку на рис. 1), что не характерно для данного семейства соединений. Температурный диапазон «размытого» фазового перехода близок к заявленному ранее для кристаллов  $\kappa'\text{-Cl}$ , хотя и наступает на несколько градусов выше относительно известных температур превращения металл  $\leftrightarrow$  сверхпроводник для последних.

Причина такого поведения  $R$  и  $\chi$  не совсем ясна и, возможно, связана с эффектом частичного шун-

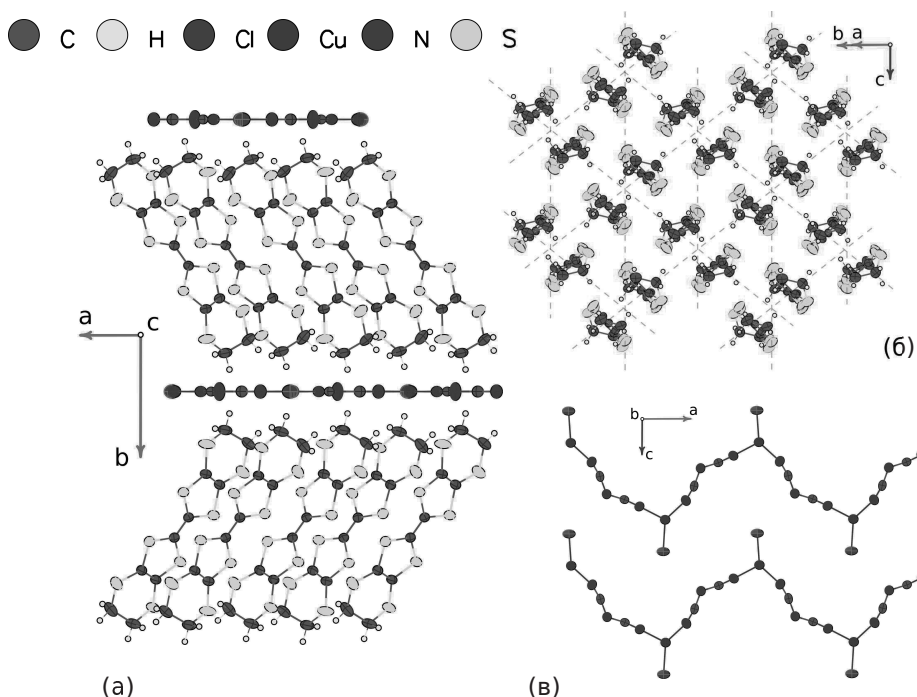


Рис. 2. Слоистая структура кристаллов  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl (а); катионный проводящий слой (б); анионный изолирующий слой (в)

тирования сверхпроводящими доменами, в том случае если фазовое превращение испытывают только отдельные области образца. При этом образуется сверхпроводящий кластер, «зануляющий» сопротивление образца, но доли сверхпроводящей фазы недостаточно для образования циркулярных токов, выталкивающих магнитный поток. Второй критической точкой является температура 44.1 К, при которой происходит смена характера температурной зависимости сопротивления. В литературе ее принято называть температурой Бринкмана–Райса ( $T_{BR}$ ) и ассоциировать с переходом по типу кроссовера металл $\leftrightarrow$ полупроводник [19]. Аппроксимация кривой сопротивления суммой металлической [20] и больцмановской частей температурных зависимостей

$$R^{-1} = R_m^{-1} + R_s^{-1},$$

где  $R_m = R(0) + AT^n$ , а  $R_s = R_0 \exp(E_g/2k_B T)$ , дает энергию активации  $E_g = 243.7$  К и показатель степени  $n = 5.54$ . Значение последнего близко к теоретическому для простых металлов [21]. В совокупности, наличие сверхпроводящего перехода и металлического состояния при атмосферном давлении позволяет утверждать, что наши образцы  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl ближе по электрон-

ным свойствам к  $\kappa'$ -фазе, чем к известному моттовскому изолятору  $\kappa$ -Cl.

Структурные данные были получены на хорошо ограненном кристалле  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl с линейными размерами около 200 мкм в температурном диапазоне от 112 К до 289 К. Параметры элементарной ячейки уточнены в ходе мультитемпературного эксперимента с шагом 10 К, а при температурах 112 К, 147 К, 194 К и 289 К были проведены полные рентген-дифракционные эксперименты с последующим PCA. Эффективная скорость охлаждения с учетом остановок на шестичасовые эксперименты составила  $-4$  К/ч. Таким образом, нами были собраны структурные данные высокого разрешения с факторами достоверности  $R_1 \leq 5\%$ , допускающие применение расчетных полуэмпирических методов.

Модели структуры  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl с разной степенью точности были описаны ранее в работах [22, 23]. Кристаллы имеют слоистое строение с чередованием проводящих катионных и изолирующих анионных слоев (см. рис. 2 а). Структура кристалла — орторомбическая  $Pmna$  с параметрами элементарной ячейки  $a = 12.9457(6)$  Å,  $b = 29.8856(13)$  Å,  $c = 8.4576(3)$  Å и объемом  $V = 3272.2(2)$  Å $^3$  при комнатной температуре. Основной структурной единицей проводящего

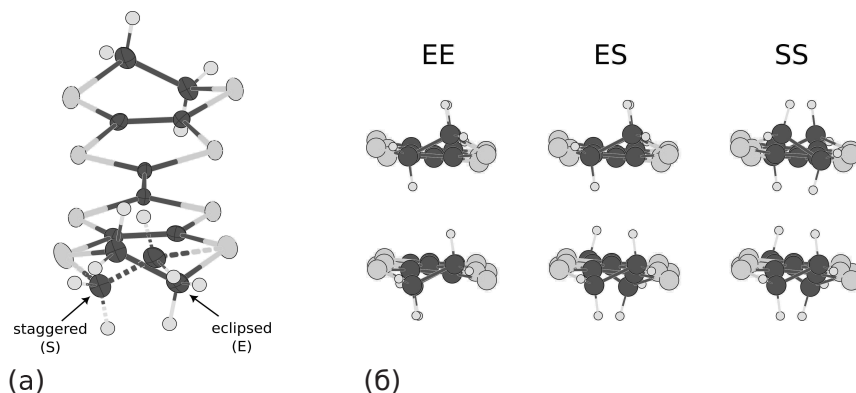


Рис. 3. Две конфигурации этиленовых групп молекул ET: заторможенная (staggered, S) и заслоненная (eclipsed, E) (a), возможные конфигурации димеров  $ET_2^+$ : EE — eclipsed-eclipsed, ES — eclipsed-staggered, SS — staggered-staggered (б)

катионного слоя являются димеры донорных молекул BEDT-TTF или ET (см. рис. 2 б), упакованные в треугольную решетку. Плоская молекула BEDT-TTF представляет собой гетероцикл из восьми атомов серы и десяти атомов углерода. Края молекулы замыкают особо подвижные концевые этиленовые группы  $-CH_2-CH_2-$ , выходящие за плоскость молекулы. Считается, что атомы серы, входящие в состав ET, «укрепляют» димерный слой, так как способствуют формированию сетки межмолекулярных  $S \cdots S$ -контактов, в то время как этиленовые группы, наоборот, препятствуют  $\pi$ -взаимодействию молекул. Анионный слой представляет собой зигзагообразные цепочки анионов  $Cu[N(CN)_2]Cl$ , вытянутые вдоль кристаллографического направления  $a$ . Анион  $Cu[N(CN)_2]Cl$  включает в себя атомы  $Cu^{1+}$ , связанные с двумя дицианоамидными группами  $[(NC)N(CN)]^-$  и концевым атомом Cl (см. рис. 2 в).

В кристаллах  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub> $Cu[N(CN)_2]Cl$ , как и в большинстве подобных соединений с ET, концевые этиленовые группы  $-C_2H_4-$  одного из шестичленных колец молекул ET склонны к структурному беспорядку. При комнатной температуре эти группы занимают два положения с вероятностями 0.8 и 0.2. В структурном анализе эти вероятности принято характеризовать параметром, называемым заселенностью позиции атомов. В структурах с беспорядком значения заселенностей атомов оптимизируются в процессе уточнения структурной модели. Более вероятная конфигурация молекулы (с наибольшей заселенностью группы  $-C_2H_4-$ ) называется eclipsed (E) или заслоненная, а менее вероятная — staggered (S) или заторможенная (см. рис. 3 а). По

своей природе беспорядок этиленовых групп является динамическим, а соотношение заселенностей E : S меняется в зависимости от температуры. Принимая во внимание две конфигурации группы  $-C_2H_4-$ , можно сформировать три типа димеров: EE, когда оба мономера находятся в конфигурации E, SS — оба мономера в конфигурации S, и ES для смешанных димеров (см. рис. 3 б).

На температурной зависимости параметров ячейки (см. рис. 4 а) видна особенность в области температур от 175 К до 250 К, выраженная в изменении наклона температурных зависимостей. Например, на кривой объема элементарной ячейки наблюдается резкое падение его значений, причем в высокотемпературной области  $V(T)$  убывает с понижением температуры согласно квадратичному закону

$$V(T) = \beta(T)T + 3202.8,$$

где коэффициент объемного термического расширения  $\beta$  линейно зависит от температуры:

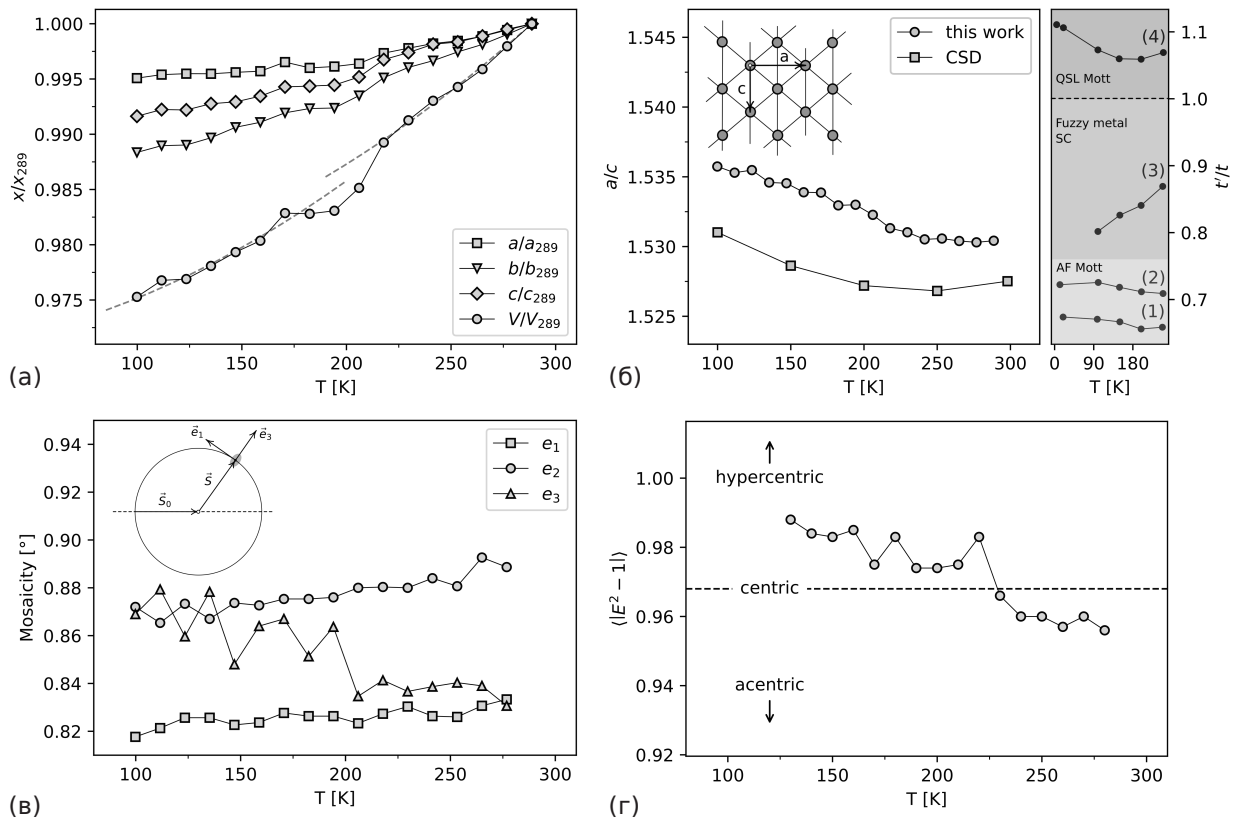
$$\beta(T) = 9.27 \cdot 10^{-4}T + 0.018.$$

После прохождения аномальной области и небольшого плато около  $T = 160$  К, темп падения температурной зависимости восстанавливается, и кривая  $V(T)$  продолжает квадратично убывать. Аппроксимация объемной кривой  $V(T)$  в низкотемпературной области дает уравнение

$$V(T) = \beta(T)T + 3187.7,$$

где

$$\beta(T) = 9.47 \cdot 10^{-4}T + 0.065.$$



**Рис. 4.** Температурное поведение параметров ячейки кристаллов  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl (а), отношение параметров  $a/c$  (CSD — данные по чистой  $\kappa$ -фазе из кембриджской базы [9]) и рассчитанные значения отношения интегралов переноса  $t'/t$  для  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Br — 1,  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl — 2,  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu(NCS) $_2$  — 3,  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu(CN) $_3$  — 4 согласно [9] (б), температурная зависимость параметров мозаичности  $e_1$ ,  $e_2$  и  $e_3$  кристалла  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl (обозначения  $\vec{S}_0$  и  $\vec{S}$  на упрощенной схеме дифракционного эксперимента показывают направления падающего и дифрагирующего рентгеновского луча) (в), моменты  $\langle |E^2 - 1| \rangle$  распределений нормализованных экспериментальных структурных амплитуд  $E = |F|^2 / \langle |F|^2 \rangle$  согласно [30] (г)

Согласно аппроксимирующим уравнениям, различие двух температурных областей проявляется главным образом в значениях температурно-независимых констант  $V(T)$ :  $3202.8 \text{ \AA}^3$  и  $3187.7 \text{ \AA}^3$  соответственно для температур выше и ниже 175 К.

С точки зрения взаимодействия электронов в катионном слое интересным параметром является отношение  $a/c$ , так как оно напрямую влияет на величины интегралов переноса  $t'$  и  $t$  между димерами в слое [24]. В идеальной изотропной треугольной решетке  $a/c = \sqrt{3} \approx 1.732$ . На рис. 4 б видно, что выше  $T = 200$  К отношение  $a/c$  меняется слабо вблизи 1.531, однако ниже этой температуры начинаются процессы «изотропизации» треугольной решетки — значение  $a/c$  медленно возрастает, хотя и остается все еще меньше  $\sqrt{3}$ . При сопоставлении значений

$a/c$  для  $\kappa'$ -фазы с литературными данными для чистой  $\kappa$ -фазы, опубликованными в кембриджской базе структур (CSD, Cambridge Structural Database), видно, что обе зависимости возрастают при уменьшении температуры. При этом отношение  $a/c$  в  $\kappa'$  больше аналогичного в  $\kappa$ -фазе во всем температурном интервале вплоть до 100 К. В общем случае значение отношения  $a/c$  коррелирует с отношением в двумерном слое  $t'/t$  и его повышенное значение может объяснить, почему, в отличие от моттовского изолятора  $\kappa$ -Cl,  $\kappa'$ -фаза является металлом при нормальных условиях и похожа по проводящим свойствам на  $\kappa$ -(ET) $_2$ CuNCS) $_2$  [9].

На рис. 4 в, г показаны результаты предварительной обработки дифракционных данных серии низкотемпературных экспериментов. На рис. 4 в по-

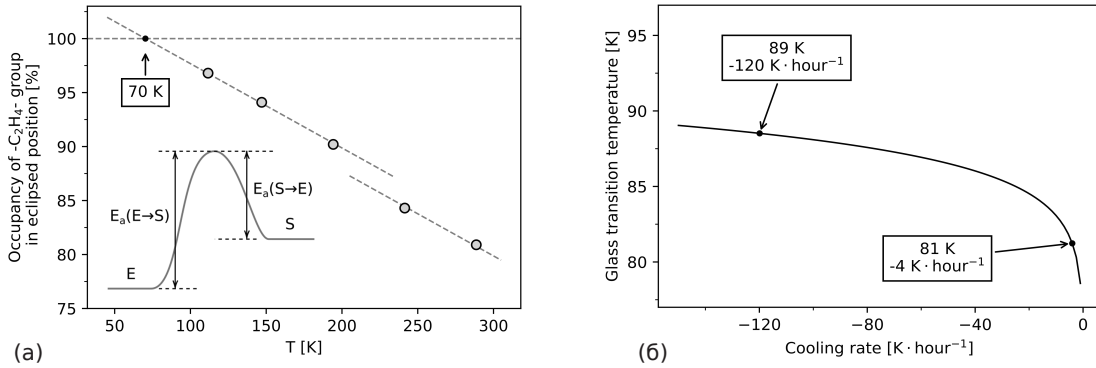
казано температурное поведение параметров мозаичности: ширины дифракционного пятна в градусах в направлениях внутренней ортогональной системы координат отражения  $\{\vec{e}_1, \vec{e}_2, \vec{e}_3\}$  — общепринятой в монокристалльном анализе меры дифракционного качества образца [25]. Система координат  $e_i$  вводится таким образом, что векторы  $\vec{e}_1$ , и  $\vec{e}_2$ , — тангенциальные к сфере Эвальда, а вектор  $\vec{e}_3$ , — перпендикулярен поверхности сферы (см. вставку на рис. 4 в), т. е. приближенно соответствует направлению сканирования обратного пространства [26, 27]. При таком определении базисного набора значение мозаичности  $e_3$  является аналогом профилей кривых качания. Видно, что в процессе медленного охлаждения образца параметры мозаичности  $e_1$  и  $e_2$  медленно спадают, как это и ожидается вследствие общего понижения амплитуды тепловых колебаний атомов. Однако угловой размер дифракционного пятна вдоль  $e_3$  ведет себя не монотонно. До 200 К он сохраняет некоторое среднее, близкое к  $e_1$  значение, однако при дальнейшем охлаждении резко возрастает по величине. Возрастание параметра мозаичности — углового размера дифракционного пятна, свидетельствует об изменениях микроструктуры областей когерентного рассеяния [28, 29] (доменов) и интерпретируется как увеличение разброса значений параметров решетки доменов и/или угловой разориентировки доменов.

Вызывает интерес поведение температурной зависимости статистического распределения экспериментальных интенсивностей  $|F|^2$ . На рис. 4 в показаны температурные зависимости смещенных моментов  $\langle |E^2 - 1| \rangle$  нормированных интегральных интенсивностей  $E = |F|^2 / \langle |F|^2 \rangle$  для ряда температур, а также приведены точные теоретические значения моментов для центросимметричной, нецентросимметричной и гиперцентросимметричных кристаллографических систем [30]. Судя по статистике интенсивностей, кристаллографическая система близка к центросимметричной, однако в области относительно высоких температур (до 225 К) моменты  $\langle |E^2 - 1| \rangle$  лежат ниже своих теоретически ожидаемых значений. В процессе дальнейшего охлаждения моменты резко возрастают по величине и приходят в область ожидаемых для гиперцентросимметричных систем, хотя и довольно далеки от соответствующих теоретических значений. Гиперцентросимметричность системы означает наличие дополнительных центров инверсии в симметрично независимой части кристаллической ячейки (базисе). В структуре  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl базис содержит одну молекулу ET, которая, как уже было описа-

но выше, находится в двух конфигурациях — E или S с суммарной заселенностью 1.0 (см. рис. 3 а). Если провести тесты на наличие элементов точечных групп симметрии для каждой из конфигураций, то окажется, что для группы  $C_i$  значения среднеквадратичных отклонений позиций атомов от симметричных (или  $R(C_i)$ ) в случае конфигурации E равно 0.366, что почти в два раза меньше, чем для конфигурации S, у которой  $R(C_i) = 0.583$ . Наблюдаемая тенденция к смещению значений  $\langle |E^2 - 1| \rangle$  к «гиперцентросимметричным», по-видимому, может быть связана с возрастанием доли конфигураций E в процессе медленного охлаждения образца.

Совокупность наблюдаемых структурных явлений указывает на то, что причины температурных особенностей в интервале от 175 К до 250 К могут быть связаны с динамическим беспорядком конфигураций  $E \leftrightarrow S$ . Интересно сопоставить поведение структурных параметров с результатами других методов, более чувствительных к колебательному движению — C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>—. В частности, вызывают интерес измерения нормированных на температуру времен <sup>1</sup>H спин-решеточной релаксации  $(T_1 T)^{-1}$  как результат обработки серии спектров ядерного магнитного резонанса (ЯМР или NMR) в магнитном поле, направленном перпендикулярно проводящим слоям кристаллов  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl [31]. В оригинальной работе авторами не уточняется, о каких именно образцах идет речь, но вероятнее всего, измерения были проведены на чистой фазе  $\kappa$ -Cl. Измерения показывают, что на графиках  $(T_1 T)^{-1}$  выделяются два четких максимума. Формирование первого широкого максимума вблизи  $T = 280$  К начинается с резкого роста обратных времен релаксации выше  $T = 200$  К, который авторы объясняют термоактивационными колебаниями этиленовых групп и дают оценки энергии активации  $2600 \pm 100$  К. Учитывая, что интенсивности подобного рода колебаний атомов спадают экспоненциально с температурой, второй острый максимум при  $T = 50$  К авторы связывают с явлениями чисто электронной природы и магнитными переходами. Границей, ниже которой ослабевают тепловые эффекты в группах —C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>—, авторы называют температуру 162 К. В широком интервале от 160 К до острого пика около 27 К структура спектров ЯМР практически не меняется, а сама граничная температура соответствует нижнему вытянутому минимуму на температурной зависимости  $(T_1 T)^{-1}$ . Примечательно, что в некоторых изоструктурных соединениях, а именно  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br, данные ЯМР обнаруживают аномалии около той же температуры





**Рис. 5.** Заселенность Е-конфигурации этиленовых хвостов ЕТ-молекул в зависимости от температуры в  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub> Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl (а), теоретическая зависимость температуры стеклования от скорости охлаждения для  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub> Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br (б)

— 160 К, которую принято связывать с формированием несоизмерной структуры из частично упорядоченных этиленовых слоев [32–34].

### 3.2. Разупорядоченность в катионном слое

Детальный кристаллохимический анализ структурных данных позволил установить температурное поведение параметров беспорядка в концевых этиленовых группах ЕТ-молекул (рис. 3 а). Температурные зависимости параметра заселенностей этиленовых групп (см. рис. 5 а) монотонно приближаются к 100%, так что предполагаемое полное упорядочение в структуре катионного слоя может быть достигнуто при температурах близких к  $T_{BR}$ . Линейная экстраполяция температурной зависимости заселенности в область низких температур указывает на полную стабилизацию этиленовых групп в Е-конфигураций при температуре около 70 К. Следует отметить, что при низких температурах также возможно явление стеклования беспорядка, на которое часто ссылаются в литературе [8, 35, 36]. При стекловании кривая заселенности будет постепенно выходить на плато после  $T = 70$  К, что означает сохранение остаточной заселенности минорной позиции этиленовых групп (S-конфигурация). Определение столь малых значений заселенностей рентгеноструктурными методами проблематично, и исследование таких процессов требует более чувствительных экспериментальных подходов и методов.

Относительно низкая температура упорядочения/стеклования отличает  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub> Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl от других  $\kappa$ -солей, в частности от  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub> Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub>, у которых видимое по структуре упорядочение возникает около 130–150 К. На рис. 5 б показана зависимость темпе-

ратуры стеклования  $T_g$  от скорости охлаждения  $r_c$  в соответствии с теоретической моделью системы из двух состояний, разделенных температурно-независимым энергетическим барьером (см. вставку на рис. 5 а) [8, 37].

Следствием предложенной авторами модели является связь  $T_g$  и  $r_c$  через уравнение

$$\frac{T_g^2}{|r_c|} \frac{k_B}{E_a} = \nu_0^{-1} \exp\left(\frac{E_a}{k_B T_g}\right).$$

Для изоструктурной соли  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub> Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br с учетом определенных авторами параметров

$$E_a(S \rightarrow E) = E_a = 3200 \pm 300 \text{ К},$$

$$\nu_0 = 5.0 \cdot 10^{15 \pm 1.5} \text{ Гц}$$

уравнение дает зависимость температуры стеклования  $T_g(|r_c|)$  с точностью  $\pm 15.6$  К. Эта упрощенная теоретическая модель предсказывает, что увеличение  $r_c$  почти в 30 раз смещает  $T_g$  только на 8 К, поэтому сильные различия в температурах упорядочения/стеклования  $\kappa$ -солей связано главным образом с особенностями структуры каждого отдельного соединения, а не с изменением скоростей охлаждения/нагрева.

В целом заселенность Е-конфигурации  $O(T)$  меняется в исследуемой области температур почти линейно со скоростью

$$dO(T)/dT = -7.8 \cdot 10^{-4} \text{ К}^{-1}.$$

При температурах около 200 К на графике наблюдается небольшой излом, связанный со скачкообразным изменением температурно-независимой части  $O(T)$ . Его положение коррелирует с особенностями,

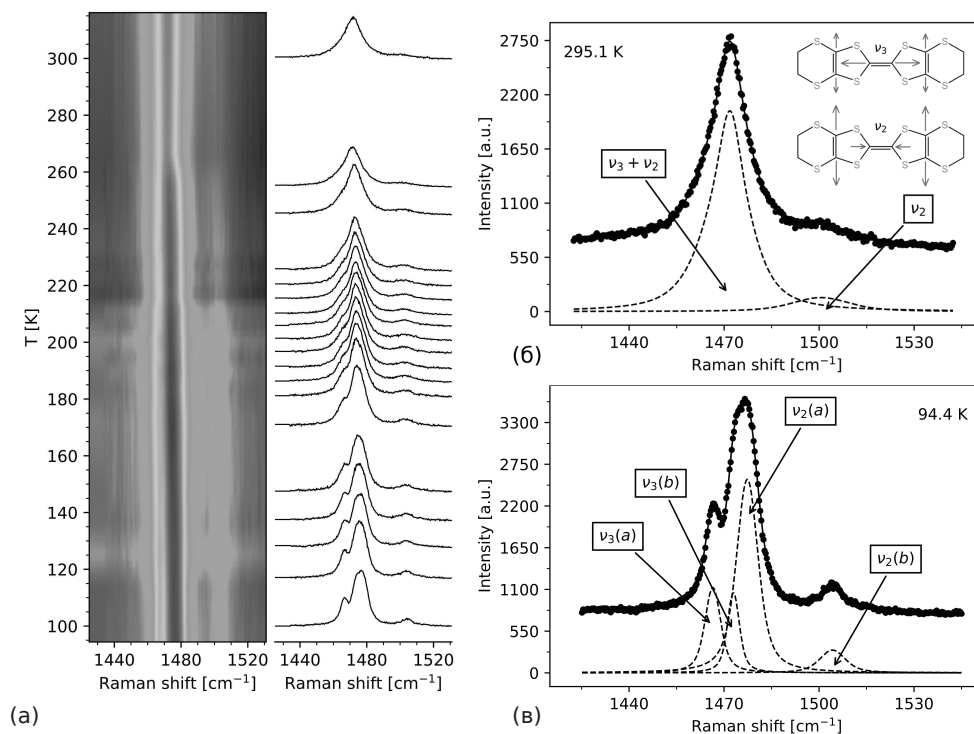


Рис. 6. Спектры комбинационного рассеяния света для кристаллов  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl (а), разложение пиков характеристических мод в интервале 1410–1530  $\text{cm}^{-1}$  для высоких и низких температур (б, в)

обнаруженными на графиках параметров ячейки и статистических кривых (см. рис. 4), что свидетельствует об общности вызывающих их причин.

### 3.3. Оптические свойства кристаллов $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl

Для подтверждения связи термоактивационных «переключений»  $E \leftrightarrow S$  с нетривиальным поведением структурных характеристик кристаллов  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl в интервале от 175 K до 250 K нами была проведена серия мультитемпературных оптических исследований методом спектроскопии КРС. Особое внимание было уделено спектральной области частот 1410–530  $\text{cm}^{-1}$ , где расположены внутримолекулярные колебательные моды отдельных ЕТ-молекул [38].

Спектры КРС кристаллов  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl были измерены при 19 различных температурах в диапазоне от 94 K до 295 K, результаты их обработки представлены на рис. 6. В низкотемпературных спектрах (см. рис. 6 б) отчетливо видны три пика, при этом форма центрального пика асимметрична, что предполагает его дублетную структуру. Согласно литературным данным, частоты в этом диапазоне относятся к нор-

мальным колебательным модам  $\nu_3$  и  $\nu_2$  мономеров ЕТ [38, 39]. Мода типа  $\nu_3$  соответствует колебаниям центральной двойной связи  $C = C$  молекулы ЕТ, а мода  $\nu_2$  — симметричным колебаниям двойных углеродных связей из периферийных пятичленных колец молекулы (см. вставку рис. 6 б). Смещение положения моды  $\nu_2$  часто используется в качестве маркера зарядового состояния ЕТ в силу того, что ее положение чувствительно к заряду молекулы и линейно зависит от его величины [38, 40, 41]. Кроме того, полосы соответствующих мод имеют тенденцию расщепляться на две и более компонент, если в кристаллах присутствуют неоднородности по заряду ЕТ.

В целом спектральная картина, наблюдаемая для образцов  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl, является типичной для ЕТ-соединений. При высоких температурах спектр в области 1410  $\text{cm}^{-1}$ –1530  $\text{cm}^{-1}$  состоит из двух широких максимумов, один из которых соответствует частотам моды  $\nu_2$ , другой, согласно литературным данным, образован преимущественно из полосы моды  $\nu_3$  с возможной примесью второй компоненты  $\nu_2$  (см. рис. 6 б). Спектр практически не меняется до примерно 260 K, а при дальнейшем охлаждении интенсивный максимум становится

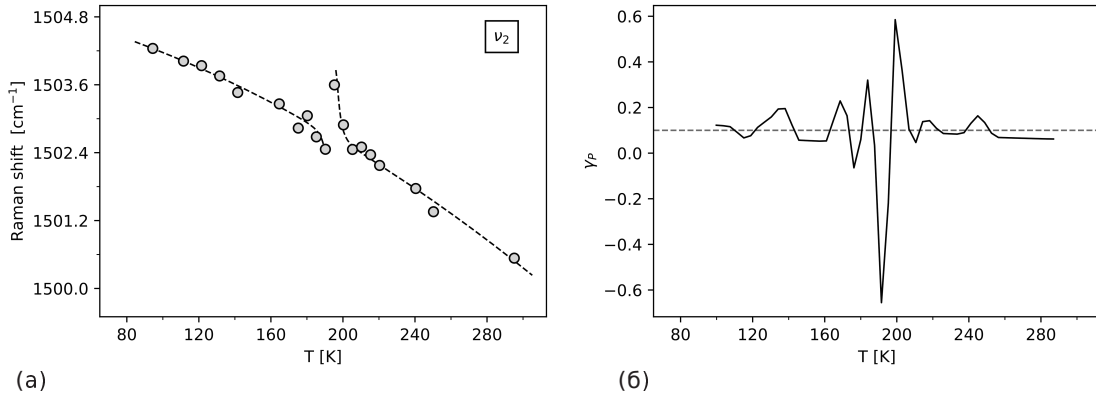


Рис. 7. Температурная зависимость смещения моды  $\nu_2$  (а), значения параметра параметр Грюнайзена  $\gamma_P(T)$  (б)

ся несимметричным. Асимметрия возрастает с понижением температуры и приводит к его тройному расщеплению при  $T = 94$  К (см. рис. 6 в). Три компонента бывшего широкого максимума идентифицируются как наложенные друг на друга пики мод  $\nu_3(a)$ ,  $\nu_3(b)$  и  $\nu_2(a)$ , где  $a$ ,  $b$  — обозначение новых компонент после расщепления. Наблюдаемое раздвоение мод  $\nu_3$  и  $\nu_2$  говорит о том, что неоднородность по заряду молекул ЕТ сохраняется в широком интервале температур.

Остановимся подробнее на единичном максимуме  $\nu_2$  с частотой около  $1500 \text{ см}^{-1}$  в высокоэнергетической области спектра. Максимум почти не меняется при высоких температурах, оставаясь небольшим по величине, но ниже  $T = 200$  К его интенсивность увеличивается и он приобретает более четкий контур. В целом с охлаждением частота моды  $\nu_2$  плавно увеличивается, однако сильно отклоняется от монотонной зависимости и демонстрирует сингулярность в области  $175 - 200$  К с первоначальным выбросом в сторону больших значений (см. рис. 7 а). Резкий скачок частоты колебаний моды  $\nu_2$  хорошо согласуется с данными ядерного магнитного резонанса [31], согласно которым на графиках времен  $^1\text{H}$  спин-решеточной релаксации присутствует максимум, связанный с термоактивационными колебаниями этиленовых групп [31].

Помимо явных расщеплений максимумов моды  $\nu_2$ , их смещение в спектре также является маркером изменения зарядового состояния молекулы ЕТ [38, 41]. За исключением аномальной зоны  $175 - 200$  К, температурное поведение моды, вызванное сжатием (расширением) кристаллической решетки, можно описать экспоненциальным законом

$$\nu_2(T) = \nu_2^0 \exp(-\gamma\beta_0 T - \gamma\beta_1 T^2/2),$$

который получен путем интегрирования уравнения на температурно-независимый одномодовый параметр Грюнейзена  $\gamma$ :

$$\frac{1}{\nu_2^0} \frac{d\nu_2}{dT} = -\gamma\beta(T),$$

где  $\beta(T) = \beta_0 + \beta_1 T$  [39, 42]. Здесь под  $\beta$  подразумевается коэффициент термического расширения,  $\beta_0$  и  $\beta_1$  — коэффициенты его линейной зависимости от температуры,  $\nu_2^0$  — нормировочная константа. Аппроксимация экспериментальных данных по позиции максимумов  $\nu_2$  нелинейным методом наименьших квадратов дает следующие значения констант:

$$\begin{aligned} \nu_2^0 &= 1505.13 \text{ см}^{-1}, \\ \gamma\beta_0 &= 4.3072 \cdot 10^{-6} \text{ К}^{-1}, \\ \gamma\beta_1 &= 4.1804 \cdot 10^{-8} \text{ К}^{-2}. \end{aligned}$$

Эти параметры близки к таковым для чистой фазы  $\kappa\text{-Cl}$  [39], однако в последней никаких видимых изменений в оптических спектрах обнаружено не было [43].

На рис. 7 б показан график температурной зависимости безразмерного одномодового параметра Грюнайзена [44]

$$\gamma_P(T) = -\frac{\partial \ln \nu_2}{\partial \ln V},$$

рассчитанного на основе экспериментальных рентгеноструктурных и оптических данных:  $V(T)$  (см. рис. 4 а) и  $\nu_2(T)$ . Параметр  $\gamma_P$  объединяет в себе результаты оптических и рентгеноструктурных измерений и позволяет оценить поправку на частотный сдвиг вследствие теплового расширения (сжатия) кристаллической решетки. Его величина является мерой ангармонизма соответствующих коле-

бательных мод атомов в кристалле. В случае, если колебания являются гармоническими,  $\gamma_R$  должен быть равен или близким к нулю. В кристаллах  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl среднее значение  $\gamma_R$  в интервале температур от 94 К до 295 К равно 0.01, при этом сам параметр относительно слабо отклоняется от среднего за исключением области около 200 К. Такое поведение  $\gamma_R$  показывает, что скачки значений частоты  $\nu_2(T)$  в узком температурном диапазоне около 200 К носят исключительно внутримолекулярный характер. Они свидетельствуют о нелинейной по амплитуде вынуждающей силе (ангармонизме) внутримолекулярных колебаний, чувствительных к заряду связей ЕТ-молекул в этой области температур и напрямую не связаны с тепловым сжатием (расширением) кристаллической решетки.

### 3.4. Распределение заряда в ЕТ<sub>2</sub><sup>+</sup>-слое

Заслуживает внимания вопрос о влиянии тепловых колебаний концевых этиленовых групп отдельных ЕТ-молекул на общие свойства проводящего слоя, непосредственно связанные с проводимостью, фазовыми превращениями металл  $\leftrightarrow$  сверхпроводник и др. Наиболее доступными подходами для анализа электронного спектра системы являются численные методы квантово-химического моделирования, основанные на экспериментальных рентгеноструктурных данных.

Существуют несколько способов учесть влияние структурного беспорядка в расчетах электронного спектра системы: приближение виртуального кристалла [45], приближение когерентного потенциала [46] и метод суперячейки. Первые два приближения, как правило, используются для моделирования неорганических материалов (в основном сплавов) и имеют ряд ограничений. Метод суперячейки заключается в построении и расчете упорядоченной ячейки большего размера (кратного исходной) и усреднением результатов. В силу своей специфики такой подход очень требователен к вычислительным ресурсам, однако при использовании упрощенных расчетных методов (например полуэмпирических), он может быть совмещен с методом Монте-Карло для анализа систем с динамическим беспорядком, которым является конформационный беспорядок этиленовых групп в ЕТ<sub>2</sub><sup>+</sup>-слое.

Применяемый в работе расширенный метод Хюккеля (РМХ или ЕНТ), являясь полуэмпирическим, частично использует в своем алгоритме

фиксированные экспериментально найденные параметры. Например, потенциалы ионизации используются в качестве диагональных элементов гамильтониана  $H_{ii}$ . Стандартные параметры, поставляемые вместе с программой YAeHMOP [47], не всегда дают качественно верную картину распределения электронных уровней рассчитываемых систем. По этой причине для корректного описания энергетического спектра молекул необходимо провести оптимизацию внутренних параметров метода РМХ. Процедура оптимизации параметров заключалась в их изменении таким образом, чтобы рассчитанные данным методом энергетические спектры димеров ЕЕ, ЕS и SS лучшим образом соответствовали аналогичным спектрам, но рассчитанным в рамках более строгой теории функционала плотности (ТФП или DFT). В качестве критерия соответствия была взята усредненная сумма квадратов разностей энергий 18 фронтальных орбиталей димеров

$$\text{RMSD} \propto \sqrt{\sum_{i=\text{HOMO}-9}^{\text{HOMO}+8} (E_i^{\text{ЕНТ}} - E_i^{\text{DFT}})^2},$$

которая минимизировалась нелинейным методом наименьших квадратов относительно параметров РМХ. В набор варьируемых параметров вошли предэкспоненциальные и экспоненциальные множители базисных функций слэтеровского типа (STO) для атомов С, Н, S и константа Вольфсберга – Гельмгольца. Результаты оптимизации параметров показаны на диаграммах энергетических спектров димеров (см. рис. 8).

Для расчетов электронной структуры димера методами теории функционала плотности использовалась программа ORCA [17]. Рассчитывались все три вида димеров ЕТ<sub>2</sub><sup>+</sup> без учета влияния кристаллического поля. В качестве входных параметров использовались неоптимизированные координаты атомов, полученные в результате РСА  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl при  $T = 280$  К. В рамках данного, более строгого в сравнении с РМХ, расчета были уточнены базовые характеристики изолированных димеров — полная энергия электронной системы и дипольные моменты. Относительные энергии трех различных конфигураций димеров, рассчитанные методом ТФП, составили:  $E_{ES} = E_0 + 0.4565$  эВ,  $E_{SS} = E_0 + 0.91432$  эВ, где  $E_0 = E_{EE}$ , а эффективные дипольные моменты равны  $\mu_{EE} = 7.3 \cdot 10^{-3}$  Д,  $\mu_{ES} = 1.12 \cdot 10^{-1}$  Д,  $\mu_{SS} = 7.1 \cdot 10^{-3}$  Д (значения указаны в Дебаях, единицах измерения дипольного момента молекул).

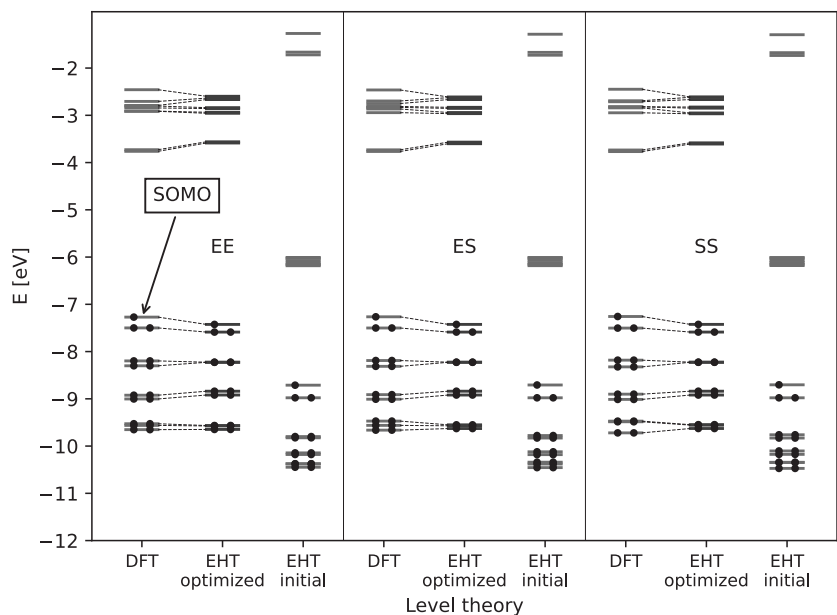


Рис. 8. Диаграммы энергии молекулярных уровней димеров  $ET_2^+$  в двух конфигурациях, рассчитанные методами теории функционала плотности, стандартным расширенным методом Хюккеля и расширенным методом Хюккеля с оптимизированными параметрами. SOMO — полузаполненная молекулярная орбиталь димера

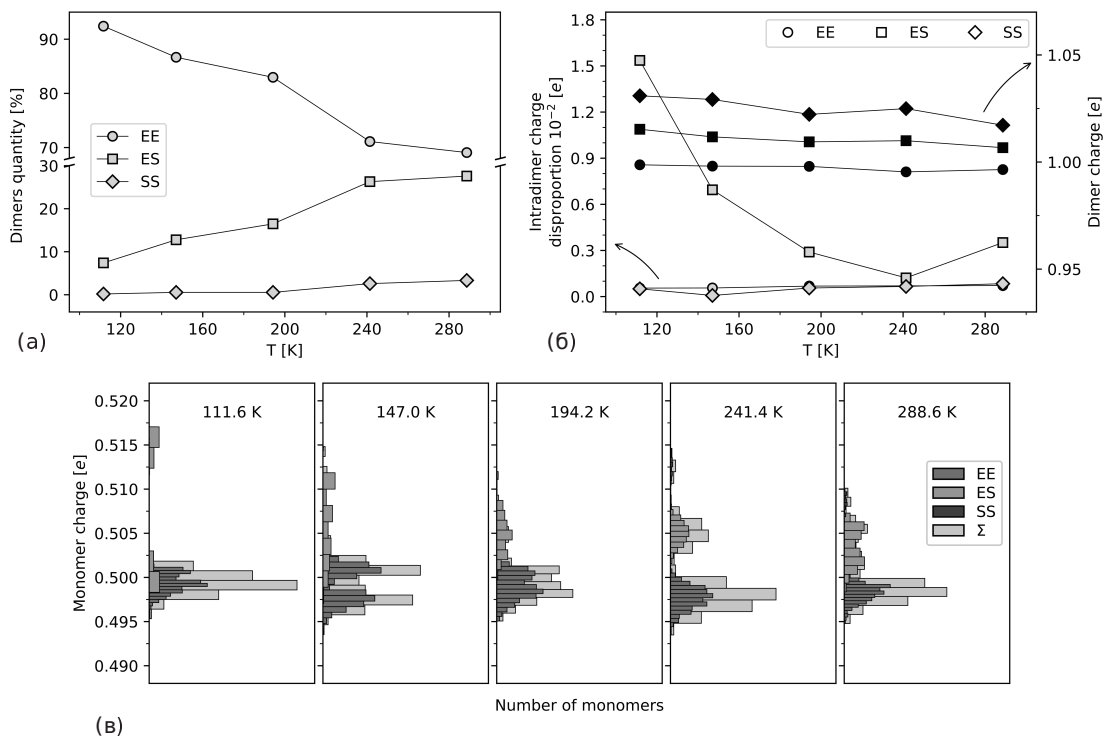


Рис. 9. Распределения зарядов и типов димеров в проводящем слое: процентное содержание димеров в выборках при разных температурах (а), средний заряд димеров EE, ES и SS и средняя разница заряда между их мономерами (б), гистограммы распределения зарядов мономеров в слое (в)



Таким образом расчеты предсказывают, что ES-димер обладает на два порядка большим дипольным моментом, чем симметричные димеры EE и SS-димеры.

Для расчетов электронных характеристик разупорядоченного катионного слоя ET на основе структурных данных была применена вариация метода Монте-Карло, алгоритм действий которой заключался в следующем. Для пяти температурных точек были построены суперячейки  $3 \times 1 \times 3$  с утроенными периодами трансляций вдоль плоскости слоя. Каждая из таких суперячеек была размножена до набора в 30 экземпляров со случайным выбором конфигураций групп  $-C_2H_4-$  и жестким выполнением условия на соотношение общего количества E- и S-конфигураций при данной температуре (см. рис. 5 а). Итоговыми результатами расчетов являлись полные электронные энергии и зарядовые состояния молекул, рассчитанные по схеме Маллика (Mulliken population analysis) [48], и другие базовые характеристики системы. Такая схема вычисления поправки к атомной электронной плотности была выбрана как наиболее распространенная из тех, которые учитывают матрицы пространственных интегралов перекрывания  $S_{ij}$  атомных базисных функций  $i$  и  $j$ .

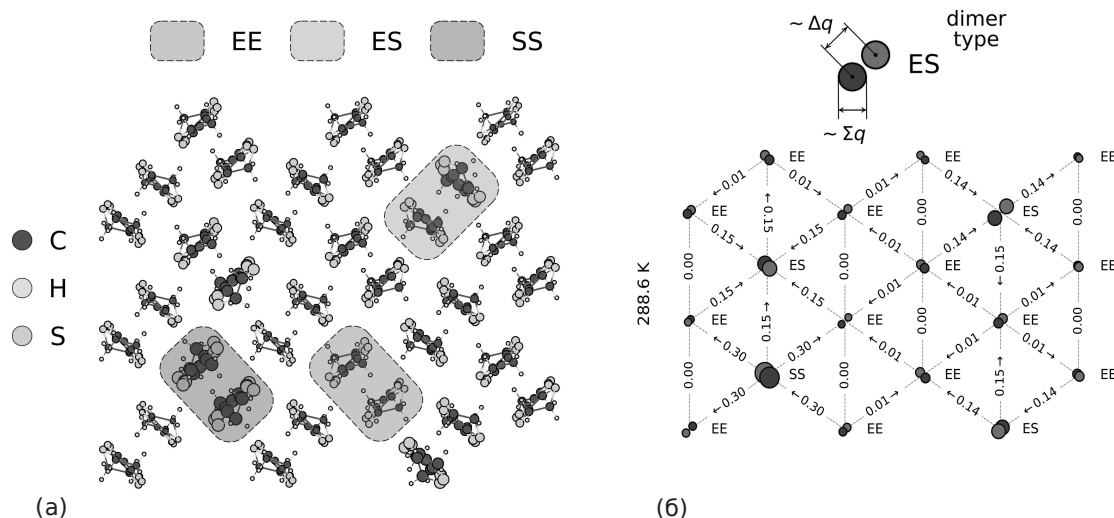
Кратко результаты моделирования распределения зарядов по димерам представлены на рис. 9. С учетом набора из 30 суперячеек суммарное количество димеров и мономеров, участвующих в анализе для каждой температурной точки, равны 540 и 1080 соответственно. Относительные количества димеров в слое в процентах показаны на рис. 9 а. Они полностью соответствуют заселенностям E- и S-конфигураций этиленовых групп, полученных из РСА. Кривые на рис. 9 б и рис. 9 в показывают усредненные величины суммарного заряда димера и разницы между минимальным и максимальным зарядами мономеров в димерах. Видно, что в симметричных димерах (с центром инверсии) EE и SS диспропорция в распределении зарядов невелика, а мономеры таких димеров заряжены симметрично. В несимметричных димерах типа ES ситуация иная. Диспропорция в распределении зарядов ES-димеров присутствует во всем температурном интервале, а сама кривая перераспределения имеет параболический вид с минимумом при  $T = 234$  К. При указанной температуре у всех димеров происходит выравнивание зарядов мономеров и перераспределение заряда исчезает, хотя суммарные заряды димеров продолжают сильно различаться (см. рис. 9 б). При относительно низких температурах (100–150 К) раз-

ница в зарядах мономеров димера ES максимальна и составляет  $0.015e$ , а различие в распределении электронной плотности мономеров становится более очевидным.

Наглядная схема зарядовой структуры проводящего ET-слоя представлена на рис. 10 а. на примере температурной точки 288.6 К. На схеме размеры атомов в молекулах пропорциональны суммарному заряду молекулы, что позволяет визуализировать перераспределение заряда в димерах. Видно, что в сравнении с димерами EE и SS, димеры смешанного состава ES сильно неоднородны, что соответствует более высокому значению их дипольного момента. Димеры EE и SS заряжены равномерно, однако SS-димеры демонстрируют недостаток электронной плотности в сравнении со своим «антиподом» EE. Зарядовое разнообразие димеров показывает, что даже в условиях действия периодического потенциала слоя, который применяется в методе РМХ, корреляция зарядовых неоднородностей с результатами ТФП-расчетов дипольных моментов изолированных димеров сохраняется. Следует отметить, что полный заряд слоя — сумма зарядов атомов без учета усреднения по молекулам, не меняется и является одним из базовых фиксированных параметров расчета.

Комбинированный график на рис. 9 в содержит гистограммы распределения заряда мономеров ET в проводящем слое. Гистограммы дают наиболее полную информацию о зарядовой структуре слоя, однако для их анализа необходима дополнительная информация о типизации димеров. По распределениям заряда видно, что большинство мономеров имеют близкий к стехиометрическому заряд, так как сосредоточены в большом максимуме чуть ниже  $1/2e$ . Сопоставив данные о концентрациях димеров, их среднем заряде и перераспределении, отметим, что этот максимум сформирован преимущественно из мономеров типа EE. При температуре 194.2 К пик начинает немного уширяться, а при 147 К он расщепляется на два узких максимума. Такое расщепление обусловлено некоторым изменением в характере перераспределения заряда внутри мономера и, возможно, связано с формированием несоразмерной зарядовой сверхструктуры, экспериментально наблюдаемой в некоторых ET-содержащих слоистых кристаллах.

В некотором смысле противоположная ситуация наблюдается для высокотемпературных распределений. Отдельно необходимо рассмотреть гистограмму при  $T = 241.4$  К, так как эта температура предшествует области, где наблюдаются «аномалии» в



**Рис. 10.** Зарядовая структура проводящего слоя при  $T = 288.6$  К (слева) и ее модельное представление (справа). На рисунке слева показана атомная структура, полученная из рентгеноструктурного анализа за тем исключением, что размеры неводородных атомов в каждой отдельной молекуле пропорциональны суммарному заряду на этой молекуле. Треугольная сетка на рисунке справа соответствует сетке димеров, два круга в узле сетки отображают два мономера в димере, расстояние между кругами — разность зарядов мономеров в димере  $\Delta q$  (поляризацию димера), размер кругов — суммарный заряд димера  $\sum q$ . Цветовая дифференциация кругов синий-красный соответствует избытку и недостатку электронной плотности на мономере. Числа на схеме справа показывают разницу энергий фронтальных полузаполненных орбиталей (SOMO, см. рис. 8)  $\Delta E_{ij} = |E_i^{SOMO} - E_j^{SOMO}|/2$  двух соседних димеров  $i$  и  $j$  в мэВ, стрелки — направление увеличения энергии SOMO

поведении структурных характеристик (см. рис. 4). На гистограмме присутствуют три четких пика, которые концентрируют в себе мономеры только определенного типа димеров: EE (нижний, самый большой пик), ES (средний пик) и SS (верхний пик с максимально заряженными димерами). Следовательно, наблюдаемые неоднородности заряда «охватывают» целиком весь димер, т.е. привязаны к конкретно узлу треугольной подрешетки слоя. Интересно отметить сходство температурных кривых разницы зарядов мономеров ES и отношения параметров  $a/c \sim t'/t$  (см. рис. 4 б), что говорит о связи геометрических параметров треугольной решетки и распределения электронной плотности в слое.

Из анализа распределений заряда ET можно сделать два вывода. Во-первых, раздвоение нижнего максимума на низкотемпературных гистограммах (см. рис. 9 в) свидетельствует о возможном формировании нетривиальных зарядовых взаимодействий в проводящем слое при медленном охлаждении, например, возникновении состояний так называемого квантового дипольного кристалла. Реальные случаи такого состояния описывались ранее в работах по сравнительному анализу спектров КРС и частот внутримолекулярных колебаний связей C=C в образцах

некоторых  $\kappa$ -фаз:  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Hg(SCN) $_2$ Cl,  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$  и  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Hg(SCN) $_2$ Br [7]. Применительно к  $\kappa$ -солям суть данного явления заключается в изменении типов взаимодействующих объектов. В анизотропном треугольном слое с сильно поляризованными димерами необходимо рассматривать электронные взаимодействия уже между отдельными молекулами ET, а не димерами ET $_2^+$ . В этом случае константа обменного взаимодействия  $J = 4t^2/U$  ( $t$  — интеграл переноса, а  $U$  — энергия взаимодействия электронов на узле) кратно уменьшается по сравнению с  $J$  для изотропной решетки неполяризованных димеров вследствие перехода  $U$  от энергии магнитных взаимодействий внутри димера на кулоновскую энергию электронных взаимодействий на отдельной молекуле. Теоретические оценки дают  $J \approx 80$  К для дипольного кристалла и  $J \approx 250$  К для моттовского изолятора с простой решеткой из неполяризованных димеров (приведено значения для  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ ). Второй вывод заключается в том, что в узкой области температур около минимума на графике перераспределения заряда мономеров ES вид-

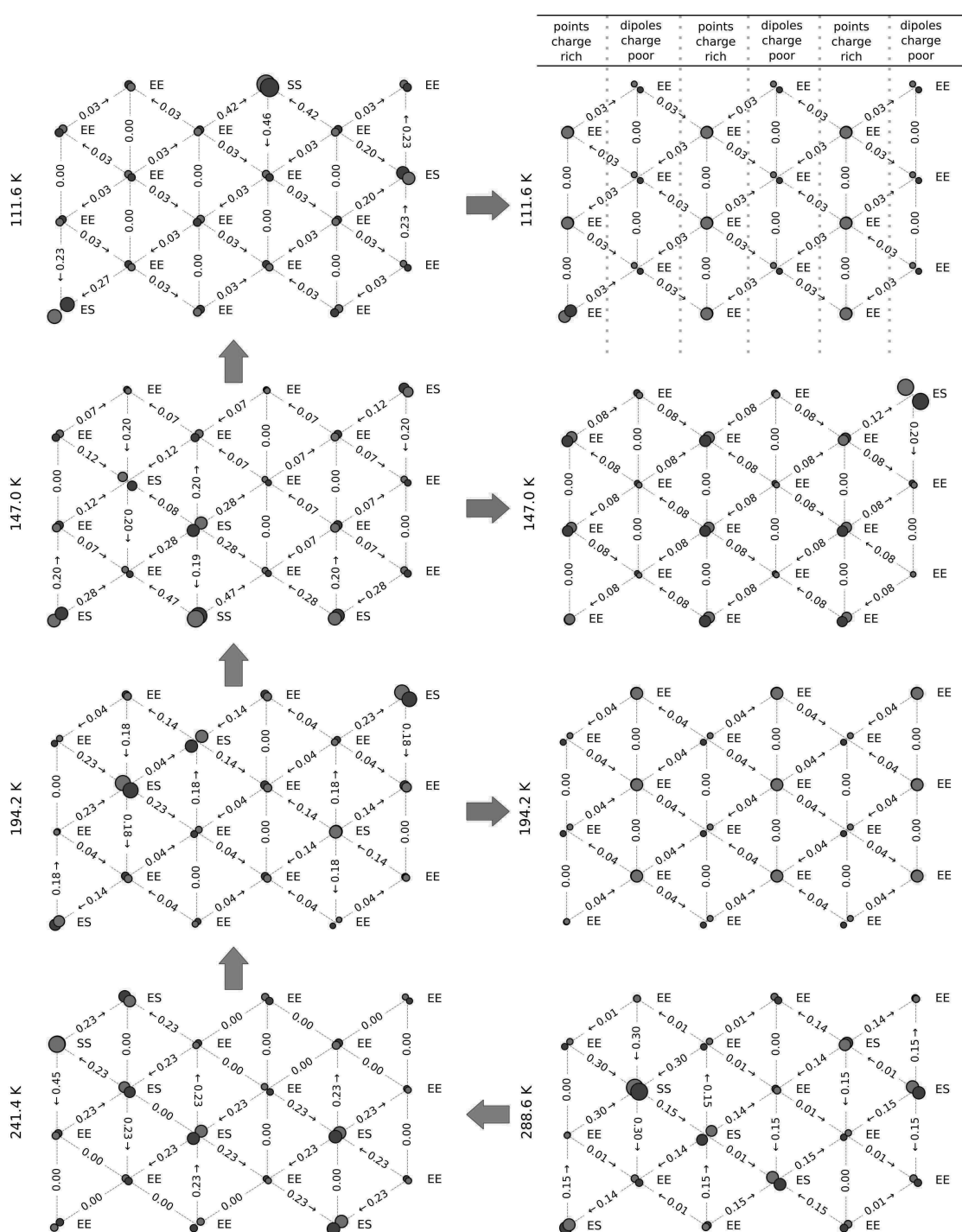


Рис. 11. Типичные схемы зарядовых состояний димеров в проводящем слое при разных температурах. Зеленые стрелки показывают направление последовательного охлаждения, красные стрелки показывают альтернативные варианты распределений зарядов, если таковые встречаются в конкретной выборке. Значения размеров и смещений кругов в узлах решеток соответствуют описанию к рис. 10. При построении сетки величины  $\Delta q$  и  $\sum q$  нормировались на их средние значения в данном слое

ны предпосылки для формирования состояния с треугольной анизотропной решеткой из слабо поляризованных димеров, похожего на моттовский изолятор  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub>. В системе зарядов, распределенных по этому типу, слабо поляризованные димеры имеют разный заряд, поэтому такая система лишь похожа на слои  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub>, но не соответствует им в точности.

Приведенный анализ зарядов мономеров и димеров в слое подтверждает высказанные предположения и, более того, предсказывает формирование нетривиальных картин распределений зарядов. На рис. 11 показана диаграмма рассчитанных зарядовых состояний слоев ЕТ, возникающих по мере перетасовки димеров разных типов в процессе медленного охлаждения образца. Под зарядовым состоянием здесь понимается распределение электронной плотности, полученное в ходе решения задачи минимизации полной электронной энергии системы оптимизированным РМХ. Для наглядности при построении схем величины перераспределения зарядов мономеров и суммарных зарядов димеров нормировались на их средние значения в слое (так димеры ES для  $T = 111.6$  К поляризованы значительно сильнее чем димеры ES для  $T = 241.4$  К, хотя визуально выглядят одинаково). Графические пояснения к построению схем зарядовых состояния слоя представлены на рис. 10 б.

Анализ выборки показывает, что у высокотемпературных структур при  $T = 288.6$  К и  $T = 241.4$  К, когда высоки концентрации асимметричных ES и «энергетически менее выгодных» димеров SS, слои представляют собой хаотичное расположение димеров как по отношению к суммарному заряду димера, так и к степени его поляризации. При дальнейшем понижении температуры характер расположения зарядов меняется: среди множества хаотичных распределений (см. направление зеленых стрелок на рис. 11) начинают появляться слои с относительно упорядоченной зарядовой структурой (см. направление красных стрелок на рис. 11), причем число таких упорядоченных структур растет в выборках при переходе от  $T = 194.2$  К к  $T = 111.6$  К. Таким образом, в низкотемпературной области можно выделить два типа распределения: равномерное поле одинаково заряженных димеров ЕЕ с единичными вкраплениями перезаряженных димеров SS и поляризованных димеров ES или упорядоченная полосчатая структура димеров ЕЕ. Триггером переключения из одного состояния в другое является, по-

видимому, некоторое критическое значение концентрации димеров ES и SS, непосредственно связанное с остаточным значением заселенности минорной конфигурации этиленовых групп.

Отдельно следует коснуться низкотемпературных слоев с зарядовым упорядочением, которые показаны на правых панелях рис. 11. Слои представляют собой чередование цепочек-полос относительно сильно поляризованных и слабо поляризованных димеров ЕЕ, что отличается от гипотетических упорядоченных зарядовых структур, предлагаемых в литературе, включая состояния квантового дипольного кристалла [7]. Электронная плотность концентрируется в полосах с поляризованными димерами, при этом слабо поляризованные полосы перезаряжены положительно — в этом заключается смысл расщепления большого нижнего максимума на низкотемпературных гистограммах рис. 9. Независимо от степени поляризации димеры в каждой из полос заряжены одинаково. Это приводит к тому, что энергии их полузаполненных фронтальных орбиталей (SOMO) примерно равны, а полуразницы энергий  $\Delta E_{ij} = |E_i^{SOMO} - E_j^{SOMO}|/2 = 0$  (см. подпись к рис. 10). Для систем из идентичных компонентов величина  $\Delta E_{ij}$  в первом приближении равна интегралу переноса заряда между этими компонентами [49, 50], следовательно, нулевые значения  $\Delta E_{ij}$  говорят о слабом взаимодействии между одинаково заряженными димерами внутри полос. Для димеров соседних полос  $\Delta E_{ij} > 0$ , что является причиной перераспределения электронной плотности между полосами и соответствует направлениям «перетекания» заряда. Такая полосчатая структура может объяснить размытый переход, обнаруживаемый на кривых магнитной восприимчивости и поперечной проводимости (см. рис. 1), если предположить, что в сверхпроводящее состояние способны переходить только изолированные области слоя с повышенным значением  $\Delta E_{ij}$ .

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ деталей кристаллической структуры  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl, спектров комбинационного рассеяния света и квантово-химическое моделирование электронной структуры позволили установить, что особенности на графиках температурных зависимостей структурных параметров в интервале 175–250 К вызваны конформационной неустойчивостью концевых этиленовых групп в катионном слое.



Результаты основанного на структурных данных квантово-химического моделирования говорят о формировании в проводящих слоях нетривиальной зарядовой системы димеров, для которой характерны корреляции заряда димера и перераспределения заряда между его мономерами с типом конформации молекулы ЕТ. Наиболее поляризованными оказываются димеры, не связанные центром симметрии, причем степень поляризации зависит от температуры и минимальна в центре упомянутого температурного интервала. В высокотемпературной области димеры разной степени поляризации хаотично расположены внутри слоя, однако, в низкотемпературной области возникают случаи устойчивого зарядового упорядочения полосчатого типа.

Смена типов упорядочения предопределяет причину особенностей температурного поведения структурных параметров в области до и после интервала 175–250 К и позволяет однозначно ассоциировать экспериментально обнаруженные отклонения в температурном поведении чувствительных к заряду колебательных мод с конформационным переключением  $-\text{CH}_2 - \text{CH}_2 -$  групп. Наблюдаемые особенности проявляются только в случае крайне медленного контролируемого охлаждения  $r_c = -4 \text{ К/ч}$ , когда система проходит через близкие к равновесным состояния, а беспорядок в этиленовых группах успевает полностью отрелаксировать. Если же скорости охлаждения слишком велики, то особенность может не проявляться, что служит причиной ее отсутствия на графиках поперечной проводимости, фактически полученных в режиме шоковой заморозки  $r_c = -120 \text{ К/ч}$ .

**Финансирование** Экспериментальная часть работы выполнена в рамках госзадания, регистрационный номер АААА-А17-117121120049-3. Моделирование электронных свойств выполнено с использованием суперкомпьютерного комплекса НИУ ВШЭ.

## ЛИТЕРАТУРА

1. T. G. Prokhorova and E. B. Yagubskii, Russ. Chem. Rev. **86**, 164 (2017).
2. J. M. Williams, A. J. Schultz, U. Geiser et al., Science **252**, 1501 (1972).
3. E. B. Yagubskii, N. D. Kushch, A. V. Kazakova et al., J. Exp. Theor. Phys. Lett. **82**, 93 (2005).
4. V. N. Zverev, A. I. Manakov, S. S. Khasanov et al., Phys. Rev. B **74**, 104504 (2006).
5. Y. Huang, Y. Hu, and S. Ren, Appl. Mater. Today **29**, 101569 (2022).
6. C. Hotta, Phys. Rev. B **82**, 241104 (2010).
7. N. Hassan, S. Cunningham, M. Mourigal et al., Science **360**, 1101 (2018).
8. J. Müller, M. Lang, F. Steglich et al., Phys. Rev. B **65**, 144521 (2002).
9. T. Hiramatsu, Y. Yoshida, G. Saito et al., J. Mater. Chem. C **3**, 1378 (2014).
10. J. Müller, M. Lang, F. Steglich et al., J. De Physique Iv. Proc. **114**, 341 (2004).
11. C. A. Angell, Science **267**, 1924 (1995).
12. F. Gugenberger, R. Heid, C. Meingast et al., Phys. Rev. Lett. **69**, 3774 (1992).
13. T. Komatsu, T. Nakamura, N. Matsukawa et al., Solid State Commun. **80**, 843 (1991).
14. G. M. Sheldrick, Acta Crystallogr. Sect. Found. Adv. **71**, 3 (2015).
15. G. M. Sheldrick, Acta Crystallogr. Sect. C Struct. Chem. **71**, 3 (2015).
16. H. J. Monkhorst and J. D. Pack, Phys. Rev. B **13**, 5188 (1976).
17. F. Neese, Wiley Interdiscip. Rev. Comput. Mol. Sci. **2**, 73 (2012).
18. R. Ditchfield, W. J. Hehre and J. A. Pople, J. Chem. Phys. **54**, 724 (1971).
19. Y. Saito, A. Löhle, A. Kawamoto et al., Crystals **11**, 817 (2021).
20. D. Cvijović, Theor. Math. Phys. **166**, 37 (2011).
21. D. P. Shoemaker, D. Y. Chung, H. Claus et al., Phys. Rev. B **86**, 184511 (2012).
22. J. M. Williams, A. M. Kini, H. H. Wang et al., Inorg. Chem. **29**, 3272 (1990).
23. Y. V. Sushko, V. A. Bondarenko, R. A. Petrosov et al., J. Phys. II **1**, 1015 (1991).
24. H. O. Jeschke, M. de Souza, R. Valentí et al., Phys. Rev. B **85**, 035125 (2012).



25. C. G. Darwin, *Philos. Mag. Ser. 6* **43**, 800 (1922).
26. E. Arnold and D. M. Himmel, *International Tables for Crystallography Volume F: Crystallography of Biological Macromolecules*, John Wiley & Sons Ltd., (2011).
27. D. H. Juers, C. A. Farley, C. P. Saxby et al., *Acta Crystallogr. Sect. D* **74**, 922 (2018).
28. D. H. Juers, J. Lovelace, H. D. Bellamy et al., *Acta Crystallogr. Sect. D* **63**, 1139 (2007).
29. A. Vahedi-Faridi, J. Lovelace, H. D. Bellamy et al., *Acta Crystallogr. Sect. D* **59**, 2169 (2003).
30. U. Shmueli, *International Tables for Crystallography. Volume B: Reciprocal Space*, Springer (2001).
31. K. Miyagawa, A. Kawamoto, Y. Nakazawa et al., *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1174 (1995).
32. M. A. Tanatar, T. Ishiguro, T. Kondo et al., *Phys. Rev. B* **59**, 3841 (1999).
33. P. Wzietek, H. Mayaffre, D. Jérôme et al., *J. Phys.* **6**, 2011 (1996).
34. P. Wzietek, H. Mayaffre, D. Jérôme et al., *Synthetic Met.* **85**, 1511 (1997).
35. X. Su, F. Zuo, J. A. Schlueter et al., *Phys. Rev. B* **57**, R14056 (1998).
36. S. Yasin, M. Dumm, B. Salameh et al., *Eur. Phys. J. B* **79**, 383 (2011).
37. P. Nagel, V. Pasler, C. Meingast et al., *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2376 (2000).
38. T. Yamamoto, M. Uruichi, K. Yamamoto et al., *J. Phys. Chem. B* **109**, 15226 (2005).
39. K. Yakushi, *Crystals* **2**, 1291 (2012).
40. H. H. Wang, J. R. Ferraro, J. M. Williams et al., *J. Chem. Soc., Chem. Commun.*, 1893 (1994).
41. I. Olejniczak, B. Barszcz, P. Auban-Senzier et al., *J. Phys. Chem. C* **126**, 1890 (2022).
42. L. A. Hess and P. N. Prasad, *J. Chem. Phys.* **72**, 573 (1980).
43. S. Tomić, M. Pinterić, T. Ivek et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **25**, 436004 (2013).
44. L. A. Girifalco, *Statistical Mechanics of Solids*, Oxford University Press, (2000).
45. L. Bellaiche and D. Vanderbilt, *Phys. Rev. B* **61**, 7877 (2000).
46. P. Soven, *Phys. Rev.* **156**, 809 (1967).
47. G. Landrum, *YAEHMOP 3.0* (2023).
48. R. S. Mulliken, *J. Chem. Phys.* **23**, 1833 (1955).
49. H. Nishioka and K. Ando, *J. Chem. Phys.* **134**, 1 (2011).
50. A. Biancardi, S. C. Martin, C. Liss et al., *J. Chem. Theory Comput.* **13**, 4154 (2017).

# НАБЛЮДЕНИЕ ВОЗВРАТНОЙ ЗАВИСИМОСТИ КРИТИЧЕСКОГО ТОКА ДЖОЗЕФСОНОВСКИХ ПЕРЕХОДОВ Nb–PdFe–Nb ОТ ТОЛЩИНЫ PdFe-БАРЬЕРА И ТЕМПЕРАТУРЫ

В. В. Больгинов<sup>a\*</sup>, А. Л. Карпович<sup>a</sup>, Л. Н. Карелина<sup>a</sup>, Н. С. Шуравин<sup>a</sup>,

В. В. Рязанов<sup>a,b,c</sup>

<sup>a</sup> Институт физики твердого тела имени Ю. А. Осипьяна Российской академии наук  
142432, Черноголовка, Россия

<sup>b</sup> Московский физико-технический институт  
141700, Долгопрудный, Московская обл., Россия

<sup>c</sup> Российский квантовый центр, ИЦ «Сколково»  
121205, Москва, Россия

Поступила в редакцию 5 июня 2024 г.,  
после переработки 2 августа 2024 г.  
Принята к публикации 3 августа 2024 г.

Представлены результаты изучения многослойных джозефсоновских контактов сверхпроводник–ферромагнетик–сверхпроводник (SFS) на основе сверхпроводящего ниобия и слабоферромагнитного сплава Pd<sub>0.99</sub>Fe<sub>0.01</sub>. Обнаружен минимум в зависимости критической плотности тока от толщины F-слоя, который является одним из признаков реализации  $\pi$ -состояния с отрицательным знаком ток-фазовые соотношения. Наличие 0– $\pi$ -перехода, т. е. перехода из  $\pi$ - в 0-состояние с ростом толщины F-слоя, подтверждается также наблюдением возвратной температурной зависимости критического тока при толщине ферромагнетика около 43 нм. Моделирование предсказывает второй порядковый номер обнаруженного 0– $\pi$ -перехода.

*Статья представлена в рамках публикации материалов 39-го Совещания по физике низких температур (НТ-2024), Черноголовка, июнь 2023 г.*

DOI: 10.31857/S0044451024120058

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Джозефсоновские переходы с ферромагнитным барьером (сверхпроводник–ферромагнетик–сверхпроводник, SFS) очень важны для развития сверхпроводящей электроники. Одним из важнейших свойств является отрицательное (фактически, сдвинутое на половину периода) ток-фазовое соотношение [1], позволяющее сдвинуть рабочую точку логических элементов в область нулевых сигналов смещения, уменьшая таким образом размер и энергопотребление логических элементов [2, 3]. С использованием SFS-контактов могут

быть реализованы джозефсоновские элементы с  $\pi$ -периодическим ток-фазовым соотношением [4, 5], используемые в последнее время для разработки адиабатического семейства цифровой сверхпроводящей электроники [6]. Не менее важным является создание устройств джозефсоновской магнитной памяти [7–9], отсутствие которой сдерживает создание полноценного сверхпроводящего компьютера [10].

Причиной возникновения отрицательного ток-фазового соотношения является спиновый антагонизм ферромагнетизма и сверхпроводимости, приводящий к пространственным осцилляциям сверхпроводящего параметра порядка [11–13], наводимого в F-слое за счет эффекта близости [14, 15]. С ростом толщины F-слоя амплитуда ток-фазового соотношения периодически уменьшается до нуля, а потом начинает возрастать с противоположным

\* E-mail: bolg@issp.ac.ru

знаком (0– $\pi$ -переход, или переход между 0- и  $\pi$ -состояниями). Контакты Джозефсона с отрицательным знаком ток-фазового соотношения называются  $\pi$ -контактами (также  $\pi$ -состоянием), поскольку положительные и отрицательные ток-фазовые соотношения сдвинуты относительно друг друга на величину  $\pi$ . Экспериментальное обнаружение этого эффекта проводится путем изготовления серии образцов с разной толщиной  $d_F$  F-слоя и последующим измерением зависимости критической плотности тока от толщины,  $j_c(d_F)$  [16, 17]. Температурная зависимость периода осцилляций наведенного параметра порядка,  $2\pi\xi_{F2}(T)$ , позволяет верифицировать наличие 0– $\pi$ -перехода путем измерения обратной температурной зависимости критического тока [18, 19].

Демонстрацию осцилляций сверхпроводящего параметра порядка в F-слое удобно проводить на примере разбавленных ферромагнитных сплавов с низкими температурами Кюри  $T_C$  и энергией обменного взаимодействия  $E_{ex}$ , поскольку период осцилляций обратно пропорционален  $\sqrt{E_{ex}}$  для случая диффузного джозефсоновского барьера [15]. При малой величине  $E_{ex}$  период осцилляций получается достаточно большим, что позволяет провести экспериментальное исследование с достаточной степенью детализации. Наличие других «распаривающих факторов» (т.е. процессов, вызывающих разрушение куперовских пар в джозефсоновском барьере) еще более увеличивает период осцилляций, хотя и приводит к более быстрому убыванию критического тока с ростом  $d_F$  [16]. Наиболее популярными являются сплавы  $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x$ ,  $x \approx 0.5$  (см., например, работы [16, 19, 20]), компоненты которых широко распространены в природе, дешевы и хорошо поддаются механической обработке. Их противоположностью являются сплавы на основе палладия или платины, которые становятся ферромагнетиками при крайне малой концентрации магнитных атомов [21]. Поэтому величина  $E_{ex}$  в них может настраиваться в широких пределах путем изменения концентрации, например, железа, никеля или кобальта (см. обзор [22]).

В лаборатории сверхпроводимости ИФТТ РАН уже длительное время проводятся исследования слоистых структур на основе сплава  $\text{Pd}_{0.99}\text{Fe}_{0.01}$  с целью разработки элементов сверхпроводниковой памяти. Температура Кюри для тонкопленочных слоев данного состава возрастает от 2 до 42 К при изменении толщины F-слоя от 12 до 180 нм [7]. Несмотря на малое содержание магнитных атомов, слоистые структуры  $\text{PdFe-Nb-PdFe}$  демонстрируют

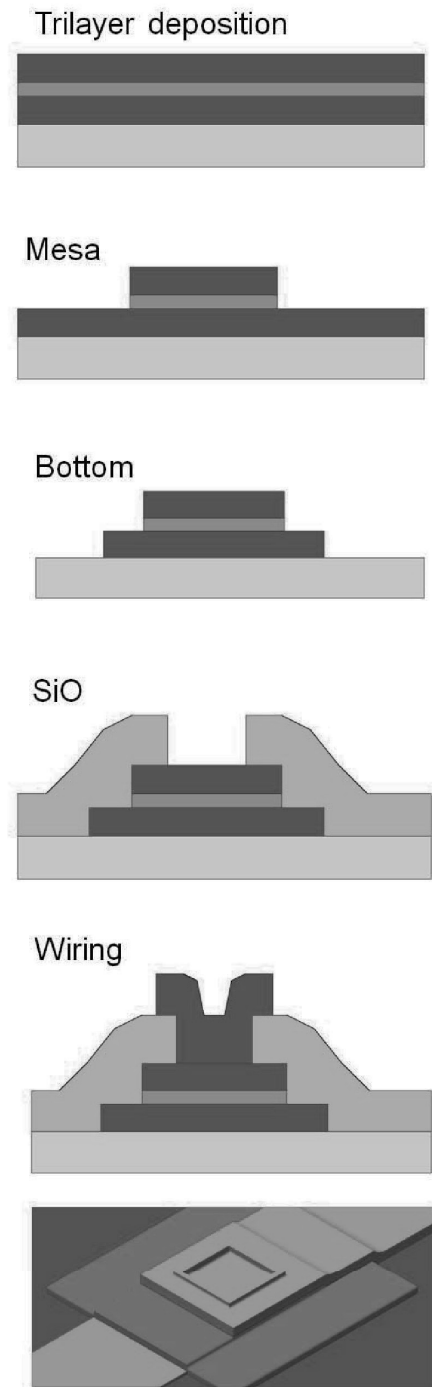


Рис. 1. Схематическое изображение этапов изготовления джозефсоновского SFS-контакта  $\text{Nb-Pd}_{0.99}\text{Fe}_{0.01}\text{-Nb}$

эффект спинового вентиля с диапазоном изменения напряжения до 700 мкВ, что соответствует характеристической частоте 340 ГГц в случае использования данного элемента в составе устройств быстрой одноквантовой логики [23]. Многослойные контак-

ты Джозефсона Nb–PdFe–Nb также могут быть использованы в качестве элементов памяти благодаря планарной (in-plane) анизотропии тонкопленочных слоев PdFe [7]. Использование многослойных джозефсоновских IsF-барьеров (туннельный слой изолятор (I)–сверхпроводник (s)–ферромагнетик (F)) позволяет реализовать джозефсоновские элементы, частотно совместимые с элементами быстрой одно-квантовой логики (БОК, RSFQ) [8]. Однако вопрос о возможности реализации  $\pi$ -состояния в джозефсоновских переходах на основе PdFe ранее не рассматривался. В данной работе продемонстрирован возвратный характер зависимостей критического тока переходов Nb–PdFe–Nb от толщины F-слоя и температуры, что является признаком изменения знака ток-фазового соотношения образца (перехода в  $\pi$ -состояние).

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДИКИ

Мы исследовали многослойные контакты Джозефсона, изготовленные в ходе четырехстадийного технологического процесса (рис. 1). На первом этапе проводилось осаждение трехслойной заготовки Nb–Pd<sub>0.99</sub>Fe<sub>0.01</sub>–Nb с использованием магнетронного осаждения ниобия и катодного ВЧ-осаждения Pd<sub>0.99</sub>Fe<sub>0.01</sub>. Осаждение ниобия проводилось при давлении аргона 8 мкбар, токе разряда 2 А и мощности 0.9 кВт со скоростью около 7 нм/с. Осаждение Pd<sub>0.99</sub>Fe<sub>0.01</sub> проводилось при давлении аргона 21 мкбар и напряжении смещения 1 кВ. Содержание железа в осажденных слоях PdFe составляло 1.1–1.5 ат. % по данным рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии и примерно 1.25 ат. % согласно измерениям при помощи сканирующего электронного микроскопа Центра коллективного пользования ИФТТ РАН. Толщины слоев ниобия составляли 150 нм, а толщина слоя PdFe варьировалась в пределах 30–50 нм. На втором этапе формировались верхний электрод и барьер джозефсоновского контакта (меза) с использованием плазмохимического травления ниобия (см. параметры в работе [24]) с фоторезистивной маской, а также ионно-плазменного травления слоя PdFe при давлении аргона 12 мбар, напряжении смещения 1 кВ со скоростью около 1 нм/с. Меза имела квадратную форму с размером стороны 10 мкм. На третьем этапе проводилось термическое осаждение слоя изоляции SiO толщиной 350 нм с последующей взрывной фотолитографией (lift-off). Размер окна в слое изоляции, открытого для доступа к верхнему электроду кон-

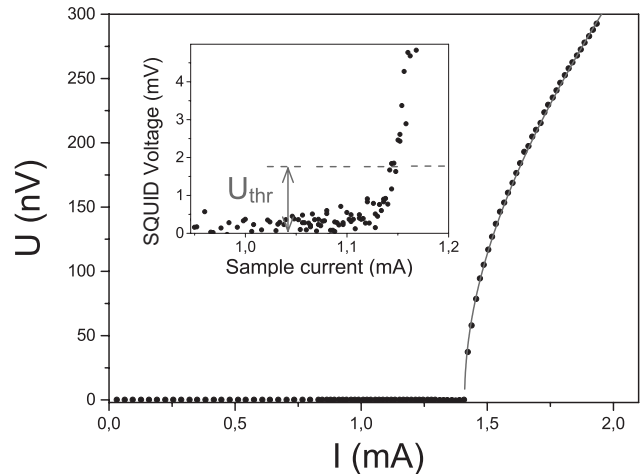


Рис. 2. Типичная вольт-амперная характеристика исследованных образцов. Черные точки — экспериментальные данные, красной линией показана аппроксимация джозефсоновской гиперболой  $U = R_N \sqrt{T^2 - T_c^2}$ . Температура эксперимента 4.2 К, сопротивление образца  $R_N = 220$  мкОм. На вставке проиллюстрирован метод автоматического определения критического тока при превышении напряжения отсечки  $U_{thr}$  в ходе измерения зависимости  $I_c(H)$

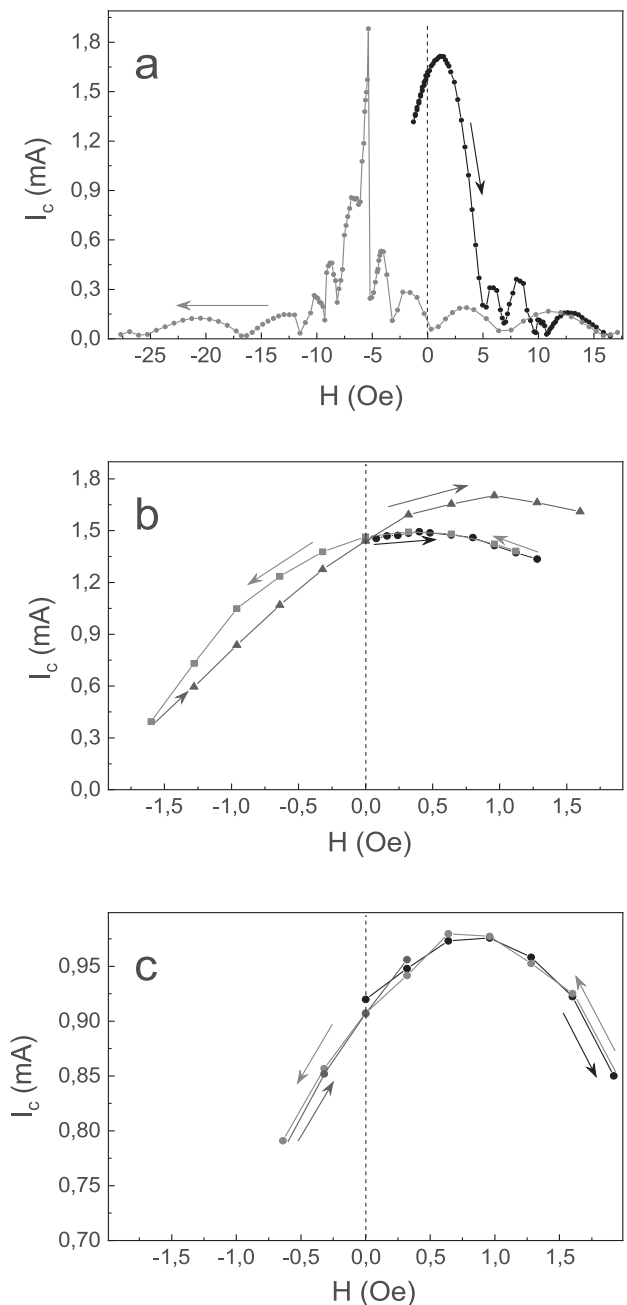
такта Джозефсона, составлял около 4 мкм. На последнем этапе проводилось осаждение сверхпроводящего замыкания (wiring) с последующей взрывной фотолитографией. На данном этапе формировались контактные площадки, а также их подключение к образцу.

Измерения проводились в заливном криостате  $^4\text{He}$  с использованием пиковольтметра на основе СКВИДа. Конструкция криостата и криогенных вставок допускала измерения при температуре  $T < 4.2$  К путем откачки паров гелия, а также работу при  $T > 4.2$  К, предполагающую размещение образца в вакуумированном объеме, изменение температуры с помощью резистивного нагревателя и ее контроль с помощью калиброванного термометра. Экранировка магнитного поля Земли и паразитных внешних сигналов при охлаждении и исследовании образца проводилась системой магнитных экранов, включающих внешний экран из пермаллоя марки 81НМА, защищающий криостат в целом; внутренний трехслойный экран из криопермаллоя, защищающий внутреннюю оснастку криостата; сверхпроводящий ниобиевый экран, защищающий непосредственно держатель образца. Магнитное поле прикладывалось параллельно плоскости слоев вдоль одной из сторон SFS-мезы с использованием сверхпроводящего соленоида, размещенного внутри ниобиевого экрана.

Измерения вольт-амперных характеристик проводились по 4-точечной схеме с использованием СКВИД-пиковольтметра фирмы JeSEFF. Ток задавался при помощи дистанционно управляемых источников Keithley 224 через систему фильтров с целью снижения уровня вносимых шумов. При измерениях напряжения на СКВИД-усилителе использовался цифровой вольтметр Keithley 182. Коэффициент усиления составлял  $10^6$ – $10^8$  и определялся путем наблюдения ступеней Шапиро на контрольном образце. Полевая зависимость критического тока измерялась так называемым методом отсечки: для каждого значения приложенного магнитного поля измерялась вольт-амперная характеристика, причем величина критического тока фиксировалась при превышении заранее установленного «напряжения отсечки» («threshold»). Напряжение отсечки подбиралось эмпирически (см. вставку на рис. 2): эта величина должна заметно превышать уровень шумов измерительного оборудования, чтобы исключить ошибочные считывания; но она должна быть достаточно малой, чтобы обеспечить измерение критического тока с относительной ошибкой не более 5%. При изучении температурных зависимостей критической плотности тока  $j_c$  для каждой выбранной температуры проводилась серия измерений полевых зависимостей критического тока  $I_c(H)$ , поскольку простого измерения вольт-амперных характеристик было недостаточно (см. обсуждение ниже). Температура стабилизировалась с помощью мембранного маностата Шаврина при  $T < 4.2$  К, а при  $T > 4.2$  К — при помощи нагревателя с обратной связью по температуре. Точность стабилизации температуры была не хуже 0.05 К в течение одного измерения.

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТ И ОБСУЖДЕНИЕ

Основной задачей эксперимента является измерение зависимости критической плотности тока  $j_c$  от толщины ферромагнетика  $d_F$  и температуры. Однако само измерение  $j_c$  связано с определенными сложностями при использовании в качестве джозефсоновского барьера сплавов PdFe, поскольку последние обладают планарной (in-plane) магнитной анизотропией и способны создавать магнитный поток через SFS-сэндвич. Это свойство является основой метода джозефсоновской магнитометрии [7] (absolute fluxometry [25]), а также применения таких контактов в качестве джозефсоновской магнитной памяти [7–9]. Проблема состоит в том, что в ходе



**Рис. 3.** Примеры зависимостей критического тока  $I_c$  от приложенного магнитного поля  $H$ , используемых для определения критической плотности тока  $j_c$  по методу «больших» (a) и «малых» (b, c) полей (см. обсуждение в тексте). На всех панелях черными точками показаны полевые зависимости критического тока, полученные после охлаждения образца в нулевом магнитном поле; красными точками — «продолжения» черных кривых, полученные после изменения направления развертки  $H$ . Синими точками на панелях b, c показаны «продолжения» красных кривых, полученные после повторного изменения направления развертки. Температура эксперимента 4.2 К (a, b) и 1.22 К (c)



транспортных экспериментов измеряется критический ток  $I_c$ , представляющий собой интегральную функцию от магнитной индукции  $\mathbf{B}(x, y)$  в джозефсоновском барьере вида

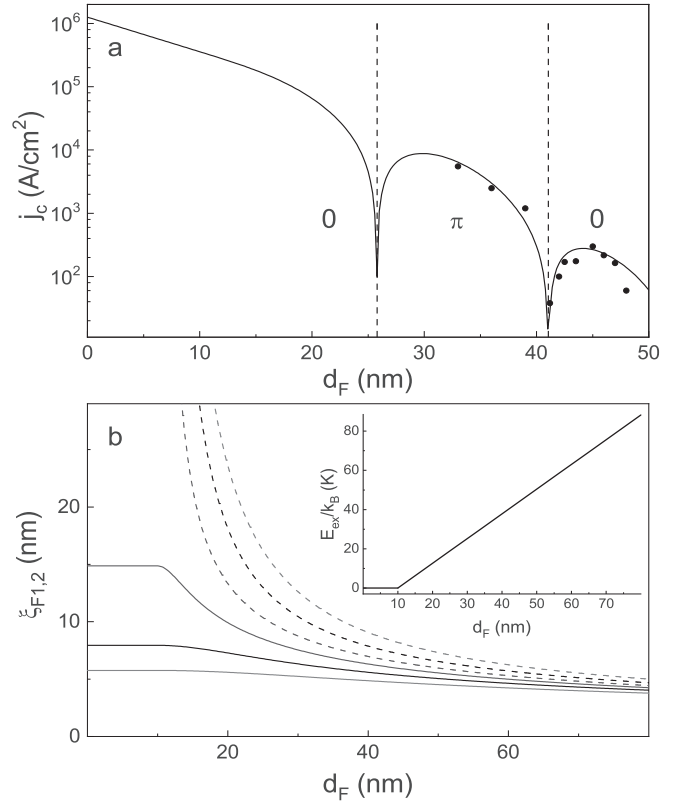
$$I_c = \max_{\phi_0} \int_S j_c(d_F, T) \sin \left( \frac{2\pi\Phi(x, y)}{\Phi_0} + \phi_0 \right) dx dy,$$

где  $\Phi_0$  — квант магнитного потока, а поток  $\Phi(x, y)$  выражается как

$$\Phi(x, y) = \int_0^x B_y(x, y) d_m dx - \int_0^y B_x(x, y) d_m dy,$$

где  $d_m = 2\lambda + d_F$  — магнитная длина,  $\lambda$  — лондоновская длина,  $\phi_0$  — разность фаз в начале координат. Пространственное распределение магнитной индукции  $\mathbf{B}(x, y)$  в джозефсоновском барьере (включая пространственное распределение намагниченности  $\mathbf{M}(x, y)$ ) заранее неизвестно и может зависеть от размеров мезы и магнитной предыстории образца. В этом смысле более удобным материалом являются сплавы  $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x$ , обладающие мелкодоменной магнитной структурой с вертикальной (out-of-plane) магнитной анизотропией [26]. При использовании таких сплавов намагниченности доменов и поля рассеяния хорошо усредняются и не создают заметного магнитного потока через SFS-сэндвич. Последнее подтверждается наблюдением фраунгоферовой полевой зависимости критического тока, не зависящей от магнитной предыстории [16, 18]. Аналогичным свойством обладают контакты Джозефсона на основе сплава  $\text{PdNi}$  [17]. Это дает возможность определить значение  $j_c$  как отношение критического тока при  $H = 0$  (определенное по вольт-амперной характеристике) к площади мезы. Использование сплавов  $\text{PdFe}$  требует более сложной процедуры исследований.

Каждый эксперимент начинался с охлаждения образца в нулевом магнитном поле с последующим измерением полевой зависимости критического тока в пределах одного кванта магнитного потока  $\Phi_0$ . Пределы измерения по магнитному полю варьировались в пределах до 3 Э в зависимости от температуры эксперимента или толщины F-слоя (см. рис. 3 *b, c*). При таком изменении магнитного поля наблюдался незначительный магнитный гистерезис, не мешающий, однако, определению максимального значения  $I_c$ . Критическая плотность тока определяется как отношение максимального значения критического тока к площади контакта. Маг-



**Рис. 4.** *a* — Зависимость критической плотности тока образцов от толщины слоя  $\text{Pd}_{0.99}\text{Fe}_{0.01}$  (черные точки). Черной линией показана аппроксимация в соответствии с уравнениями (3) и (4). Символами «0» и « $\pi$ » отмечены области 0- и  $\pi$ -состояний для расчетной кривой. Температура эксперимента 4.2 K. *b* — Рассчитанные в соответствии с уравнением (3) зависимости  $\xi_{F1}(d_F)$  (сплошные линии) и  $\xi_{F2}(d_F)$  (штриховые линии) для трех температур: 1.2 K (синие), 4.2 K (черные), 8.0 K (красные). На вставке приведен график, соответствующий уравнению (2)

нитное поле изменялось в положительном и отрицательном направлениях, что позволяло размагнитить джозефсоновский барьер перед следующим измерением. Предварительно было проверено, что при охлаждении образца магнитная структура образца является разупорядоченной: форма полевой зависимости критического тока близка к фраунгоферовой, а максимум имеет место в окрестности  $H = 0$  (см. черную кривую на рис. 3 *a*).

Альтернативным методом является измерение зависимости  $I_c(H)$  в широких пределах, заведомо превышающих поле насыщения F-слоя (см. красную кривую на рис. 3 *a*). Из-за большой трудоемкости и длительности проводимых экспериментов этот метод использовался только для некоторых образцов с целью дополнительного подтверждения обнаружен-

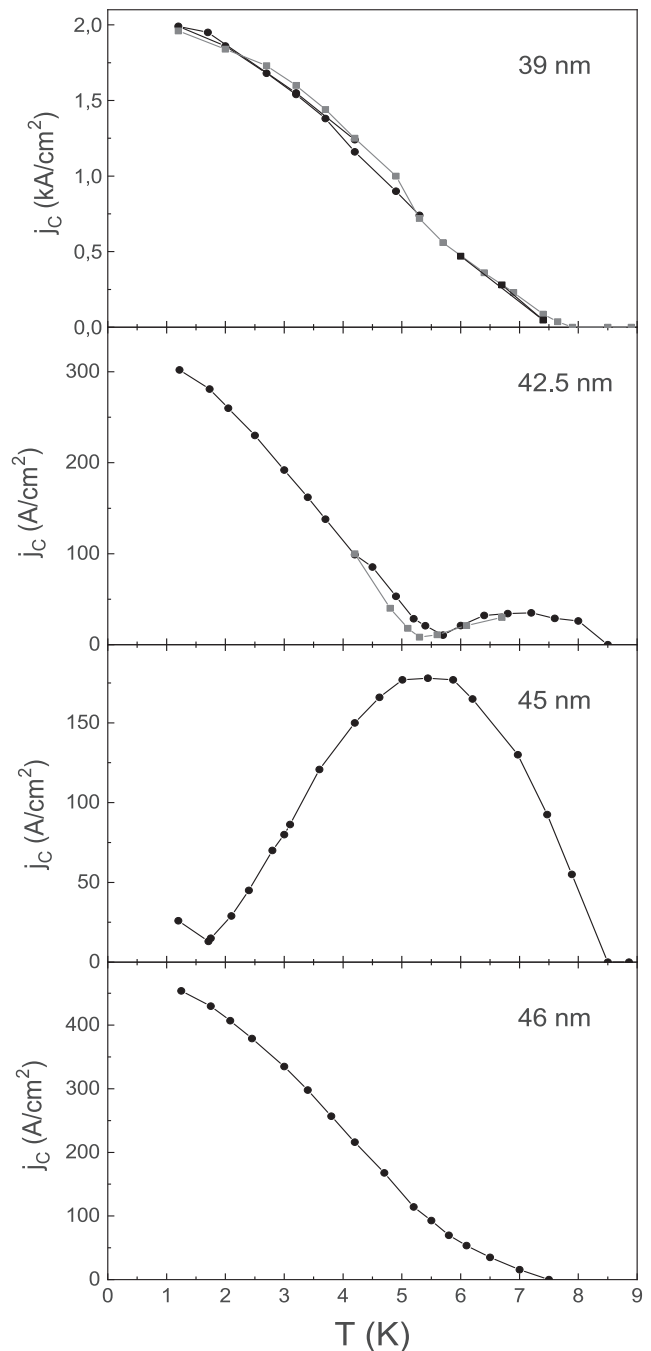
ных эффектов. Длительность эксперимента сильно возрастала в случае невозпроизводимого изменения формы полевой характеристики в ходе измерения, которое обычно интерпретируется как вхождение вихря Абрикосова в один или несколько электродов контакта [27–32]. В этом случае образец отогревался и эксперимент начинался заново. Оба использованных метода дают близкие результаты (см. рис. 5), что говорит о достаточно надежном определении критической плотности тока в проведенных экспериментах.

Образование джозефсоновских вихрей (точнее, наблюдение эффектов «длинного джозефсоновского контакта» [33]) маловероятно для большинства исследованных образцов. Действительно, контакт Джозефсона можно считать «длинным», если размер мезы  $L$  достаточно велик по сравнению с характерной джозефсоновской длиной  $\lambda_J = (\Phi_0/2\pi\mu_0 j_c d_m)^{1/2}$ , где  $\mu_0$  — магнитная проницаемость вакуума и  $\lambda = 80$  нм для сверхпроводящих электродов [34]. Как минимум, должно выполняться условие  $L/2\lambda_J > 1$ , что для квадратного контакта сводится к ограничению на минимальный критический ток:

$$I_c > \frac{2\Phi_0}{\pi\mu_0 d_m} = I_0. \quad (1)$$

Здесь  $I_0 = 5$  мА для выбранной конструкции образца. Поскольку условие (1) для большинства исследованных контактов не выполняется при всех температурах эксперимента, они могут считаться «короткими».

На рис. 4 а представлена зависимость  $j_c(d_F)$  в диапазоне толщин 30–50 нм. В целом, критическая плотность тока экспоненциально убывает при увеличении  $d_F$ , однако в окрестности толщины 43 нм наблюдается возвратное поведение экспериментальной кривой, что является одним из признаков перехода между 0- и  $\pi$ -состояниями. Температурные зависимости  $j_c(T)$  для образцов с  $42 \text{ нм} < d_{\text{PdFe}} < 45 \text{ нм}$  также являются возвратными (см. рис. 5), хотя критический ток для остальных образцов монотонно возрастает с понижением температуры. Этот эффект связан с температурной зависимостью периода осцилляций сверхпроводящего параметра порядка и является дополнительным признаком изменения знака ток-фазового соотношения, как было указано выше (см. также [5, 16, 18, 35]). Возвратная температурная зависимость критического тока наблюдается при использовании обоих методов измерения критической плотности тока, описанных выше (ср. черные и красные экспериментальные точки на рис. 5).



**Рис. 5.** Зависимость критической плотности тока образцов от температуры для разных толщин слоя  $\text{Pd}_{0.99}\text{Fe}_{0.01}$ . Черные точки определены в малых полях (см. рис. 3 б, в). Красные точки — в больших полях (см. красную кривую на рис. 3 а)

В настоящее время невозможно определенно указать направление 0– $\pi$ -перехода, т. е. знак ток-фазового соотношения при толщинах меньших 42 нм и больших 45 нм. Для этого необходимо

расширить исследуемый диапазон толщин с целью обнаружения второго 0– $\pi$ -перехода и определения периода осцилляций сверхпроводящего параметра порядка [16]. Однако это связано с определенными технологическими и принципиальными трудностями. В частности, для исследования толщин менее 35 нм требуется уменьшение размеров контактов до 2–5 мкм с целью ограничения величины измеряемых критических токов при экспоненциальном росте  $j_c$ . Это тем более важно, поскольку большой ток смещения способен влиять на магнитное состояние барьера (посредством создаваемого магнитного поля) и измеряемый критический ток [8]. Изготовление образцов малых размеров, в свою очередь, требует использования продвинутых методов литографии и последующей обработки осажденных слоев. Экспоненциальное падение критической плотности тока при исследовании диапазона  $d_F > 45$  нм требует увеличения размеров мезы свыше 10 мкм, однако при этом нарушается магнитная однородность образца [7]. Перспективным методом является прямое измерение ток-фазового соотношения образцов в окрестности 0– $\pi$ -перехода [5, 35].

Некоторые предположения о направлении 0– $\pi$ -перехода могут быть сделаны при помощи численных расчетов на основе данных, представленных в работе [36]. В ней была исследована зависимость критической температуры FS-бислоев  $\text{Pd}_{0.99}\text{Fe}_{0.01}\text{-Nb}$  при изменении  $d_F$  в диапазоне до 75 нм. При аппроксимации экспериментальной кривой было показано, что эффективная энергия обменного взаимодействия возрастает с ростом  $d_F$  по линейному закону,

$$E_{ex}(d_F)/k_B = \alpha(d_F - d_0), d_F > d_0, \quad (2)$$

с коэффициентом нарастания  $\alpha = 1.26$  К/нм и пороговой толщиной  $d_0 = 10$  нм (см. вставку к рис. 4 б). Длины когерентности  $\xi_{F1,2}$  в F-слое можно рассчитать [18] как

$$\xi_{F1,2} = \xi_F^* \sqrt{\frac{2\pi k_B T_c}{\sqrt{(\pi k_B T)^2 + E_{ex}^2} \pm \pi k_B T}}, \quad (3)$$

где  $T = 4.2$  К — температура эксперимента и  $\xi_F^* = \sqrt{\hbar D_F / 2\pi k_B T_c} = 5.6$  нм — характеристическая длина в  $\text{Pd}_{0.99}\text{Fe}_{0.01}$ , выступающая в качестве подгоночного параметра. Получившиеся зависимости  $\xi_{F1,2}(d_F)$  приведены на рис. 4 б для трех температур, соответствующих (приблизленно) середине и краям экспериментально доступного температурно-

го диапазона. При подстановке полученных значений в выражение для  $j_c(d_F)$  [16],

$$j_c = j_0 \exp\left(-\frac{d_{F1}}{\xi_{F1}}\right) \left[ \cos \frac{d_F}{\xi_{F2}} + \frac{\xi_{F1}}{\xi_{F2}} \sin \frac{d_F}{\xi_{F2}} \right], \quad (4)$$

получается черная кривая на рис. 4 а. Видно, что теория предсказывает второй порядковый номер обнаруженного 0– $\pi$ -перехода, тогда как первый должен наблюдаться при  $d_F \approx 26$  нм. Предположения о первом или третьем порядковом номере 0– $\pi$ -перехода при  $d_F = 42$  нм либо дают нереалистичные значения подгоночных параметров, либо не согласуются с экспериментальными данными. Проверка сделанного предсказания будет предметом наших дальнейших исследований.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в настоящей работе проведено исследование многослойных контактов Джозефсона сверхпроводник–ферромагнетик–сверхпроводник на основе сверхпроводящего ниобия и слабоферромагнитного сплава  $\text{Pd}_{0.99}\text{Fe}_{0.01}$ . Обнаружена возвратная зависимость критической плотности тока от толщины слоя  $\text{Pd}_{0.99}\text{Fe}_{0.01}$  при толщинах около 43 нм, что является одним из признаков реализации  $\pi$ -состояния с отрицательным знаком ток-фазового соотношения. Данный эффект подтвержден наблюдением возвратной температурной зависимости критического тока при данных толщинах. Численные оценки предсказывают второй порядковый номер 0– $\pi$ -перехода, т. е. перехода из  $\pi$ - в 0-состояние с ростом толщины ферромагнетика.

**Благодарности.** Авторы выражают благодарность В. Н. Шилову, Н. С. Степакову и Д. С. Собанину за помощь при изготовлении образцов и проведении экспериментов.

**Финансирование.** Работа выполнена в рамках государственного задания Института физики твердого тела им. Ю. А. Осипьяна Российской академии наук.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. A. A. Golubov, M. Yu. Kupriyanov and E. Il'ichev, *The Current-Phase Relation in Josephson Junctions*, Rev. Mod. Phys. **76**, 411 (2004).
2. A. V. Ustinov, and V. K. Kaplunenko, *Rapid Single-Flux Quantum Logic Using  $\pi$ -Shifters*, J. Appl. Phys. **94**, 5405 (2003).

3. M. I. Khabipov, D. V. Balashov, F. Maibaum et al., *A Single Flux Quantum Circuit With a Ferromagnet-Based Josephson  $\pi$ -Junction*, Supercond. Sci. Technol. **23**, 045032 (2010).
4. A. Buzdin and A. E. Koshelev, *Periodic Alternating 0- and  $\pi$ -Junction Structures as Realization of  $\varphi$ -Josephson Junctions*, Phys. Rev. B **67**, 220504(R) (2003).
5. M. J. A. Stoutimore, A. N. Rossolenko, V. V. Bol'ginov et al., *Second-Harmonic Current-Phase Relation in Josephson Junctions With Ferromagnetic Barriers*, Phys. Rev. Lett. **121**, 177702 (2018).
6. А. А. Максимовская, В. И. Ружицкий, Н. В. Кленов и др., *Фазовая логика на основе джозефсоновских  $\pi$ -контактов*, Письма в ЖЭТФ **115**, 786 (2022) [A. A. Maksimovskaya, V. I. Ruzhickiy, N. V. Klenov et al., *Phase Logic Based on  $\pi$  Josephson Junctions*, JETP Lett. **115**, 735 (2022)].
7. В. В. Больгинов, В. С. Столяров, Д. С. Собанин и др., *Магнитные переключатели на основе джозефсоновских переходов Nb-PdFe-Nb с магнитомягкой ферромагнитной прослойкой*, Письма в ЖЭТФ **95**, 408 (2012).
8. T. I. Larkin, V. V. Bol'ginov, V. S. Stolyarov et al., *Ferromagnetic Josephson Switching Device with High Characteristic Voltage*, Appl. Phys. Lett. **100**, 222601 (2012).
9. L. N. Karelina, R. A. Hovhannisyan, I. A. Golovchanskiy et al., *Scalable Memory Elements Based on Rectangular SIFS Junctions*, J. Appl. Phys. **130**, 173901 (2021).
10. D. S. Holmes, A. L. Ripple, and M. A. Manheimer *Energy-Efficient Superconducting Computing — Power Budgets and Requirements*, IEEE Trans. Appl. Supercond. **23**, 1701610 (2013).
11. А. И. Ларкин, Ю. Н. Овчинников, *Неоднородное состояние сверхпроводников*, ЖЭТФ **47**, 1136 (1964).
12. P. Fulde and R. A. Ferrel, *Superconductivity in a Strong Spin-Exchange Field*, Phys. Rev. **135**, A550 (1964).
13. E. A. Demler, G. B. Arnold, and M. R. Beasley, *Superconducting Proximity Effects in Magnetic Metals*, Phys. Rev. B **55**, 15174 (1997).
14. А. И. Буздин, Л. Н. Булаевский, С. В. Панюков, *Осцилляции критического тока в зависимости от обменного поля и толщины ферромагнитного металла ( $F$ ) в джозефсоновском контакте S-F-S*, Письма в ЖЭТФ **35**, 147 (1982).
15. А. И. Буздин, Б. Вуйчич, М. Ю. Куприянов, *Структуры ферромагнетик-сверхпроводник*, ЖЭТФ **101**, 231 (1992).
16. V. A. Oboznov, V. V. Bol'ginov, A. K. Feofanov et al., *Thickness Dependence of the Josephson Ground States of Superconductor-Ferromagnet-Superconductor Junctions*, Phys. Rev. Lett. **96**, 197003 (2006).
17. T. Kontos, M. Aprili, J. Lesueur et al., *Josephson Junction through a Thin Ferromagnetic Layer: Negative Coupling*, Phys. Rev. Lett. **89**, 137007 (2002).
18. V. V. Ryazanov, V. A. Oboznov, A. Yu. Rusanov et al., *Coupling of Two Superconductors Through a Ferromagnet: Evidence for a  $\pi$  Junction*, Phys. Rev. Lett. **86**, 2427 (2001).
19. H. Sellier, C. Baraduc, F. Lefloch et al., *Temperature-induced crossover between 0 and  $\pi$  states in S/F/S junctions*, Phys. Rev. B **68**, 054531 (2003).
20. V. Zdravkov, A. Sidorenko, G. Obermeier et al., *Re-Entrant Superconductivity in Nb/Cu<sub>1-x</sub>Ni<sub>x</sub> Bilayers*, Phys. Rev. Lett. **97**, 057004 (2006).
21. И. Я. Коренблит, Е. Ф. Шендер, *Ферромагнетизм неупорядоченных систем*, УФН **126**, 233 (1978).
22. M. Yu. Kupriyanov, A. A. Golubov, and M. Siegel, *Josephson Junctions with Ferromagnetic Materials*, Proc. SPIE **6260**, 62600S (2006).
23. Л. Н. Карелина, Н. С. Шуравин, С. В. Егоров и др., *Магнитные переключения FSF-мостиков при низких температурах*, Письма в ЖЭТФ **119**, 616 (2024).
24. А. С. Ионин, Н. С. Шуравин, Л. Н. Карелина и др., *Экспериментальное исследование прототипа сверхпроводящего сигма-нейрона для адиабатических нейронных сетей*, ЖЭТФ **164**, 1008 (2023).
25. O. M. Kapran, A. Iovan, T. Golod et al., *Observation of the Dominant Spin-Triplet Supercurrent in Josephson Spin Valves with Strong Ni Ferromagnets*, Phys. Rev. Res. **2**, 013167 (2020).
26. И. С. Вещунов, В. А. Обознов, А. Н. Россоленко и др., *Наблюдение структуры магнитной области в тонких пленках Cu<sub>0.47</sub>Ni<sub>0.53</sub> при низких температурах*, Письма в ЖЭТФ **88**, 791 (2008) [I. S. Veshchunov, V. A. Oboznov, A. N. Rossolenko et al., *Observation of the Magnetic Domain Structure in Cu<sub>0.47</sub>Ni<sub>0.53</sub> Thin Films at Low Temperatures*, JETP Lett. **88**, 758 (2008)].

27. S. L. Miller, K. R. Biagi, J. R. Clem et al., *Critical Currents of Cross-Type Superconducting-Normal-Superconducting Junctions in Perpendicular Magnetic Fields*, Phys. Rev. B **31**, 2684 (1985).
28. О. В. Hyun, J. R. Clem, and D. K. Finnemore, *Motion of a Single Superconducting Vortex*, Phys. Rev. B **40**, 175 (1989).
29. А. А. Голубов, М. Ю. Куприянов, *Влияние одиночных абрикосовских вихрей на свойства туннельных джозефсоновских переходов*, ЖЭТФ **92**, 1512 (1987).
30. А. А. Golubov and M. Yu. Kupriyanov, *Theoretical Investigation of Josephson Tunnel Junctions with Spatially Inhomogeneous Superconducting Electrodes*, J. Low Temp. Phys. **70**, 83 (1988).
31. В. Н. Губанков, Ф. Н. Склокин, Л. С. Кузьмин и др., *Изменение структуры абрикосовских вихрей в сверхпроводящих пленках джозефсоновского туннельного под действием  $\gamma$ -облучения*, Письма в ЖТФ **15**, 54 (1989).
32. T. Golod, A. Rydh, and V. M. Krasnov, *Detection of the Phase Shift From a Single Abrikosov Vortex*, Phys. Rev. Lett. **104**, 227003 (2010).
33. А. Бароне, Дж. Паттерно, *Эффект Джозефсона*, Мир, Москва (1984).
34. A. Gubin, K. P'in, S. Vitusevich et al., *Dependence of Magnetic Penetration Depth on the Thickness of Superconducting Nb Thin Films*, Phys. Rev. B **72**, 064503 (2005).
35. S. M. Frolov, D. J. Van Harlingen, V. A. Oboznov et al., *Measurement of the Current-Phase Relation of Superconductor/Ferromagnet/Superconductor  $\pi$  Josephson Junctions*, Phys. Rev. B **70**, 144505 (2004).
36. Л. Н. Карелина, Н. С. Шуравин, А. С. Ионин и др., *Эффект магнитной памяти в планарных микромостиках ферромагнетик/сверхпроводник/ферромагнетик на основе сильно разбавленного сплава PdFe*, Письма в ЖЭТФ **116**, 108 (2022).



# РОЛЬ МАГНИТОУПРУГИХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ В СПЛАВЕ FeRh ПРИ АНТИФЕРРО-ФЕРРОМАГНИТНОМ ФАЗОВОМ ПЕРЕХОДЕ

И. С. Козвонин<sup>а</sup>, А. А. Терещенко<sup>а</sup>, А. С. Овчинников<sup>а,б\*</sup>, Н. В. Баранов<sup>б</sup>, Э. З. Валиев<sup>б</sup>

<sup>а</sup> Институт естественных наук и математики Уральского федерального университета  
620083, Екатеринбург, Россия

<sup>б</sup> Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук  
620219, Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 5 июня 2024 г.,  
после переработки 16 августа 2024 г.  
Принята к публикации 20 августа 2024 г.

Для объяснения особенностей магнитных фазовых переходов в сплаве FeRh предложена эффективная теория среднего поля, учитывающая взаимодействие упругих и магнитных степеней свободы. Параметром порядка теории наряду с намагниченностями подрешеток атомов железа и средних значений деформаций всестороннего сжатия и одноосного растяжения выступает также внутреннее магнитное поле, вызывающее появление ненулевой намагниченности атомов родия при антиферро-ферромагнитном фазовом переходе. В рамках этой теории удается рассчитать температурные зависимости полной намагниченности и относительного изменения объема, согласующиеся с экспериментальными данными, и показать, что антиферро-ферромагнитный переход является фазовым переходом первого рода. Выбор констант обменного взаимодействия, согласующийся с расчетами *ab initio* электронной структуры, позволяет выявить ведущий механизм этого перехода — перенормировку обменного взаимодействия между ближайшими соседями подсистемы атомов железа, возникающей при учете двухионного магнитоупругого взаимодействия. Показано, что тепловое возбуждение спиновых волн способствует усилению одноосных деформаций, понижающих кубическую симметрию решетки до тетрагональной.

DOI: 10.31857/S004445102412006X

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Объяснение магнитных свойств сплава FeRh остается задачей-вызовом на протяжении многих десятков лет, несмотря на внешне простой характер магнитных переходов, наблюдаемых в этом соединении. Так, в упорядоченном сплаве FeRh при повышении температуры наблюдается фазовый переход первого рода от антиферромагнитной (АФМ) фазы к ферромагнитной (ФМ) фазе [1, 2]. Этот переход происходит при температуре  $T_0$ , варьирующейся в диапазоне от комнатных температур примерно до 400 К. Температура перехода сильно зависит от состава и присутствия дефектов кристаллической структуры [3]. Фазовый переход сопровождается увеличением объема приблизительно на 1%,

а объемно-центрированная кристаллическая структура CsCl-типа не изменяется [4, 5]. Однако некоторые теоретические вычисления показывают, что орторомбические или тетрагональные искажения в АФМ-фазе вносят вклад в ее стабилизацию [6]. Что касается поведения намагниченности, то еще ранние нейтрон-дифракционные эксперименты установили, что в АФМ-фазе только атомы железа имеют магнитный момент  $\mu_{\text{Fe}} \approx 3.2\mu_B$  ( $\mu_{\text{Rh}} = 0$ ), тогда как при температурах выше  $T_0$  появляется магнитный момент на атомах родия  $\mu_{\text{Rh}} \sim 1\mu_B$ , но при этом  $\mu_{\text{Fe}}$  меняется слабо [7, 8]. Кроме того, при АФМ–ФМ-переходе наблюдаются anomalously большие изменения магнитной энтропии [9, 10], электросопротивления [11] и вынужденной объемной магнитострикции [12]. Детальное изложение основных исследований магнитных и магнитокалорических свойств сплавов FeRh содержится в обзоре [13]. Все эти факты в совокупности делают FeRh

\* E-mail: alexander.ovchinnikov@urfu.ru

перспективным материалом для использования в запоминающих устройствах будущего поколения, в системах магнитного охлаждения и в магнитоstrictionных устройствах, несмотря на малую распространенность и высокую стоимость родия.

Для объяснения природы АФМ–ФМ-перехода был предложен ряд механизмов, в частности, модель Киттеля с инверсией знака обменного взаимодействия между атомами железа [14] и обменно-стрикционная модель ферромагнетиков [15, 16]. В настоящее время имеется несколько теоретических работ, содержащих результаты *ab initio*-вычисления электронной структуры соединения FeRh [17, 18]. Однако следует признать, что до сих пор нет единого мнения о причине этого фазового перехода.

Одной из открытых проблем теории АФМ–ФМ-перехода является объяснение отсутствия магнитного момента на атомах родия при низких температурах. Расчеты *ab initio* дают достаточно большую величину для ферромагнитного Fe–Rh обмена [19], что должно было бы приводить к стабилизации ФМ-фазы при низких температурах. Для объяснения этой аномалии в работе [20] было высказано предположение о погружении *4d*-зоны электронов Rh, незначительно расщепленной обменным взаимодействием, под уровень Ферми на глубину, обеспечивающую ее полное заполнение при температуре  $T = 0$  К, что объясняет компенсацию спинов *4d*-электронов в низкотемпературной АФМ-фазе. Возникновение ненулевого магнитного момента авторами работы связывалось с тепловым размытием уровня Ферми и появлением дырок в *4d*-зоне при отсутствии искажений атомной структуры. Последнее допущение обосновывалось экспериментальными данными по фемтосекундной оптике [21, 22], указывающими на то, что изменения в спиновой структуре опережают изменения в атомной структуре.

На наш взгляд, вне зависимости от того, что является триггером появления ненулевой намагниченности в подсистеме атомов родия, такое исключение из рассмотрения структурных переходов не позволяет получить согласованное описание АФМ–ФМ-перехода. Накопленные к настоящему времени данные по изучению магнитоупорядоченных ОЦК-сплавов с замещением Fe(RhM), где M=Fe, Co, Ni, Pd, Ir, Pt [23], Fe(RhPd) [24], FeRhCr (с замещениями хромом как железа, так и родия) [25] и (Fe,Ru)Rh [26] убедительно свидетельствуют о тесной корреляции между температурой АФМ–ФМ-перехода, величиной  $\mu_{Ru}$  и параметрами кристаллической атомной решетки.

Целью данной работы является построение теории среднего поля, позволяющей эффективно учесть перестройку плотности спин-поляризованных состояний атомов Rh в точке АФМ–ФМ-перехода, связав ее с *изменением упругих деформаций*. В этом отношении наше рассмотрение представляет собой обобщение и развитие идей предыдущих исследований, использующих магнитоупругие взаимодействия для описания специфики АФМ–ФМ-перехода в сплаве FeRh [14–16]. Также в рамках нашего подхода приняты во внимание результаты расчетов *ab initio* электронной структуры FeRh, представленных в работе [19], согласно которым необходимо учитывать обменное взаимодействие между атомами железа вплоть до ближайших соседей из третьей координационной сферы. Упругие и магнитоупругие взаимодействия описываются в нашей модели, исходя из кубической симметрии кристалла FeRh, что позволяет определить структурные параметры порядка, связанные с деформацией всестороннего сжатия и одноосной деформацией, понижающей кубическую симметрию до тетрагональной. Главная особенность рассмотрения магнитных степеней свободы заключается в том, что температурное поведение намагниченности атомов родия считается известной заранее заданной функцией, а в рамках самосогласованной процедуры вычисляются сопряженное ей внутреннее поле и намагниченности двух подрешеток атомов железа. Такая формулировка соответствует статистической модели большого канонического ансамбля, в которой роль наблюдаемого среднего числа частиц играет намагниченность подсистемы атомов родия, а роль химического потенциала играет сопряженное ей внутреннее магнитное поле. Рост этого поля в точке  $T_0$  эффективно будет соответствовать перестройке плотности спин-поляризованных электронных состояний Rh на уровне Ферми, обеспечивающей появление ненулевого  $\mu_{Rh}$ .

В рамках этого описания удастся показать, что АФМ–ФМ-переход носит характер фазового перехода первого рода, при котором выше температуры  $T_0$  наряду со стабильной ФМ-фазой будут наблюдаться остатки АФМ-фазы. Представленная теория позволяет получить согласующиеся с экспериментальными данными температурные зависимости полной намагниченности и относительного изменения объема FeRh во всем температурном диапазоне. Она также вскрывает ведущий механизм АФМ–ФМ-перехода, связанный с магнитоупругим взаимодействием, учет которого приводит к температурной перенормировке эффективного обменного взаимодей-

ствия между ближайшими атомами железа. В результате последнее вносит вклад в стабилизацию АФМ-фазы при низких температурах, а вблизи  $T_0$  оно, резко уменьшаясь по величине и меняя свой знак, смещает баланс обменных взаимодействий в пользу ФМ-порядка. Наконец, наш анализ объясняет возникновение тетрагональных деформаций и, в частности, показывает, что тепловое возбуждение спиновых волн способствует их росту.

Статья организована следующим образом. В разд. 2 дана модель обменных, упругих и магнитоупругих взаимодействий сплава FeRh. В разд. 3 формулируется теория среднего поля для описания магнитных и структурных переходов этого соединения. Выбор параметров модели и особенности решений уравнений теории обсуждаются в разд. 4. В разд. 5 с помощью техники двухвременных функций Грина анализируются изменения равновесных деформаций атомной решетки, возникающие при учете спин-волновых флуктуаций. Заключение содержится в разд. 6.

## 2. МОДЕЛЬ

Для описания магнитоупругого взаимодействия в FeRh используем модельный гамильтониан

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_m + \mathcal{H}_{el} + \mathcal{H}_{me} + \mathcal{H}_T, \quad (1)$$

в котором магнитная часть

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_m = & -J_1 \sum_{\mathbf{n}, \delta_1} \mathbf{S}_{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{S}_{\mathbf{n}+\delta_1} - J_2 \sum_{\mathbf{n}, \delta_2} \mathbf{S}_{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{S}_{\mathbf{n}+\delta_2} - \\ & - J_3 \sum_{\mathbf{n}, \delta_3} \mathbf{S}_{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{S}_{\mathbf{n}+\delta_3} - J \sum_{\mathbf{n}, \delta} \mathbf{s}_{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{S}_{\mathbf{n}+\delta} \end{aligned} \quad (2)$$

описывает обменное магнитное взаимодействие между магнитными моментами атомов железа ( $\mathbf{S}_{\mathbf{n}}$ ) в трех координационных сферах наименьшего радиуса (рис. 1) и между магнитными моментами атомов ближайших соседей Fe и Rh ( $\mathbf{s}_{\mathbf{n}}$ ). Здесь  $\delta_i$  — вектор позиций атомов железа из  $i$ -й координационной сферы ( $i = 1, 2, 3$ ), а  $J_i$  — величина обменного взаимодействия между этими атомами и атомом железа, находящимся в центральном узле,  $J$  — константа обменного взаимодействия Fe–Rh.

Гамильтониан упругих деформаций кристалла кубической симметрии определяется выражением [27]

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{el} = & \frac{1}{2} c_{11} (u_{xx}^2 + u_{yy}^2 + u_{zz}^2) + \\ & + c_{12} (u_{xx} u_{yy} + u_{xx} u_{zz} + u_{yy} u_{zz}) + \\ & + 2c_{44} (u_{yz}^2 + u_{xz}^2 + u_{xy}^2), \end{aligned} \quad (3)$$

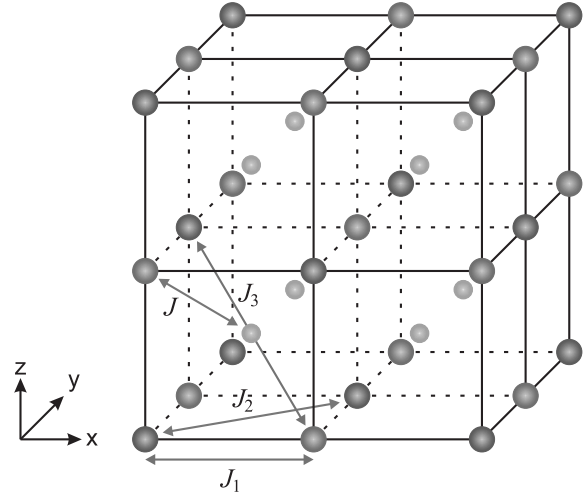


Рис. 1. Расширенная элементарная ячейка FeRh. Цветом показаны атомы железа первой подрешетки (красный), второй подрешетки (синий) и атомы родия (серый)

где  $u_{ij}$  — компоненты тензора деформаций, а  $c_{ij}$  — соответствующие коэффициенты упругости.

Магнитоупругое взаимодействие рассматривается в рамках двухионной модели, в которой его роль сводится к изменению обменного взаимодействия за счет появления упругих деформаций. Соответствующий вклад в гамильтониан для пары узлов ( $\mathbf{m}, \mathbf{n}$ ) имеет вид [28]

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{me}(\mathbf{m}, \mathbf{n}) = & -D_1 (u_{xx} + u_{yy} + u_{zz}) (\mathbf{S}_{\mathbf{m}} \cdot \mathbf{S}_{\mathbf{n}}) - \\ & - \frac{1}{4} D_2 \left[ (u_{xx} - u_{yy}) (\mathbf{S}_{\mathbf{m}}^x \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^x - \mathbf{S}_{\mathbf{m}}^y \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^y) + \right. \\ & \left. + \frac{1}{3} (2u_{zz} - u_{xx} - u_{yy}) (2\mathbf{S}_{\mathbf{m}}^z \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^z - \mathbf{S}_{\mathbf{m}}^x \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^x - \mathbf{S}_{\mathbf{m}}^y \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^y) \right] - \\ & - \frac{1}{2} D_3 [u_{xy} (\mathbf{S}_{\mathbf{m}}^x \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^y + \mathbf{S}_{\mathbf{m}}^y \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^x) + u_{yz} (\mathbf{S}_{\mathbf{m}}^y \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^z + \mathbf{S}_{\mathbf{m}}^z \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^y) + \\ & + u_{xz} (\mathbf{S}_{\mathbf{m}}^x \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^z + \mathbf{S}_{\mathbf{m}}^z \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^x)], \end{aligned} \quad (4)$$

где  $D_a$  ( $a = 1, 2, 3$ ) — коэффициенты магнитоупругого взаимодействия, соответствующие определенным базисным комбинациям спиновых операторов, допускаемых кубической симметрией.

Как показывают расчеты *ab initio* электронной структуры FeRh [19], наиболее чувствительным к изменениям межатомного расстояния оказывается обменное взаимодействие ближайших соседей атомов железа. Поэтому в нашей модели мы учтем магнитоупругие взаимодействия только для таких

пар магнитных моментов. Соответствующий вклад в полный гамильтониан (1) может быть представлен в виде

$$\mathcal{H}_{me} = \sum_{\mathbf{n}, \delta_1} \mathcal{H}_{me}(\mathbf{n}, \mathbf{n} + \delta_1). \quad (5)$$

Слагаемое  $\mathcal{H}_T$  учитывает деформацию кристалла, связанную с тепловым расширением, отличающуюся от деформации, вызванной магнитоупругим взаимодействием. Оно может быть выбрано в стандартной форме [29]

$$\mathcal{H}_T = -\alpha(T - T_0)(u_{xx} + u_{yy} + u_{zz}). \quad (6)$$

При этом предполагается, что тепловые деформации отсутствуют при температуре АФМ–ФМ-перехода  $T_0$ , в которой наблюдается скачок относительного изменения объема [5]. Последний в рамках нашей модели связывается исключительно с ролью магнитоупругого взаимодействия, тогда как  $\mathcal{H}_T$  явно зависит от коэффициента теплового расширения  $\alpha$ , определяемого ангармоническими вкладами в потенциальную энергию кристалла как функцию атомных смещений [30]. Как будет показано в наших расчетах, учет ангармонических эффектов важен при высоких температурах.

### 3. ТЕОРИЯ СРЕДНЕГО ПОЛЯ

Для описания магнитного АФМ–ФМ-перехода в FeRh рассмотрим вначале гамильтониан (1) в рамках приближения среднего поля, в котором роль параметров порядка играют намагниченности двух подрешеток атомов железа  $\langle S_{1,2}^z \rangle$ , намагниченность подрешетки атомов родия  $\langle s^z \rangle$ , а также равновесные деформации всестороннего сжатия  $\langle u_{xx} + u_{yy} + u_{zz} \rangle$  и одноосного растяжения  $\langle 2u_{zz} - u_{xx} - u_{yy} \rangle/3$ .

Для дальнейших расчетов удобно выбрать расширенную элементарную ячейку, содержащую по 4 спина двух подрешеток атомов железа и 8 спинов родия (рис. 1).

Тогда магнитная часть гамильтониана может быть представлена в виде

$$\mathcal{H}_m = NE_0^{(m)} - \sum_{i=1}^{4N} H_1^{(m)} S_{1i}^z - \sum_{i=1}^{4N} H_2^{(m)} S_{2i}^z - \sum_{i=1}^{8N} H_3^{(m)} s_i^z, \quad (7)$$

в котором  $N$  — число расширенных элементарных ячеек, а энергия основного состояния определяется выражением

$$E_0^{(m)} = 24J_1 \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle + 24J_2 (\langle S_1^z \rangle^2 + \langle S_2^z \rangle^2) +$$

$$+ 32J_3 \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle + 32J \langle s^z \rangle (\langle S_1^z \rangle + \langle S_2^z \rangle).$$

Оставшиеся слагаемые в гамильтониане (7) описывают локальные взаимодействия спинов первой и второй подрешеток атомов Fe,  $S_{1i}^z$  и  $S_{2i}^z$  соответственно, а также спинов атомов Rh,  $s_i^z$  с молекулярными полями

$$H_1^{(m)} = z_1 J_1 \langle S_2^z \rangle + z_2 J_2 \langle S_1^z \rangle + z_3 J_3 \langle S_2^z \rangle + 2z_4 J \langle s^z \rangle, \quad (8)$$

$$H_2^{(m)} = z_1 J_1 \langle S_1^z \rangle + z_2 J_2 \langle S_2^z \rangle + z_3 J_3 \langle S_1^z \rangle + 2z_4 J \langle s^z \rangle, \quad (9)$$

$$H_3^{(m)} = z_4 J (\langle S_1^z \rangle + \langle S_2^z \rangle). \quad (10)$$

Здесь

$$z_1 = 6, \quad z_2 = 12, \quad z_3 = 8, \quad z_4 = 4$$

представляют собой числа ближайших соседей соответствующих координационных сфер.

Магнитоупругая часть гамильтониана (1) в приближении среднего поля приобретает вид

$$\mathcal{H}_{me} = NE_0^{(me)} - \sum_{i=1}^{4N} H_1^{(me)} S_{1i}^z - \sum_{i=1}^{4N} H_2^{(me)} S_{2i}^z, \quad (11)$$

где

$$E_0^{(me)} = [24D_1(u_{xx} + u_{yy} + u_{zz}) + 4D_2(2u_{zz} - u_{xx} - u_{yy})] \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle.$$

Поправки к молекулярным полям содержат вклады деформаций всестороннего сжатия и одноосного растяжения

$$H_{1,2}^{(me)} = z_1 D_1(u_{xx} + u_{yy} + u_{zz}) \langle S_{2,1}^z \rangle + \frac{1}{6} z_1 D_2(2u_{zz} - u_{xx} - u_{yy}) \langle S_{2,1}^z \rangle. \quad (12)$$

С помощью стандартной процедуры можно получить выражение для свободной энергии решеточной и магнитной подсистем в расчете на объем расширенной элементарной ячейки  $V_0 = 8a^3$  ( $a$  — постоянная кубической решетки FeRh)

$$\begin{aligned} \mathcal{F} = & \frac{1}{2} c_{11} V_0 (u_{xx}^2 + u_{yy}^2 + u_{zz}^2) + \\ & + c_{12} V_0 (u_{xx} u_{yy} + u_{xx} u_{zz} + u_{yy} u_{zz}) + \\ & + 2c_{44} V_0 (u_{yz}^2 + u_{xz}^2 + u_{xy}^2) + \\ & + E_0^{(m)} + E_0^{(me)} - \alpha(T - T_0)(u_{xx} + u_{yy} + u_{zz}) - \\ & - \frac{4}{\beta} \sum_{\alpha=1,2} \ln \left\{ \frac{\text{sh} \left[ \beta (S + 1/2) (H_{\alpha}^{(m)} + H_{\alpha}^{(me)}) \right]}{\text{sh} \left[ \beta (H_{\alpha}^{(m)} + H_{\alpha}^{(me)}) / 2 \right]} \right\} - \\ & - \frac{8}{\beta} \ln \left\{ \frac{\text{sh} \left[ \beta (s + 1/2) H_3^{(m)} \right]}{\text{sh} \left[ \beta H_3^{(m)} / 2 \right]} \right\}, \quad (13) \end{aligned}$$

в котором  $\beta = 1/k_B T$ ,  $k_B$  — постоянная Больцмана.

Минимизация  $\mathcal{F}$  по спиновым параметрам порядка приводит к самосогласованным уравнениям

$$\langle S_{1,2}^z \rangle = S \mathcal{B}_S(x_{1,2}), \quad (14)$$

$$\langle s^z \rangle = s \mathcal{B}_s(x_3), \quad (15)$$

где аргументы функций Бриллюэна  $\mathcal{B}_S(\dots)$  и  $\mathcal{B}_s(\dots)$  определяются соответственно выражениями

$$x_{1,2} = \beta S \left( H_{1,2}^{(m)} + H_{1,2}^{(me)} \right), \quad (16)$$

$$x_3 = \beta S H_3^{(m)}. \quad (17)$$

Равновесные деформации всестороннего сжатия и одноосного растяжения определяются соотношениями

$$\begin{aligned} \langle u_{xx} + u_{yy} + u_{zz} \rangle = \\ = \frac{3[\alpha(T - T_0) + 24D_1 \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle]}{V_0(c_{11} + 2c_{12})}, \end{aligned} \quad (18)$$

$$\langle 2u_{zz} - u_{xx} - u_{yy} \rangle = \frac{24D_2 \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle}{V_0(c_{11} - c_{12})}. \quad (19)$$

Для численного решения самосогласованных уравнений выбрано  $S = 3/2$  для магнитных атомов Fe, и  $s = 1/2$  для атомов Rh. Коэффициенты упругости  $c_{11} = 218.7$  ГПа,  $c_{12} = 188.5$  ГПа и объем расширенной элементарной ячейки  $V_0 = 216 \text{ \AA}^3$  взяты из работы [31].

К сожалению, стандартное использование молекулярно-полевого подхода сталкивается с принципиальной трудностью. Если добиваться согласия с экспериментальными данными для температурных зависимостей полной намагниченности FeRh и относительного изменения объема, то оказывается, что решение для ферромагнитной фазы с ненулевой намагниченностью атомов Rh существует во всем температурном диапазоне ниже точки Кюри, и более того, оно является энергетически более выгодным, чем антиферромагнитная фаза, в которой атомы Rh находятся в немагнитном состоянии. Не исключено, что появление намагниченности в подсистеме атомов родия связано с возможной перестройкой спин-поляризованных состояний этих атомов, вызванное изменением упругих деформаций в точке АФМ–ФМ-перехода [20].

Чтобы учесть этот эффект в рамках феноменологического описания, можно перейти от свободной энергии (13), зависящей через молекулярные поля от намагниченностей атомов железа  $\langle S_{1,2}^z \rangle$  и родия  $\langle s^z \rangle$  к новому термодинамическому потенциалу  $\Phi(\langle S_1^z \rangle, \langle S_2^z \rangle, \mu)$ , в котором в качестве независимой переменной выступает параметр  $\mu$ , внутреннее

магнитное поле, роль которого аналогична роли химического потенциала в большом каноническом ансамбле. Значения  $\mu$  будут определяться заданным температурным поведением  $\langle s^z \rangle$ , согласующимся с экспериментом. Формально, указанный переход к  $\Phi$  достигается стандартной заменой (см. Приложение)

$$H_3^{(m)} \rightarrow H_3^{(m)} - \mu \quad (20)$$

в гамильтониане (7) и сопутствующими изменениями в выражениях (13) и (17). При этом уравнение состояния (15) следует рассматривать как неявное уравнение для определения поля  $\mu$ .

#### 4. ВЫБОР ОБМЕННЫХ ПАРАМЕТРОВ

Чтобы выполнить численный расчет, при котором температурное изменение намагниченности подрешетки родия считается известным, мы реализуем двухпроходную схему вычислений. На первом этапе мы определим температурную зависимость  $\langle s^z \rangle$  при  $\mu = 0$ , используя уравнения среднего поля (14), (15) и (18), (19) и добиваясь хорошего согласия с экспериментально наблюдаемыми температурными поведением полной намагниченности и относительного изменения объема  $\Delta V/V$  соединения FeRh. При этом оказывается, что при выборе обменных параметров, близких к расчетам *ab initio*, ферромагнитное решение существует во всем температурном диапазоне ниже точки Кюри  $T_c$  и всегда оказывается энергетически более выгодным в сравнении с антиферромагнитным решением. Поэтому для задания  $\langle s^z \rangle$  на втором этапе мы будем полагать, что намагниченность родия равна нулю ниже температуры АФМ–ФМ-перехода  $T_0$ , определяемой из эксперимента, и совпадает с расчетной намагниченностью  $\langle s^z \rangle$  первого прохода выше  $T_0$ .

Обсудим выбор модельных констант. Согласно расчетам *ab initio* [19], обменное взаимодействие каждого атома железа с его первым и третьим соседом в Fe-подсистеме оказывается отрицательным, что способствует установлению АФМ-порядка. При этом оказывается, что взаимодействие с третьим соседом слабо зависит от типа закладываемого в расчеты эталонного состояния (ФМ или АФМ), тогда как взаимодействие с первым соседом меняется от  $-8.0$  мЭВ для АФМ-состояния до значений вблизи нуля для ФМ-состояния. В нашей модели мы можем связать такое резкое изменение с перенормировкой обменного взаимодействия между ближайшими соседями за счет вклада магнитоупругого взаимодействия. В этом случае эффективное обменное взаимо-



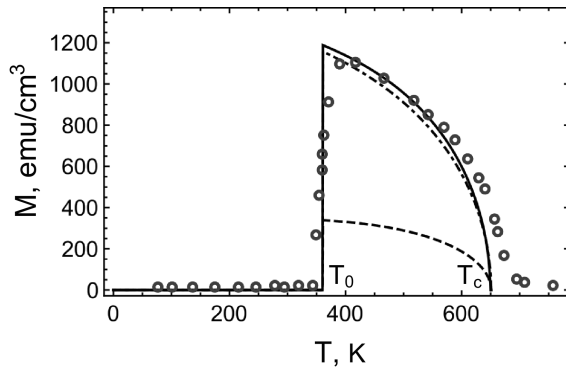


Рис. 2. Температурная зависимость намагниченности FeRh (штрихпунктирная линия — первый проход, сплошная линия — второй проход) и намагниченности атомов Rh в ФМ-фазе (штриховая линия). Для сравнения показаны экспериментальные данные (открытые синие кружки), взятые из работы [11]

действие между ближайшими соседями определяется выражением

$$\bar{J}_1 = J_1 + D_1 \langle u_{xx} + u_{yy} + u_{zz} \rangle + \frac{1}{6} D_2 \langle 2u_{zz} - u_{xx} - u_{yy} \rangle. \quad (21)$$

Тогда значение  $J_3$  можно выбрать из требования, чтобы оно совпадало со значением  $\bar{J}_1$  при  $T = 0$ , а соотношение между  $J_2$  и  $J_3$  было бы близко к значению, полученному в расчете *ab initio* ( $J_2/J_3 \sim -0.2$ ).

Для расчета намагниченности родия в первом проходе был сделан следующий выбор соотношений для модельных обменных и магнитоупругих констант:

$$J_1/J_3 = 0.29, \quad J_2/J_3 = -0.18, \\ D_1/J_3 = -36.83, \quad D_2/D_1 = 0.1,$$

связывающий эти величины с константой обменного взаимодействия атома железа с третьим ближайшим соседом, для которого было принято значение  $J_3 = -3.33 \cdot 10^{-22}$  Дж. Значение температуры АФМ–ФМ-перехода выбиралось равным  $T_0 = 360$  К. При оценке обменного взаимодействия Fe–Rh следует учесть, что согласно расчетам *ab initio* за стабилизацию АФМ-состояния отвечает только обменное взаимодействие Fe–Fe, тогда как ФМ-порядок может быть стабилизирован за счет достаточно сильного обменного взаимодействия между соседними атомами железа и родия, поскольку в этой фазе магнитные моменты Rh отличны от нуля. В наших расчетах взято  $J = -6.93 J_3$ , что обеспечивает температуру перехода в парамагнитное состояние  $T_c \approx 650$  К, близкую к наблюдаемой в экспериментах. Соответствующее поведение полной намагниченности

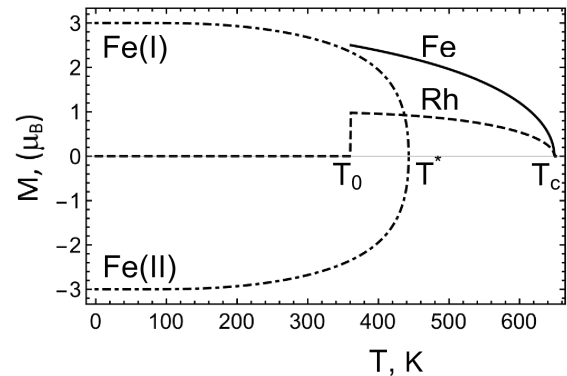


Рис. 3. Температурные зависимости намагниченностей атомов Fe(I) и Fe(II) в АФМ-фазе и атомов Fe и Rh в ФМ-фазе

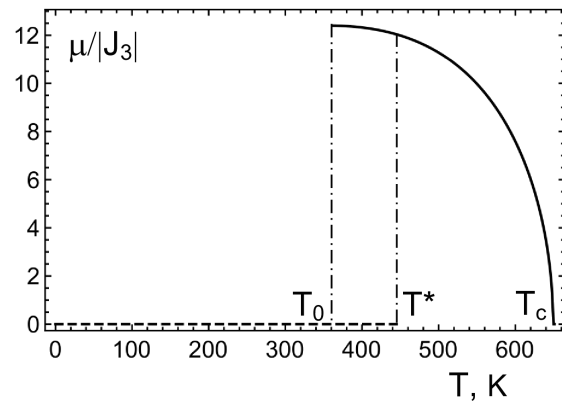


Рис. 4. Температурная зависимость поля  $\mu$  в АФМ-фазе (штриховая линия) и в ФМ-фазе (сплошная линия). Область АФМ–ФМ-переходов первого рода отмечена штрихпунктирными линиями

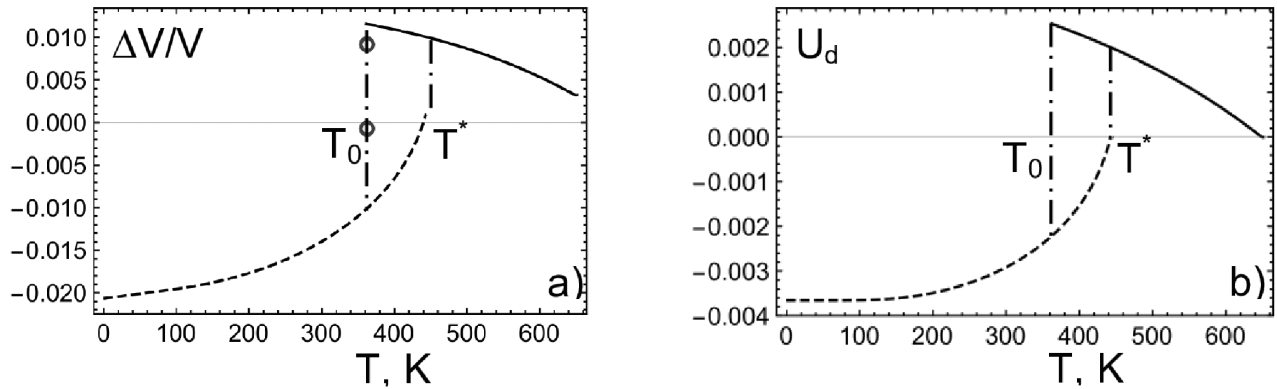
FeRh (рис. 2) демонстрирует скачок при  $T_0$  на величину, равную примерно 1200 ед. СГСМ/см³ близкую к экспериментально наблюдаемым значениям [11, 32–34]. На этом же рисунке представлена температурная зависимость намагниченности, связанной с атомами родия.

При втором проходе были немного изменены значения констант

$$J_1/J_3 = 0.31, \quad J/J_3 = -6.6, \quad D_1/J_3 = -31.93,$$

вместо 0.29, -6.93 и -36.83 первого этапа соответственно численное значение  $J_3$  было взято  $J_3 = -4.15 \cdot 10^{-22}$  Дж (вместо  $-3.33 \cdot 10^{-22}$  Дж ранее), а остальные параметры не менялись.

Температурное поведение намагниченностей подрешеток железа и родия представлено на рис. 3. При температуре ниже  $T_0$  единственно возможным является только АФМ-решение. В интервале тем-



**Рис. 5.** Температурные зависимости относительного изменения объема (а) и деформации одноосного расширения (б). Область АФМ–ФМ-переходов первого рода отмечена штрихпунктирными линиями. Для сравнения показан скачок относительного изменения объема (открытые синие кружки), полученный из экспериментальных данных работы [5] для постоянной решетки при температурах 363 и 364.5 К

ператур от  $T_0$  до  $T^* \approx 440$  К возникает ФМ-фаза, свободная энергия которой всегда меньше свободной энергии метастабильного АФМ-состояния, которое также существует в данном диапазоне. Это означает, что АФМ–ФМ-переход является фазовым переходом первого рода, что согласуется с экспериментальными наблюдениями [5]. Самосоглазованное температурное поведение поля  $\mu$  показано на рис. 4. На основе этого расчета разумно предположить, что скачок внутреннего поля  $\mu$  в области АФМ–ФМ-перехода приводит к относительному сдвигу парциальных спин-поляризованных плотностей состояний атома родия на уровне Ферми, что вызывает появление ненулевого магнитного момента.

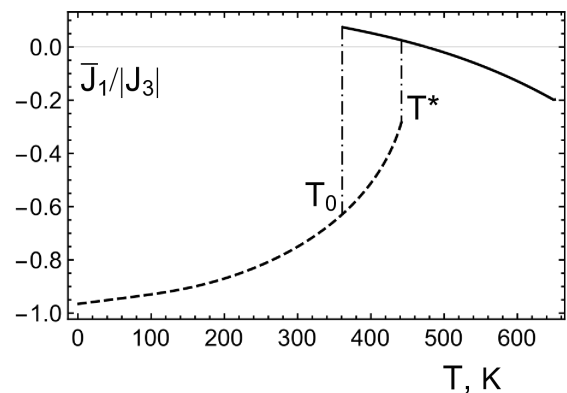
Относительное изменение объема, определяемое соотношением (18) и представленное на рис. 5 а, испытывает скачок в точке АФМ–ФМ-перехода на величину около 1%, что также неплохо согласуется с экспериментальными данными [5, 12]. Соответствующее поведение параметра порядка, связанного с одноосными деформациями,

$$U_d = \langle 2u_{zz} - u_{xx} - u_{yy} \rangle / 3,$$

показано на рис. 5 б. Характер и диапазон изменения этой величины определяется знаком и величиной константы  $D_2$ . Основное отличие между температурным поведением параметров  $\Delta V/V$  и  $U_d$  возникает в парамагнитной области, где  $U_d$  обращается в нуль, а относительное изменение объема остается конечным из-за эффекта теплового расширения кристалла, контролируемого параметром  $\alpha$  в выражении (6). В наших расчетах было выбрано значе-

ние  $\alpha = D_1/28$ . Отметим, что о наблюдении тетрагональных искажений в области сосуществования АФМ- и ФМ-фаз сообщалось в работе [35].

В рамках представленной модели удастся получить температурное изменение эффективного обменного взаимодействия  $\tilde{J}_1$ , качественно согласующееся с расчетами *ab initio* (рис. 6). Можно сделать вывод, что специфика АФМ–ФМ-перехода связана с температурным изменением эффективного обменного взаимодействия  $\tilde{J}_1$  заданного атома железа с ближайшими соседями первой координационной сферы атомов Fe. Температурная перенормировка  $\tilde{J}_1$  возникает за счет вкладов магнитоупругого взаимодействия (21), благодаря которым оно сравнимо по величине и знаку с  $J_3$  при  $T = 0$  и способствует стабилизации АФМ-фазы. Однако с приближением



**Рис. 6.** Температурное изменение эффективного обменного взаимодействия  $\tilde{J}_1$  (в единицах  $J_3$ ) атома Fe а с первыми ближайшими соседями в подсистеме атомов железа

к температуре перехода  $T_0$  величина  $\bar{J}_1$  резко уменьшается и принимает малое положительное значение, способствующее установлению ФМ-порядка. Окончательная стабилизация ФМ-фазы происходит за счет спиновой поляризации Rh-атомов, с помощью которой сильное ферромагнитное взаимодействие атомов железа и родия вкуче с  $\bar{J}_1$  и  $J_2$  подавляют конкурирующее антиферромагнитное обменное взаимодействие  $J_3$ .

## 5. УЧЕТ СПИН-ВОЛНОВЫХ ФЛУКТУАЦИЙ

Ниже с помощью техники двухвременных функций Грина анализируются изменения равновесных деформаций, возникающих при учете спин-волновых флуктуаций. Как следует из гамильтониана магнитоупругого взаимодействия (4), эти поправки связаны с ненулевыми корреляционными функциями  $\langle S_{\mathbf{m}}^{\alpha} S_{\mathbf{n}}^{\beta} \rangle$ , в которых хотя бы одно  $\alpha$  или  $\beta$  не совпадает с  $z$ . В приближении Боголюбова–Тябликова, в котором поперечные спиновые флуктуации не меняют  $z$ -составляющей намагниченности, оказываются отличными от нуля только корреляционные функции вида

$$\langle S_{1\mathbf{m}}^x S_{2\mathbf{n}}^x \rangle, \quad \langle S_{1\mathbf{m}}^y S_{2\mathbf{n}}^y \rangle, \quad \langle S_{1\mathbf{m}}^x S_{2\mathbf{n}}^y \rangle, \quad \langle S_{1\mathbf{m}}^y S_{2\mathbf{n}}^x \rangle.$$

Приведем детали расчета на примере первой из этих функций, которую с помощью циркулярных компонент  $S^{\pm} = S^x \pm iS^y$  удобно представить в виде

$$\langle S_{1\mathbf{m}}^x S_{2\mathbf{n}}^x \rangle = \frac{1}{4} \langle S_{1\mathbf{m}}^{-} S_{2\mathbf{n}}^{+} \rangle + \frac{1}{4} \langle S_{1\mathbf{m}}^{+} S_{2\mathbf{n}}^{-} \rangle.$$

Для вычисления первой корреляционной функции в правой части, определим запаздывающие функции Грина

$$\langle \langle S_{2\mathbf{n}}^{+}(t) | S_{1\mathbf{m}}^{-}(0) \rangle \rangle = -i\theta(t) \langle [S_{2\mathbf{n}}^{+}(t), S_{1\mathbf{m}}^{-}] \rangle,$$

$$\langle \langle S_{1\mathbf{n}}^{+}(t) | S_{1\mathbf{m}}^{-}(0) \rangle \rangle = -i\theta(t) \langle [S_{1\mathbf{n}}^{+}(t), S_{1\mathbf{m}}^{-}] \rangle,$$

уравнения движения фурье-образов которых образуют замкнутую систему

$$\begin{aligned} & [\omega + E_{21}(\mathbf{k})] \langle \langle S_2^{+} | S_1^{-} \rangle \rangle(\mathbf{k}, \omega) - \\ & - \left( z_1 J_1(\mathbf{k}) + z_3 J_3(\mathbf{k}) \right) \langle S_2^z \rangle \langle \langle S_1^{+} | S_1^{-} \rangle \rangle(\mathbf{k}, \omega) = 0, \end{aligned} \quad (22)$$

$$\begin{aligned} & [\omega + E_{11}(\mathbf{k})] \langle \langle S_1^{+} | S_1^{-} \rangle \rangle(\mathbf{k}, \omega) - \\ & - \left( z_1 J_1(\mathbf{k}) + z_3 J_3(\mathbf{k}) \right) \langle S_1^z \rangle \langle \langle S_2^{+} | S_1^{-} \rangle \rangle(\mathbf{k}, \omega) = 2 \langle S_1^z \rangle. \end{aligned} \quad (23)$$

Здесь определены фурье-компоненты функций Грина

$$\begin{aligned} & \langle \langle S_{\mathbf{a}\mathbf{n}}^{\alpha}(t) | S_{\mathbf{b}\mathbf{m}}^{\beta}(0) \rangle \rangle = \\ & = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \exp(i\mathbf{k}(\mathbf{n} - \mathbf{m}) - i\omega t) \langle \langle S_{\mathbf{a}}^{\alpha} | S_{\mathbf{b}}^{\beta} \rangle \rangle(\mathbf{k}, \omega), \end{aligned}$$

зависящие от волнового вектора  $\mathbf{k}$  и частоты  $\omega$ , и обменных взаимодействий

$$\begin{aligned} J_1(\mathbf{k}) &= \frac{1}{z_1} \sum_{\delta_1} J_1 \cos(\mathbf{k}\delta_1) = \\ &= \frac{J_1}{3} [\cos(k_x a) + \cos(k_y a) + \cos(k_z a)], \\ J_2(\mathbf{k}) &= \frac{1}{z_2} \sum_{\delta_2} J_2 \cos(\mathbf{k}\delta_2) = \\ &= \frac{J_2}{3} [\cos(k_x a) \cos(k_y a) + \cos(k_x a) \cos(k_z a) + \\ &+ \cos(k_y a) \cos(k_z a)], \\ J_3(\mathbf{k}) &= \frac{1}{z_3} \sum_{\delta_3} J_3 \cos(\mathbf{k}\delta_3) = \cos(k_x a) \cos(k_y a) \cos(k_z a), \end{aligned}$$

а также введены сокращенные обозначения

$$\begin{aligned} E_{11}(\mathbf{k}) &= z_1 J_1 \langle S_2^z \rangle + z_2 [J_2 - J_2(\mathbf{k})] \langle S_1^z \rangle + \\ &+ z_3 J_3 \langle S_2^z \rangle + \frac{1}{2} z_4 J \langle s^z \rangle, \end{aligned} \quad (24)$$

$$\begin{aligned} E_{21}(\mathbf{k}) &= z_1 J_1 \langle S_1^z \rangle + z_2 [J_2 - J_2(\mathbf{k})] \langle S_2^z \rangle + \\ &+ z_3 J_3 \langle S_1^z \rangle + \frac{1}{2} z_4 J \langle s^z \rangle. \end{aligned} \quad (25)$$

Из системы (22), (23) находим

$$\langle \langle S_2^{+} | S_1^{-} \rangle \rangle(\mathbf{k}, \omega) = \frac{2B(\mathbf{k}) \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle}{[\omega - \omega_1(\mathbf{k})][\omega - \omega_2(\mathbf{k})]},$$

где

$$B(\mathbf{k}) = z_1 J_1(\mathbf{k}) + z_3 J_3(\mathbf{k}),$$

а собственные частоты определяются выражениями

$$\begin{aligned} \omega_{1,2}(\mathbf{k}) &= -\frac{E_{11}(\mathbf{k}) + E_{21}(\mathbf{k})}{2} \pm \\ &\pm \frac{1}{2} \sqrt{(E_{11}(\mathbf{k}) - E_{21}(\mathbf{k}))^2 + 4B^2(\mathbf{k}) \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle}. \end{aligned} \quad (26)$$

Используем связь скачка функции Грина при переходе через вещественную ось со спектральной плотностью

$$\begin{aligned} \mathcal{J}_{S_2^{+} S_1^{-}}(\mathbf{k}, \omega) &= -in_B(\omega) [\langle \langle S_2^{+} | S_1^{-} \rangle \rangle(\mathbf{k}, \omega - i\epsilon) - \\ &- \langle \langle S_2^{+} | S_1^{-} \rangle \rangle(\mathbf{k}, \omega + i\epsilon)], \end{aligned} \quad (27)$$

что дает

$$\mathcal{J}_{S_2^+ S_1^-}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{4\pi n_B(\omega) B(\mathbf{k}) \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle}{\omega_1(\mathbf{k}) - \omega_2(\mathbf{k})} \times \\ \times [\delta(\omega - \omega_1(\mathbf{k})) - \delta(\omega - \omega_2(\mathbf{k}))]. \quad (28)$$

Здесь

$$n_B(\omega) = [\exp(\beta\omega) - 1]^{-1}$$

— бозе-функция распределения.

Тогда искомая корреляционная функция

$$\langle S_{1\mathbf{m}}^- S_{2\mathbf{n}}^+ \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \mathcal{J}_{S_2^+ S_1^-}(\mathbf{k}, \omega) e^{i\mathbf{k}(\mathbf{m}-\mathbf{n})} = \\ = \frac{2\langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle}{N} \times \\ \times \sum_{\mathbf{k}} B(\mathbf{k}) \frac{n_B(\omega_1(\mathbf{k})) - n_B(\omega_2(\mathbf{k}))}{\omega_1(\mathbf{k}) - \omega_2(\mathbf{k})} e^{i\mathbf{k}(\mathbf{m}-\mathbf{n})}. \quad (29)$$

Аналогичный расчет приводит к выражению

$$\langle S_{1\mathbf{m}}^+ S_{2\mathbf{n}}^- \rangle = \frac{2\langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle}{N} \times \\ \times \sum_{\mathbf{k}} B(\mathbf{k}) \frac{n_B(\tilde{\omega}_1(\mathbf{k})) - n_B(\tilde{\omega}_2(\mathbf{k}))}{\tilde{\omega}_1(\mathbf{k}) - \tilde{\omega}_2(\mathbf{k})} e^{i\mathbf{k}(\mathbf{m}-\mathbf{n})}, \quad (30)$$

в котором

$$\tilde{\omega}_{1,2}(\mathbf{k}) = \frac{E_{11}(\mathbf{k}) + E_{21}(\mathbf{k})}{2} \pm \\ \pm \frac{1}{2} \sqrt{(E_{11}(\mathbf{k}) - E_{21}(\mathbf{k}))^2 + 4B^2(\mathbf{k}) \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle}. \quad (31)$$

Тогда имеем

$$\langle S_{1\mathbf{m}}^x S_{2\mathbf{n}}^x \rangle = -\frac{\langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle}{2N} \times \\ \times \sum_{\mathbf{k}} B(\mathbf{k}) \frac{\text{sh} \left[ \frac{\beta}{2} (\tilde{\omega}_1(\mathbf{k}) - \tilde{\omega}_2(\mathbf{k})) \right]}{\text{sh} \left[ \frac{\beta}{2} \tilde{\omega}_1(\mathbf{k}) \right] \text{sh} \left[ \frac{\beta}{2} \tilde{\omega}_2(\mathbf{k}) \right] (\tilde{\omega}_1(\mathbf{k}) - \tilde{\omega}_2(\mathbf{k}))} \times \\ \times e^{i\mathbf{k}(\mathbf{m}-\mathbf{n})}. \quad (32)$$

Очевидно,

$$\langle S_{1\mathbf{m}}^y S_{2\mathbf{n}}^y \rangle = \langle S_{1\mathbf{m}}^x S_{2\mathbf{n}}^x \rangle. \quad (33)$$

Можно показать, не прибегая к явным вычислениям, что

$$\langle S_{1\mathbf{m}}^x S_{2\mathbf{n}}^y \rangle = -\langle S_{1\mathbf{m}}^y S_{2\mathbf{n}}^x \rangle, \quad (34)$$

а поскольку в (4) входит их сумма, то эти корреляционные функции не вносят дополнительного вклада в магнитоупругое взаимодействие.

Спин-волновые возбуждения вносят дополнительный вклад в свободную энергию расширенной элементарной ячейки, связанный с магнитоупругими взаимодействиями

$$\tilde{\mathcal{F}}_{me} = 48D_1 (\tilde{u}_{xx} + \tilde{u}_{yy} + \tilde{u}_{zz}) \gamma(T) \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle - \\ - 4D_2 (2\tilde{u}_{zz} - \tilde{u}_{xx} - \tilde{u}_{yy}) \gamma(T) \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle,$$

в котором результат (32) для ближайших соседей представлен в виде

$$\langle S_1^x S_2^x \rangle = \langle S_1^y S_2^y \rangle = -\gamma(T) \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle$$

и определен тензор упругих деформаций  $\tilde{u}_{ij}$ , вызванный спин-волновыми возбуждениями.

Это изменение свободной энергии компенсируется соответствующим вкладом, связанным с упругими взаимодействиями

$$\tilde{\mathcal{F}}_e = \frac{1}{2} c_{11} V_0 (\tilde{u}_{xx}^2 + \tilde{u}_{yy}^2 + \tilde{u}_{zz}^2) + \\ + c_{12} V_0 (\tilde{u}_{xx} \tilde{u}_{yy} + \tilde{u}_{xx} \tilde{u}_{zz} + \tilde{u}_{yy} \tilde{u}_{zz}) + \\ + 2c_{44} V_0 (\tilde{u}_{yz}^2 + \tilde{u}_{xz}^2 + \tilde{u}_{xy}^2),$$

что определяет соответствующие добавки к равновесным деформациям всестороннего сжатия

$$\langle \tilde{u}_{xx} + \tilde{u}_{yy} + \tilde{u}_{zz} \rangle = -\gamma(T) \frac{144D_1 \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle}{V_0 (c_{11} + 2c_{12})}, \quad (35)$$

и одноосного растяжения

$$\langle 2\tilde{u}_{zz} - \tilde{u}_{xx} - \tilde{u}_{yy} \rangle = \gamma(T) \frac{24D_2 \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle}{V_0 (c_{11} - c_{12})}. \quad (36)$$

С учетом кубической симметрии кристалла температурно-зависающий коэффициент  $\gamma$  может быть представлен в виде

$$\gamma(T) = \frac{1}{2N} \sum_{\mathbf{k}} S(\mathbf{k}) B(\mathbf{k}) \times \\ \times \frac{\text{sh} \left[ \frac{\beta}{2} (\tilde{\omega}_1(\mathbf{k}) - \tilde{\omega}_2(\mathbf{k})) \right]}{\text{sh} \left[ \frac{\beta}{2} \tilde{\omega}_1(\mathbf{k}) \right] \text{sh} \left[ \frac{\beta}{2} \tilde{\omega}_2(\mathbf{k}) \right] (\tilde{\omega}_1(\mathbf{k}) - \tilde{\omega}_2(\mathbf{k}))}, \quad (37)$$

где определен структурный формфактор

$$S(\mathbf{k}) = \frac{1}{3} [\cos(k_x a) + \cos(k_y a) + \cos(k_z a)].$$

Объединяя выражения (35), (36) с соответствующими результатами для среднего поля (18), (19), получим окончательный результат:

$$\langle u_{xx} + u_{yy} + u_{zz} \rangle = \\ = \frac{3 \left[ \alpha(T - T_0) + 24\tilde{D}_1 \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle \right]}{V_0 (c_{11} + 2c_{12})}, \quad (38)$$

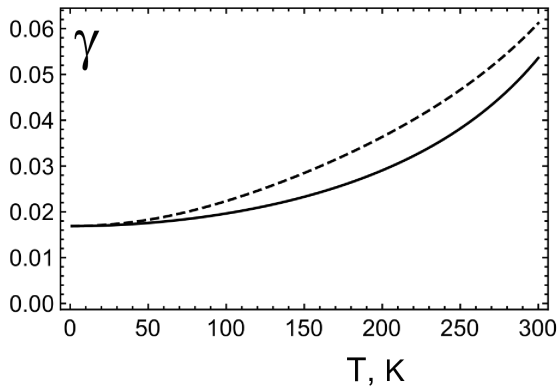


Рис. 7. Температурное изменение  $\gamma$ : штриховая кривая — численный расчет по формуле (37), сплошная кривая — аналитическая аппроксимация  $\gamma_0 + \gamma_1$ , определяемая уравнениями (41) и (43)

$$\langle 2u_{zz} - u_{xx} - u_{yy} \rangle = \frac{24\tilde{D}_2 \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle}{V_0 (c_{11} - c_{12})}, \quad (39)$$

в котором роль спин-волновых флуктуаций сводится к температурной перенормировке констант магнитоупругой связи

$$\tilde{D}_1 = D_1 [1 - 2\gamma(T)],$$

$$\tilde{D}_2 = D_2 [1 + \gamma(T)].$$

Для оценки  $\gamma$  в области низких температур,  $T \ll T_0$ , удобно представить выражение (37) в виде

$$\gamma(T) = -\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{S(\mathbf{k})B(\mathbf{k})}{\omega_1(\mathbf{k})} \left[ n_B(\omega_1(\mathbf{k})) + \frac{1}{2} \right], \quad (40)$$

в котором можно выделить часть, связанную с нулевыми колебаниями и слабо зависящую от температуры:

$$\gamma_0 = -\frac{1}{2N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{S(\mathbf{k})B(\mathbf{k})}{\omega_1(\mathbf{k})} \quad (41)$$

и вклад, связанный с тепловым возбуждением магнов:

$$\gamma_1(T) = -\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{S(\mathbf{k})B(\mathbf{k})}{\omega_1(\mathbf{k})} n_B(\omega_1(\mathbf{k})). \quad (42)$$

Аналитическая оценка (42) приводит к выражению

$$\gamma_1(T) \approx \frac{\sqrt{3}}{4} \frac{(k_B T)^2}{|\langle S_z^2 \rangle|^3} |z_1 J_1 - 2z_2 J_2 + 3z_3 J_3|^{-\frac{3}{2}} \times |z_1 J_1 + z_3 J_3|^{-\frac{1}{2}}. \quad (43)$$

График температурного поведения  $\gamma(T)$  представлен на рис. 5. Очевидно, что величина температурной перенормировки констант магнитоупругой

связи составляет несколько процентов. В силу положительности  $\gamma$  рост температуры уменьшает  $\tilde{D}_1$ , что приводит к уменьшению деформации всестороннего сжатия за счет спиновых флуктуаций и, наоборот, температурное возбуждение спиновых волн способствует увеличению  $\tilde{D}_2$ , контролирующей величину деформации одноосного растяжения.

## 6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе предложена эффективная теория среднего поля для объяснения особенностей магнитных фазовых переходов в сплаве FeRh, которая учитывает упругие степени свободы и их взаимодействие с магнитной подсистемой. С учетом ключевой роли родия в магнитном поведении этого сплава особенностью нашего описания является то, что вместо средней намагниченности атомов родия, традиционного параметра порядка в статистической модели канонического ансамбля, нами в качестве параметра порядка рассматривается сопряженное намагниченности Rh «внутреннее» магнитное поле, температурная эволюция которого определяется самосогласованным образом наряду с намагниченностями атомов железа первой и второй подрешеток и параметрами порядка упругой подсистемы, описывающими деформацию всестороннего сжатия и одноосного растяжения. Если полагать, что температурное поведение намагниченности родия известно, то такое рассмотрение соответствует статистической модели большого канонического ансамбля. Введение внутреннего магнитного поля позволяет эффективно учесть расщепление спин-поляризованных плотностей электронных состояний Rh на уровне Ферми, которое ответственно за возникновение ненулевого магнитного момента.

В рамках представленного подхода удастся рассчитать температурные зависимости полной намагниченности и относительного изменения объема, которые хорошо согласуются с экспериментальными данными во всем температурном диапазоне, и показать, что АФМ–ФМ-переход представляет собой фазовый переход первого рода. Объясняется возникновение упругих флуктуаций, понижающих симметрию решетки до тетрагональной, и показывается их усиление за счет теплового возбуждения спиновых волн. Выбор констант обменного взаимодействия, согласующийся с расчетами *ab initio* электронной структуры, позволил выявить ведущий механизм АФМ–ФМ-перехода — перенормировку обменного взаимодействия между магнитными



моментами ближайших соседей подсистемы атомов железа двухионным магнитоупругим взаимодействием.

Резкий рост внутреннего магнитного поля в области АФМ–ФМ-перехода, вызывающий появление магнитного момента у атомов Rh и сопровождающийся резким изменением решеточных деформаций, позволяет предположить, что именно упругие деформации, вызванные *изменением параметров решетки* при допировании FeRh магнитными ионами, ответственны за существенное изменение температуры АФМ–ФМ-перехода (как в сторону роста, так и в сторону понижения) [23], а не *стабилизация ФМ-фазы* магнитными моментами допируемых ионов. Искажения решетки могут заметным образом влиять на относительный сдвиг парциальных плотностей спин-поляризованных электронных состояний Rh на уровне Ферми. Для проверки этого предположения нужны дальнейшие целенаправленные экспериментальные исследования и проведение соответствующих расчетов *ab initio*.

**Финансирование.** Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации, проект госзадания FEUZ-2023-0017 (А. С. О.), тема «Поток» № 122021000031-8 (Э. З. В.) и «Магнит» № 122021000034-9 (Н. В. Б.). Работа И. С. К. поддержана Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (Программа развития Уральского федерального университета в рамках Программы «Приоритет-2030»). Работа А. А. Т. выполнена благодаря финансовой поддержке фонда развития теоретической физики и математики «БАЗИС».

## ПРИЛОЖЕНИЕ.

### ПОЛЕ $\mu$ И ПРИНЦИП МАКСИМУМА ИНФОРМАЦИОННОЙ ЭНТРОПИИ

Предположим, что система может находиться в одном из  $N$  состояний и вероятность ее нахождения в  $k$ -м состоянии равна  $p_k$  ( $k = 1, \dots, N$ ). Пусть энергия системы  $E$  и намагниченность атомов родия  $s^z$  (в расчете на элементарную ячейку) принимают значения  $E_k$  и  $s_k^z$ , когда система находится в состоянии  $k$ . Рассмотрим ситуацию, когда средние значения  $E$  и  $\langle s^z \rangle$  для системы фиксированы, и определим с помощью метода неопределенных множителей Лагранжа [36] функцию распределения  $p_k$ , отвечающую максимуму информационной энтропии

$$S = -k_B \sum_k p_k \ln p_k$$

при дополнительных условиях

$$E = \sum_k p_k E_k, \quad \langle s^z \rangle = \sum_k p_k s_k^z.$$

Определяя экстремум выражения

$$f = -k_B \sum_k (p_k \ln p_k - \alpha p_k + \beta E_k + \beta \mu s_k^z), \quad (44)$$

в котором дополнительные условия учитываются с помощью неопределенных множителей  $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\mu$ , получаем искомое распределение

$$p_k = \frac{1}{\Xi} \exp(-\beta E_k - \beta \mu s_k^z), \quad (45)$$

где

$$\Xi = \sum_k \exp(-\beta E_k - \beta \mu s_k^z).$$

При этом

$$\langle s^z \rangle = -\frac{1}{\beta} \frac{\partial}{\partial \mu} \ln \Xi. \quad (46)$$

Из выражения (45) следует, что если энергия магнитной подсистемы определяется выражением (7), то полученное распределение сводится к стандартному каноническому распределению с перенормировкой молекулярного поля, действующего на

спин атома родия (20). Учитывая явное выражение для

$$H_3^{(m)} = z_4 J (\langle S_1^z \rangle + \langle S_2^z \rangle), \quad J > 0,$$

можно заключить, что в АФМ-фазе, когда  $H_3^{(m)} = 0$ , появление поля  $\mu > 0$  невыгодно, поскольку это привело бы к уменьшению вероятности (45). В ФМ-фазе  $\mu$  будет направлено антипараллельно  $H_3^{(m)}$ .

## ЛИТЕРАТУРА

1. M. Fallot, Ann. Phys.(Paris) **10**, 291 (1938).
2. M. Fallot and R. Horcart, Rev. Sci. **77**, 498 (1939).
3. J. B. Staunton, R. Banerjee, M. dos S. Dias et al., Phys. Rev. B **89**, 054427 (2014).
4. L. Muldrew and F. de Bergevin, J. Chem. Phys. **35**, 1257 (1961).
5. А. И. Захаров, А. М. Кадомцева, Р. З. Левитин и др., ЖЭТФ **46**, 2003 (1964).
6. N. A. Zarkevich and D. D. Jonson, Phys. Rev. B **97**, 014202 (2018).
7. G. Shirane, C. W. Chen, P. A. Flin et al., J. Appl. Phys. Suppl. **33**, 1044 (1963).

8. G. Shirane, R. Nathans, and C. W. Chen, *Phys. Rev.* **134**, A1547 (1964).
9. J. S. Couvel, *J. Appl. Phys.* **37**, 1257 (1966).
10. M. P. Annaorazov, K. A. Asatryan, G. Myalikgulyev et al., *Cryogenics* **32**, 867 (1992).
11. J. S. Kouvel and J. Hartelius, *J. Appl. Phys.* **33**, 1343 (1962).
12. M. R. Ibarra and Algarabel, *Phys. Rev. B* **50**, 4196 (1994).
13. Р. Р. Гимаев, А. А. Ваулин, А. Ф. Губкин и др., *ФММ* **121**, 907 (2020).
14. C. Kittel, *Phys. Rev.* **120**, 335 (1960).
15. C. P. Bean and D. S. Rotbell, *Phys. Rev.* **126**, 104 (1962).
16. E. Valiev, R. Gimaev, V. Zverev et al., *Intermetallics* **108**, 81 (2019).
17. M. E. Gruner, T. Hoffman, and P. Entel, *Phys. Rev. B* **67**, 064415 (2003).
18. L. M. Sandratckii and P. Navropoulos, *Phys. Rev. B* **83**, 174408 (2011).
19. S. Polesya, S. Mankovsky, D. Ködderitzsch et al., *Phys. Rev. B* **93**, 024423 (2016).
20. М. И. Куркин, А. В. Телегин, П. А. Агзамова и др., *ФММ* **123**, 579 (2022).
21. G. Ju, J. Hohlfeld, B. Bergman et al., *Phys. Rev. Lett.* **93**, 197403 (2004).
22. S. O. Mariager, F. Pressacco, G. Ingold et al., *Phys. Rev. Lett.* **108**, 087201 (2012).
23. S. Yuasa, Y. Otani, H. Miyajima et al., *IEEE Trans. J. Mag. Jpn.* **9** (6), 202 (1994).
24. K. Nishihara, Y. Nakazawa, L. Li et al., *Mater. Trans.* **49**, 753 (2008).
25. A. S. Komlev, G. F. Cabeza, A.M. Chirkova et al. *Metals* **13**, 1650 (2023).
26. A. S. Komlev, R. A. Makarin, K. P. Skokov et al., *Metall. Mater. Trans. A* **54**, 3683 (2023).
27. Г. А. Смоленский (ред.), В. В. Леманов, Г. М. Недлин и др., *Физика магнитных диэлектриков*, Наука, Ленинград (1974).
28. E. Callen, *Phys. Rev.* **139**, A455 (1965).
29. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теория упругости*, Наука, Москва (1965).
30. С. В. Вонсовский, М. И. Кацнельсон, *Квантовая физика твердого тела*, Наука, Москва (1983).
31. W. He, H. Huang, and X. Ma, *Materials Lett.* **195**, 156 (2017).
32. S. Maat, J.-U. Thiele, and E. E. Fullerton, *Phys. Rev. B* **72**, 214432 (2005).
33. J. Cao, N.T. Nam, S. Inoue et al., *J. Appl. Phys.* **103**, 07F501 (2008).
34. I. Suzuki, T. Koike, M. Itoh et al., *J. Appl. Phys.* **105**, 07E501 (2009).
35. А. И. Захаров, *ФММ* **24**, 84 (1967).
36. *Задачи по термодинамике и статистической физике*, под ред. П. Ландсберга, Мир, Москва (1974).

# ТУННЕЛЬНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ С ВАРИАЦИЕЙ СТЕПЕНИ ДОПИРОВАНИЯ В СВЕРХПРОВОДЯЩЕМ И НОРМАЛЬНОМ СОСТОЯНИЯХ

И. А. Никитченков <sup>a,b</sup>, С. А. Кузьмичев <sup>a,b\*</sup>, А. Д. Ильина <sup>b</sup>, К. С. Пераков <sup>b</sup>,  
В. А. Власенко <sup>b</sup>, Т. Е. Кузьмичева <sup>b</sup>

<sup>a</sup> Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, физический факультет  
119991, Москва, Россия

<sup>b</sup> Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук  
119991, Москва, Россия

Поступила в редакцию 5 июня 2024 г.,  
после переработки 2 августа 2024 г.  
Принята к публикации 3 августа 2024 г.

Методами туннельной спектроскопии исследованы монокристаллы пниктидов  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  недодопированного состава ( $x = 0.08$ ) и передопированных составов ( $x = 0.12, 0.14$ ) в сверхпроводящем и нормальном состояниях. На полученных  $I(V)$ - и  $dI(V)/dV$ -характеристиках туннельных контактов воспроизводимо наблюдалась сильная нелинейность как ниже, так и выше критической температуры  $T_c$ , не связанная напрямую со сверхпроводящими свойствами. Исследована ее эволюция с температурой и  $T_c$  вдоль фазовой диаграммы допирования, обсуждаются возможные причины возникновения этой нелинейности.

Статья представлена в рамках публикации материалов 39-го Совещания по физике низких температур (НТ-2024), Черноголовка, июнь 2023 г.

DOI: 10.31857/S0044451024120071

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Среди представителей класса железосодержащих высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) [1, 2] ферропниктиды структурного семейства 122 были наиболее тщательно изучены как теоретически, так и экспериментально. Интерес исследователей к данному типу соединений был в первую очередь обусловлен свойственными семейству 122 значительными критическими магнитными полями при умеренных критических температурах  $T_c$ , а также высокой доступностью качественных монокристаллов соединения — факторами, определившими развитие технических применений Ва-122 для производства сверхпроводящих (СП) магнитов и проводов [3, 4].

Кристаллическая структура соединений семейства Ва-122 содержит отвечающие за сверхпроводимость блоки Fe–As, чередующиеся с учетом зеркальной симметрии и разделенные вдоль  $c$ -направления плоскостями бария. В стехиометрическом составе  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  демонстрирует упорядочение в антиферромагнитное (АФМ) состояние с волной спиновой плотности. Немного выше температуры Нееля при  $T_N \approx T_s \approx 138$  К происходит структурный фазовый переход от орторомбической сингонии к тетрагональной. При частичном замещении железа на никель АФМ-фаза постепенно подавляется, возникает СП-область в форме «колокола» допирования с максимальной  $T_c \approx 21$  К, достигающей при оптимальной степени замещения в составе  $\text{BaFe}_{1.9}\text{Ni}_{0.1}\text{As}_2$  [5].

Электронные свойства системы 122 определяются  $3d$ -орбиталями железа и обладают явно выраженным квазидвумерным характером. Для данных соединений свойственна анизотропия проводимости между  $ab$ - и  $c$ -направлениями кристалла [5]. На поверхности Ферми присутствуют дырочные цилиндры

\* E-mail: kuzmichev@mig.phys.msu.ru

дры вблизи  $\Gamma$ -точки зоны Бриллюэна, а также электронные зоны вблизи  $X$ -точки, образующие пропеллеры или цилиндры в зависимости от химического состава, причем вдоль  $k_z$ -направления квазиимпульса все цилиндры оказываются гофрированы [6–8]. Непосредственно для  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  исследование зонной структуры методом фотоэмиссионной спектроскопии с угловым разрешением (ARPES) не проводилось, тем не менее для родительского соединения и  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Co}_x\text{As}_2$  семейства 122 была показана близость перехода Лифшица, а также наличие «плоской зоны» и пиков плотности электронных состояний  $N(E)$  вблизи уровня Ферми [7, 8]. В отдельных ARPES-исследованиях для системы Ba-122 [9] также сообщалось об аномальном движении зонной структуры при повышении температуры вплоть до комнатной.

При изучении соединений  $\text{Ba}(\text{Fe}, \text{Ni})_2\text{As}_2$  ниже  $T_c$  исследователи в основном обнаруживают два СП-конденсата с различными параметрами порядка,  $\Delta_L$  и  $\Delta_S$ , называемыми большой и малой СП-щелями соответственно. Нашей группой ранее были определены характеристические отношения теории БКШ для этих щелей в монокристаллах  $\text{Ba}(\text{Fe}, \text{Ni})_2\text{As}_2$  с разными уровнями допирования:  $2\Delta_L(0)/k_B T_c \approx 4 - 6$  для большой СП-щели (диапазон значений вызван ее предположительной анизотропией в  $k$ -пространстве) и  $2\Delta_S(0)/k_B T_c \approx 2$  для малой СП-щели, причем характеристические отношения оказались практически не зависящими от степени замещения никелем в широком диапазоне  $T_c$  [10–12]. Аналогичные значения были получены с использованием ТГц- и инфракрасной фурье-спектроскопии [13, 14]. Тем не менее не все экспериментальные методы хорошо согласуются при изучении щелевой структуры  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . Квазидвумерная структура соединения делает систему чрезвычайно чувствительной к условиям измерений. Отсюда может возникать расхождение данных, полученных при исследовании поверхностными, объемными и локальными методами; в частности, исследования ARPES, проведенные различными группами, плохо согласуются при определении величины характеристического отношения большой СП-щели, разброс которого составил  $2\Delta_L(0)/k_B T_c \approx 4.5 - 7.5$  для  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  с различной степенью допирования (в качестве обзора см. [7, 15]).

Вопрос ведущего механизма спаривания в ферропниктидах до сих пор является актуальной темой. Помимо спиновых флуктуаций, обусловленных нестингом разделенных в импульсном пространстве листов поверхности Ферми [16], исследователи вы-

двигают на эту роль орбитальные флуктуации  $3d$ -орбиталей Fe [17]. Однако орбитальные степени свободы приобретают дополнительное значение при обсуждении свойств в нормальном состоянии, например, нематической фазы, определяемой как спонтанное нарушение вращательной симметрии  $C_4$  без нарушения трансляционной. Такое нарушение симметрии проявляется в анизотропии электронных свойств, в частности, при исследовании соединения  $\text{Ba}(\text{Fe}, \text{Co})_2\text{As}_2$  методом ARPES были обнаружены признаки нематического порядка в виде энергетического расщепления  $d_{xz}/d_{yz}$ -орбиталей, происходящего при температуре даже выше  $T_s$  и  $T_N$  [18–20]. Еще одной обсуждаемой особенностью нормального состояния ферропниктидов является псевдощель [20–22], наблюдаемая ранее в ВТСП-купратах [23, 24]. В качестве одного из основных механизмов образования псевдощели в купратах исследователи выделяют остаточную диэлектризацию спектра, связанную со спиновым/зарядовым упорядочением в системе [25]. Однако в то время как родительское соединение купратов является АФМ-изолятором, родительское соединение пниктидов  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  имеет металлическое основное АФМ-состояние [5]. Псевдощель все еще остается загадочным состоянием электронной подсистемы, единого мнения о природе которого так и не было достигнуто [23–25]. В целом, несмотря на интенсивные исследования физики железосодержащих пниктидов, остается дискуссионным вопрос о связи между сверхпроводимостью и особенностями нормального состояния, такими как магнитный порядок, нематическая фаза, зонная структура и псевдощель [8, 16, 17, 22, 26, 27].

В настоящей работе проведено тщательное исследование свойств ферропниктидов  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  методами туннельной спектроскопии. Изучены три состава: с содержанием никеля  $x = 0.08$ , принадлежащий недодопированной области фазовой диаграммы, и два передопированных состава с  $x = 0.12$ ,  $0.14$ . Ранее в процессе исследования щелевой структуры для туннельных контактов в  $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$  и  $\text{BaFe}_{1.9}\text{Ni}_{0.1}\text{As}_2$  нашей группой были обнаружены воспроизводящиеся особенности спектров динамической проводимости  $dI(V)/dV$ , нехарактерные для классического случая и проявляющиеся в СП и в нормальном состоянии [11]. Более подробно температурное поведение данных особенностей было исследовано для системы  $\text{BaFe}_{1.88}\text{Ni}_{0.12}\text{As}_2$  [28], однако окончательно их происхождение остается неизвестным. Настоящая работа раскрывает поведение указанных особенностей нормального состояния при вариации степени допирования, охватыва-

ющей недо- и передопированную области фазовой диаграммы. На основе полученных экспериментальных данных проводится анализ возможных причин исследуемой нелинейности нормального состояния и обсуждается природа наблюдаемого эффекта.

## 2. ТЕХНИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследуемые в работе монокристаллы  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  с номинальной концентрацией допирующего никеля  $x = 0.08, 0.12, 0.14$  были выращены с использованием техники «раствор в расплаве» [15, 29–31]. Синтезированные монокристаллы прошли характеризацию методом рентгеновской дифракции, подтвердившим соответствие образца 122-фазе. Энергодисперсионная спектроскопия выявила отношение присутствующих в монокристалле элементов, согласующееся с шихтовым составом. В результате измерения температурных зависимостей сопротивления и магнитной восприимчивости в образцах был обнаружен фазовый переход в СП-состояние и определена критическая температура перехода  $T_c \approx 18, 19, 12$  К для монокристаллов с содержанием никеля  $x = 0.08, 0.12, 0.14$  соответственно [10–12, 15, 29–31].

Для получения туннельных контактов типа сверхпроводник–барьер–сверхпроводник (ScS) использовалась техника планарного «break-junction», заключающаяся в создании контакта на микротрещине путем механического раскалывания слоистого образца при низких температурах [32, 33]. При подготовке исследуемый образец монокристалла, имеющий форму вытянутой пластинки с размерами порядка  $3 \times 1 \times 0.1 \text{ мм}^3$ , с помощью жидких при комнатной температуре капель In–Ga-припой фиксируется по четырехконтактной схеме подключения на массивных медных электродах, расположенных на П-образном пружинящем столике, оборудованном концентратором напряжений. Степень прогиба столика в процессе эксперимента регулируется механически и прецизионно. Слоистый образец монтируется таким образом, чтобы  $ab$ -плоскость кристалла располагалась параллельно плоскости столика. После монтажа столик с образцом охлаждается до температуры 4.2 К. К этому моменту застывший In–Ga-припой жестко фиксирует образец. При прогибе столика под направленным контролируемым воздействием поступательного смещения микрометрического винта монокристалл расслаивается вдоль  $ab$ -плоскостей кристаллографической решетки, образуя при этом туннельный

контакт на естественных ступеньках и террасах, разделяющих два криогенных скола вдоль  $c$ -направления. В результате туннельный ток всегда протекает в  $c$ -направлении кристалла. Момент возникновения криогенного скола контролируется объективно по появлению конечного наклона ВАХ в реальном времени. Массивные СП-берега полученного ScS-контакта обеспечивают эффективный отвод тепла от контактного интерфейса. Отметим, что механическая перестройка контакта остается доступной на протяжении всего процесса измерений, открывая возможность прямого локального исследования объемных энергетических параметров в различных областях скола, т.е. набор статистики с одного образца в течение серии измерений.

Строго говоря, получаемые контакты на микротрещине представляют собой структуру типа S–n–I–n–S (I — изолятор, роль барьера играет nIn), в которых прозрачность барьера описывается безразмерным параметром  $Z$  [34, 35]. В монокристаллах семейства  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  скол обычно проходит вдоль металлических плоскостей барьера [36]. Отметим также, что поскольку в процессе эксперимента микротрещина остается в объеме образца (берега контакта не разводятся), это естественным образом защищает место криогенного скола от деградации и попадания примесей. Таким образом, в используемой конфигурации «break-junction» наиболее вероятно получение ScS-контактов высокой прозрачности более 80% ( $Z < 0.5$ ), что подтверждается видом ВАХ и  $dI(V)/dV$ -спектров (см. ниже).

Хотя техника планарного «break-junction» может создавать единичные контакты, зачастую полученные в эксперименте туннельные структуры представляют собой естественный массив из  $m$  штук (где  $m$  — натуральное число) эквивалентных ScS-контактов, образующих стопку в силу объективных геометрических особенностей слоистых соединений. Более детально конфигурация и характерные особенности нашего эксперимента по созданию планарных механически регулируемых контактов на микротрещине обсуждаются в обзоре [33].

В SnS-контакте с режимом пролета квазичастиц, близком к баллистическому (диаметр контакта  $d$  много меньше длины свободного пробега квазичастиц  $d \ll l$ ), при температурах ниже  $T_c$  реализуется эффект многократных андреевских отражений [34, 35, 37]. В общем случае, в режиме «длинного» SnS-контакта (с некогерентным  $d \gg \xi$  транспортом) наблюдается эффект некогерентных многократных андреевских отражений (ЭНМАО). Эффект вызывает избыточный ток на

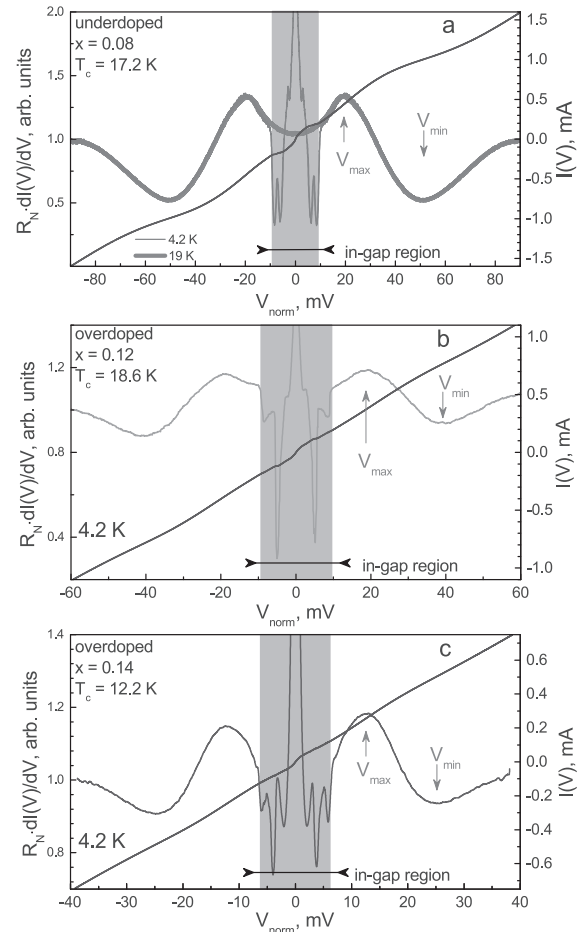


ВАХ SnS-контакта при любых напряжениях смещения (относительно ВАХ при  $T > T_c$ ). При смещениях  $eV \rightarrow 0$  на  $dI(V)/dV$ -спектре появляется область повышенной (по сравнению с характеристиками нормального состояния) проводимости (так называемый «пьедастал»), а при  $|eV_{i,n}| = 2\Delta_i/n$  — щелевые особенности (минимумы). Число  $n$  наблюдаемых минимумов уменьшается при небольших отношениях  $l/d$  [37, 38], а также при увеличении силы барьера  $Z$  [34, 35] и параметра размытия  $\Gamma$ . Локальная  $T_c$  контакта (соответствующая переходу контактной области размером 10–50 нм в нормальное состояние) была определена как температура, при которой на  $dI(V)/dV$ -спектре исчезали все особенности, вызванные ЭНМАО-транспортом.

На  $dI(V)/dV$ -спектре стопки из  $m$  контактов положение всех особенностей, вызванных объемными свойствами, увеличивается в  $m$  раз, в частности, для андреевских структур  $|eV_{i,n}| = m \cdot 2\Delta_i/n$ . Для монокристаллов каждого состава, число  $m$  определяется путем сравнения полученных  $dI(V)/dV$ -спектров стопок с различным  $m$  (детали нормировки приведены в приложении к работам [11, 39]). Преимущество стопочных контактов заключается в превалировании объемных свойств материала, что позволяет минимизировать влияние поверхностных дефектов [33]. Для приведенных ниже ВАХ и  $dI(V)/dV$ -спектров ось смещений нормирована на соответствующие  $m$  ( $V_{\text{norm}} \equiv V/m$ ).

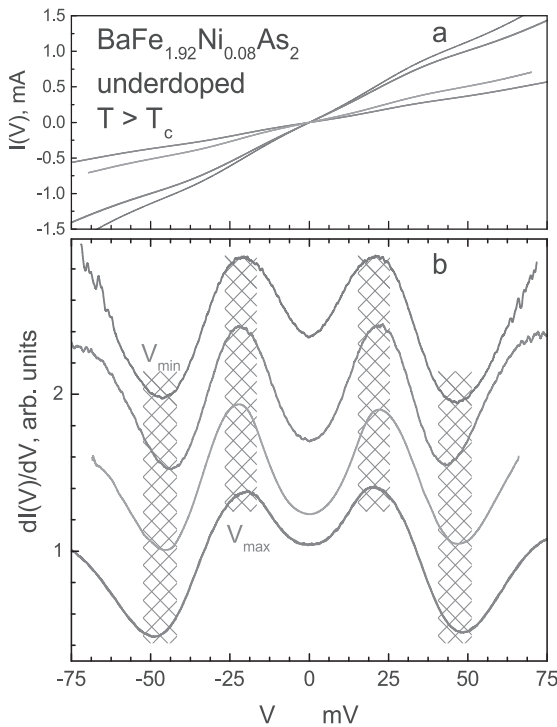
### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1 представлены ВАХ и спектры дифференциальной проводимости туннельных контактов, полученные для монокристаллов  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  с различной степенью допирования и  $T_c$ . Ось смещений нормирована на число контактов в стопке  $m = 14, 7, 20$  на рис. 1 *a, b, c* соответственно. В СП-состоянии при температуре 4.2 К при малых  $eV$  спектры демонстрируют характерные андреевские особенности, а на ВАХ отсутствует сверхтоковая ветвь. Таким образом, исходя из вида ВАХ и  $dI(V)/dV$ -спектров, можно установить, что контакты на рис. 1 являются «длинными» и находятся в некогерентном SnS-режиме в соответствии с предсказаниями [34, 35, 37]. На рис. 1 *a* показан  $dI(V)/dV$ -спектр SnS-контакта, полученного в слабо недопированном монокристалле  $\text{BaFe}_{1.92}\text{Ni}_{0.08}\text{As}_2$  при  $T = 4.2$  К (красная кривая) и выше  $T_c$  при  $T = 19$  К (темно-желтая кривая). В СП-состоянии спектр содержит щелевые минимумы ( $n_i = 1$ ), отвечаю-



**Рис. 1.** ВАХ (синяя линия, правая ось) и соответствующий ей  $dI(V)/dV$ -спектр (левая ось), измеренные при  $T = 4.2$  К для SnS-контакта в соединении  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ , где: *a* —  $x = 0.08$  ( $m = 14$  контактов в стопке), *b* —  $x = 0.12$  ( $m = 7$ ), *c* —  $x = 0.14$  ( $m = 20$ ). Для сравнения на рис. *a* приведен  $dI(V)/dV$ -спектр, измеренный при температуре  $T = 19$  К  $> T_c$  (темно-желтая кривая, левая ось). Серым цветом отмечены внутрищелевые области смещений, содержащие андреевские особенности от СП-параметров порядка. Вертикальными стрелками отмечены положения особенностей  $dI(V)/dV$ , сохраняющихся в нормальном состоянии — максимумов  $V_{\text{max}}$  и минимумов  $V_{\text{min}}$ . Все спектры динамической проводимости нормированы на нормальную проводимость при большом смещении  $G_N \equiv 1/R_N(eV \gg \Delta(0))$

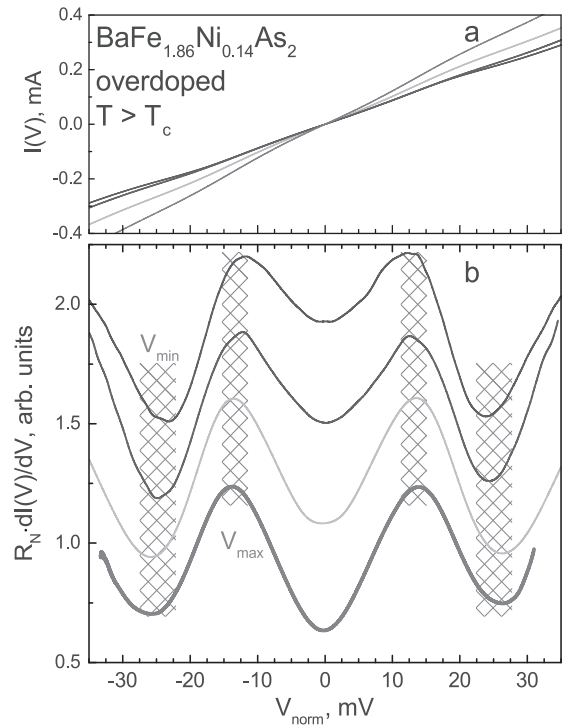
щие трем СП-параметрам порядка:  $\Delta_L^{\text{out}} \approx 4.4$  мэВ,  $\Delta_L^{\text{in}} \approx 3$  мэВ (предположительно, относящимся к одному и тому же, анизотропному в  $k$ -пространстве СП-конденсату) и  $\Delta_S \approx 1.1$  мэВ при  $T \ll T_c$ , ранее определенным для данного соединения [10] (внутрищелевая область отмечена серым цветом), а также пик андреевской проводимости при нулевом смещении (пьедастал). Помимо андреевских особен-



**Рис. 2.** Измеренные при  $T > T_c$  ВАХ (a) и соответствующие им спектры динамической проводимости (b) SnS-контактов, полученные в различных монокристаллах недопированного состава  $\text{BaFe}_{1.92}\text{Ni}_{0.08}\text{As}_2$  из одной закладки. Штриховкой отмечены области, в которых воспроизводимо наблюдаются максимумы  $V_{\max}$  и минимумы  $V_{\min}$  нелинейности, вызванной особенностями нормального состояния.  $dI(V)/dV$ -спектры нормированы на  $G_N \equiv 1/R_N$  и смещены по вертикали для удобства

стей,  $dI(V)/dV$ -спектр содержит общую нелинейность — структуру максимум-минимум при смещениях  $eV_{\max} \approx 20$  мэВ и  $eV_{\min} \approx 50$  мэВ — в большом диапазоне напряжений. Данные смещения значительно превышают амплитуды СП-параметров порядка  $2\Delta_i(0)$ . Хорошо видно, что при  $T = 19 > T_c$  андреевские особенности исчезают, при этом форма нелинейности и положения  $eV_{\max}$  и  $eV_{\min}$  сохраняются: красная и темно-желтая кривые на рис. 1a при  $eV > 2\Delta_L^{\text{out}}$  практически совпадают. Отметим, что неизменность динамической проводимости данного контакта с температурой при  $eV > 2\Delta(0)$  указывает на баллистический характер транспорта в соответствии с [40, 41].

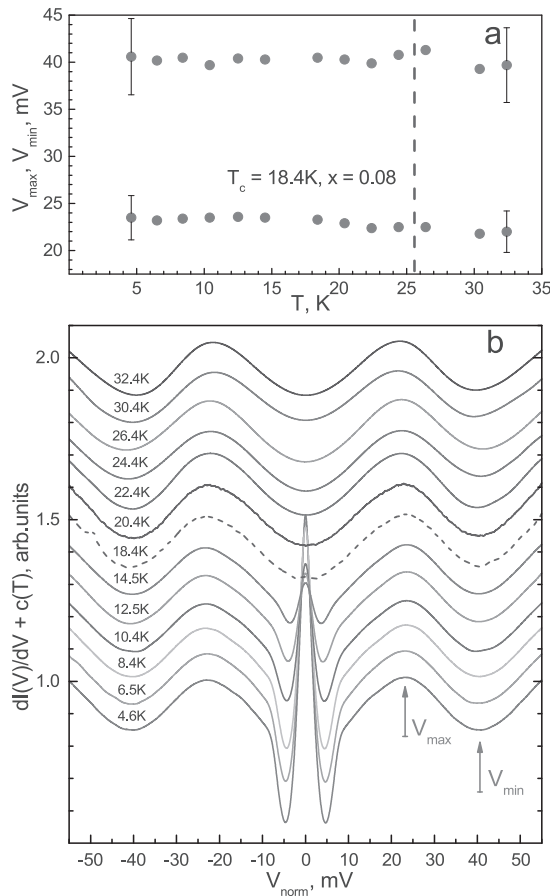
Нелинейность схожего вида, связанная с особенностями нормального состояния, наблюдается и в монокристаллах  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  с различным содержанием допирующего никеля (рис. 1b, c). В передопированных составах при увеличении



**Рис. 3.** Измеренные при  $T > T_c$  ВАХ (a) и соответствующие им спектры динамической проводимости (b) SnS-контактов, полученные в различных монокристаллах передопированного состава  $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$  из одной закладки. Штриховкой отмечены области, в которых воспроизводимо наблюдаются максимумы  $V_{\max}$  и минимумы  $V_{\min}$  нелинейности, вызванной особенностями нормального состояния.  $dI(V)/dV$ -спектры нормированы на  $G_N \equiv 1/R_N$  и смещены по вертикали для удобства

$x = 0.12 - 0.14$  амплитуды СП-параметров порядка уменьшаются примерно пропорционально  $T_c$  [10–12], а положения  $V_{\min}$  и  $V_{\max}$  также сдвигаются в сторону меньших смещений:  $V_{\max} \approx 20$  мВ,  $V_{\min} \approx 40$  мВ для состава с  $x = 0.12$ ,  $V_{\max} \approx 12$  мВ;  $V_{\min} \approx 25$  мВ для  $x = 0.14$ .

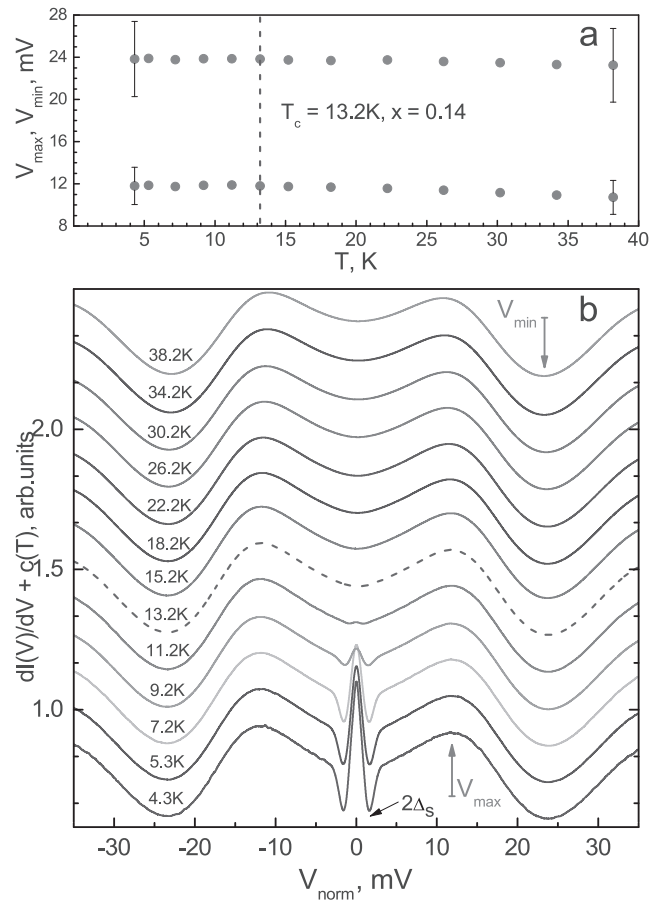
Для проверки воспроизводимости наблюдаемой нелинейности в нормальном состоянии была собрана значительная статистика  $I(V)$ - и  $dI(V)/dV$ -характеристик туннельных контактов. Примеры ВАХ и соответствующих спектров дифференциальной проводимости при  $T > T_c$  для стопок с различным числом контактов  $m$ , полученных в монокристаллах  $\text{BaFe}_{1.92}\text{Ni}_{0.08}\text{As}_2$  и  $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$ , приведены на рис. 2 и 3 соответственно; аналогичные данные для  $\text{BaFe}_{1.88}\text{Ni}_{0.12}\text{As}_2$  показаны на рис. 2 в [28]. Для каждого состава ВАХ имеют различающиеся наклоны, следовательно, не совпадает нормальное сопротивление  $R_N$  представленных



**Рис. 4.** Температурная эволюция положений максимума  $V_{\max}$  и минимума  $V_{\min}$  нелинейности, вызванной особенностями нормального состояния (a) и соответствующего  $dI(V)/dV$ -спектра туннельного контакта в монокристалле  $\text{BaFe}_{1.92}\text{Ni}_{0.08}\text{As}_2$  (b). Штриховая линия соответствует локальной критической температуре контакта  $T_c \approx 18.4 \text{ K}$ . Кривые вручную сдвинуты по вертикали постоянную величину для удобства,  $R_N(T) \approx \text{const}$

контактов, которое, в свою очередь, определяется геометрическими параметрами и площадью контакта. Тем не менее общая форма нелинейности спектра и смещения  $V_{\min}$  и  $V_{\max}$  воспроизводятся. Таким образом, наблюдаемая нелинейность связана с внутренними, объемными свойствами нормального состояния  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  и не может быть обусловлена случайными эффектами или геометрическими резонансами.

Температурная эволюция нелинейных  $dI(V)/dV$ -спектров и положений особенностей  $V_{\min}$  и  $V_{\max}$  была исследована для туннельных контактов на базе  $\text{BaFe}_{1.92}\text{Ni}_{0.08}\text{As}_2$  и  $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$  и представлена на рис. 4, 5. Для приведенных контактов  $R_N(T) \approx \text{const}$ . На рис. 5b и 6b для удобства рассмотрения спектры вручную сме-



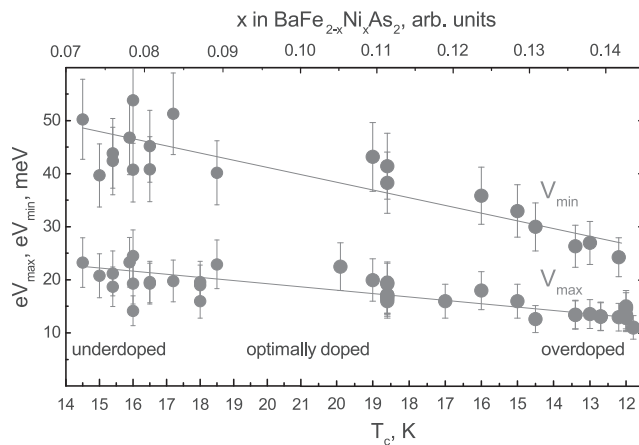
**Рис. 5.** Температурная эволюция положений максимума  $V_{\max}$  и минимума  $V_{\min}$  нелинейности, вызванной особенностями нормального состояния (a) и соответствующего  $dI(V)/dV$ -спектра туннельного контакта в монокристалле  $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$  (b). Штриховая линия соответствует локальной критической температуре контакта  $T_c \approx 13.2 \text{ K}$ . Кривые вручную сдвинуты по вертикали постоянную величину для удобства,  $R_N(T) \approx \text{const}$ . Стрелками отмечены положения андreeвских особенностей от малой СП-щели  $2\Delta_S$  при 4.3 K

щены на постоянное значение по оси ординат. Характерные андreeвские особенности спектров, связанные с эффектом ЭНМАО, исчезают при достижении локальной критической температуры контакта. Форма нелинейности, связанной с особенностями нормального состояния, при повышении температуры сохраняется, положения особенностей  $dI(V)/dV$  в пределах погрешности остаются неизменными во всем исследованном диапазоне температур  $T = 4.3\text{--}38.2 \text{ K}$ . Аналогичное практически не зависящее от температуры поведение особенностей нормального состояния в монокристаллах  $\text{BaFe}_{1.88}\text{Ni}_{0.12}\text{As}_2$  наблюдалось на рис. 4 в [28].

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 6 представлена диаграмма положений максимума  $V_{max}$  и минимума  $V_{min}$  нелинейности на  $dI(V)/dV$ -спектрах контактов с различной локальной  $T_c$ , полученных нами в недо- и передопированных образцах  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  (соответствие  $T_c$  и степени замещения  $x$  приведено согласно данным работы [31]). При повышении концентрации допирующего никеля значения положений наблюдаемых особенностей уменьшается практически линейно, в среднем проходя диапазон от  $V_{max} \approx 22$  мВ,  $V_{min} \approx 49$  мВ при  $x = 0.08$  до  $V_{min} \approx 13$  мВ,  $V_{max} \approx 26$  мВ при  $x = 0.14$ . Таким образом, в отличие от СП-параметров порядка [5, 10–12], значения  $V_{min}$  и  $V_{max}$  реагируют на химическое допирование монотонно и не описывают «колокол» вблизи области оптимального допирования фазовой диаграммы. Это еще раз говорит о том, что обнаруженная особенность спектров не связана напрямую со СП-параметром порядка. Особенности при  $V_{min}$  и  $V_{max}$  сближаются при увеличении содержания никеля по мере удаления от родительского соединения  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  и области фазовой диаграммы, содержащей магнитный и структурный фазовые переходы. Линейная аппроксимация предсказывает, что положение особенностей достигнет уровня Ферми ( $V_{min}, V_{max} \rightarrow 0$ ) при уровне допирования  $x \rightarrow 0.22$ , что соответствует сильно передопированному, несверхпроводящему составу.

Еще раз подчеркнем, что воспроизводимая нелинейность динамической проводимости, наблюдаемая на спектрах стопочных контактов, однознач-



**Рис. 6.** Зависимость положений максимума  $V_{max}$  и минимума  $V_{min}$  нелинейности, вызванной особенностями нормального состояния, от  $T_c$  и соответствующей ей степени допирования  $x$ , рассчитанной из [31]

но указывает на объемную природу данного эффекта. Перейдем к обсуждению возможных причин появления нелинейности  $dI(V)/dV$  в нормальном состоянии.

1) Известно, что в туннельном контакте, находящемся в термическом режиме ( $l \ll d$ ), квазичастичный транспорт является диссипативным: при пропускании измерительного тока температура внутри контакта  $T_{pc}$  растет относительно температуры окружающей среды  $T_{bath}$  при увеличении смещения  $eV$  как [42]

$$(k_B T_{pc})^2 = (k_B T_{bath})^2 + (eV)^2 / 4L, \quad (1)$$

где  $L$  — число Лоренца. На рис. 7 штриховыми линиями приведены модельные  $dI(V)/dV$ -спектры для термических контактов, подверженных перегреву (сопротивление которых имеет температурную зависимость, соответствующую  $R(T)$  объемного монокристалла). Кривые были рассчитаны для  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  с  $x = 0.08$  (a) и  $x = 0.14$  (b) на основе формулы (1) и зависимости  $T(R)$ , полученной по данным экспериментальной резистивной кривой соответствующих объемных монокристаллов (на вставках). Различный вид модельных кривых для контактов на базе недо- и передопированного образца обусловлен особенностями  $R(T)$ : наличием структурного и магнитного переходов в кристалле с  $x = 0.08$  при  $T_s \approx 65$  К, при которых наблюдается минимум  $R(T)$ , и их отсутствием в кристалле с  $x = 0.14$ , демонстрирующем монотонный рост сопротивления выше  $T_c$ . Видно, что для  $x = 0.14$  (рис. 7 b) модельная кривая не соответствует динамической проводимости NcN-контакта (N — объемный нормальный металл), наблюдаемой в эксперименте выше  $T_c$  (сплошная линия), следовательно, нелинейность  $dI(V)/dV$  не может быть вызвана перегревом контакта. Хотя для недодопированного состава рассчитанный спектр термического контакта схож с экспериментальным (рис. 7 a), отметим, что получаемые нами туннельные контакты находятся в баллистическом режиме ( $l > d$ ), что контролируется по неизменности нормальной проводимости при нулевом смещении  $G_{ZBC}$  с температурой выше  $T_c$ , в соответствии с инвариантностью  $\rho l$  для шарвиновского контакта (где  $\rho$  — удельное сопротивление материала). В качестве примера на левой вставке к рис. 7 a показана зависимость  $G_{ZBC}(T)$  для туннельного контакта на базе  $\text{BaFe}_{1.92}\text{Ni}_{0.08}\text{As}_2$  (звезды) по сравнению с проводимостью объемного монокристалла  $G_{bulk}(T)$  данного состава (линия). Хорошо видно, что в исследованном диапазоне тем-



ператур от 18.4 до 54 К изменение  $G_{\text{bulk}}(T)$  составляет около 11%, в то время как  $G_{\text{ZBC}}(T)$  остается примерно постоянным (разброс значений не превышает  $\pm 2\%$ ). Таким образом, в получаемых нами туннельных контактах отсутствует выделение тепла при прохождении измерительного тока, и наблюдаемая нелинейность  $dI(V)/dV$  также не может быть вызвана перегревом.

2) Один из возможных вариантов объяснения наблюдаемой нами нелинейности спектра динамической проводимости может заключаться в необычном взаимодействии измерительного тока с получаемой стопочной туннельной структурой. Предположим, например, что последняя состоит из двойников, причем имеется четное количество контактов, дающее одинаковое количество доменов, ориентированных как в одну, так и в другую сторону, а последовательность их двойниковых границ вдоль линии протекания тока электрически эквивалентна равному количеству  $p-n$ - и  $n-p$ -интерфейсов, подключенных последовательно. Схема подобной сборки для двух пар элементов приведена на рис. 7 с снизу. Обычно симметрия ВАХ и ее  $dI(V)/dV$ -спектра является доказательством отсутствия барьеров шоттковского типа. Но из-за симметрии указанной сборки ее ВАХ будет также симметрична, однако будет иметь особенности, связанные не с внутренними свойствами материала, а со структурой образца, что не имеет фундаментального значения.

Рассмотрим исключительный случай, в котором симметрия ВАХ не может говорить об отсутствии шоттковских барьеров. В целом, спектры, напоминающие экспериментальные по форме, можно получить при рассмотрении полученной в эксперименте туннельной структуры в виде электрической схемы, состоящей из центрального резистора  $R_0$  (отражающего нормальную «шарвинговскую» проводимость контакта), и совокупности  $2i$  штук встречно-последовательных диодов Шоттки с идеальными вольт-амперными характеристиками  $I_i(V) = d_i(e^{\beta_i V} - 1)$ , шунтированных эквивалентными сопротивлениями  $r$ .

Мы провели расчет ВАХ и соответствующих  $dI(V)/dV$ -спектров для вышеуказанной сборки из двух пар диодов (желтая кривая на рис. 7 с,  $i = 1, 2$ ) и аналогичной сборки из четырех пар диодов (синяя кривая,  $i = 1 - 4$ ). Случай трех диодов не рассматривается, поскольку при повышении напряжения смещения он дает не соответствующее эксперименту снижение проводимости туннельного контакта. Подгоночными параметрами служи-

ли величины  $d_i$  и  $\beta_i$  для получения минимумов-максимумов  $dI/dV$  на нужных смещениях. В результате, хотя общая форма расчетных кривых соответствует поведению  $dI/dV$  в исследуемом диапазоне смещений, амплитуда рассчитанной нелинейности  $(G(V_{\text{max}}) - G(V_{\text{min}}))/G(V_{\text{max}})$  даже при подборе оптимальных (реализующих максимальную амплитуду) параметров диодной сборки не превышает 2–3%, в то время как экспериментальная зависимость дает значения на уровне примерно 40% (обратите внимание, что расчетные кривые относятся к правой оси рис. 7 с, масштаб которой увеличен в 5 раз относительно левой оси для наглядности). Вообще говоря, вариацией величин  $d_i$  и  $\beta_i$  можно добиться значительной амплитуды особенностей, но тогда их положение будет в разы отличаться от наблюдаемого экспериментально. Таким образом, не удастся удовлетворительно подогнать расчетные спектры к экспериментальным, так как их амплитуды расходятся примерно на порядок, и мы исключаем эту возможность из рассмотрения.

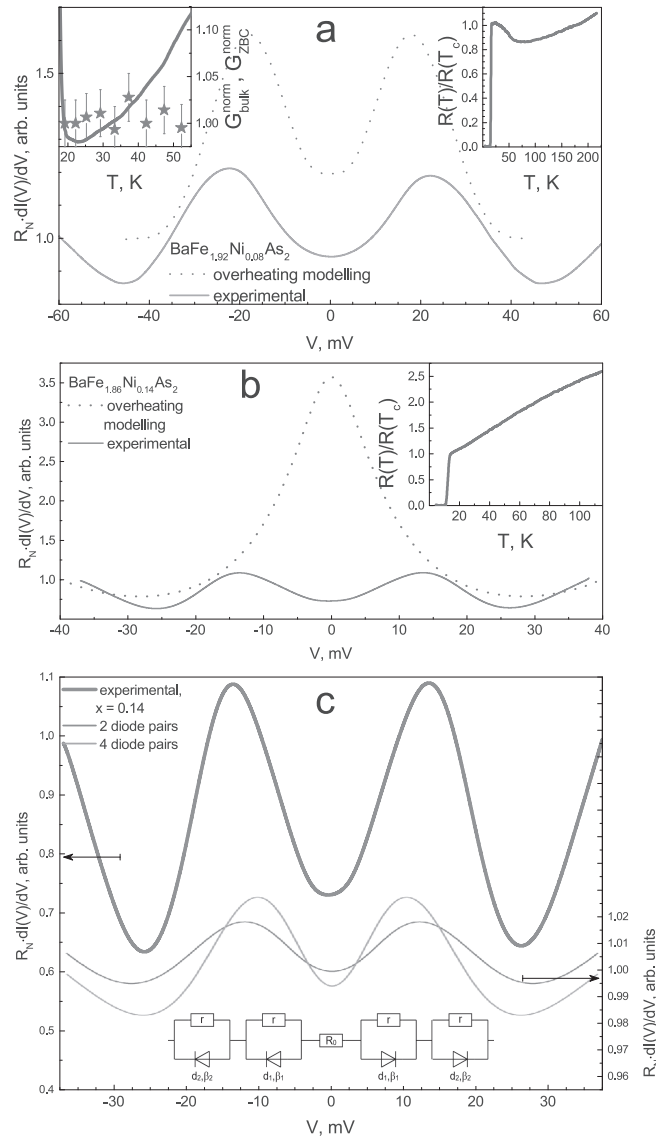
3) В соответствии с общеизвестным феноменологическим подходом Живера и Мегерле [43] ВАХ симметричного NcN-контакта низкой прозрачности зависит от распределения плотности электронных состояний металла вблизи уровня Ферми  $E_F$  и описывается следующим выражением:

$$I(V) = A' \int_{-\infty}^{\infty} N(E)N(E + eV)(f(E) - f(E + eV))dE, \quad (2)$$

где  $A'$  — геометрический фактор,  $N(E)$  — металлическая функция распределения плотности электронных состояний,  $f(E)$  — равновесное распределение Ферми–Дирака.

В квазиклассическом случае в окрестностях  $E_F$  распределение  $N(E) \approx N_0 = \text{const}$ , и получающаяся ВАХ имеет классическую линейную (омическую) форму. Если же распределение  $N(E)$  содержит нелинейности, обусловленные, например, особенностями зонной структуры соединения или перенормировкой плотности состояний на взаимодействие с характерными бозонными модами в системе, ВАХ может отклоняться от линейного закона, предоставляя экспериментальную информацию о поведении функции  $N(E)$  вблизи уровня Ферми. К примеру,  $dI(V)/dV$ -спектр, полученный на сканирующем туннельном микроскопе (СТМ), когда игла СТМ не соприкасается с поверхностью образца, отвечает случаю N'cN-контакта низкой прозрачности и пропорционален распределению  $N(E)$  в исследу-





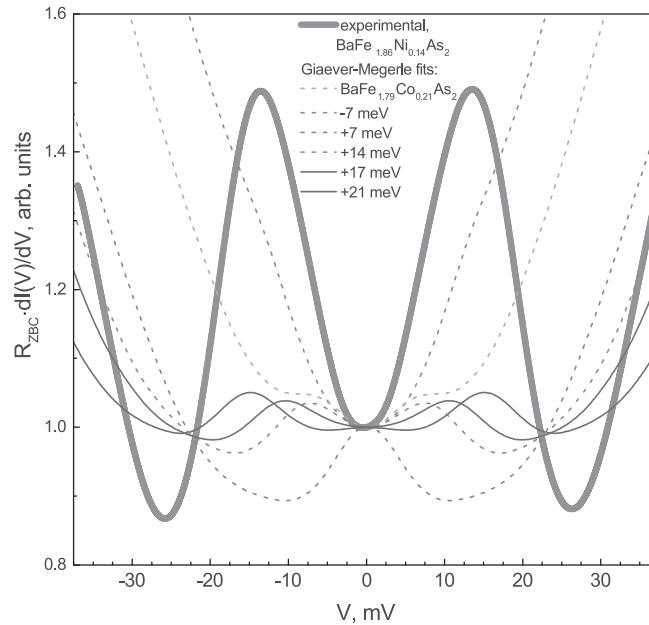
**Рис. 7.** *a* — Сравнение экспериментального  $dI(V)/dV$ -спектра туннельного контакта при  $T > T_c$  (сплошная линия) со спектром для NcN-контакта в термическом режиме, подвергнутого перегреву (штриховая линия), рассчитанного на основе формулы (1) и зависимости  $R_{bulk}(T)$  объемного образца недодопированного состава с  $x = 0.08$  (правая вставка). На левой вставке приведена зависимость объемной проводимости  $G_{bulk} \equiv 1/R_{bulk}$  (линия) и проводимости при нулевом смещении туннельного контакта (звезды).  $G_{norm} \equiv G(T)/G(T_c)$ . *b* — Аналогичные данные для образца сильно передопированного состава с  $x = 0.14$ . *c* — Сравнение экспериментального  $dI(V)/dV$ -спектра туннельного контакта при  $T > T_c$  (левая ось, сплошная линия, аналогичен приведенному на рис. *b*) с динамической проводимостью сборок (правая ось), содержащих две пары диодов (показана снизу; желтая кривая) и четыре аналогичные пары диодов (синяя кривая)

емом материале «N» в предположении монотонной  $N^*(E)$  для металла N'-иглы СТМ.

К сожалению, на данный момент авторам неизвестны теоретические расчеты для Ва-122 с замещением железа на Ni с достаточной детализацией плотности электронных состояний  $N(E)$  вблизи уровня Ферми, которая бы позволила произве-

сти расчет ВАХ в рамках подхода Живера и Мегерле. Также нам неизвестны экспериментальные работы по исследованию  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  с помощью СТМ-спектроскопии, в которых были бы получены  $dI(V)/dV$ -спектры выше  $T_c$  в большом диапазоне смещений.

В качестве грубой оценки мы взяли  $dI(V)/dV$ -спектр, полученный с помощью СТМ для родствен-



**Рис. 8.** Сравнение экспериментального  $dI(V)/dV$ -спектра туннельного контакта при  $T > T_c$  (жирная линия, аналогичен приведенному на рис. 7 *b, c*) с модельными  $dI(V)/dV$ -спектрами, рассчитанными в рамках формулы (2) на основе данных СТМ для  $\text{BaFe}_{1.79}\text{Co}_{0.21}\text{As}_2$  [44] (оранжевая штриховая линия) и со сдвигом уровня Ферми относительно данных [44]

ного  $\text{BaFe}_{1.79}\text{Co}_{0.21}\text{As}_2$  передопированного состава с электронным замещением и  $T_c \approx 13$  К (верхняя кривая выше  $T_c$  на рис. 3 *a* в [44]) в качестве  $N(E)$  и рассчитали соответствующий  $dI(V)/dV$ -спектр туннельного контакта в рамках формулы (2). Результат расчета приведен на рис. 8 штриховой оранжевой линией. Видно, что, хотя расчетная кривая содержит волнообразную структуру, она не может описать экспериментально наблюдаемую нами нелинейность в  $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$  с близкой  $T_c$ . Тем не менее, учитывая, что на положение уровня Ферми по энергии влияет не только степень замещения (количество допирующих электронов на атом Fe), но и размер элементарной ячейки (химическое давление), связанный с радиусом атома-допанта, можно попытаться воспроизвести экспериментальный спектр путем небольшого сдвига уровня Ферми (нулевого смещения) на исходной кривой  $N(E)$ , взятой из [36]; соответствующее семейство расчетных спектров приведено на рис. 8 тонкими линиями, шаг сдвига  $\Delta E = 7$  мэВ. Действительно, при поднятии  $E_F$  всего на 17 мэВ (сплошная темно-зеленая кривая на рис. 8) удастся не только получить типичную форму минимум-максимум (хотя, меньшей амплитуды), но и с хорошей точностью воспроизвести их положения  $eV_{max} \approx 14$  мэВ,  $eV_{min} \approx 24$  мэВ (сплошная линия фиолетового цвета на рис. 8), наблюдаемые в эксперименте для состава  $\text{BaFe}_{1.86}\text{Ni}_{0.14}\text{As}_2$ .

Интересно отметить, что наблюдаемая с помощью ARPES [18–20] как в нематической фазе, так и вне ее (см. рис. 5 *b* [20]) несимметричность зон, образованных  $d_{xz}$ - и  $d_{yz}$ -орбиталями Fe, может вызывать нелинейность  $N(E)$ : неэквивалентные положения потолка этих зон по энергии соответствуют двум максимумам  $N(E)$ . Согласно [18, 20], симметризация зонной структуры происходит при значительном удалении от нематической фазы. Можно ожидать появление структур максимум–минимум на  $N(E)$  (следовательно, и на  $dI(V)/dV$ -спектре туннельного контакта в нормальном состоянии) как в недо-, так и в передопированном составе, схожих с получаемыми в нашем эксперименте. Наблюдаемое нами «сближение»  $V_{max}$  и  $V_{min}$  при увеличении степени замещения (т.е. при удалении от нематической фазы) и их экстраполированное исчезновение в несверхпроводящем составе ( $x \approx 0.22$ ) также качественно согласуется с рис. 5 в [20] и, соответственно, с данным предположением о природе нелинейности  $dI(V)/dV$ -спектров в нормальном состоянии.

Для проверки вышеуказанного предположения о природе наблюдаемой нами нелинейности  $dI(V)/dV$ -спектров туннельных контактов выше  $T_c$  требуются дополнительные исследования  $N(E)$  вблизи  $E_F$  в  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  и ее эволюции вдоль фазовой диаграммы допирования методами ARPES, а также туннельной и оптической спектроскопии.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На  $I(V)$ - и  $dI(V)/dV$ -характеристиках туннельных контактов, созданных в монокристаллах пниктидов  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$  недо- и передопированного состава ( $x = 0.08, 0.12, 0.14$ ) с  $T_c \approx 12\text{--}19\text{ K}$ , воспроизводимо наблюдалась сильная остаточная нелинейность как ниже, так и выше  $T_c$ , не связанная напрямую со сверхпроводящими свойствами. Показано, что нелинейная форма  $dI(V)/dV$ -спектров, представляющая собой максимум–минимум при смещениях  $eV_{max}, eV_{min} > 2\Delta(0)$ , не может быть вызвана геометрическими резонансами или структурой конкретного монокристалла (например, образованием двойников), а имеет, напротив, объемную природу, обусловленную внутренними свойствами материала. В передопированных составах (при удалении от АФМ- и нематической фаз) положения  $eV_{max}, eV_{min}$  уменьшаются, при этом линейная экстраполяция в сторону увеличения степени замещения  $x$  предсказывает исчезновение данных особенностей и линеаризацию  $dI(V)/dV$ -спектра туннельного контакта в несверхпроводящем составе при  $x \approx 0.22$ . В качестве наиболее вероятной причины возникновения нелинейности ВАХ и  $dI(V)/dV$ -спектров предполагается наличие особенностей электронной плотности состояний  $N(E)$  вблизи уровня Ферми. Одной из интересных причин возникновения таких особенностей  $N(E)$  является наличие нематических флуктуаций и связанного с этим энергетического расщепления зон, образованных  $d_{xz}/d_{yz}$ -орбиталями железа, что было показано с помощью ARPES другими группами в  $\text{Ba-122}$ .

## ЛИТЕРАТУРА

1. Y. Kamihara, H. Hiramatsu, M. Hirano et al., J. Am. Chem. Soc. **128**, 10012 (2006).
2. J. Paglione and R. L. Greene, Nature Phys. **6**, 645 (2010).
3. J. D. Weiss, C. Tarantini, J. Jiang et al., Nature Mater. **11**, 682 (2012).
4. H. Hosono, A. Yamamoto, H. Hiramatsu, and Y. Ma, Materials Today **21**, 278 (2018).
5. X. Lu, *Phase Diagram and Magnetic Excitations of  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ : A Neutron Scattering Study*, Springer, Singapore (2017).
6. S. Ideta, T. Yoshida, I. Nishi et al., Phys. Rev. Lett. **110**, 107007 (2013).
7. D. V. Evtushinsky, V. B. Zabolotnyy, L. Harnagea et al., Phys. Rev. B. **87**, 094501 (2013).
8. A. A. Kordyuk, V. B. Zabolotnyy, D. V. Evtushinsky et al., J Supercond. Nov. Magn. **26**, 2837 (2013).
9. R. S. Dhaka, S. E. Hahn et al., Phys. Rev. Lett. **110**, 067002 (2013).
10. T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, K. S. Pervakov, and V. A. Vlasenko, JETP Lett. **118**, 514 (2023).
11. T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, K. S. Pervakov, and V. A. Vlasenko, Phys. Rev. B **104**, 174512 (2021).
12. A. V. Sadakov, A. V. Muratov, S. A. Kuzmichev et al., JETP Lett. **116**, 708 (2022).
13. Yu. A. Aleshchenko, A. V. Muratov, G. A. Ummarino et al., J. Phys.: Cond. Matter. **33**, 045601 (2021).
14. G. A. Ummarino, A. V. Muratov, L. S. Kadyrov et al., Supercond. Sci. Technol. **33**, 075005 (2020).
15. T. E. Kuzmicheva, A. V. Muratov, S. A. Kuzmichev et al., Physics-Uspekhi **60**, 419 (2017).
16. I. I. Mazin, D. J. Singh, M. D. Johannes, M. H. Du, Phys. Rev. Lett. **101**, 057003 (2008).
17. H. Kontani and S. Onari, Phys. Rev. Lett. **104**, 157001 (2010).
18. M. Yi, D. Lu, J.-H. Chu et al., PNAS **108**, 6878 (2011).
19. T. Shimojima, T. Sonobe, W. Malaeb et al., Phys. Rev. B **89**, 045101 (2014).
20. T. Sonobe, T. Shimojima, A. Nakamura et al., Sci. Rep. **8**, 2169 (2018).
21. P. Szabó, Z. Pribulová, G. Pristáš, S.L. Bud'ko, P.C. Canfield, P. Samuely, Phys. Rev. B **79**, 012503 (2009).
22. S. Onari and H. Kontani, Phys. Rev. Research **2**, 042005(R) (2020).
23. T. Timusk, B. Statt, Rep. Prog. Phys. **62**, 61 (1999).
24. S. Hufner, M. A. Hossain, A. Damascelli, G. A. Sawatzky, Rep. Progr. Phys. **71**, 062501 (2008).
25. M. V. Sadovskii, Physics-Uspekhi **44**, 515 (2001).

26. S. Onari and H. Kontani, Phys. Rev. B **100**, 020507(R) (2019).
27. A. E. Karakozov, M. V. Magnitskaya, L. S. Kadyrov, and B. P. Gorshunov, Phys. Rev. B **99**, 054504 (2019).
28. I. A. Nikitchenkov, A. D. Ilina, V. M. Mikhailov et al., Moscow Univ. Phys. Bull **78**, 521 (2023).
29. K. S. Pervakov, V. A. Vlasenko, E. P. Khlybov et al., Supercond. Sci. Technol. **26**, 015008 (2013).
30. Yu. F. Eltsev, K. S. Pervakov, V. A. Vlasenko et al., Physics-Uspekhi **57**, 827 (2014).
31. V. A. Vlasenko, O. A. Sobolevskiy, A. V. Sadakov et al., JETP Letters. **107**, 121 (2018).
32. J. Moreland and J. W. Ekin, J. Appl. Phys. **58**, 3888 (1985).
33. S. A. Kuzmichev and T. E. Kuzmicheva, Low. Temp. Phys. **42**, 1008 (2016).
34. M. Octavio, M. Tinkham, G. E. Blonder, and T. M. Klapwijk, Phys. Rev. B **27**, 6739 (1983).
35. D. Averin and A. Bardas, Phys. Rev. Lett. **75**, 1831 (1995).
36. F. Massee, S. de Jong, Y. Huang et al., Phys. Rev. B **80**, 140507(R) (2009).
37. R. Kümmel, U. Günsenheimer, and R. Nicolsky, Phys. Rev. B **42**, 3992 (1990).
38. Z. Popović, S. Kuzmichev, and T. Kuzmicheva, J. Appl. Phys. **128**, 013901 (2020).
39. T. E. Kuzmicheva, S. A. Kuzmichev, and N. D. Zhigadlo, Phys. Rev. B **100**, 144504 (2019).
40. Yu. V. Sharvin, Sov. Phys. JETP **21**, 655 (1965).
41. G. Wexler, Proc. Phys. Soc. **89**, 927 (1966).
42. Yu. G. Naidyuk and I. K. Yanson, *Point-Contact Spectroscopy*, Springer, New York (2005).
43. I. Giaever and K. Megerle, Phys. Rev. **112**, 1101 (1961).
44. F. Massee, Y. K. Huang, J. Kaas et al., EPL **92**, 57012 (2010).

# ПРОЦЕСС ПОЛНОГО НАМАГНИЧИВАНИЯ И МАГНИТНАЯ ФАЗОВАЯ ДИАГРАММА РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ ФЕРРИМАГНЕТИКОВ $R_2Fe_{14}B$

*Н. В. Костюченко<sup>a,b\*</sup>, Д. И. Плохов<sup>a,c,d\*\*</sup>, И. С. Терешина<sup>a,e</sup>, Г. А. Политова<sup>f,g</sup>,  
Ю. Б. Кудасов<sup>h,i</sup>, В. В. Платонов<sup>h,i</sup>, О. М. Сурдин<sup>h,i</sup>, Д. А. Маслов<sup>h,i</sup>, И. С. Стрелков<sup>h</sup>,  
Р. В. Козабаранов<sup>h,i</sup>, П. Ю. Катенков<sup>h,i</sup>, А. С. Коршунов<sup>h</sup>, И. В. Макаров<sup>h</sup>,  
А. И. Быков<sup>h</sup>, А. В. Филиппов<sup>h</sup>, Е. А. Бычкова<sup>h</sup>, П. Б. Репин<sup>h</sup>, В. Д. Селемир<sup>h</sup>,  
А. А. Горбачев<sup>a</sup>, А. К. Звездин<sup>a,c</sup>*

<sup>a</sup> Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук  
119991, Москва, Россия

<sup>b</sup> Московский физико-технический институт  
141701, Долгопрудный, Московская обл., Россия

<sup>c</sup> Институт общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук  
119991, Москва, Россия

<sup>d</sup> Российский университет дружбы народов им. Патриса Лумумбы  
117198, Москва, Россия

<sup>e</sup> Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова  
119991, Москва, Россия

<sup>f</sup> Институт металлургии и материаловедения им. А. А. Байкова Российской академии наук  
119334, Москва, Россия

<sup>g</sup> Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого  
195251, Санкт-Петербург, Россия

<sup>h</sup> Российский федеральный ядерный центр — ВНИИЭФ  
607188, Саров, Россия

<sup>i</sup> Саровский физико-технический институт НИЯУ МИФИ  
607186, Саров, Россия

Поступила в редакцию 10 июля 2024 г.,  
после переработки 20 августа 2024 г.  
Принята к публикации 23 августа 2024 г.

На примере интерметаллида  $Ho_2Fe_{14}B$  и его гидрида  $Ho_2Fe_{14}BH_{1.7}$  исследован процесс полного намагничивания редкоземельных ферримагнетиков системы  $R-Fe-B$ . Показано, что во внешнем магнитном поле мегагауссного диапазона в данных соединениях происходят индуцированные ориентационные переходы из ферримагнитного состояния в ферромагнитное. На основе экспериментальных данных определены величины критических полей указанных переходов. Теоретически получены магнитные фазовые диаграммы в переменных «магнитное поле — температура», рассчитаны значения констант обменного  $R-Fe$ -взаимодействия.

DOI: 10.31857/S0044451024120083

## 1. ВВЕДЕНИЕ

\* E-mail: nvkost@gmail.com  
\*\* E-mail: dmitry@plokhov.ru

В Нобелевской лекции академика В. Л. Гинзбурга [1] приводится перечень основных задач физи-



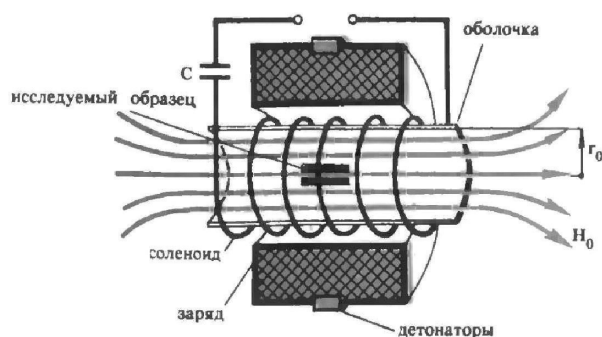


Рис. 1. Принципиальная схема магнитокумулятивного генератора МК-1

ки и астрофизики, представляющих ему наиболее важными в XXI веке, среди которых указана проблема исследования экстремального состояния вещества в сверхсильных магнитных полях. Упомянув лишь вскользь интереснейшую проблематику нейтронных звезд с исключительно сильным магнитным полем (магнитаров) — см., например, обзор [2] и недавнее сообщение [3] о рекордно большой индукции магнитного поля  $1.6 \cdot 10^9$  Тл, создаваемого бинарной звездной системой, — сосредоточимся на исследованиях свойств магнитных материалов в полях мегагауссного диапазона.

Распространенным методом генерации сильных и сверхсильных магнитных полей является магнитокумулятивный метод, который основывается на идеях академика А. Д. Сахарова, высказанных еще в начале 50-х годов прошлого века [4].

Суть метода состоит в следующем (рис. 1): при разряде конденсаторной батареи на соленоид-лайнер внутри него возникает магнитный поток. Подрыв заряда взрывчатого вещества, окружающего лайнер, синхронизован так, что под действием продуктов взрыва он приходит в движение, когда начальное магнитное поле достигает максимума. Лайнер при сжатии к центру сжимает магнитный поток, а поскольку поток сохраняется приблизительно постоянным, индукция магнитного поля внутри оболочки увеличивается. Значения индукции генерируемых таким образом магнитных полей могут достигать величин, превышающих 1000 Тл [5, 6].

В России магнитокумулятивный метод генерации сильных и сверхсильных магнитных полей на протяжении многих лет весьма успешно развивается в РФЯЦ ВНИИЭФ (г. Саров Нижегородской обл.), где был получен импульс магнитного поля

с рекордной индукцией 2800 Тл [5]. Вопросы, связанные с разработкой и применением магнитокумулятивных генераторов, подробно освещаются в монографии [7], а физическим исследованиям в сверхсильных магнитных полях посвящен обзор [8].

Магнитокумулятивный метод позволяет проводить систематические исследования экстремального состояния вещества, необходимые для самых различных областей физики. В частности, в физике твердого тела этот метод позволяет фактически непосредственно получать информацию о важнейших микроскопических параметрах магнитоупорядоченных материалов, в первую очередь, обменных констант (внутри- и междоузельных обменных взаимодействий), параметров кристаллического поля, констант магнитокристаллической анизотропии и т.п., на основе изучения не только магнитных фазовых переходов, но и процессов полного намагничивания, включающих, к примеру, переход ферромагнитных материалов в ферромагнитное состояние, индуцированное внешним магнитным полем [9, 10], причем без необходимости прибегать к спектроскопическим экспериментам, а также к модельным, громоздким и трудоемким методам теоретического исследования, например, с использованием первопринципных расчетов.

В настоящей работе исследованы процессы намагничивания интерметаллида  $\text{Ho}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  и его гидроксида  $\text{Ho}_2\text{Fe}_{14}\text{B}(\text{OH})_{1.7}$  в магнитных полях мегагауссного диапазона, а также получены магнитные фазовые диаграммы этих соединений в переменных «магнитное поле — температура». Выбор для данного исследования тяжелого редкоземельного металла гольмия определяется величиной магнитного момента иона гольмия ( $\mu_{\text{Ho}} = 10\mu_B$ , где  $\mu_B$  — магнетон Бора), который является наибольшим среди всего ряда редкоземельных ионов, что приводит к реализации вынужденного ферромагнитного состояния с наибольшей возможной намагниченностью среди интерметаллидов  $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  (здесь R — редкоземельный элемент).

В разд. 2 статьи приведены некоторые существенные для изложения сведения обзорного характера об интерметаллидах типа  $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . В разд. 3 описан процесс синтеза исследуемых образцов и их последующей аттестации с целью контроля структурно-фазового состояния. Раздел 4 посвящен проведенным экспериментам и особенностям измерительных методик, применяемых в экспериментах с магнитокумулятивным генератором МК-1 в сверхсильных магнитных полях. В разд. 5 предложена теоретическая модель процесса пол-

ного намагничивания, сформулирована методика расчета фазовых диаграмм в сильных магнитных полях, даны количественные оценки величин критических магнитных полей и констант обменного взаимодействия. В Заключении перечислены основные результаты и сделаны выводы по проведенным экспериментально-теоретическим исследованиям.

## 2. ИНТЕРМЕТАЛЛИДЫ $R_2Fe_{14}B$

На сегодняшний день изучению свойств магнитотвердых материалов системы R–Fe–B и их гидридов уделяется значительное внимание [11], поскольку постоянные магниты на основе  $Nd_2Fe_{14}B$ , важнейшего представителя соединений указанного семейства, являются наиболее эффективными. Они широко используются в различных приборах и устройствах и незаменимы при разработке и развитии ряда новых современных технологий [12, 13].

В настоящее время весьма активно ведется поиск и исследование многокомпонентных составов на основе соединения  $Nd_2Fe_{14}B$  с помощью замещений как в подрешетке неодима, так и в подрешетке железа. Известно, что частичное замещение атомов Fe на атомы Co в соединениях  $R_2Fe_{14}B$  приводит к повышению температуры Кюри. Такой же эффект оказывает внедрение атомов легких элементов, например, водорода [14, 15]. Частичная замена атомов Nd на атомы Dy существенно увеличивает коэрцитивную силу магнитотвердых материалов [16], в то время как легирование Ho значительно улучшает температурную стабильность магнитов [17]. Замещение атомов Nd атомами Pr снижает температуру спонтанного спин-ориентационного фазового перехода [18], а частичное замещение на Eu приводит к заметному усилению анизотропии редкоземельной подрешетки, что также способствует достижению высококоэрцитивного состояния [19]. Подобные примеры можно продолжить. Целью таких замещений и внедрений является получение материалов с комплексом заранее заданных функциональных свойств и характеристик, таких как температура Кюри, температура спин-ориентационного фазового перехода, намагниченность насыщения, остаточная намагниченность, константы обмена и магнитокристаллической анизотропии.

С помощью нейтронографических исследований было установлено [20], что интерметаллиды семейства  $R_2Fe_{14}B$  обладают тетрагональной структурой пространственной группы  $P4_2/mnm$  (рис. 2). Элементарная ячейка содержит 4 формульных едини-

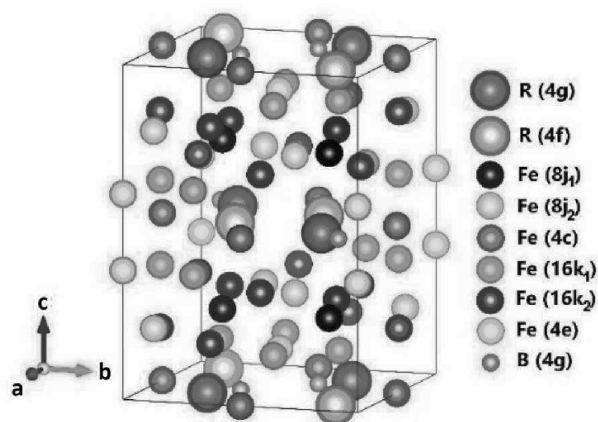


Рис. 2. Структура кристаллов редкоземельных интерметаллидов  $R_2Fe_{14}B$  (схематическое изображение)

цы, т.е. всего 68 атомов. Атомы железа занимают шесть различных кристаллографических позиций ( $4e$ ,  $4c$ ,  $8j_1$ ,  $8j_2$ ,  $16k_1$ ,  $16k_2$ ), редкоземельные атомы — две ( $4f$ ,  $4g$ ), атомы бора — одну ( $4f$ ).

При обычных условиях ряд представителей семейства  $R_2Fe_{14}B$  и их гидридов являются двухподрешеточными ферримагнетиками, в которых сильные и сверхсильные магнитные поля индуцируют ориентационные фазовые переходы, сопровождающиеся разворотом магнитных подрешеток железа и редкоземельного металла, в результате чего соединения переходят в ферромагнитное состояние, т.е. завершают процесс намагничивания в сверхсильном магнитном поле.

Значения критических полей переходов, при которых начинается разворот подрешеток и происходит их параллельное выстраивание в направлении приложенного внешнего магнитного поля, принадлежат мегагауссному диапазону из-за сильного обменного взаимодействия между редкоземельной подрешеткой и подрешеткой железа (межподрешеточный R–Fe-обмен).

Актуальность и перспективность исследований соединений типа  $R_2Fe_{14}B$  в сильных и сверхсильных внешних магнитных полях обуславливается тем, что стандартное лабораторное оборудование, позволяющее выполнять измерения в магнитных полях с индукцией до 30–60 Тл, а в исключительных случаях и до 100 Тл, как правило, не позволяет выявить все особенности поведения намагниченности в этих соединениях, особенно в случае, когда в качестве редкоземельного металла используются элементы иттриевой группы (от Gd до Tm), вследствие большой величины эффективных полей межподрешеточного

обменного R–Fe-взаимодействия и значительной по величине константы магнитокристаллической анизотропии.

Лишь в очень сильных магнитных полях (зачастую с индукцией несколько сотен тесла) в соединениях типа  $R_2Fe_{14}B$  с тяжелыми редкоземельными металлами возможно наблюдать процесс полного намагничивания. Как уже отмечалось выше, столь сильные магнитные поля нарушают ферри-магнитную структуру. Магнитные моменты отдельных подрешеток (двух, трех и более — в многокомпонентных составах) поворачиваются относительно друг друга, а также относительно направления внешнего магнитного поля. На получаемых экспериментальных полевых зависимостях намагниченности, как правило, наблюдаются изменения величины намагниченности (плавные или скачкообразные), т. е. происходят спин-ориентационные переходы, индуцированные внешним магнитным полем. Процесс намагничивания считается полным (законченным), когда магнитные моменты обеих подрешеток ориентируются параллельно направлению приложенного внешнего магнитного поля и для ферри-магнетика реализуется вынужденное ферромагнитное упорядочение.

Анализ всех особенностей полевых зависимостей намагниченности соединений типа  $R_2Fe_{14}B$ , наблюдаемых в сверхсильных магнитных полях, дает ценную информацию об основных магнитных параметрах этих интерметаллидов. Для соединений типа  $R_2Fe_{14}B$ , включая многокомпонентные составы, такие параметры в настоящее время не определены для многих составов с тяжелыми редкоземельными металлами. Точное определение этих величин имеет большое фундаментальное и практическое значение, в том числе и для установления особенностей поведения намагниченности редкоземельной подрешетки и влияния ее вклада на магнитные свойства указанных соединений.

### 3. МЕТОДИКА ПОЛУЧЕНИЯ ОБРАЗЦОВ ИНТЕРМЕТАЛЛИДОВ И ИХ ГИДРИДОВ

Исходный образец интерметаллида  $Ho_2Fe_{14}B$  получался сплавлением исходных элементов высокой чистоты (R — 99.9 %, Fe — 99.99 %, B — 99.99 %) в индукционной печи «Донец-1» в атмосфере очищенного аргона в тиглях из оксида алюминия. Из-за высокой температуры плавления бора процесс осуществлялся в два этапа. На первом этапе предварительно сплавились между собой лишь железо и

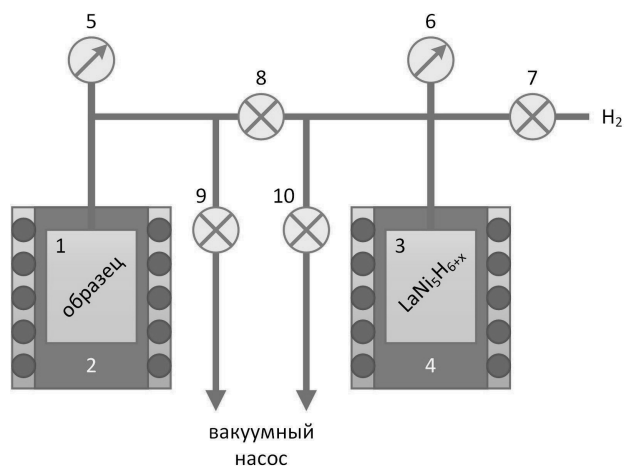


Рис. 3. Принципиальная схема установки для гидрирования интерметаллидов R–Fe–B: 1 — гидрируемый образец, 2 и 4 — вакуумные печи, 3 — гидрид  $LaNi_5H_{6+x}$ , 5 и 6 — манометры, 7–10 — вентили

бор, формируя состав  $Fe_2B$ . На втором этапе данный состав сплавлялся вместе с редкоземельным металлом и оставшимся железом.

Синтез гидрида  $Ho_2Fe_{14}BH_{1.7}$  проводился на специальном оборудовании. На рис. 3 представлена принципиальная схема соответствующей экспериментальной установки.

Для гидрирования образцов  $Ho_2Fe_{14}B$  использовался водород высокой чистоты (содержание примесей не более  $10^{-3}$  % по массе), получаемый при разложении гидрида  $LaNi_5H_{6+x}$  путем непрямого нагрева реактора 3 в индукционной печи 4 (рис. 3). Диаграмма процесса, который состоял из двух этапов, а именно, процесса активации поверхности образцов, а также процесса гидрирования, представлена на рис. 4. Количество поглощенного водорода определялось расчетным путем с помощью уравнения Ван дер Ваальса, а также проверялось экспериментально по методу сжигания. В данной работе был получен гидрид  $Ho_2Fe_{14}BH_{1.7}$  с относительно небольшой концентрацией водорода.

Ранее удавалось получить гидрид  $Ho_2Fe_{14}BH_{5.5}$  с максимально возможным числом атомов водорода в расчете на формульную единицу соединения для данного типа кристаллической структуры [21, 22], процесс его полного намагничивания в сверхсильных магнитных полях исследован в работе [23].

При гидрировании поликристаллических образцов исходный гомогенизированный сплав растирался в ацетоне в агатовой ступке во избежание окис-

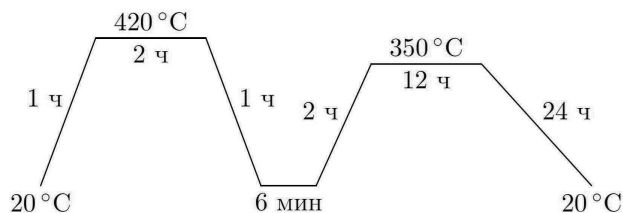


Рис. 4. Диаграмма процессов активации и гидрирования при получении  $\text{No}_2\text{Fe}_{14}\text{BH}_{1.7}$

ления порошка при измельчении. Полученный мелкодисперсный порошок в тигле из оксида алюминия помещался (рис. 3) в реактор 1 из нержавеющей стали, который затем откачивался до высокого вакуума с помощью вакуумного насоса. Процесс откачки проводился при комнатной температуре и продолжался 12 ч. Во время откачки система проверялась на герметичность. Процессу собственно гидрирования предшествовал процесс активации, необходимый для дегазации образца (рис. 4). Активация осуществлялась в динамическом вакууме, при непрямом нагреве реактора 1 с образцом в индукционной печи 2. Заданная температура поддерживалась с помощью контроллера температуры.

Экспериментально был выбран следующий порядок активации и гидрирования: сначала реактор в течение 1 ч нагревался до температуры 420 °C, которая затем поддерживалась неизменной до стабилизации давления в системе (приблизительно 2 ч), после чего в течение 1 ч осуществлялось охлаждение до комнатной температуры. Конечное давление в системе не превышало 0.4 мПа. Реактор изолировался от системы откачки, и в него вводился водород высокой чистоты. Непосредственно при гидрировании образец выдерживался при температуре 350 °C и давлении 1 МПа в течение 12 ч. Наконец, вся система медленно охлаждалась до комнатной температуры.

Анализ проведенных рентгеноструктурных исследований [21, 22, 24] позволяет осуществлять контроль структурно-фазового состояния синтезируемых соединений и определять значения параметров  $a$  и  $c$  элементарной ячейки и ее объема  $V$  как исходного соединения, так и его гидридов (табл. 1). Установлено, что внедрение атомов водорода не изменяет тип кристаллической решетки, однако приводит к ее анизотропному расширению.

Таблица 1. Параметры элементарной ячейки кристалла интерметаллида  $\text{No}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  и его гидридов

Соединение	$a$ , нм	$c$ , нм	$V$ , нм <sup>3</sup>	$\Delta V/V$
$\text{No}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$	0.8752	1.1991	0.9185	—
$\text{No}_2\text{Fe}_{14}\text{BH}_{1.7}$	0.8789	1.2042	0.9302	0.0128
$\text{No}_2\text{Fe}_{14}\text{BH}_{5.5}$	0.8873	1.2150	0.9566	0.0415

4. ИЗМЕРЕНИЯ НА МК-1 В СВЕРХСИЛЬНЫХ МАГНИТНЫХ ПОЛЯХ

Для создания магнитных полей со значением индукции до 600 Тл использовался «малый» магнитокумулятивный генератор типа МК-1 [7, 25]. Начальное магнитное поле ( $B \approx 17$  Тл) создавалось в тонкостенном многослойном многозаходном соленоиде разрядом конденсаторной батареи ( $W \approx 3$  МДж). Далее захваченный проводящим цилиндром магнитный поток сжимался продуктами взрыва до диаметра порядка 10 мм. Время сжатия потока составляет приблизительно 16 мкс.

В данном эксперименте основное внимание уделялось гладкости импульса магнитного поля и эффективности использования полезного объема, поэтому генератор МК-1 был снаряжен в бескасадном варианте. Это позволило в одном опыте проводить измерения намагниченности сразу четырех образцов. Полезный объем при максимальном значении магнитного поля представлял собой цилиндр с ориентировочными размерами: диаметр 20 мм, длина 100 мм.

Воспроизводимость магнитного поля от опыта к опыту была достаточно высока. На рис. 5 и 6 приведены характерные осциллограммы для индукционного датчика производной магнитного поля и зависимости индукции магнитного поля от времени. Схематическое изображение измерительного узла представлено на рис. 7. Для регистрации производной магнитного поля использовался набор индукционных датчиков с различной чувствительностью. Это позволило измерить индукцию магнитного поля с точностью не хуже 5 % во всем диапазоне работы генератора МК-1.

В целях исключения диамагнитного отклика за счет индукционных токов в диапазоне с большими значениями производных магнитного поля (от 10 до 150 Тл/мкс) перед измерениями исследуемые образцы измельчались в порошок и помещались в мат-



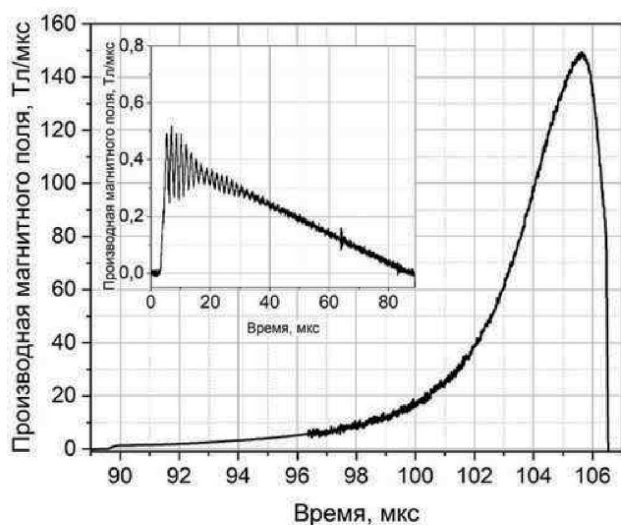


Рис. 5. Характерная для МК-1 скорость изменения индукции магнитного поля, на вставке — то же для начального поля

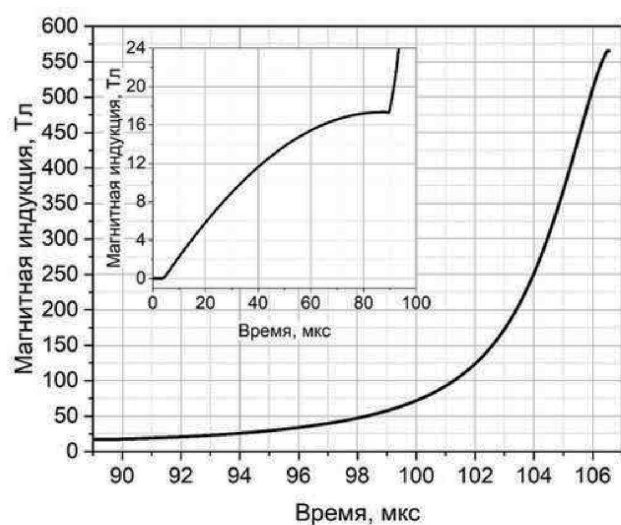


Рис. 6. Характерная для МК-1 зависимость индукции магнитного поля от времени, на вставке — индукция начального магнитного поля

рицу из эпоксидного компаунда. Текстурирование образцов не выполнялось.

Для охлаждения образцов использовался проточный гелиевый криостат, разработанный с учетом специфики работы генератора МК-1. Прежде всего, в конструкции криостата нельзя было использовать проводящие материалы, в которых возникают большие индукционные токи и пондермоторные силы. Также он должен быть недорогим и простым в изготовлении ввиду невозможности сохранения во взрывном эксперименте.

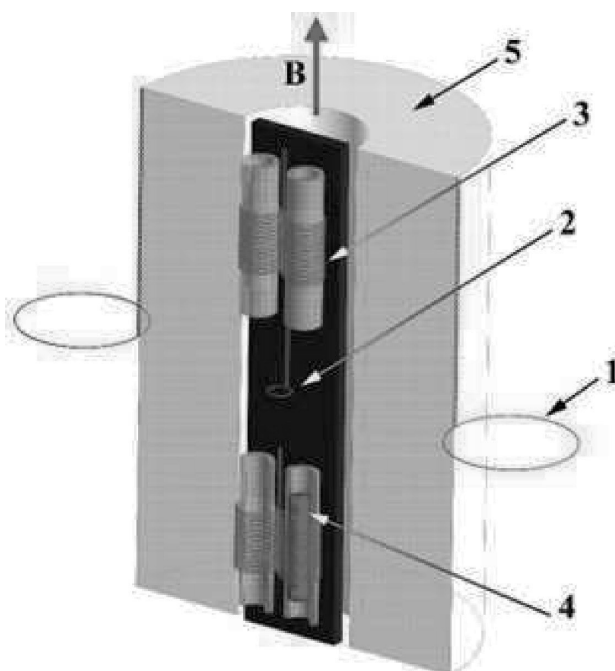


Рис. 7. Измерительный узел: 1 и 2 — индукционные датчики начального и усиленного поля, 3 — компенсационные датчики, 4 — образец, 5 — криопровод

Измерение намагниченности исследуемых образцов осуществлялось хорошо скомпенсированной парой индукционных катушек со степенью раскомпенсации не хуже 1 %. Детальное описание данного метода измерения представлено в работе [26]. Катушки диаметром  $d = 3$  мм и числом витков  $N = 20$  обладали встречной намоткой по отношению к внешнему магнитному полю. Специальный способ намотки позволяет значительно снизить суммарное электрическое напряжение между витками датчика, возникающее из-за больших скоростей изменения магнитного поля на последней стадии работы генератора.

Поскольку измерительные катушки и образцы уничтожаются в ходе каждого взрывного эксперимента, измерения являются однократными, при этом не удается полностью скомпенсировать сигнал от магнитного поля. Таким образом, сигнал с измерительных катушек может быть представлен в виде

$$U(t) \propto \frac{dM}{dt} + K \frac{dH}{dt},$$

где первый член соответствует «полезному» сигналу, а второй — сигналу раскомпенсации катушек ( $K$  — коэффициент раскомпенсации). При выбранном режиме работы МК-генератора раскомпенсация является монотонной функцией и не сказывается на измерениях при изучении фазовых переходов перво-



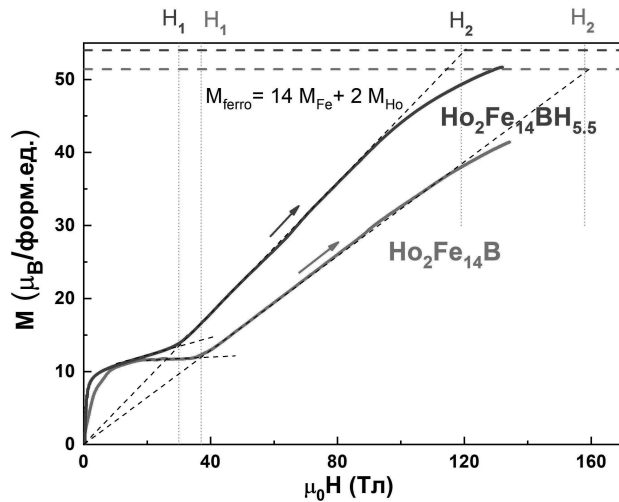


Рис. 8. Экспериментальные кривые намагничивания порошковых образцов редкоземельного интерметаллида  $\text{Ho}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  и его гидрида  $\text{Ho}_2\text{Fe}_{14}\text{BH}_{5.5}$  с максимальным содержанием водорода при температуре  $T = 5$  К (использованы данные измерений, выполненных с помощью одновиткового соленоида [24])

го рода, когда намагниченности меняются скачком в малом интервале полей, например, при спин-флоп-переходах.

В данной работе основное внимание уделялось регистрации полей насыщения, и в этом случае уделялось большое внимание хорошей компенсации катушек. Из нескольких датчиков выбирались только те, в которых коэффициент раскомпенсации  $K$  был минимален. Дополнительный учет раскомпенсации и смещения нулевой линии за счет добавки  $dH/dt$  можно провести по известным данным измерения намагниченности этих образцов в малых магнитных полях.

Результаты выполненных измерений — кривые намагничивания  $\text{Ho}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  и его гидридов — представлены на рис. 8 и 9.

## 5. ПРОЦЕСС ПОЛНОГО НАМАГНИЧИВАНИЯ И МАГНИТНАЯ ФАЗОВАЯ ДИАГРАММА

Известно [27,28], что соединение  $\text{Ho}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , а также его гидриды при обычных условиях являются двухподрешеточными ферромагнетиками, магнитная структура которых определяется сильным обменным взаимодействием между атомами железа и менее сильным обменным взаимодействием между атомами подрешетки железа и редкоземельной под-

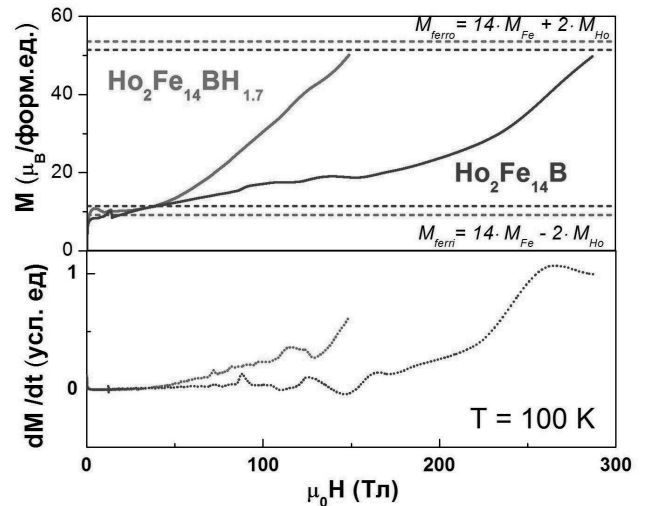


Рис. 9. (Сверху) экспериментальные кривые намагничивания порошковых образцов редкоземельного интерметаллида  $\text{Ho}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  и его гидрида  $\text{Ho}_2\text{Fe}_{14}\text{BH}_{1.7}$  с промежуточным содержанием водорода; (снизу) производная намагниченности по времени  $dM/dt$ . Штриховыми линиями показаны величины намагниченности в ферримагнитной  $M_{ferr} = 14M_{\text{Fe}} - 2M_{\text{Ho}}$  и вынужденной ферромагнитной  $M_{ferro} = 14M_{\text{Fe}} + 2M_{\text{Ho}}$  фазах при  $T \rightarrow 0$  К

решетки. Обменное взаимодействие между редкоземельными ионами является наиболее слабым, и этим взаимодействием можно пренебречь.

При этом для редкоземельных ионов энергия обменного взаимодействия с ионами железа велика по сравнению с энергией магнитной анизотропии, поэтому редкоземельную подрешетку можно рассматривать как совокупность ионов, магнитные моменты которых выстраиваются вдоль направления эффективного магнитного поля  $\mathbf{H}_R$ , включающего внешнее  $\mathbf{H}$  и обменное  $\mathbf{H}_{ex}$  магнитные поля:

$$\mathbf{H}_R = \mathbf{H} + \mathbf{H}_{ex} = \mathbf{H} - \lambda \mathbf{M}_{\text{Fe}}.$$

В этом выражении  $\lambda > 0$  — константа обменного взаимодействия, а  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  — намагниченность железной подрешетки.

Зависимость намагниченности  $M_R$  редкоземельной подрешетки от эффективного магнитного поля  $H_R$  и температуры  $T$ , вообще говоря, определяется спектром редкоземельного иона в кристаллическом поле. Однако вклад в энергию кристалла за счет взаимодействия иона с внешним сверхсильным магнитным полем значительно превышает энергию, обусловленную взаимодействием иона с кристаллическим полем, поэтому явный вид зависи-

мости  $M_R(T, H_R)$  можно аппроксимировать функцией Бриллюэна:

$$M_R = M_{0R} B_J \left( \frac{\mu_R H_R}{k_B T} \right).$$

Здесь  $M_{0R}$  — намагниченность редкоземельной подрешетки при нулевой температуре,  $J$  — квантовое число полного углового момента редкоземельного иона.

Выражение для энергии анизотропии  $W_A$  кристалла в целом может быть представлено в одноионном приближении, когда железная и редкоземельная подрешетки вносят независимые вклады:

$$W_A = W_{Fe} + W_R = W_{Fe}(\theta, \varphi) + W_R(\theta', \varphi'),$$

где  $\theta, \varphi, \theta', \varphi'$  — углы, определяющие ориентацию намагниченностей подрешеток по отношению к кристаллографическим осям. В случае рассматриваемых одноосных кристаллов в выражении для энергии анизотропии в первом приближении можно ограничиться лидирующим членом

$$W_A(\theta, \varphi) = -K_1 \sin^2 \theta, \quad (1)$$

записанным в системе координат, оси  $x$  и  $z$  которой направлены соответственно вдоль кристаллографических  $a$ - и  $c$ -осей. Константа анизотропии  $K_1$  положительна.

Энергия одноосной анизотропии (1) отражает существование в монокристаллическом образце выделенного направления, вдоль которого выстраиваются намагниченности подрешеток. Процесс полного намагничивания в монокристалле теоретически рассмотрен в работе [23]. Однако в исследованных в настоящей работе нетекстурированных поликристаллических порошковых образцах, состоящих из большого числа кристаллитов, оси легкого намагничивания которых случайным образом ориентированы в пространстве, такое выделенное направление отсутствует, что отвечает изотропной среде, поэтому в выражении (1) следует положить  $K_1 = 0$ . Данное обстоятельство позволяет также пренебречь температурной зависимостью константы анизотропии.

Помимо этого, энергия анизотропии относительно невелика по сравнению с энергией обменного взаимодействия [29–31]. В работе [32] было показано, что учет анизотропии приводит к незначительному пересмотру оценок критических полей. В настоящей работе исследуется поведение соединения в неколлинеарной фазе в сверхсильных полях, доминирующей является обменная энергия, а вклад анизотропии является поправочным.

Необходимо также указать на следующее обстоятельство: в действительности наблюдаемая зависимость константы анизотропии для соединений  $\text{Ho}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  носит немонотонный характер [33], она максимальна при температуре около 150 К и с понижением температуры быстро убывает практически до нуля. С этой особенностью связано наличие спинного ориентационного перехода [33, 34], происходящего при температуре  $T = 57.6$  К, когда намагниченности подрешеток становятся неколлинеарными (угол  $\Delta\theta$  между намагниченностью образца и  $c$ -осью достигает наибольшего значения  $23^\circ$  при  $T \rightarrow 0$  К). Количественно этот эффект объясняется действием кристаллического поля на ионы гольмия [35].

В сверхсильном магнитном поле вклад кристаллического поля уже не является доминирующим, поэтому в первом приближении можно ограничиться рамками рассматриваемой модели двухподрешеточного ферримагнетика. В пользу этого свидетельствуют полученные нами данные процесса полного намагничивания: уже в полях около 20 Тл происходит выход на ферримагнитное насыщение (рис. 8 и 9), при этом актуальные рассматриваемые поля существенно выше.

Для анализа поведения намагниченностей подрешеток во внешнем магнитном поле можно использовать термодинамический подход, описанный в монографии [36]. Для этого свободную энергию соединения (в расчете на единицу объема), с учетом всех сделанных выше замечаний, представим в виде

$$F = -M_{Fe} H \cos \theta - \int_0^{H_R} M_R dH_R - K_1 \sin^2 \theta. \quad (2)$$

В настоящей работе будем рассматривать случай внешнего магнитного поля, направленного вдоль начального направления ферримагнитного насыщения, при этом величина эффективного магнитного поля

$$H_R = \sqrt{H_{ex}^2 + H^2 - 2H_{ex}H \cos \theta}.$$

Равновесные значения угла  $\theta$  можно определить, пользуясь необходимым условием минимума свободной энергии (2),

$$\frac{\partial F}{\partial \theta} = M_{Fe} H \sin \theta - M_R \frac{dH_R}{d\theta} - K_1 \sin 2\theta = 0. \quad (3)$$

В нулевом внешнем поле это уравнение имеет очевидные решения  $\theta = 0$  и  $\theta = \pi$ , отвечающие достаточному условию минимума  $\partial^2 F / \partial \theta^2 > 0$ .

Вместе с тем при наложении внешнего магнитного поля в некотором диапазоне его индукции при

определенных температурах существуют решения  $\theta \neq 0$  и  $\theta \neq \pi$ , отвечающие неколлинеарной фазе, т.е. фазе, в которой намагниченности подрешеток отклоняются от направления приложенного магнитного поля. Установим условия реализации такой фазы.

Из уравнения (3) непосредственно следует, что неколлинеарная фаза описывается соотношением

$$M_{\text{Fe}}H - \frac{\lambda M_{\text{R}}H}{H_{\text{R}}}B_J \left( \frac{\mu_{\text{R}}H_{\text{R}}}{k_{\text{B}}T} \right) + 2K_1 \cos \theta = 0, \quad (4)$$

причем границы области ее существования по магнитному полю могут быть получены, если в этом соотношении положить  $\cos \theta = 1$ . Уравнение (4) имеет решения только при условии, что температура  $T$  не превышает некоторое предельное значение  $T_{\text{max}}$ , которое можно оценить по формуле

$$T_{\text{max}} = \frac{J+1}{3J} \frac{M_{\text{R}}}{M_{\text{Fe}}} \frac{\mu_{\text{R}}H_{\text{ex}}}{k_{\text{B}}}.$$

Если температура меньше указанной максимальной, то существование неколлинеарной фазы возможно, если индукция внешнего магнитного поля больше величины  $H_1$ , но меньше величины  $H_2$ , называемых соответственно первым (нижним) и вторым (верхним) критическими значениями индукции. Эти величины могут быть определены аналитически из уравнения (4).

Данные измерений [24, 32] кривых полного намагничивания в сверхсильных магнитных полях, однако, позволяют непосредственно определить величину первого критического поля и аппроксимировать величину второго. На рис. 8 и 9 представлены полученные экспериментально кривые намагничивания рассматриваемого интерметаллида и его гидридов при температурах 5 К и 100 К в диапазоне внешних магнитных полей до 300 Тл.

По данным эксперимента возможно с достаточной точностью, используя уравнение (4), рассчитать значения констант исследуемого материала и его гидридов. На рис. 8 тонкие штриховые линии отражают теоретический ход кривой намагничивания во всех трех реализуемых фазах: горизонтальные участки отвечают ферри- и ферромагнитной фазам, наклонный участок — неколлинеарной фазе. Точки излома (в реальности — резкого изменения наклона кривых) соответствуют критическим полям  $H_1$  и  $H_2$ .

Рис. 9 использовался для определения величин критических полей для гидрида с промежуточным содержанием водорода. На этом же рисунке приведены измерения кривой намагничивания в полях до

**Таблица 2.** Материальные константы ферритмагнетиков  $\text{Ho}_2\text{Fe}_{14}\text{VH}_x$  ( $H_1$  и  $H_2$  при  $T \rightarrow 0$  К)

$x$	$H_1$ , Тл	$H_2$ , Тл	$H_{\text{ex}}$ , Тл	$T_{\text{max}}$ , К
0	37	159	98	157
1.7	35	147	91	142
5.5	30	120	75	111

300 Тл при 100 К, но эти данные менее надежны для проведения числовых оценок, поскольку в больших полях накапливается значительная ошибка измерений. Именно с этим связано противоречащее теоретической модели изменение градиента  $dM/dH$  в неколлинеарной фазе  $H_1 < H < H_2$  по мере возрастания индукции магнитного поля.

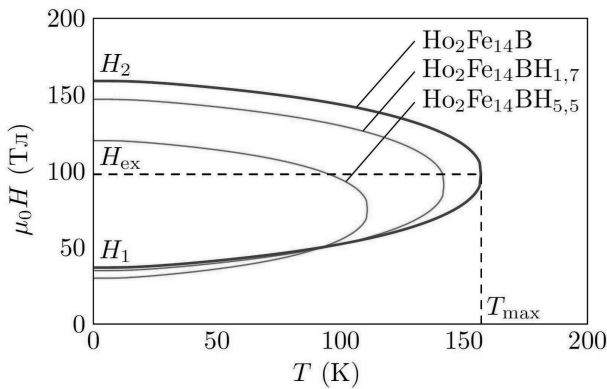
Числовые оценки критических полей  $H_1$  и  $H_2$ , пересчитанных на нулевую температуру, и параметров изучаемых соединений приведены в табл. 2. Для негидрированного состава  $\text{Ho}_2\text{Fe}_{14}\text{V}$  величина обменного поля равна 98 Тл. Заметим, что гидрирование интерметаллида существенно влияет на его физические характеристики. Так, заметно снижается величина эффективного обменного поля, а вместе с тем и критическая температура реализации неколлинеарной фазы.

Приведем в целях сравнения также данные об оценках величины эффективного обменного поля по различным источникам.

В работе [33] константа междоузельного обмена оценивалась по данным измерений температурной зависимости намагниченности монокристаллических образцов. Авторы получили, что энергия обменного взаимодействия ионов железа с редкоземельными ионами равна  $1.44 \cdot 10^{-22}$  Дж, что приводит к оценке  $H_{\text{ex}} \approx 15$  Тл.

В работе [37] приводится описание кривых намагничивания монокристаллов вдоль разных кристаллографических направлений на основе гамильтониана кристаллического поля с учетом обменного взаимодействия. Авторы дают усредненную оценку для обменного поля  $2\mu_{\text{B}}H_{\text{ex}}/k_{\text{B}} = 310$  К, т.е.  $H_{\text{ex}} = 231$  Тл (257 Тл для ионов  $\text{Ho}^{3+}$  в  $f$ -положениях, а в  $g$ -положениях — 205 Тл).

Наконец, анализ кривых намагничивания в сильных магнитных полях (до 18 Тл), проведенный в работе [34], дает наиболее близкую к полученной нами величине обменного поля: 136 Тл.



**Рис. 10.** Температурные зависимости критических полей  $H_1$  и  $H_2$  для  $\text{Ho}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  (синяя кривая) и его гидридов (красные кривые): при  $H < H_1$  — ферримагнитная фаза, при  $H > H_2$  — ферромагнитная фаза, при  $H_1 < H < H_2$  — неколлинеарная фаза

Мы видим, что в литературе имеются противоречивые сведения о величине эффективного обменного поля, поэтому вопрос о ее определении остается актуальным. В цитированных выше работах эта величина рассматривается как подгоночный параметр, поэтому, опираясь лишь на измерения в достаточно слабых полях, нельзя получить для нее надежную оценку. Однако с помощью исследований кривой полного намагничивания удастся выполнить, в сущности, прямое измерение обменной константы с достаточной степенью точности. Тем не менее мы полагаем, что дальнейшие измерения на монокристаллических образцах с построением более точной (хотя и существенно более громоздкой теории процесса полного намагничивания) необходимы, однако, это выходит за рамки решаемых в настоящей работе задач.

Количественно температурные зависимости критических полей  $H_1$  и  $H_2$  во всем интервале температур  $0 < T < T_{\max}$  могут быть получены путем численного решения уравнения (4). Графики этих зависимостей показаны на рис. 10.

Фактически эти графики представляет собой фазовые  $H$ - $T$ -диаграммы исследуемых соединений в сверхсильных магнитных полях. Если индукция внешнего магнитного поля не превышает нижнего критического значения, то интерметаллид находится в ферримагнитном состоянии, когда намагниченности редкоземельной и железной подрешеток противоположены. При достижении нижней критической индукции поля происходит фазовый переход, реализуется неколлинеарная фаза, в которой

намагниченности подрешеток отклоняются от оси ферримагнитного насыщения, совершая переориентацию к ферромагнитному упорядочению, реализующемуся при индукции поля, превышающей верхнее критическое значение. Описанный процесс является процессом полного намагничивания. Заметим, что по мере повышения температуры нижнее критическое поле возрастает, а верхнее — убывает, и они становятся равными друг другу при  $T \rightarrow T_{\max}$ .

По поведению свободной энергии при переходе между коллинеарной и неколлинеарной фазами можно судить о типе фазового перехода. В самом деле, вблизи точки перехода угол  $\theta$  мал, поэтому, раскладывая свободную энергию в ряд, получим

$$F = a(T, H) \theta^2 + b(T, H) \theta^4 + \dots,$$

где функция  $a(T, H)$  обращается в нуль на границе между фазами, а функция  $b(T, H)$  на этой границе положительна. Такой вид свободной энергии характерен для фазовых переходов второго рода [38]. Величину угла  $\theta$  можно рассматривать как параметр порядка. При  $\theta = 0$  (коллинеарная фаза) ферримагнетик инвариантен относительно произвольных поворотов вокруг вектора индукции магнитного поля. При  $\theta \neq 0$  (неколлинеарная фаза, в которой происходит разворот подрешеток) эта инвариантность исчезает. Переход происходит с понижением симметрии в соответствии с теорией Ландау фазовых переходов второго рода.

## 6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Основные результаты и выводы данной работы могут быть сформулированы следующим образом: выполнены измерения намагниченности редкоземельного интерметаллического ферримагнетика  $\text{Ho}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  и его гидридов в сверхсильных магнитных полях мегагауссного диапазона, построена модель процесса полного намагничивания, позволяющая дать оценки значений критических полей, индуцирующих переходы из ферримагнитной фазы в неколлинеарную ( $H_1$ ) и из неколлинеарной в ферромагнитную ( $H_2$ ). На основе извлеченных данных количественно рассчитаны магнитные фазовые диаграммы указанных соединений, даны оценки констант межподрешеточного обменного взаимодействия.

Проведенные измерения позволили экспериментально наблюдать индуцированный полем фазовый переход из исходного ферримагнитного состояния в неколлинеарное состояние. Для завершения процесса полного намагничивания и наблюдения обоих

соединений в вынужденном ферромагнитном состоянии необходимы магнитные поля, индукция которых принадлежит мегагауссному диапазону.

Несмотря на то что развитая в настоящей работе теоретическая модель процесса полного намагничивания является весьма простой, она оказывается достаточной для описания основных особенностей кривой намагничивания в сверхсильных магнитных полях и выполнения оценок характеристик процесса и параметров исследованных соединений. С минимальными изменениями представленная модель может быть применена для исследования магнитных свойств редкоземельных магнетиков различных классов соединений в сильных и сверхсильных магнитных полях.

**Финансирование.** Настоящее исследование выполнено в рамках научной программы Национального центра физики и математики (НЦФМ), проект «Исследования в сильных и сверхсильных магнитных полях» (шифр «НЦФМ-7-2325»). Работа Н.В.К. выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (договор 075-03-2023-106, проект ФСМГ-2021-0005). Работа Д.И.П. выполнена при поддержке Программы стратегического академического лидерства РУДН. Работа Г.А.П. выполнена в рамках государственного задания на проведение фундаментальных исследований, код темы FSEG-2023-0016.

## ЛИТЕРАТУРА

1. В. Л. Гинзбург, УФН **174**, 1240 (2004).
2. V. M. Kaspi and A. M. Beloborodov, *Ann. Rev. Astron. Astrophys.* **55**, 261 (2017).
3. L.-D. Kong, S. Zhang, S.-N. Zhang et al., *Astrophys. J. Lett.* **933**, L3 (2022).
4. А. Д. Сахаров, УФН **88**, 725 (1966).
5. А. И. Быков, М. И. Долотенко, Н. Р. Колоколчиков et al., *Physica B: Cond. Mat.* **294-295**, 574 (2001).
6. D. Nakamura, A. Ikeda, H. Sawabe et al., *Rev. Sci. Instr.* **89**, 095106 (2018).
7. М. И. Долотенко, *Магнитокумулятивные генераторы МК-1 сверхсильных магнитных полей*, РФЯЦ-ВНИИЭФ, Саров (2015).
8. Г. В. Борисков, А. И. Быков, М. И. Долотенко и др., УФН **181**, 441 (2011).
9. А. К. Звездин, И. А. Лубашевский, Р. З. Левитин и др., УФН **168**, 1141 (1998).
10. А. К. Звездин, В. В. Костюченко, В. В. Платонов и др., УФН **172**, 1303 (2002).
11. I. S. Tereshina, N. Yu. Pankratov, A. Yu. Karpenkov et al., *J. Appl. Phys.* **130**, 220902 (2021).
12. O. Gutfleisch, M. A. Willard, E. Brück et al., *Adv. Mater.* **23**, 821 (2011).
13. J. M. D. Coey, *Engineering* **6**, 119 (2020).
14. G. Delette, *J. Magn. Magn. Mater.* **577**, 170768 (2023).
15. L. A. Ivanov, T. Kaminskaya, I. Tereshina et al., *Sol. St. Phenomena* **312**, 235 (2020).
16. W. F. Li, H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo et al., *Acta Materialia* **59**, 3061 (2011).
17. I. S. Tereshina, I. A. Pelevin, E. A. Tereshina et al., *J. Alloys Compounds* **681**, 555 (2016).
18. И. С. Терешина, Г. А. Политова, Т. П. Каминская и др., *Науч.-техн. вед. СПбГПУ, физ.-мат. науки* **15**, 34 (2022).
19. J. Chaboy, N. Plugaru, J. Bartolomé et al., *Phys. Rev. B* **67**, 014415 (2003).
20. J. F. Herbst, J. J. Croat, and W. B. Yelon, *J. Appl. Phys.* **57**, 4086 (1985).
21. I. S. Tereshina, A. P. Pyatakov, E. A. Tereshina-Chitrova et al., *AIP Adv.* **8**, 125223 (2018).
22. I. S. Tereshina, L. A. Ivanov, E. A. Tereshina-Chitrova et al., *Intermetallics* **112**, 106546 (2019).
23. Н. В. Костюченко, Д. И. Плохов, В. В. Дорофеев и др., *Инж. физ.*, вып. 5, 12 (2024).
24. N. V. Kostyuchenko, I. S. Tereshina, E. A. Tereshina-Chitrova et al., *Phys. Rev. Mater.* **5**, 074404 (2021).
25. А. И. Быков, Е. А. Бычкова, С. В. Галанова и др., в сб. *Труды XXVII Междунар. симп. по нанофизике и наноэлектронике* (Нижний Новгород, 2023), ИПФ РАН, Нижний Новгород (2023), с. 311.
26. Ю. Б. Кудасов, *Электрофизические измерения*, Физматлит, Москва (2010).



27. J. F. Herbst, Rev. Mod. Phys. **63**, 819 (1991).
28. И. С. Терешина, Дисс. ... д-ра физ.-мат. наук, МГУ, Москва (2003).
29. В. И. Силантьев, А. И. Попов, Р. З. Левитин, А. К. Звездин, ЖЭТФ **78**, 640 (1980).
30. Г. А. Бабушкин, А. К. Звездин, Р. З. Левитин и др., ЖЭТФ **80**, 1952 (1981).
31. H. B. Callen, *Thermodynamics and an Introduction to Thermostatistics*, Wiley (1991).
32. N. V. Kostyuchenko, I. S. Tereshina, A. V. Andreev et al., IEEE Trans. Magn. **57**, 2101105 (2021).
33. S. Hirose, Y. Matsuura, H. Yamamoto et al., J. Appl. Phys. **59**, 873 (1986).
34. G. Givord, H. S. Li, J.M. Cadogan et al., J. Appl. Phys. **63**, 3713 (1988).
35. H. Hiroyoshi, R. Kato, M. Yamada et al., Sol. St. Commun. **62**, 475 (1987).
36. К. П. Белов, А. К. Звездин, А. М. Кадомцева и др., *Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках*, Наука, Москва (1979).
37. T. S. Zhao and J. I. Lee, J. Appl. Phys. **75**, 3008 (1994).
38. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика*, Физматлит, Москва (2021).

# ЧАСТОТНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ГИСТЕРЕЗИСА ДВИЖЕНИЯ ВАКАНСИЙ В ЗАКРЫТОМ МЕМРИСТОРЕ НА ОСНОВЕ ТОЧНО РЕШАЕМОЙ МОДЕЛИ УПРАВЛЯЕМОЙ НЕЛИНЕЙНОЙ ДИФфуЗИИ

*И. В. Бойло<sup>\*</sup>, К. Л. Метлов<sup>\*\*</sup>*

*Донецкий физико-технический институт им. А. А. Галкина  
283048, Донецк, Россия*

Поступила в редакцию 22 августа 2023 г.,  
после переработки 1 августа 2024 г.  
Принята к публикации 1 августа 2024 г.

Рассмотрена частотная зависимость гистерезиса движения вакансий в закрытом с обеих сторон мемристоре под действием протекающего через мемристор периодического электрического тока. На основе точно решаемой нелинейной модели получено уравнение для петель гистерезиса при прохождении прямоугольных импульсов тока со скажностью 2. Оценена эффективность перемещения заряда вакансий током в сравнении с их свободной диффузией. Показано, что максимальная эффективность достигается при определенном, зависящем от амплитуды подаваемого тока, периоде переключений мемристора. Получены аналитические асимптотики этой зависимости и сопротивления мемристора в зависимости от амплитуды и периода пропускаемого через мемристор тока.

DOI: 10.31857/S0044451024120095

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Мемристор, предложенный Леоном Чуа [1], — отдельный тип двухполюсных элементов электронных схем, сопротивление которого зависит от интеграла по времени прошедшего тока. Если через мемристор проходит зависящий от времени ток, изменение его сопротивления сопровождается гистерезисом. Другими словами, мемристор реализует функцию памяти. Эта простейшая аналоговая память оказывается удобной для реализации электронных синапсов в нейроморфных компьютерах [2–10], ячеек резистивной памяти с произвольным доступом [11–13], а также электронных устройств, которые позволяют объединить память и процессор [14].

Как и оригинальная модель мемристора [1], большинство точно решаемых моделей [12, 15–17] описывают эволюцию мемристора при помощи системы обыкновенных дифференциальных уравнений первого порядка по времени для нескольких

(макроскопических) скалярных переменных состояния. При учете пространственной вариации переменных состояния (в обзоре [18] соответствующие модели предлагается называть распределенными) система уравнений дополняется уравнениями в частных производных (в общем случае нелинейными). Такое мезоскопическое моделирование мемристоров в настоящее время выполняется в основном численно [19–26].

Значительную часть этих подходов можно обобщить в виде стохастической модели со случайной внешней силой [27, 28], приводящей к уравнению Фоккера–Планка для пространственного распределения концентрации дефектов. В линейном случае это параболическое уравнение в частных производных сводится к уравнению диффузии, что позволяет достаточно точно описать гистерезисные свойства многих реальных устройств [18, 27, 28].

Тем не менее в мемристорах могут присутствовать и сильно нелинейные эффекты, связанные, как минимум, с тем, что локальная концентрация дефектов (подвижных вакансий, зародышей новой фазы) ограничена и не может превышать некоторой, являющейся свойством материала, величины. Эта фундаментальная нелинейность была исследована

<sup>\*</sup> E-mail: boylo@donfti.ru

<sup>\*\*</sup> E-mail: metlov@donfti.ru

нами ранее в рамках простой мезоскопической модели для миграции (под действием приложенного тока) заряженных вакансий в закрытом с обеих сторон (полу)проводнике, которая сводится к знаменитому уравнению нелинейной диффузии Бюргерса и допускает точное решение [29].

В данной работе рассмотрен одномерный мемристор на основе материала с подвижными заряженными вакансиями, закрытый с обеих сторон плоскими, непроницаемыми для вакансий, контактами. На основании полученного ранее точного решения исследуются гистерезисные петли такого мемристора, формирующиеся при подаче на него меандра (бесконечной периодической цепочки прямоугольных импульсов со скважностью 2). Рассчитана частотная зависимость этих петель и предложен критерий для определения оптимальной частоты переключений.

## 2. МОДЕЛЬ И ЭВОЛЮЦИЯ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ВАКАНСИЙ

Рассмотрим материал с мобильными заряженными вакансиями (хотя дальнейшее рассмотрение в равной мере применимо к дрейфу любых других заряженных дефектов, в том числе и непосредственно к дрейфу ионов), занимающий пространство вдоль координатной оси  $x$  от  $x = 0$  до  $x = d$ , т. е. однородную пленку толщины  $d$  между двумя плоскими контактами. Сами контакты будем считать непроницаемыми для вакансий (химически не активными). Исходя из предположения, что концентрация  $C$  мобильных вакансий ограничена сверху величиной  $C_{max}$ , удобно нормировать ее на эту величину:  $c = C/C_{max}$ ,  $0 \leq c \leq 1$ . Рассмотрев дрейф вакансий под действием электрического поля как функцию времени  $t$  с учетом уравнения непрерывности, для  $c$  можно получить [29] уравнение Бюргерса

$$\partial_\tau c + p(1 - 2c)\partial_\xi c = \partial_\xi \xi c, \quad (1)$$

где введены безразмерные координата  $\xi = x/d$ , время  $\tau = tD/d^2$ , учитывающее коэффициент диффузии вакансий  $D$ , и параметр  $p = \text{const}$ , характеризующий силу внешнего воздействия. В случае, когда действующее на вакансии с зарядом  $q$  электрическое поле создано проходящим через рассматриваемый материал с удельным сопротивлением  $\rho_0$  электрическим током  $I$ , величина

$$p = 2(d/a) \text{sh}(aq\rho_0 I/k_B \Theta)$$

играет роль перенормированной безразмерной силы тока. Здесь  $\Theta$  — абсолютная температура,  $k_B$  — по-

стоянная Больцмана и  $a \ll d$  — характерная длина единичного прыжка вакансии в процессе дрейфа (в первом порядке по  $a/d$  от величины  $a$  ничего не зависит). Непроницаемость границ выражается при этом условием [29]

$$pc(1 - c) - \partial_\xi c \Big|_{x=0,d} = 0. \quad (2)$$

Несмотря на то, что и само уравнение в частных производных (1), и граничное условие (2) являются нелинейными, используя преобразование Хопфа–Коула, можно получить точное решение этой краевой задачи [29]

$$c = \frac{\partial}{\partial \xi} \frac{1}{p} \log \left[ P + p e^{-\tau p^2/4 + p\xi/2} \sum_{n=1}^{\infty} h_n e^{-\tau n^2 \pi^2} \sin n\pi \xi \right], \quad (3)$$

где

$$P = P(\xi; p, r) = \frac{e^p - e^{pr} - e^{p\xi} + e^{p(r+\xi)}}{e^p - 1},$$

$$r = \int_0^1 c d\xi = \text{const}$$

— полное количество подвижных вакансий в системе, а коэффициенты  $h_n$  определяются начальным распределением вакансий  $c|_{\tau=0} = c_0(\xi)$

$$h_n = 2 \int_0^1 \frac{e^{pu_0(\xi)} - P}{p} e^{-p\xi/2} \sin(n\pi\xi) d\xi, \quad (4)$$

где

$$u_0(\xi) = \int_0^\xi c_0(\xi) d\xi, \quad u_0(1) = r.$$

С одной стороны, выражения (3) и (4) позволяют вычислить эволюцию произвольного начального распределения вакансий при заданном постоянном внешнем воздействии (токе)  $p = \text{const}$ . Этого достаточно, чтобы рассмотреть временную релаксацию электрического сопротивления такого мемристора, найти его сопротивления во «включенном» и «выключенном» состояниях, вычислить времена записи и удержания информации в нем [29]. С другой стороны, все без исключения приложения мемристоров основываются на их гистерезисных свойствах, проявляющихся при зависящей от времени внешней силе.

### 3. МЕМРИСТОР ПОД ПЕРИОДИЧЕСКИМ ВОЗДЕЙСТВИЕМ

Рассмотрим случай (часто исследуемый при численном моделировании), когда подаваемый на мемристор сигнал представляет собой бесконечную периодическую (с периодом  $T$ ) цепочку прямоугольных импульсов со скважностью 2. Будем считать, что половину периода (продолжительностью  $T/2$ ) через мемристор течет ток  $I$ ,  $I > 0$ , другую половину — ток  $-I$ . Тогда эволюцию распределения вакансий можно рассчитать на основании решения (3) с положительной величиной  $p$  в первой половине периода и отрицательной во второй.

Движение вакансий под действием постоянно-го тока, протекающего через мемристор в течение половины периода, есть релаксация некоторого начального распределения вакансий к равновесному (для данной величины и полярности перенормированного тока  $p$ , заполнения мемристора  $r$ ), которое от начального распределения не зависит. Математически, процесс релаксации выражается в виде (3) через коэффициенты разложения (4) начального распределения вакансий. Однако направление релаксации и коэффициенты разложения зависят от направления тока (знака  $p$ ). Будем называть вели-

чины  $h_n$  (4) в первой половине периода коэффициентами разложения в прямом базисе, а во второй половине эти величины, вычисленные по выражению (4) с  $p \rightarrow -p$ , — коэффициентами разложения в обратном базисе. Тогда в процессе воздействия тока фиксированной амплитуды, периодически меняющего знак, мемристор будет половину периода эволюционировать (релаксировать) в прямом базисе, а половину в обратном. Конечное состояние первого полупериода будет начальным для второго полупериода. Переразлагая его в обратном базисе, можно рассчитать эволюцию во втором полупериоде. Затем процесс повторяется.

Бесконечно долгое периодическое воздействие на мемристор приводит к периодической эволюции распределения вакансий (хотя конечная по времени эволюция некоторого начального распределения под влиянием подобного осциллирующего воздействия выйдет на этот цикл не сразу). Периодичность означает, что коэффициенты  $h_n$  в начале периода можно найти из условия, что эволюционировавшее на протяжении  $T/2$  распределение вакансий равно зеркально отраженному относительно  $\xi = 1/2$  начальному распределению (см. Приложение):

$$h_n = \frac{2(-1)^n e^{pr - \frac{p}{2}}}{p} \int_0^1 \left( \bar{P} - \frac{1}{P + p e^{-\frac{p^2(T/2)}{4} + \frac{px}{2}} \sum_{n=1}^{\infty} h_n e^{-n^2 \pi^2 (T/2)} \sin n\pi \xi} \right) e^{p\xi/2} \sin(n\pi \xi) d\xi, \quad (5)$$

где  $\bar{P} = P(\xi; -p, r)$ . В случае бесконечно большого периода  $T \rightarrow \infty$  коэффициенты  $h_n$  соответствуют процессу переключения между равновесными предельными распределениями вакансий, для них есть явные и аналитические выражения (см. формулу (3.2) из работы [29]). Но, кроме этого предельного цикла, интерес представляет и зависимость процесса переключения от частоты, анализу которой и посвящена данная работа.

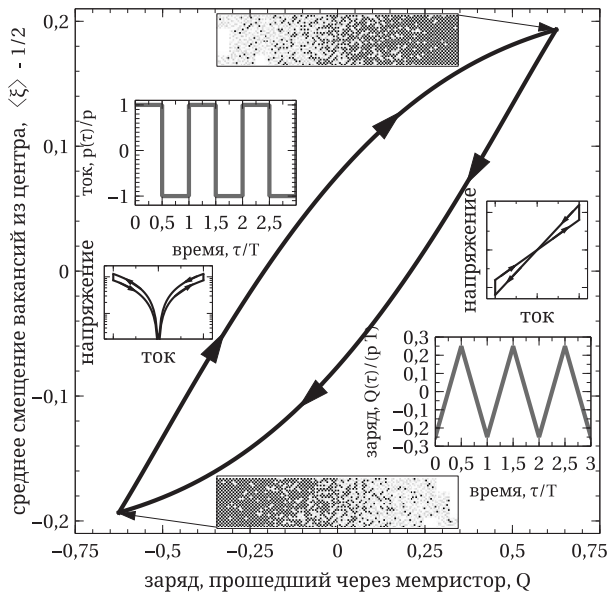
К сожалению, в общем случае решить уравнение (5) аналитически не представляется возможным. Но это можно достаточно эффективно сделать численно, если учесть, что члены суммы в знаменателе (5) мажорируются быстро затухающей (при  $T > 0$ ) экспонентой. Тогда, обрезая на некотором слагаемом (скажем, под номером  $k$ ), получим систему алгебраических уравнений (5) для первых  $h_n$ ,  $n = 1, 2, \dots, k$ . Используя эту обрезанную сумму, можно вычислить и остальные  $h_n$ ,  $n > k$ . Причем

для  $T \gg 1$  приемлемую точность дает уже  $k = 1$ . При меньших  $T$  требуются большие значения  $k$ , но все равно вычисление оказывается достаточно эффективным. Этот алгоритм реализован в виде программы для Wolfram Mathematica.

Уравнение (5) можно решить аналитически в пределе  $pT \ll 1$  для «оптимального» ( $r = 1/2$ ) заполнения мемристора, соответствующего максимальной разности его предельных сопротивлений [29]. Тогда получим

$$h_n = \frac{4(1 - (-1)^n)p}{(1 + e^{-\frac{T}{8}(p^2 + 4n^2\pi^2)})n\pi(p^2 + 4n^2\pi^2)}. \quad (6)$$

Соответствующие распределения вакансий построены на приведенном ниже рис. 2 пунктирными линиями. Для малых  $pT$  они очень точно (визуально практически неотличимо) ложатся на сплошные кривые, полученные численно.



**Рис. 1.** Петля гистерезиса мемристора (зависимость среднего смещения вакансий из центра от прошедшего через мемристор электрического заряда  $Q$ ) под периодическим внешним воздействием для  $p = 10$ ,  $T = 0.25$ ; облака точек показывают возможные реализации распределения вакансий в двух предельных состояниях; на вставках изображены нормированные зависимости тока  $I$  и заряда  $Q$  от времени и (схематически) та же петля гистерезиса в координатах ток–напряжение ( $I$ – $V$  и  $I$ – $\lg |V|$ )

Обычно при исследовании переключения мемристора под периодическим воздействием рассматривают петли гистерезиса в координатах ток–напряжение ( $I$ – $V$ ). Для рассматриваемой здесь модели мемристора эти петли схематически показаны на вставках к рис. 1. В координатах  $I$ – $V$  они имеют типичный вид повернутой восьмерки (на правой вставке), а в логарифмических координатах  $I$ – $\lg |V|$  вид крыльев летящей чайки (на левой вставке). Качественно подобные петли наблюдаются во многих экспериментах, но такое представление петель не очень удобно для детального исследования гистерезисных свойств мемристора под воздействием периодической цепочки прямоугольных импульсов тока. При таком воздействии на мемристор ток меняется скачком и вся кинетика переключения в координатах  $I$ – $V$  изображается в виде двух вертикальных линий, соответствующих максимальной и минимальной величине тока. Движение вдоль наклонных прямых (либо контуров крыла чайки) на петле гистерезиса происходит мгновенно в момент смены знака проходящего через мемристор тока. Реальные мемристоры всегда имеют некоторую емкость, из-за чего импульсы

проходящего через них тока не являются идеально прямоугольными. Это приводит к скруглению углов петли гистерезиса на диаграмме  $I$ – $V$ . Тем не менее в данной работе емкость мемристора не учитывается и считается равной нулю.

С другой стороны (и это является центральной идеей, стоящей за выделением мемристоров в отдельный класс электрических элементов [1]), управляющим параметром мемристора является не величина проходящего через него тока, а полный прошедший на данный момент времени электрический заряд. Очевидным кандидатом на роль переменной состояния является сопротивление мемристора, которое мы вычислим в разд. 4. Но сопротивление лишь отражает распределение вакансий, которое и определяет текущее неравновесное состояние мемристора. Нужно также учесть наличие множества микроскопических механизмов формирования сопротивления мемристора, которые к тому же могут быть задействованы одновременно. Эти механизмы связаны с изменением сопротивления материала как функции локальной концентрации вакансий либо с изменением сопротивления интерфейсов мемристора при изменении концентрации вакансий вблизи них. Чтобы абстрагироваться от механизмов формирования сопротивления и сфокусировать наше рассмотрение на непосредственной причине гистерезисных свойств мемристора, выберем в качестве переменной состояния среднее смещение вакансий, которое удобно отсчитывать от центра мемристора:  $\langle \xi \rangle - 1/2$ . Именно в этих координатах (заряд–смещение) изображены петли гистерезиса на рис. 1 и рис. 2.

Еще удобнее использовать безразмерную величину перемещенного заряда

$$\Omega = r(\langle \xi \rangle - 1/2), \quad (7)$$

которая получается умножением среднего смещения на полное количество вакансий  $r$ . Простое смещение для  $r < 1/2$  всегда больше, чем смещение для  $r > 1/2$ , поскольку во втором случае значительное количество вакансий не перемещается, что уменьшает среднюю величину смещения. Величина  $\Omega$  является экстенсивной и потому соответствует ожидаемой симметрии между мемристорами с числом заполнения  $r$  и  $1 - r$ . Ожидаемой, поскольку, вообще говоря, процессы перемещения вакансий и примесных атомов (отсутствие которых является вакансией) имеют одинаковую кинетику с той лишь незначительной разницей, что вакансии и примесные атомы имеют заряды противоположного знака и перемещаются под действием одного и того же тока в



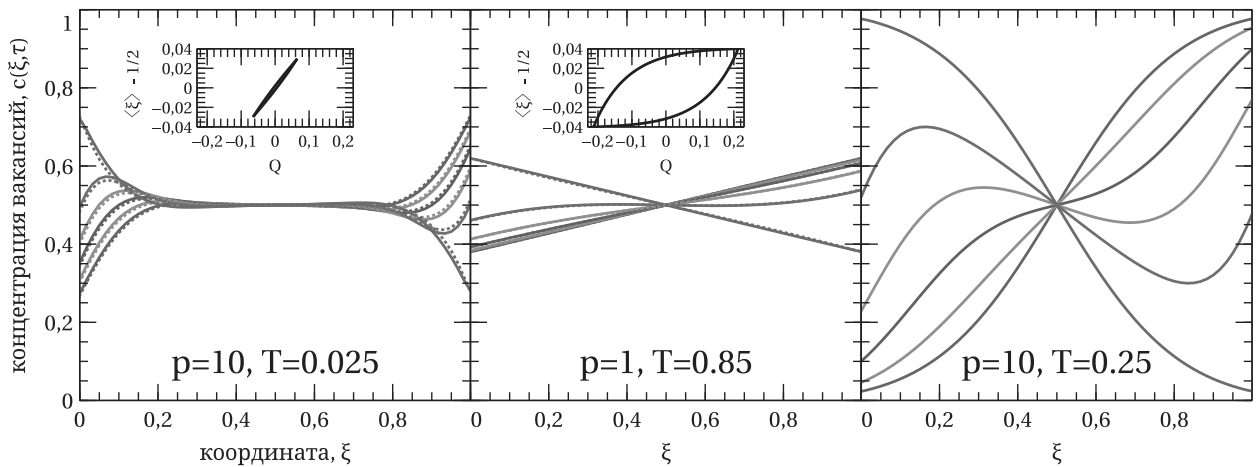


Рис. 2. Характерные распределения вакансий при  $t = 0, T/10, 2T/10, 3T/10, 4T/10, T/2$  (сверху вниз вдоль левой стороны графика, либо снизу вверх вдоль правой) и петли гистерезиса (на вставках) для  $r = 1/2$  и разных значений  $p$  и  $T$ , приведенных на графиках. Петля для  $p = 10$  и  $T = 0.25$  показана на рис. 1

разные стороны. Наличие этой симметрии видно на вставке к рис. 3, где гистерезисные кривые для  $r = \gamma$  и  $r = 1 - \gamma$  совпадают для всех  $0 < \gamma < 1$ . Смещение заряда для  $r = 1/2$  при этом максимально.

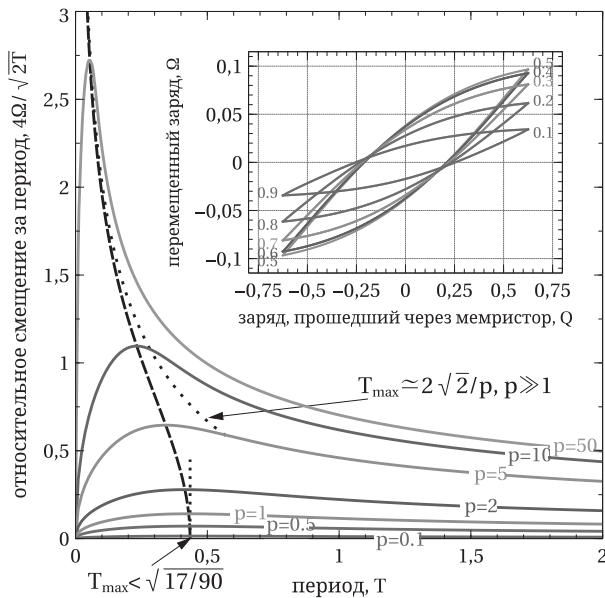
Работа мемристора проходит в двух режимах: перемещение вакансий электрическим током (запись информации) и их свободная диффузия (хранение информации). Для оценки эффективности перемещения заряда в процессе записи можно сравнить его со средним перемещением вакансий в процессе свободной диффузии за то же характерное время  $T$ . Последнее в рассматриваемом одномерном случае (и в используемой нормировке) равно  $\sqrt{2T}$ . Перемещение  $\Omega$ , как оно определено формулой (7), соответствует четверти периода. Поэтому искомая, характеризующая относительное перемещение заряда величина равна  $4\Omega/\sqrt{2T}$ . Ее зависимость от периода переключений  $T$  при  $r = 1/2$  построена на рис. 3.

Зависимость на рис. 3 для всех  $p > 0$  содержит максимум. Для малых периодов ток не успевает повлиять на распределение вакансий, а для больших периодов распределение вакансий под действием тока выходит на стационарный режим и дальнейшее воздействие не увеличивает времени жизни записанной информации. Положение максимума  $T_{max}$  смещается в сторону малых периодов при увеличении нормированной силы тока  $p$ . Его величина при этом растет. Это значит, что увеличение скорости работы мемристора, для сохранения его пиковой эффективности, также требует увеличения силы записывающего тока. Наличие максимума на частотной зависимости нормированного заряда, связанное с «про-

тивоборством» стирающих информацию тепловых флуктуаций и записывающих ее периодических импульсов тока может навести на мысль о подобии этого эффекта и недавно обнаруженного в мемристорах явления стохастического резонанса [30]. Но все же нужно отметить, что в нашем случае числитель и знаменатель отношения  $4\Omega/\sqrt{2T}$ , вообще говоря, относятся к разным экспериментам с разными временными зависимостями проходящего через мемристор тока: в одном из них информация циклически записывается, во втором она самопроизвольно стирается под действием тепловых флуктуаций в отсутствие тока. Эти два процесса (запись и хранение информации) являются основными при работе ячеек памяти на мемристорах.

Для величины периода переключений  $T_{max}$ , соответствующей наибольшей эффективности, можно сделать две аналитические оценки, показанные на рис. 3 пунктирными линиями. Во-первых, эта величина ограничена сверху  $T_{max} < \sqrt{17/90}$ , что дает достаточно точную оценку для  $T_{max}$  при  $p \ll 1$ . Существование этого конечного предела связано с тем, что движение вакансий при малых  $p$  приближается к свободной диффузии. С другой стороны, при больших  $p \gg 1$  асимптотически  $T_{max} \simeq 2\sqrt{2}/p$ . Поскольку основные свойства мемристоров проявляются именно при больших записывающих токах  $I$ , последняя оценка устанавливает связь между силой записывающего тока в мемригоре на свободных вакансиях и характерным временем его переключений. В размерных единицах (секундах) в пределе  $a \rightarrow 0$  это время равно

$$\tau_{max} = \sqrt{2}dk_B\Theta/DIq\rho_0.$$



**Рис. 3.** Нормированное на корень из среднеквадратичного смещения при простой диффузии среднее перемещение вакансий за период  $T$  для разных  $T$ ,  $p$  и  $r = 1/2$ , штриховой линией показано положение максимума на этой зависимости, пунктирными линиями — асимптотики к штриховой линии; на вставке приведена зависимость петля гистерезиса при  $p = 10$ ,  $T = 0.25$  от коэффициента заполнения  $r$ , где вертикальная координата пропорциональна полному перемещенному вакансиями заряду  $\Omega$

Отсюда следует, что уменьшение толщины мемристора также позволяет увеличить скорость переключений при сохранении относительной эффективности. Но нужно отметить, что абсолютная величина времени удержания записанной информации, которая при больших токах растет как функция  $d$  квадратично [29], так же важна, как и относительная эффективность их перемещения. Обе эти аналитические асимптотики могут оказаться полезными при проектировании мемристоров с наперед заданными свойствами.

Приведенное выше выражение для  $\tau_{max}$  содержит параметры материала, которые не всегда точно известны априори. Можно получить более удобное для сравнения с экспериментом выражение в терминах непосредственно измеряемых величин. Для этого отметим, что эволюция состояния мемристора есть релаксационный процесс. Причем из очень общих термодинамических соображений известно, что релаксация из состояния, близкого к равновесию, обычно протекает по экспоненциальному закону. Таким образом, при приближении к предельному состоянию сопротивление мемристора зависит от

времени как

$$R(\tau) \propto e^{-\tau/\tau_R},$$

что для рассматриваемой нами модели непосредственно подтверждается прямым расчетом [29]. В той же работе получено и аналитическое выражение для времени релаксации, которое не зависит от коэффициента заполнения  $r$  или начального распределения вакансий в мемригоре и в пределе  $a \rightarrow 0$  имеет вид

$$\tau_R \approx \frac{d^2}{4D(\pi^2 + (dq\rho_0 I)^2/(k_B\Theta)^2)}.$$

По своему физическому смыслу эта величина определяет зависящее от величины внешнего тока характерное время записи информации  $\tau_W = \tau_R$ . И эта же величина, если положить в ней  $I = 0$ , дает характерное время самопроизвольного стирания записанной информации, когда ток через мемристор не идет:

$$\tau_E = \tau_R|_{I=0} = \frac{d^2}{4\pi^2 D}.$$

Нужно отметить, что для этих характерных времен можно ввести разные определения, которые будут отличаться методологическим (зависящим от методики) числовым множителем; мы в дальнейшем анализе будем пользоваться приведенными выше определениями, характеризующими релаксацию мемристора при приближении его к конечному равновесному состоянию. В любом случае эти характерные времена являются непосредственно измеримыми в эксперименте величинами. Считая  $\tau_W$  и  $\tau_E$  известными, можно исключить из приведенного выше выражения для  $\tau_{max}$  все остальные параметры:

$$\tau_{max} = \frac{4\sqrt{2}\pi\tau_E}{\sqrt{\tau_E/\tau_W} - 1} \approx 4\sqrt{2}\pi\sqrt{\tau_E\tau_W}. \quad (8)$$

При этом из определения  $\tau_R$  следует, что всегда  $\tau_W < \tau_E$  и выражение под корнем положительно, а последнее приближенное равенство соответствует приближению  $\tau_W \ll \tau_E$  или (наиболее интересному для приложений) случаю больших токов  $p \gg 1$ . Численный множитель в этом выражении зависит от методики определения характерных времен, и для других определений он может быть другим.

Иными словами, можно сказать, что наиболее эффективное переключение мемристора достигается, когда период его переключений равен (с некоторым постоянным числовым коэффициентом) среднему геометрическому от характерных времен записи и стирания информации в нем. При много больших периодах пропускаемый через мемристор ток

уже практически не перемещает вакансий, а значит, не изменяет состояния мемристора, т. е. не приводит ни к чему, кроме омических потерь. При много меньших периодах состояние мемристора не успевает измениться достаточно сильно, чтобы надежно сохранить записанную информацию.

#### 4. СОПРОТИВЛЕНИЕ МЕМРИСТОРА

Микроскопически, состояние мемристора в рассмотренной модели определяется текущей концентрацией подвижных вакансий,  $c(\xi, \tau)$ . Макроскопически же, удобной переменной состояния является величина смещения заряда вакансий  $\Omega$ , которая непосредственно характеризует отклонение распределения вакансий в нем от равновесного с  $\Omega = 0$ . Изменение  $\Omega$  в зависимости от прошедшего через мемристор полного заряда электронов (являющимся управляющим параметром мемристора [1]) обсуждается в предыдущем разделе.

С другой стороны, величина  $\Omega$  не всегда доступна для прямых измерений. Как правило, вместо нее эксперимент фиксирует полное сопротивление мемристора, которое мы сейчас и вычислим. Напомним, что в нашей работе рассматриваются мемристоры с непроницаемыми для вакансий контактами. Полное число вакансий внутри мемристора, таким образом, сохраняется. Именно такой тип мемристоров нам кажется наиболее практически важным. Хотя в случае открытых (например, с одной стороны) мемристоров можно добиться большей амплитуды изменения сопротивления за цикл, такие устройства могут быть чувствительны к характеристикам окружающей их внешней среды (например, к концентрации кислорода в ней, если мемристоры основаны на движении кислородных вакансий). За пределами нашего аналитического рассмотрения останутся многослойные мемристоры, в которых некоторые слои могут играть роль аккумуляторов вакансий. Они также допускают рассмотрение на основе уравнений (для каждого слоя) нелинейной диффузии, но их аналитическое решение будет гораздо более громоздким со множеством дополнительных параметров.

Примем феноменологический подход и предположим, что удельное сопротивление материала  $\rho$  (слабо) зависит от концентрации подвижных вакансий  $c$ . Представим эту зависимость в виде степенного ряда:

$$\rho = \rho'_0 + \rho_1 c + \rho_2 c^2 + \dots$$

Поскольку полное количество вакансий внутри мемристора не изменяется, член первого порядка вносит лишь постоянный вклад в полное сопротивление мемристора и его можно объединить с нулевым членом  $\rho_0 = \rho'_0 + \rho_1 r$ . Члены более высоких порядков способны привести к изменению сопротивления в процессе перераспределения вакансий, но зеркально-симметричные распределения (относительно центра мемристора), возникающие в предельных точках его цикла (когда вакансии концентрируются вблизи одного либо другого контакта), будут соответствовать одинаковому значению полного сопротивления. Это значит, что зависимость удельного сопротивления материала от концентрации вакансий, если и оказывает влияние на работу мемристора, на разнице сопротивлений во «включенном» и «выключенном» состоянии мемристора не отражается.

Таким образом, в первом порядке по  $c$  полное сопротивление замкнутого мемристора будет зависеть лишь от вклада его интерфейсов [29]:

$$\rho = \rho_0 + \frac{\kappa_{1,0} + \kappa_{1,1}c}{d}\delta(\xi) + \frac{\kappa_{2,0} + \kappa_{2,1}c}{d}\delta(\xi - 1) + O(c^2), \quad (9)$$

где  $\kappa_{i,0}$  и  $\kappa_{i,1}$  — коэффициенты разложения поверхностного сопротивления интерфейсов  $i = 1, 2$  по степеням  $c$ , а дельта-функция Дирака  $\delta(x)$  предполагается левосторонней (этот математический прием выносит ее формально за границы области движения вакансий). Тогда в первом порядке сопротивление мемристора имеет вид

$$R = R'_0 + R_1 c(0, \tau) + R_2 c(1, \tau),$$

где

$$R'_0 = (d\rho_0 + \kappa_{1,0} + \kappa_{2,0})/A,$$

$$R_1 = \kappa_{1,1}/A, \quad R_2 = \kappa_{2,1}/A,$$

$A$  — площадь поверхности контакта (сечение мемристора). Перегруппировкой членов можно выразить сопротивление через безразмерный параметр  $\sigma'$  как

$$R = R_0 + R_1 \sigma'$$

$$\sigma' = c(0, \tau) + \alpha c(1, \tau) - r(1 + \alpha) \quad (10)$$

$$R_0 = R'_0 + R_1 r(1 + \alpha),$$

где введен безразмерный коэффициент асимметрии сопротивления интерфейсов  $\alpha = R_2/R_1$ . Удобство в том, что величина  $\sigma'$  при переключении мемристора меняется симметрично относительно точки  $Q = 0$ ,

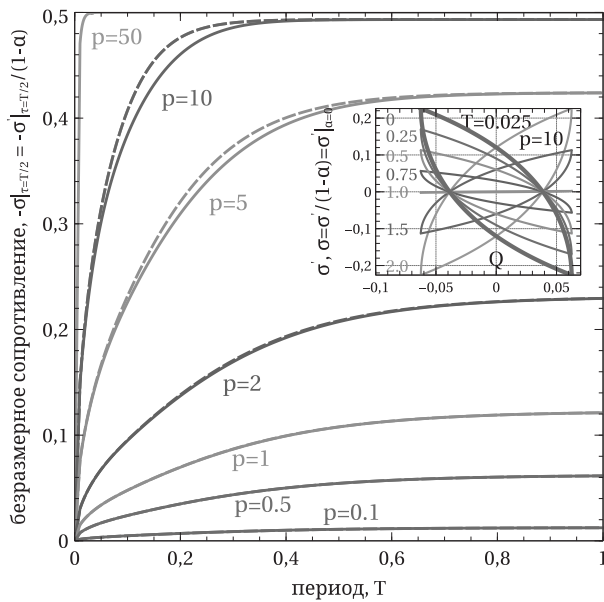


Рис. 4. Амплитуда изменения сопротивления  $-\sigma|_{\tau=T/2}$  в процессе переключения мемристора с половинным ( $r = 1/2$ ) заполнением: сплошные линии — точный расчет, штриховые — асимптотика (12); на вставке показаны петли гистерезиса сопротивления  $-\sigma'$ , зависящие от коэффициента асимметрии контактов  $\alpha$  (его значения для каждой петли подписаны числами слева), и предельная петля (более толстая линия)  $\sigma = \sigma'|_{\alpha=0}$

$\sigma' = 0$ . Величина  $R_0$  при этом задает постоянную составляющую сопротивления, а  $R_1$  пропорциональна абсолютной амплитуде его изменений.

Далее мы рассмотрим наиболее интересный случай половинного заполнения  $r = 1/2$  мемристора, когда перемещение заряда вакансий и изменение сопротивления мемристора [29] максимальны. Тогда выполняется тождество  $c(1, \tau) = 1 - c(0, \tau)$ , что позволяет исключить параметр  $\alpha$ , рассмотрев перенормированное безразмерное сопротивление мемристора при  $r = 1/2$ :

$$\sigma = \sigma'/(1 - \alpha) = c(0, \tau) - 1/2 = \sigma'|_{\alpha=0}. \quad (11)$$

На вставке к рис. 4 показаны петли гистерезиса в координатах  $\sigma'-Q$  для разных значений  $\alpha$ , которые после перенормировки в координатах  $\sigma-Q$  переходят в универсальную петлю (11), не зависящую от  $\alpha$ . Аналогичное перемасштабирование кривых релаксации сопротивления в универсальную кривую было получено в работе [31] на основе модели VEOVM [20] и подтверждено там экспериментально (см. рис. 4 в работе [31]) для мемристора на основе поликристаллического  $\text{La}_{0.325}\text{Pr}_{0.300}\text{Ca}_{0.375}\text{MnO}_3$  (LPCMO) с серебряными контактами. Оно, по-видимому, является

универсальным свойством как открытых, так и закрытых с обеих сторон мемристоров.

Когда интерфейсы абсолютно идентичны ( $\alpha = 1$ ), изменение сопротивления закрытого мемристора (с половинным заполнением) отсутствует и  $\sigma' = 0$ , но в пределе  $\alpha \rightarrow 1$  перенормированная петля в координатах  $\sigma-Q$  все равно остается неизменной. И это при том, что общий наклон петли при переходе от  $\alpha < 1$  к  $\alpha > 1$  меняется на противоположный, что соответствует смене знака  $\sigma'$ .

Амплитуду петли гистерезиса сопротивления  $\sigma|_{\tau=T/2}$  можно вычислить непосредственно по формулам (3), (10), (11). Но можно получить и приближенное явное выражение, исходя из асимптотики (6) при  $r = 1/2$ :

$$\sigma|_{\tau=T/2} \simeq -4p \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\text{th}\left(\frac{T}{16} (p^2 + 4\pi^2(2k+1))\right)}{p^2 + 4\pi^2(2k+1)}. \quad (12)$$

Это выражение правильно воспроизводит амплитуду сопротивления как в петлях с малым периодом  $T \ll 1$ , так и в петлях с большим  $T \gg 1$ , когда сопротивление выходит на насыщение:

$$\sigma|_{\tau=T/2, T \gg 1} \simeq -(1/2) \text{th}(p/4).$$

Заметная погрешность появляется лишь при промежуточных значениях  $p$  и  $T$ . Амплитуда петли и ее асимптотика (12) построены на рис. 4 как функция периода колебаний проходящего через мемристор тока для разных значений  $p$ .

Приведенное выше феноменологическое описание сопротивления мемристора не зависит напрямую от конкретного материала и конкретного механизма формирования электрического сопротивления на контактах. Его основным предположением является возможность представить удельное сопротивление (поверхностное или объемное) в виде степенного ряда по  $c$ , откуда, с учетом сохранения количества вакансий в закрытом с обеих сторон мемристоре, в низшем порядке по степеням  $c$  получается выражение (10). Входящие в него параметры  $R_0$ ,  $R_1$  и  $\alpha$  описывают свойства материала мемристора и механизм формирования электрического сопротивления на его (асимметричных) контактах. Эти параметры можно определить из независимых измерений или подгонкой.

В случае  $R_0 \gg R_1$  влиянием изменения электрического сопротивления, связанного с перераспределением ионов, на электрическое поле, движущее этими ионами, можно пренебречь. Простой способ



учесть этот эффект без значительного усложнения модели — использовать определение

$$p = 2(d/a) \operatorname{sh}(aq\rho I/k_B\Theta)$$

в качестве уравнения самосогласования, подставив в него величину  $\rho = \rho_0 + \rho_1\sigma'$ , которая уже будет зависеть от состояния мемристора. Можно ожидать, что это приведет к дополнительному скосу петель гистерезиса, но детальное исследование этого эффекта осталось за рамками данной работы. Также мы не учитывали емкость мемристора и считали, что импульсы тока являются идеально прямоугольными. Тем не менее мы точно учли нелинейные гистерезисные эффекты, связанные с ограниченностью концентрации подвижных вакансий, которые способны проявить себя в самых разных конкретных реализациях закрытых с обеих сторон мемристоров на базе самых разных материалов и с различными типами контактов.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мы рассмотрели эволюцию точно решаемой нелинейной модели мемристора с подвижными заряженными вакансиями под действием периодического (состоящего из прямоугольных импульсов со скважностью 2) внешнего тока. Получено и решено (в общем случае численно) уравнение для петель гистерезиса. В частном случае, когда амплитуда и период колебаний внешнего тока малы, дана аналитическая асимптотика решения этого уравнения. Показано, что наибольшая эффективность перемещения заряда вакансий достигается, когда мемристор заполнен ими ровно наполовину от максимального возможного количества. Введена мера эффективности перемещения вакансий в сравнении с процессом их свободной диффузии и исследована ее зависимость от периода внешнего тока. Эта зависимость содержит максимум, соответствующий наибольшему отношению величины вынужденного перемещения заряда вакансий над его свободной диффузией за то же время. Получены аналитические асимптотики периода внешнего тока, соответствующего максимуму эффективности, для малых и больших его амплитуд, а также асимптотика амплитуды петли гистерезиса сопротивления. Для большой амплитуды внешнего тока оптимальный период переключения мемристора связан с временем записи и временем хранения информации в нем простым соотношением (8).

## ПРИЛОЖЕНИЕ. ЗЕРКАЛЬНО-СИММЕТРИЧНОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ВАКАНСИЙ

Эволюция распределения вакансий под действием периодической с периодом  $T$  и скважностью 2 последовательности знакопеременных прямоугольных импульсов внешнего тока приводит к тому, что распределения вакансий на временах  $t$  и  $t + T/2$  (со сдвигом на половину периода) являются зеркально-симметричными относительно точки  $\xi = 1/2$ . Два таких распределения,  $c(\xi)$  и  $\tilde{c}(\xi)$ , связаны соотношением  $c(\xi) = \tilde{c}(1 - \xi)$ , а соответствующие им первообразные функции  $u(\xi) = r - \tilde{u}(1 - \xi)$ , где  $\tilde{c}(\xi) = \tilde{u}'(\xi)$ ,  $\tilde{u}(0) = 0$ ,  $\tilde{u}(1) = r$ . По определению (4) коэффициенты разложения  $u(\xi)$  равны

$$u_n = \frac{2}{p} \int_0^1 \left( e^{p(r - \tilde{u}(1 - \xi))} - P(\xi; p, r) \right) e^{-p\xi/2} \sin(n\pi\xi) d\xi. \quad (13)$$

После замены переменных  $y = 1 - \xi$ , использования тождеств  $P(1 - \xi; p, r) = e^{pr} P(\xi; -p, r)$  и  $\sin n\pi(1 - y) = (-1)^n \sin n\pi y$  получим соотношение между коэффициентами разложения зеркально-симметричных функций:

$$u_n = e^{pr - p/2} (-1)^n \left( \tilde{u}_n|_{p \rightarrow -p} \right). \quad (14)$$

Другими словами, коэффициенты разложения распределения вакансий прямо пропорциональны коэффициентам разложения их зеркально-симметричного распределения в обратном ( $p \rightarrow -p$ ) базисе. Из этого соотношения непосредственно следует выражение (5).

## ЛИТЕРАТУРА

1. L. Chua, IEEE Trans. Circuit Theory **18**, 507 (1971).
2. M. Prezioso, F. Merrikh-Bayat, B. D. Hoskins et al., Nature **521**, 61 (2015).
3. M. Prezioso, F. Merrikh-Bayat, B. D. Hoskins et al., Sci. Rep. **6**, 21331 (2016).
4. R. Berdan, E. Vasilaki, A. Khat et al., Sci. Rep. **6**, 18639 (2016).
5. V. Saxena, X. Wu, and K. Zhu, in *Proc. IEEE International Symposium on Circuits and Systems, ISCAS 2018*, 27-30 May 2018, Florence, Italy, DOI: 10.1109/ISCAS.2018.8351766.
6. F. Liu and C. Liu, in *2018 55th ACM/ESDA/IEEE Design Automation Conference (DAC)*, DOI: 10.1109/dac.2018.8465849.



7. T. Ahmed, S. Walia, E. L. H. Mayes et al., *Sci. Rep.* **9**, 15404 (2019).
8. S. Deswal, A. Kumar, and A. Kumar, *AIP Adv.* **9**, 095022 (2019).
9. G. Yuan, X. Ma, C. Ding et al., in *2019 IEEE/ACM International Symposium on Low Power Electronics and Design (ISLPED)*, DOI: 10.1109/islped.2019.8824944.
10. N. Wu, A. Vincent, D. Strukov et al., *Memristor hardware-friendly reinforcement learning*, arXiv:cs.ET/2001.06930.
11. R. Waser and A. Masakazu, *Nat. Mater.* **6**, 833 (2007).
12. D. B. Strukov, G. S. Snider, D. R. Stewart et al., *Nature* **453**, 80 (2008).
13. A. Sawa, *Mater. Today* **11**, 28 (2008).
14. D. Ielmini and H. S. P. Wong, *Nat. Electron.* **1**, 333 (2018).
15. L. Chua and S. M. Kang, *Proc. IEEE* **64**, 209 (1976).
16. Y. N. Joglekar and S. J. Wolf, *Eur. J. Phys.* **30**, 661 (2009).
17. E. Linn, A. Siemon, R. Waser et al., *IEEE Trans. Circuits Syst. I* **61**, 2402 (2014).
18. J. B. Roldán, E. Miranda, D. Maldonado et al., *Adv. Intell. Syst.* **5**, 2200338 (2023).
19. D. B. Strukov and R. S. Williams, *Appl. Phys. A* **94**, 515 (2009).
20. M. J. Rozenberg, M. J. Sánchez, R. Weht et al., *Phys. Rev. B* **81**, 115101 (2010).
21. N. Ghenzi, M. J. Sánchez, F. Gomez-Marlasca et al., *J. Appl. Phys.* **107**, 093719 (2010).
22. S. Larentis, F. Nardi, S. Balatti et al., *IEEE Trans. Electron Devices* **59**, 2468 (2012).
23. S. Kim, S. Choi, and W. Lu, *ACS Nano* **8**, 2369 (2014).
24. A. Marchewka, R. Waser, and S. Menzel, in *2016 International Conference on Simulation of Semiconductor Processes and Devices (SISPAD)*, p. 145, DOI: 10.1109/sispad.2016.7605168.
25. A. Marchewka, B. Roesgen, K. Skaja et al., *Adv. Electron. Mater.* **2**, 1500233 (2016).
26. I. V. Boylo, *Phys. Stat. Sol. (b)* **254**, 1600698 (2017).
27. N. V. Agudov, A. V. Safonov, A. V. Krichigin et al., *J. Stat. Mech.* **2020**, 024003 (2020).
28. N. Agudov, A. Dubkov, A. Safonov et al., *Chaos Solitons Fractals* **150**, 111131 (2021).
29. I. V. Boylo and K. L. Metlov, *Roy. Soc. Open Sci.* **8**, 210677 (2021).
30. A. Mikhaylov, D. Guseinov, A. Belov et al., *Chaos Solitons Fractals* **144**, 110723 (2021).
31. S. Tang, F. Tesler, F. G. Marlasca et al., *Phys. Rev. X* **6**, 011028 (2016).

# ВИГНЕРОВСКАЯ КРИСТАЛЛИЗАЦИЯ В ДВУМЕРНЫХ СТРУКТУРАХ В МАГНИТНОМ ПОЛЕ. АКУСТИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

И. Л. Дричко<sup>a</sup>, И. Ю. Смирнов<sup>a\*</sup>, А. В. Суслов<sup>b</sup>, Д. Р. Лидли<sup>c\*\*</sup>, Ю. М. Гальперин<sup>d,a</sup>

<sup>a</sup> Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук  
194021, Санкт-Петербург, Россия

<sup>b</sup> National High Magnetic Field Laboratory  
Tallahassee, FL 32310, USA

<sup>c</sup> Department of Physics, University of Warwick  
Coventry CV4 7AL, United Kingdom

<sup>d</sup> University of Oslo  
0316 Oslo, Norway

Поступила в редакцию 5 июня 2024 г.,  
после переработки 5 июня 2024 г.  
Принята к публикации 26 июня 2024 г.

Представлен обзор исследований вигнеровской кристаллизации в двумерных структурах акустическими методами. Эти методы позволили определять зависимости от частоты действительной  $\sigma_1$  и мнимой  $\sigma_2$  компонент высокочастотной проводимости  $\sigma^{hf} = \sigma_1 - i\sigma_2$ . Кристаллизация носителей заряда наблюдалась при низких температурах  $T < 0.3$  К в сильных магнитных полях вблизи чисел заполнения  $\nu \leq 2$ . Частотные зависимости действительной  $\sigma_1$  и мнимой  $\sigma_2$  компонент проводимости дают возможность установить факт образования доменов вигнеровского кристалла в структурах, вычислить их средние размеры и определить температуру плавления.

Статья представлена в рамках публикации материалов 39-го Совещания по физике низких температур (НТ-2024), Черноголовка, июнь 2023 г.

DOI: 10.31857/S0044451024120101

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Возможность образования электронного кристалла была теоретически предсказана Вигнером еще в 1937 году [1]. В 1972 году Чаплик [2] исследовал образование вигнеровского кристалла в инверсионной пленке с малой концентрацией электронов и вычислил для такой системы поглощение звуковых волн. В 1975 году Лозовик и Юдсон [3] обратили внимание на то, что в двумерных системах сильное магнитное поле может привести к кристаллизации электронов даже при столь высоких концентрациях носителей, при которых

образование вигнеровского кристалла в нулевом поле невозможно.

Первое сообщение о возникновении вигнеровского кристалла на поверхности жидкого гелия было осуществлено в 1979 году [4]. Впоследствии аномалии, наблюдаемые в температурных зависимостях сопротивления двумерных структур при очень низких температурах в сильных магнитных полях, стали объяснять образованием доменов вигнеровского кристалла, запиннированных на беспорядке, — вигнеровского стекла. Если влияние доменов вигнеровского кристалла на сопротивление изучалось в основном в двумерных структурах GaAs/AlGaAs, так как именно эти структуры обладали наибольшей подвижностью и при этом малой концентрацией носителей (смотри обзоры [5, 6], и ссылки в них), то работы группы Пудалова проводились на структурах Si/SiO<sub>2</sub>, результаты которых изложены в обзо-

\* E-mail: ivan.smirnov@mail.ioffe.ru

\*\* D. R. Leadley

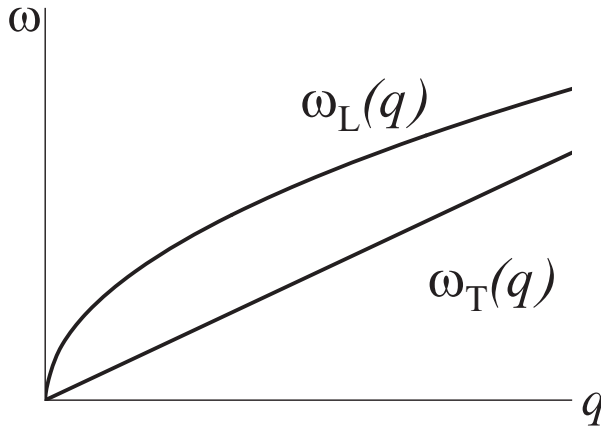


Рис. 1. Схематическое изображение фононных мод в двумерном вигнеровском кристалле как в работе [9]. Чистый двумерный вигнеровский кристалл при нулевом магнитном поле: продольная фононная мода (плазмон) и поперечная (сдвиговая) фононная мода

ре [7]. В перечисленных работах в основном использовались методики на постоянном токе. В наших исследованиях использовались акустические методы, которые дают возможность изучать динамические свойства двумерных структур с доменами вигнеровского кристалла (вигнеровского стекла), а именно: высокочастотную проводимость. В настоящей работе мы сосредоточимся именно на исследовании этих свойств, проведенных нашей группой в разные годы и на разных двумерных объектах. Впервые высокочастотная проводимость исследовалась акустическими методами в структурах  $n$ -GaAs/AlGaAs в режиме вигнеровской кристаллизации акустическими методами в работах [8].

Естественно, что этой проблеме было посвящено множество теоретических работ, ссылки на которые представлены в [9] и обзорах [5, 6]. В настоящей работе мы очень коротко проследим основные положения развития теории, посвященной вигнеровской кристаллизации в двумерных структурах.

## 2. ТЕОРИЯ

Для образования вигнеровского кристалла необходимо выполнение следующего условия: энергия кулоновского взаимодействия  $E_{ee}$  должна превышать энергию Ферми  $E_F$ . В двумерной электронной (дырочной) системе

$$E_{ee} \gg E_F, \quad \frac{(\pi n_s)^{1/2} e^2}{\varepsilon} \gg \frac{\pi \hbar^2 n_s}{m^*},$$

$$\kappa_s = \frac{E_{ee}}{E_F} \gg 1.$$

Если рассматривать вигнеровский кристалл как упругий континуум, то он характеризуется упруги-

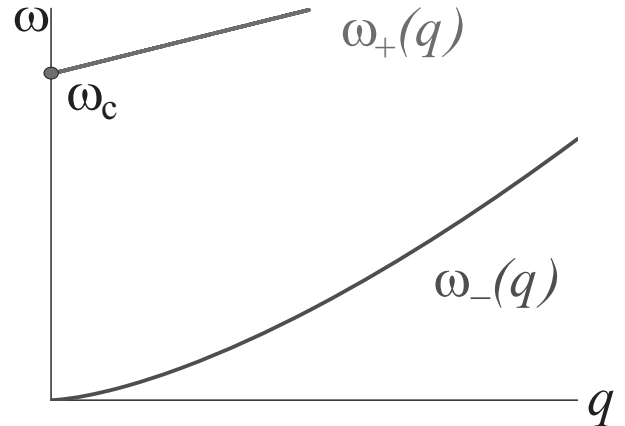


Рис. 2. Чистый двумерный вигнеровский кристалл в перпендикулярном магнитном поле: магнитоплазменная ( $\omega_+(q)$ ) и магнитофононная ( $\omega_-(q)$ ) моды

ми модулями (объемным  $\lambda$  и сдвиговым  $\beta$ ), массовой плотностью и постоянной решетки. Все эти величины определяются концентрацией электронов. Ниже мы рассмотрим образование вигнеровских кристаллов в трех различных ситуациях, переходя от более простых и идеализированных условий к более реалистичным и демонстрируя влияние магнитного поля и беспорядка на динамические свойства этих кристаллов.

### 1. Магнитное поле $B = 0$ , беспорядок отсутствует.

Вигнеровский кристалл в отсутствие магнитного поля и беспорядка обладает двумя ветвями колебаний фононов: продольной (плазмон) L и поперечной T [10].

$$\omega_L(q) = (ne^2 q / 2m\varepsilon)^{1/2},$$

$$\omega_T(q) = c_t q = (\beta / nm)^{1/2} q, \quad (1)$$

$$\beta = (0.245 n^{3/2} e^2 / 4\pi\varepsilon),$$

где  $q$  — волновой вектор,  $n$  — концентрация электронов,  $e$  — заряд электрона,  $m$  — масса электрона (см. рис. 1).

### 2. Магнитное поле $B \neq 0$ , беспорядок отсутствует.

В магнитном поле силы Лоренца перемешивают моды  $\omega_L$  и  $\omega_T$ . Возникают две гибридные моды с частотами  $\omega_+$  и  $\omega_-$  [11]:

$$\omega_{\pm} = \frac{1}{2}(\omega_L^2 + \omega_T^2 + \omega_c^2) \pm \frac{1}{2}\sqrt{(\omega_L^2 + \omega_T^2 + \omega_c^2)^2 - 4\omega_L^2\omega_T^2}, \quad (2)$$

где  $\omega_c = eB/mc$  — циклотронная частота,  $B$  — магнитное поле. При условии  $\omega_c \gg \omega_L, \omega_T$  (в сильном

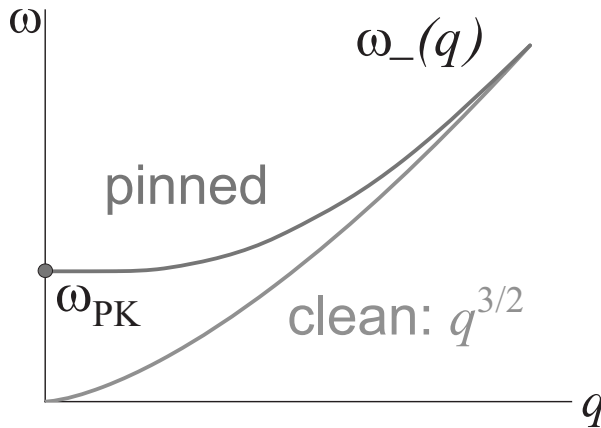


Рис. 3. Неупорядоченный двумерный вигнеровский кристалл в перпендикулярном магнитном поле: магнитофонная мода со щелью (мода пиннинга). Магнитоплазменная мода не изображена

магнитном поле) возникают  $\omega_+$  — магнитолазменная мода (с образованием щели),  $\omega_-$  — магнитофонная мода (бесщелевая) (см. рис. 2)

$$\begin{aligned}\omega_+(q) &= \omega_c + \omega_L^2(q)/\omega_c, \\ \omega_-(q) &= \omega_L(q)\omega_T(q)/\omega_c \propto q^{3/2}.\end{aligned}\quad (3)$$

### 3. Магнитное поле $B \neq 0$ , присутствует беспорядок.

В присутствии беспорядка классическая треугольная решетка вигнеровского кристалла деформируется и теряет дальний порядок. При этом вигнеровский кристалл разваливается на домены, привязанные (запиннированные) к дефектам кристалла с конечной длиной корреляции (размером доменов), — вигнеровское стекло. При наличии беспорядка частота  $\omega_-$  изменяется, возникает щель, равная  $\hbar\omega_{PK}$  (см. рис. 3), где  $\omega_{PK}$  — частота пиннинга,

$$\omega_- = (1/\omega_c) \sqrt{(\omega_{p0}^2 + \omega_L^2(q))(\omega_{p0}^2 + \omega_T^2(q))}, \quad (4)$$

где  $\omega_{p0}$  — частота пиннинга при  $B = 0$ , при  $q \sim 0$ . Именно на этой частоте  $\omega_{PK} = \omega_{p0}^2/\omega_c$  наблюдается максимум поглощения мощности при исследовании частотных зависимостей  $\text{Re } \sigma_{xx}$  в магнитном поле [11, 12].

Динамический ответ слабо запиннированного вигнеровского кристалла контролируется коллективными возбуждениями, при этом возникает линия поглощения, так называемая пиннинговая мода. Это коллективные колебания коррелированных сегментов вокруг положений равновесия, образованных неоднородным потенциалом пиннинга. Эти моды успешно изучались в экспериментальных работах [9, 13] с помощью техники микроволновой спектроскопии. Однако в них в основном исследовались

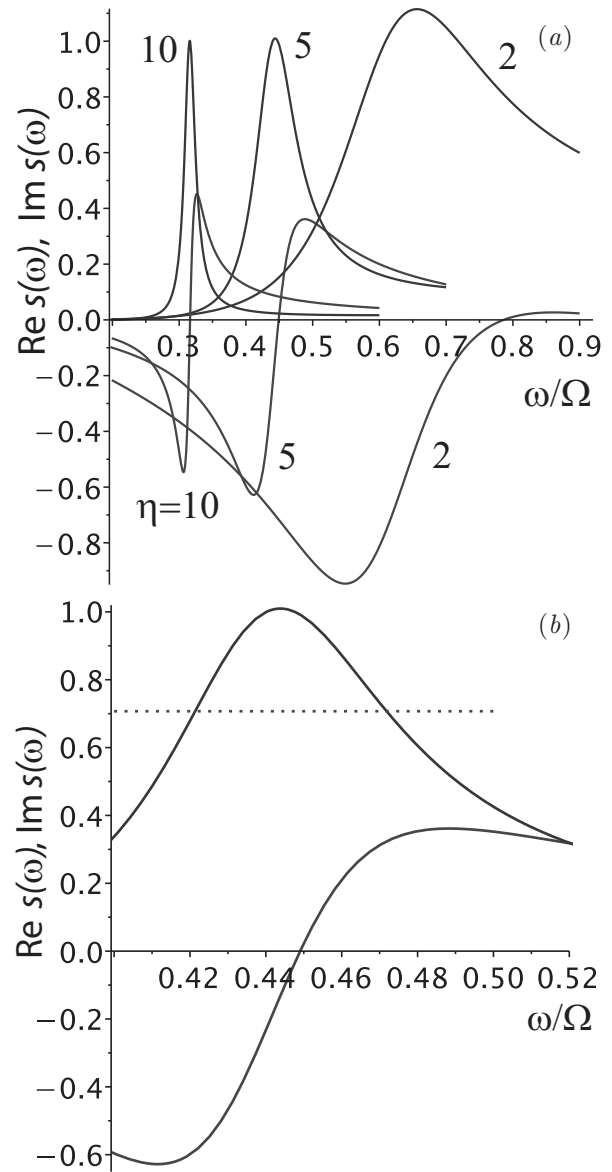


Рис. 4. Зависимости  $\text{Re } s$  и  $\text{Im } s$  от  $\varpi = \omega/\Omega$  для разных  $\eta$  (a) и для  $\eta = 5$  (b)

частотные зависимости только действительной компоненты высокочастотной проводимости.

Для интерпретации своих результатов мы пользовались работой [14]. В этой работе на основании представлений, изложенных выше, авторы определили частотные зависимости проводимости вигнеровского стекла.

Характер частотной зависимости проводимости вигнеровского стекла зависит от соотношения между параметрами вигнеровского кристалла, беспорядка в структуре и величины магнитного поля. Анализ этой зависимости в общем случае не представляется возможным. Однако при выполнении условий

$$1 < \eta < \omega_c/\omega_{p0}, \quad l_B \ll \xi \approx L, \quad (5)$$

где  $\eta = \sqrt{\lambda/\beta}$  ( $\lambda$  — объемный,  $\beta$  — сдвиговый модули упругости вигнеровского кристалла),  $l_B = \sqrt{\hbar c/eB}$  — магнитная длина,  $L$  — корреляционная длина (размер) вигнеровского домена,  $\xi$  — корреляционная длина беспорядка. Формула для частотной зависимости проводимости существенно упрощается:

$$\sigma(\omega) = -i \frac{e^2 n \omega}{m^* \omega_{p0}^2} \frac{1 - i u(\omega)}{[1 - i u(\omega)]^2 - (\omega \omega_c / \omega_{p0}^2)^2}, \quad (6)$$

$\omega_{p0}$  — частота пиннинговой моды при  $B = 0$ :

$$u(\omega) \approx \left(\frac{\omega}{\Omega}\right)^3, \quad \omega \ll \Omega, \quad (7)$$

$\Omega \approx \omega_{p0}^2 \eta / \omega_c$ . Уравнение (6) можно привести к виду

$$\sigma(\omega) \equiv \sigma_0 s\left(\frac{\omega}{\Omega}\right), \quad \text{где } \sigma_0 = \frac{e^2 n \eta^2}{2 m^* \omega_c}, \quad (8)$$

$$s(\varpi) = -2 \frac{i \varpi (1 - i \varpi^3)}{\eta [(1 - i \varpi^3)^2 - (\eta \varpi)^2]}, \quad (9)$$

где  $\varpi = \omega / \Omega$ .

На рис. 4 представлена зависимость  $s$  от приведенной частоты  $\varpi$  при нескольких величинах параметра  $\eta$ .

Длина Ларкина, т.е. длина (размер) корреляции домена вигнеровского кристалла определяется формулой

$$L = 2\pi c_t / \omega_{p0}, \quad (10)$$

где  $c_t = (\beta / n m^*)^{1/2}$  — скорость поперечной моды вигнеровского кристалла.

Представленные выше теоретические исследования частотных (динамических) свойств вигнеровского кристалла в двумерных структурах при низких температурах в сильных магнитных полях показали, что акустические исследования могут быть очень полезными в этой области, поскольку позволяют определять действительную и мнимую компоненты высокочастотной проводимости  $\sigma^{hf} = \sigma_1 - i\sigma_2$ .

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В данной работе для исследования динамических характеристик двумерных структур в режиме вигнеровской кристаллизации в работе использовались акустические методы. Суть их состоит в том, что к поверхности пьезоэлектрического кристалла ниобата лития, по которой распространялась поверхностная акустическая волна (ПАВ), посредством пружины прижимался исследуемый образец

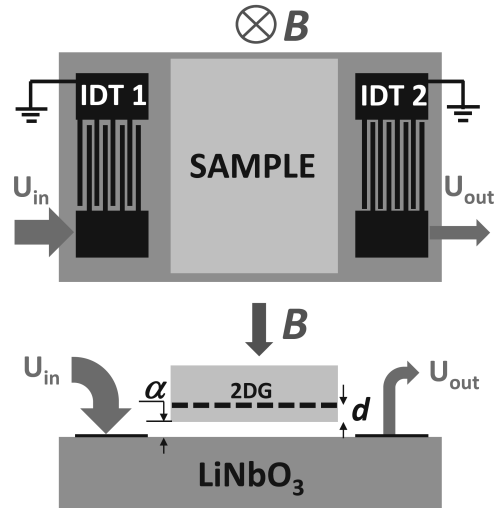


Рис. 5. Схема эксперимента

с двумерной проводимостью (см. рис. 5). (При этом деформация в образец не передавалась.) Электрическое поле, сопровождающее ПАВ, проникало в квантовую яму структуры и взаимодействовало с носителями заряда. В результате этого взаимодействия возникало поглощение ПАВ и изменение ее скорости. Вся эта система погружалась в криостат со сверхпроводящим магнитом. ПАВ создавались на поверхности ниобата лития с помощью встречно-штыревых пьезопреобразователей, основная частота которых равна 28 МГц. Измерения поглощения и изменения скорости ПАВ проводились и на гармониках с частотами 86 МГц, 142 МГц, 197 МГц, 252 МГц и 306 МГц в магнитном поле до 18 Тл и температурах 20–400 мК.

Объектами исследования были структуры  $n$ -GaAs/AlGaAs,  $p$ -GaAs/AlGaAs и  $p$ -Si/GeSi с высокой подвижностью.

Согласно [15] поглощение и скорость ПАВ связаны с проводимостью следующими формулами:

$$\Gamma \left[ \frac{\text{дБ}}{\text{см}} \right] = 8.68 \frac{K^2}{2} q A \times \frac{4\pi\sigma_1 t(q)/\varepsilon_s v}{[1 + 4\pi\sigma_2 t(q)/\varepsilon_s v]^2 + [4\pi\sigma_1 t(q)/\varepsilon_s v]^2} \quad (11)$$

$$A = 8b(q)(\varepsilon_1 + \varepsilon_0)\varepsilon_0^2 \exp[-2q(\alpha + d)], \quad (12)$$

$$\frac{\Delta v}{v_0} = \frac{K^2}{2} A \times \frac{1 + 4\pi\sigma_2 t(q)/\varepsilon_s v}{[1 + 4\pi\sigma_2 t(q)/\varepsilon_s v]^2 + [4\pi\sigma_1 t(q)/\varepsilon_s v]^2}, \quad (13)$$

$$b(q) = (b_1(q)[b_2(q) - b_3(q)])^{-1},$$

$$t(q) = [b_2(q) - b_3(q)]/2b_1(q),$$



$$\begin{aligned}
b_1(q) &= (\varepsilon_1 + \varepsilon_0)(\varepsilon_s + \varepsilon_0) - \\
&\quad - (\varepsilon_1 - \varepsilon_0)(\varepsilon_s - \varepsilon_0)e^{(-2q\alpha)}, \\
b_2(q) &= (\varepsilon_1 + \varepsilon_0)(\varepsilon_s + \varepsilon_0) + \\
&\quad + (\varepsilon_1 + \varepsilon_0)(\varepsilon_s - \varepsilon_0)e^{(-2qd)}, \\
b_3(k) &= (\varepsilon_1 - \varepsilon_0)(\varepsilon_s - \varepsilon_0)e^{(-2q\alpha)} + \\
&\quad + (\varepsilon_1 - \varepsilon_0)(\varepsilon_s + \varepsilon_0)e^{[-2q(\alpha+d)]},
\end{aligned}$$

где  $\Gamma$  и  $\Delta v/v_0$  — абсолютное изменение поглощения и относительное изменение скорости ПАВ в магнитном поле,  $v$  — скорость ПАВ в ниобате лития в магнитном поле,  $v_0$  — скорость звука при  $B = 0$ ,  $K^2$  — константа электромеханической связи  $\text{LiNbO}_3$ ,  $q$  — волновой вектор,  $d$  — глубина залегания двумерного слоя,  $\varepsilon_1 = 50$ ,  $\varepsilon_0 = 1$  и  $\varepsilon_s = 11$  — диэлектрические постоянные ниобата лития, вакуума и полупроводника соответственно. Расстояние между ниобатом лития и изучаемой структурой  $\alpha \approx 5 \cdot 10^{-5}$  см определялось из величины насыщения скорости ПАВ в сильном магнитном поле. Совместное решение уравнений (11) и (13) позволяет вычислить величины действительной и мнимой компонент высокочастотной проводимости  $\sigma_1$  и  $\sigma_2$ .

### 3.1. $n\text{-GaAlAs/GaAs/GaAlAs}$ [16]

Наиболее ярко частотные свойства высокочастотной проводимости, соответствующей вигнеровскому стеклу, проявились в структурах  $n\text{-GaAlAs/GaAs/GaAlAs}$  с малой концентрацией электронов  $n = 5 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$  и высокой подвижностью  $8 \cdot 10^6 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$  в магнитных полях, соответствующих числам заполнения от 0.19 до 0.125 в температурной области 40–380 мК (рис. 6). Ширина ямы была 65 нм, в этой области магнитных полей  $\kappa_s = 11\text{--}13$ .

Как видно на рис. 7, при всех магнитных полях частотная зависимость действительной и мнимой компонент высокочастотной проводимости демонстрируют характер, соответствующий режиму образования в структурах доменов вигнеровского кристалла. Причем, чем выше магнитное поле (меньше  $\nu$ ), тем меньше величина максимальной действительной компоненты проводимости. Зависимости величины  $\sigma_1$  от частоты для разных  $\nu$  представлена на рис. 8. Зависимость  $\sigma_1^{\text{max}} \propto \omega_c^{-1}$  (смотри вставку на рис. 8) подтверждается теорией (формула (8)).

Частотная зависимость  $\sigma_1$  и  $\sigma_2$  для исследованного образца при  $\nu = 0.18$  качественно совпадает с теоретическими кривыми, представленными на рис. 4 для  $\eta = 5$ . Это означает, что максимум  $\sigma_1$  осуществляется при  $\omega^{\text{max}}/2\pi \approx 86 \text{ МГц}$  при  $\omega/\Omega = 0.44$ ,

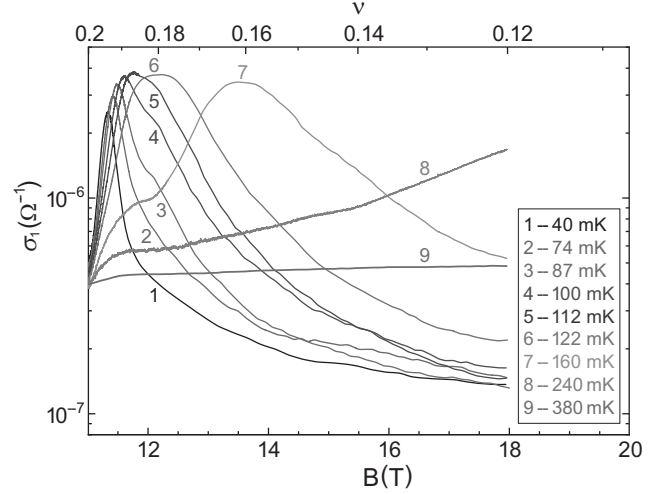


Рис. 6. Зависимость  $\sigma_1$  от магнитного поля при разных температурах,  $f = 28.5 \text{ МГц}$

таким образом,  $\Omega \approx 1.2 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$ . В соответствии с формулами работы [14]

$$\omega_{p0} = \sqrt{\omega_c \Omega / \eta} = 8.7 \cdot 10^{10} \text{ с}^{-1} \quad (14)$$

— частота пиннинга при  $B = 0$ ;

Определим длину корреляции домена (его размер) по формуле (10):

$$L = 2\pi c_t / \omega_{p0} = 3 \cdot 10^{-4} \text{ см}. \quad (15)$$

Это означает, что выполняются условия, необходимые для использования формул работы [14]:

$$L \gg a \gg l_B, \quad (16)$$

где  $a$  — расстояние между электронами в структуре ( $2.5 \cdot 10^{-6} \text{ см}$ ), а  $l_B = 7.3 \cdot 10^{-7} \text{ см}$  — магнитная длина при  $B = 12.2 \text{ Тл}$ ; кроме того, это позволяет заключить, что домен вигнеровского кристалла включает в себя в среднем порядка 100 электронов.

Численные расчеты, приведенные здесь, лишь приближительные, так как работа на гармониках ПАВ не дает возможности точно определять максимум на частотной зависимости проводимости.

Из набора экспериментальных кривых, представленных на рис. 6, можно построить зависимость действительной компоненты высокочастотной проводимости от температуры при разных магнитных полях (рис. 9).

На рис. 9 видно, что для каждого числа заполнения наблюдается максимум действительной компоненты проводимости от температуры. Слева от максимума температурную зависимость можно описать

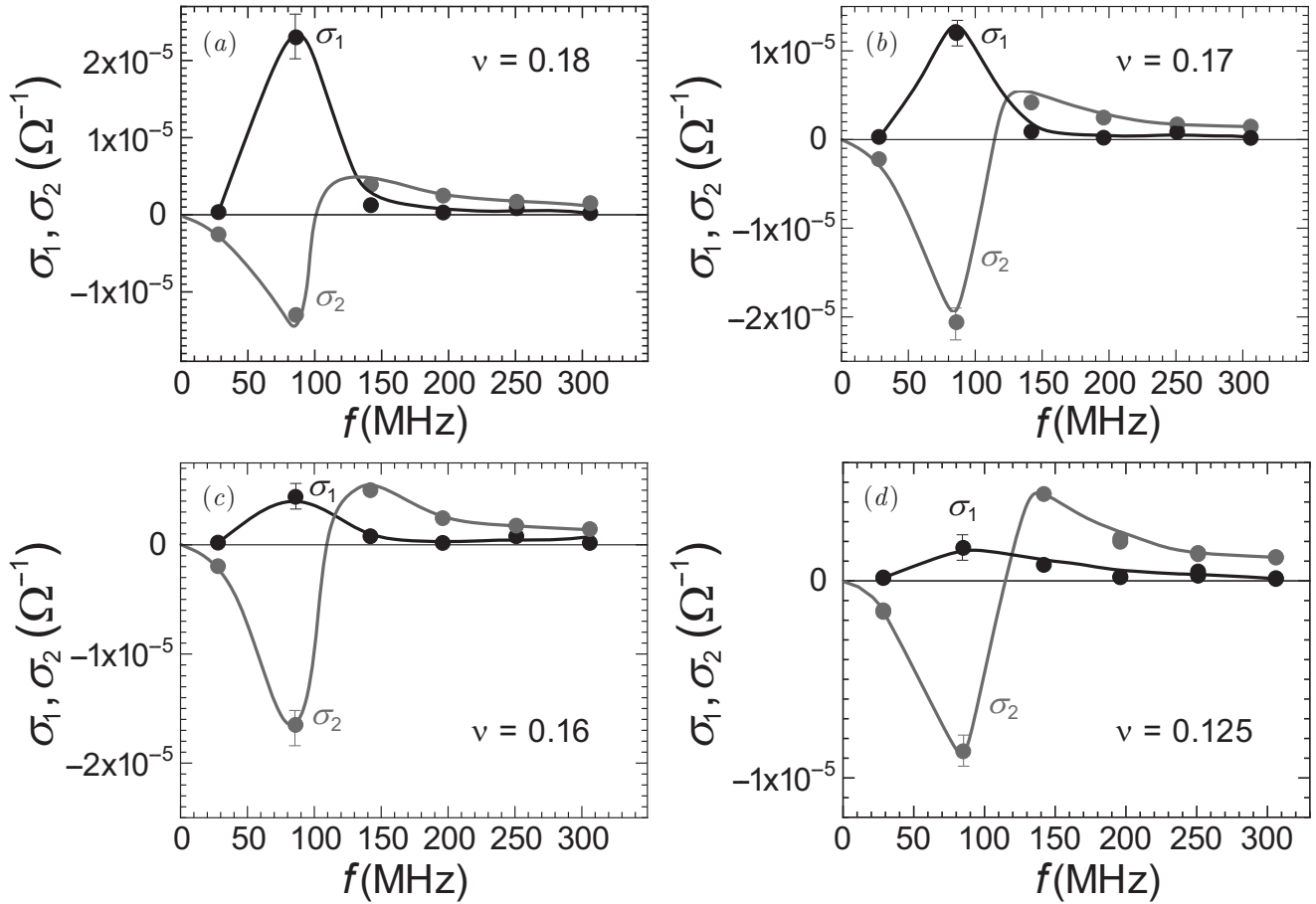


Рис. 7. Частотные зависимости  $\sigma_1$  и  $\sigma_2$  для разных  $\nu$ : 0.18 ( $B = 12.2$  Тл), 0.17 ( $B = 13$  Тл), 0.16 ( $B = 13.6$  Тл) и 0.125 ( $B = 17.6$  Тл);  $T = 40$  мК

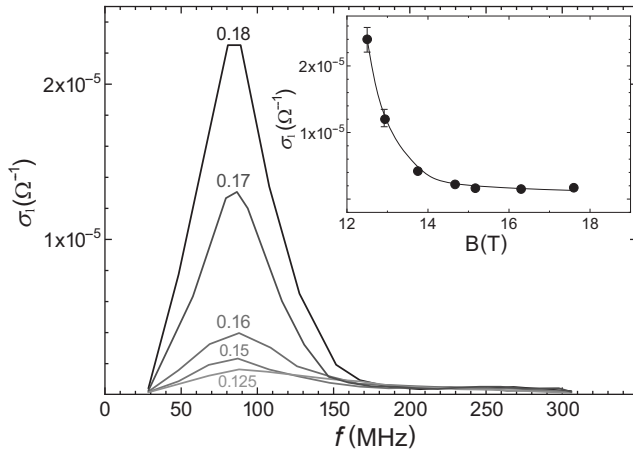


Рис. 8. Зависимости  $\sigma_1$  от частоты  $f$  для разных  $\nu$ . Вставка: зависимость  $\sigma_1^{max}$  от магнитного поля;  $T = 40$  мК

законом Аррениуса. Вычисленные из зависимостей  $\ln \sigma_1(1/T)$  энергии активации растут с ростом магнитного поля (рис. 10а), затем стремятся к насыщению (рис. 10б).

Мы полагаем, что подобные зависимости характеризуют область вигнеровского стекла. Справа от

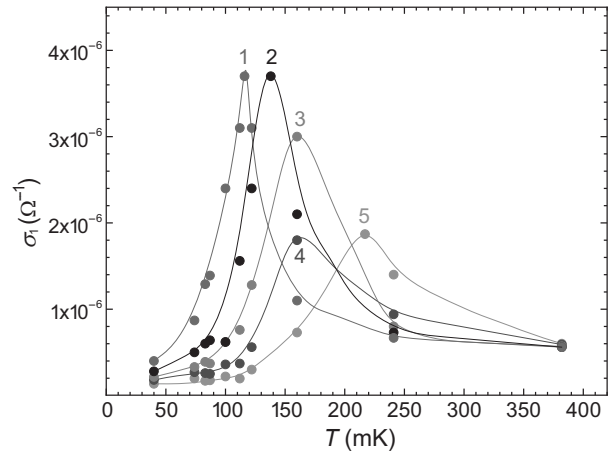


Рис. 9. Зависимость  $\sigma_1$  от температуры при разных числах заполнения  $\nu$ : 1 — 0.18, 2 — 0.17, 3 — 0.16, 4 — 0.145, 5 — 0.125;  $f = 28.5$  МГц

максимума проводимость резко уменьшается с ростом температуры — зависимость проводимости от температуры становится типа металлической. Происходит переход диэлектрик–металл, а температура, при которой осуществляется максимум проводимости, в этом случае характеризует температуру

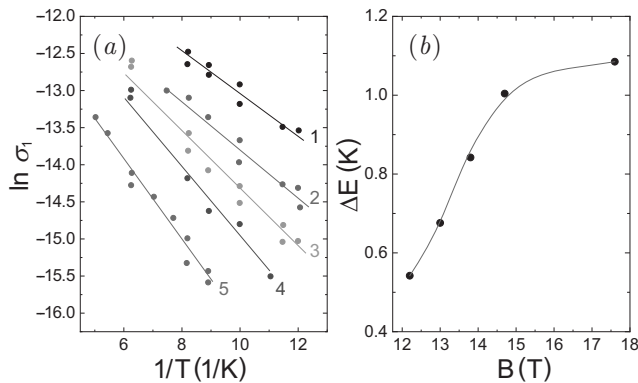


Рис. 10. *a* — Зависимости  $\ln \sigma_1$  от  $1/T$  для разных чисел заполнения  $\nu$ : 1 — 0.18, 2 — 0.17, 3 — 0.16, 4 — 0.145, 5 — 0.125 со стороны диэлектрической проводимости (до максимума  $\sigma_1$ ). *b* — Зависимость энергии активации  $\Delta E$  от магнитного поля

плавления вигнеровского стекла. На рис. 11 представлена зависимость температуры плавления вигнеровского стекла от числа заполнения (магнитного поля).

В этой же структуре образование вигнеровского стекла наблюдается и вблизи чисел заполнения  $1/5$  [17], 1 и 2 [19], хотя в этих магнитных полях  $\kappa_s = 4.5$ –3.

### 3.2. $p$ -AlGaAs/GaAs/AlGaAs [20]

Измерения высокочастотной проводимости проводились и в структуре  $p$ -GaAs/AlGaAs с концентрацией  $p = 1.2 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$  и подвижностью  $1.8 \cdot 10^6 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$  в температурном диапазоне 20–300 мК, частоте 28.5–306 МГц и магнитных полях до 18 Тл.

На рис. 12 видно, что вблизи чисел заполнения 1 и  $1/3$  имеются аномальные всплески проводимости в виде несимметричных максимумов, «крыльев».

На рис. 13 представлены температурные зависимости действительной части проводимости при фиксированных магнитных полях. На этом рисунке видно, что в магнитном поле 6.6 Тл при температуре около 110 мК наблюдается максимум проводимости, который смещается в сторону низких температур при увеличении магнитного поля до 7.0 Тл. Слева от максимума при  $\nu = 1$  происходит активация носителей тока на порог подвижности из локализованных состояний  $\nu = 1$ . Справа от максимума проводимость становится металлического типа. И только в небольшой области магнитных полей 7.0–7.2 Тл

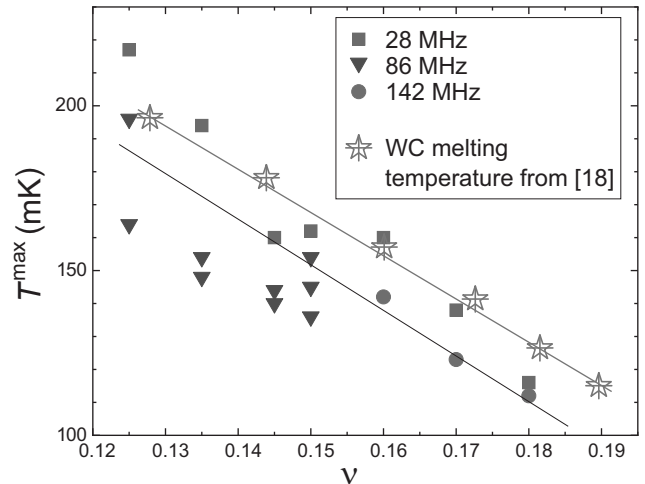


Рис. 11. Зависимость  $T^{\max}$  от числа заполнения  $\nu$  для разных частот 28.5 МГц, 86 МГц и 142 МГц и температура плавления, определенная позже в [18] в структуре с квантовой ямой GaAs 70 нм с  $n = 4.2 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$

частотная зависимость проводимостей имеет вид, представленный на рис. 14.

На рис. 14 видно, что в сравнении с предыдущей структурой ( $n$ -AlGaAs/GaAs/AlGaAs) эта зависимость лишь напоминает частотную зависимость проводимостей при хорошо развитом вигнеровском стекле. Поэтому мы предполагаем, что подобная частотная зависимость действительной  $\sigma_1$  и мнимой  $\sigma_2$  компонент высокочастотной проводимости в области аномалий связана с сосуществованием двух фаз: вигнеровского стекла и фермиевской жидкости делокализованных носителей заряда [21].

Аналогичные частотные зависимости мнимой компоненты  $\sigma_2$  высокочастотной проводимости наблюдаются и вблизи других аномалий, которые осуществляются вблизи чисел заполнения, характеризующих дробный эффект Холла:  $\nu = 2/3, 2/5, 1/3$  (см. рис. 15), что позволяет думать, что вблизи каждого максимума проводимости (смотри рис. 12) имеется небольшая по магнитному полю область, в которой наблюдается сосуществование двух фаз: вигнеровского стекла и фермиевской жидкости.

### 3.3. $p$ -Si/SiGe/Si [22]

Высокочастотная проводимость была также исследована в структуре  $p$ -Si/SiGe/Si с концентрацией  $p = 8 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$  и подвижностью дырок  $1 \cdot 10^4 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$  в температурном интервале (0.3–4.2) К в магнитных полях до 18 Тл и частотах ПАВ (18–255) МГц.

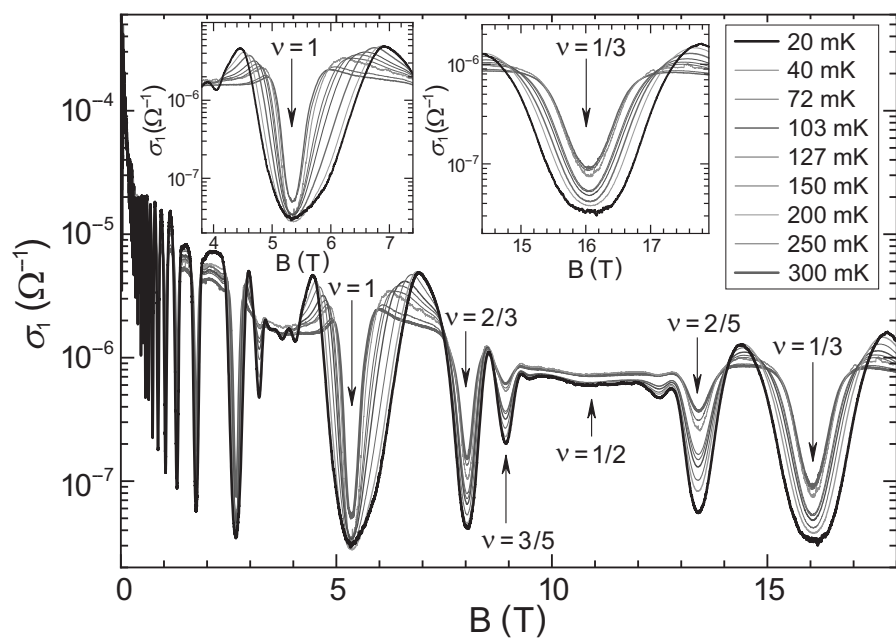


Рис. 12. Зависимость действительной компоненты проводимости  $\sigma_1$  от магнитного поля при разных температурах,  $f = 86$  МГц. На вставках — зависимость  $\sigma_1$  от магнитного поля вблизи чисел заполнения 1 (a) и  $1/3$  (b)

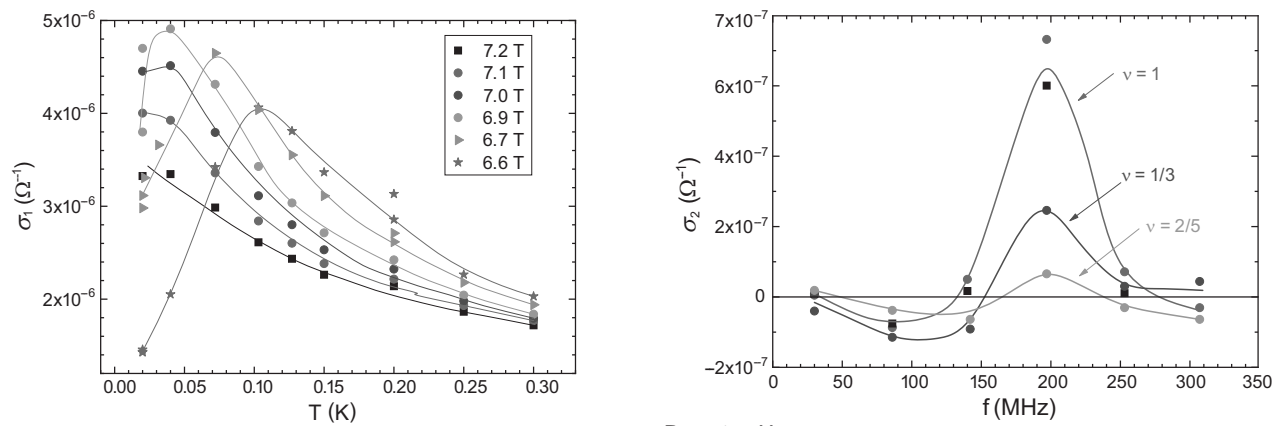


Рис. 13. Зависимость  $\sigma_1$  от температуры при разных значениях магнитных полей в области аномалий проводимости («крыльев»)

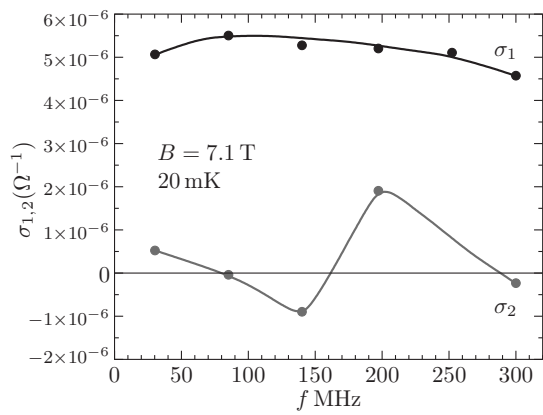


Рис. 14. Зависимость  $\sigma_1$  и  $\sigma_2$  от частоты при  $T = 20$  мК,  $B = 7.1$  Тл вблизи  $\nu = 1$  ( $\nu = 0.76$ )

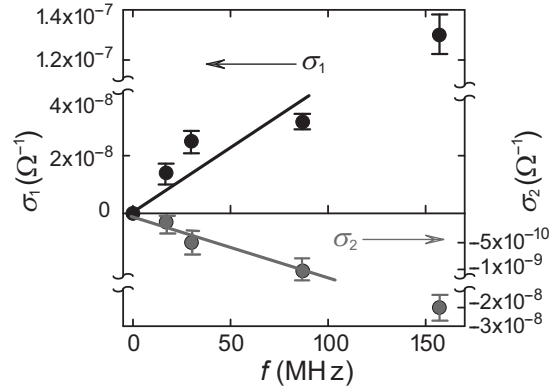


Рис. 16. Зависимость  $\sigma_1$  и  $\sigma_2$  от частоты  $f$  при  $T = 300$  мК и  $B = 18$  Тл

При  $T = 300$  мК в этой структуре наблюдалась необычная частотная зависимость компонент  $\sigma_1$  и  $\sigma_2$  (см. рис. 16).

Отрицательный знак мнимой части проводимости, представленной на рис. 16, можно было объяснить только образованием островков (доменов) вигнеровского кристалла, запиннированных на беспорядке вдали от частоты пиннинга. Действительно, на основании работы [14] вдали от частоты пиннинга при условии

$$u \gg \omega \omega_c / \omega_{p0}^2 \gg 1 \quad (17)$$

проводимость определяется уравнениями

$$\begin{aligned} \operatorname{Re} \sigma_{xx} = \sigma_1 &= \frac{e^2 p}{m^* \omega_{p0}^2} \frac{\omega}{u}, \\ \operatorname{Im} \sigma_{xx} = \sigma_2 &= -\frac{e^2 p}{m^* \omega_{p0}^2} \frac{\omega}{u^2}. \end{aligned} \quad (18)$$

Поскольку в эксперименте наблюдалась линейная зависимость  $\sigma_1$  и  $\sigma_2$  от частоты, то можно было определить величину  $u = 40$ . Это означает, что условие (17) выполняется, что дает возможность оценить частоту пиннинга в отсутствие магнитного поля  $\omega_{p0} \approx 1.5 \cdot 10^{10} \text{ с}^{-1}$ .

Теперь из эксперимента известна величина  $u$  и сделана оценка величины  $\omega_{p0}$ , поэтому, используя формулу (18), можно определить концентрацию дырок  $p_{WC}$ , образующих домены вигнеровского кристалла и их средний размер  $L$  по формуле (10). Оказалось, что  $p_{WC} \approx 10^9 \text{ см}^{-2}$ , а  $L \approx 4 \cdot 10^{-4} \text{ см}$ .

#### 4. ВЫВОДЫ

В двумерных структурах с высокой подвижностью (малым беспорядком) и малой концентрацией носителей заряда при температурах 20–300 мК в сильном магнитном поле с большой вероятностью возможно наблюдать образование доменов вигнеровского кристалла — вигнеровского стекла. Акустические методы являются весьма полезными для обнаружения и исследования параметров и динамических свойств этого состояния.

**Благодарности.** Авторы благодарны Е. Green, R. Nowell и L. Jiao за помощь в проведении экспериментов в NHMFL; K. W. Baldwin, L. N. Pfeiffer и K. W. West за предоставленные образцы AlGaAs/GaAs/AlGaAs, а также О. Миронову и М. Миронову за предоставленные образцы Si/SiGe/Si.

**Финансирование.** NHMFL поддерживается грантами NSF/DMR-1157490, NSF/DMR-1644779, NSF/DMR-2128556 и штатом Флорида.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. E. P. Wigner, Phys. Rev. **46**, 1002 (1934).
2. А. В. Чаплик, ЖЭТФ **62**, 746 (1972).
3. Ю. Е. Лозовик, В. И. Юдсон, Письма в ЖЭТФ **22**, 26 (1975).
4. C. C. Grimes, and G. Adams, Phys. Rev. Lett. **42**, 795 (1979).
5. M. Shayegan, Nature Rev. Phys. **4**, 212 (2022).
6. M. Shayegan, *Flatland Electrons in High Magnetic Fields, Vol. 3 of High Magnetic Fields: Science and Technology*, World Scientific Co, Singapore (2006), p. 31.
7. V. M. Pudalov, Phys. Quantum Electrons Solid (international, Cambridge, MA (1994) p. 124.
8. M. A. Paalanen, R. L. Willet, P. B. Littlewood et al., Phys. Rev. **45**, 11342 (1992); M. A. Paalanen, R. L. Willet, R. R. Ruel et al., Phys. Rev. B **45**, 13784 (1992).
9. Yong P. Chen, *Quantum Solids of Two Dimensional Electrons in Magnetic Fields*, PhD Thesis, Princeton University (2005), p. 215
10. L. Bonsall and A. A. Maradudin, Phys. Rev. B **15**, 1959 (1977).
11. B. G. A. Normand, P. B. Littlewood, and A. J. Millis, Phys. Rev. B **46**, 3920 (1992).
12. H. Fukuyama, and P. A. Lee, Phys. Rev. B **17**, 535 (1978).
13. P. D. Ye, L. W. Engel, D. C. Tsui et al., Phys. Rev. Lett. **89**, 176802 (2002).
14. M. M. Fogler and D. A. Huse, Phys. Rev. B **62**, 7553 (2000).
15. I. L. Drichko, A. M. Diakonov, I. Y. Smirnov et al., Phys. Rev. B **62**, 7470 (2000).
16. I. L. Drichko, I. Yu. Smirnov, A. V. Suslov et al., Phys. Rev. B **94**, 075420 (2016).



- 
- |   |   |
|---|---|
| <p><b>17.</b> I. L. Drichko, I. Yu. Smirnov, A. V. Suslov et al., Solid State Commun. <b>213–214</b>, 46 (2015).</p> <p><b>18.</b> H. Deng, L. N. Pfeiffer, K. W. West et al., Phys. Rev. Lett. <b>122</b>, 116601 (2019).</p> <p><b>19.</b> I. L. Drichko, I. Yu. Smirnov, A. V. Suslov et al., Phys. Rev. B <b>92</b>, 205313 (2015).</p> | <p><b>20.</b> I. L. Drichko, I. Yu. Smirnov, A. V. Suslov et al., Phys. Rev. B <b>107</b>, 085301 (2023).</p> <p><b>21.</b> В. М. Пудалов, Письма в ЖЭТФ <b>116</b>, 456 (2022).</p> <p><b>22.</b> I. L. Drichko, A. M. Dyakonov, I. Yu. Smirnov et al., Phys. Rev. B <b>77</b>, 085327 (2008).</p> |
|---|---|

# ЭФФЕКТЫ ДЛИННОЙ ПАМЯТИ ПРИ РАЗВИТИИ НЕУСТОЙЧИВОСТИ В СЛУЧАЙНОЙ СРЕДЕ

А. П. Очир-Горяева <sup>a,c\*</sup>, Д. Д. Соколов <sup>a,b,c</sup>, Е. А. Илларионов <sup>b</sup>

<sup>a</sup> Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова,  
физический факультет  
119991, Москва, Россия

<sup>b</sup> Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова,  
механико-математический факультет  
119991, Москва, Россия

<sup>c</sup> Институт земного магнетизма, ионосферы и распространения  
радиоволн им. Н. В. Пушкова Российской академии наук  
108840, Москва, Россия

Поступила в редакцию 27 марта 2024 г.,  
после переработки 9 августа 2024 г.  
Принята к публикации 10 августа 2024 г.

При изучении развития неустойчивостей в случайной среде часто предполагается, что память в среде теряется мгновенно в предписанные моменты времени, тогда как естественно предполагать, что потеря памяти происходит постепенно. В работе изучаются эффекты, возникающие в результате постепенной потери памяти. Оказывается, что длинная память может повышать скорость развития неустойчивости (увеличивать показатель Ляпунова). Устанавливается связь этого эффекта с эффектами перемежаемости, возникающими при развитии неустойчивостей в случайной среде. Исследование проводится в рамках простой модели, предложенной Я. Б. Зельдовичем для описания развития неустойчивости, возникающей под действием флуктуаций кривизны при распространении света во Вселенной, однородной и изотропной лишь в среднем.

DOI: 10.31857/S0044451024120113

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Многие задачи о развитии неустойчивостей в случайной среде содержат в качестве своей составной части задачу о перемножении случайных матриц вдоль лагранжевой траектории (например, [1]). К ним относится, например, задача гидромагнитного динамо, в которой изучается генерация магнитного поля  $\mathbf{H}$  в нерелятивистском случайном потоке  $\mathbf{v}$  проводящей жидкости в результате эффекта электромагнитной индукции (например, [2,3]). Этот процесс описывается уравнением индукции

$$\frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} + (\nabla \mathbf{v})\mathbf{H} = (\mathbf{H}\nabla)\mathbf{v} + \nu_m \Delta \mathbf{H}, \quad (1)$$

которое с помощью перехода в лагранжеву систему отсчета и в пренебрежении малым коэффи-

циентом магнитной диффузии  $\nu_m$  сводится к системе обыкновенных дифференциальных уравнений вдоль лагранжевой траектории

$$\frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} = (\mathbf{H}\nabla)\mathbf{v}. \quad (2)$$

Если предположить, что матричный случайный процесс

$$\hat{A} = \nabla \mathbf{v} = \left\| \frac{\partial v_i}{\partial x_j} \right\| \quad (3)$$

теряет свою память в фиксированные моменты времени, отстоящие друг от друга на равные временные промежутки  $\tau$  (промежутки обновления), то решение начальной задачи для уравнения (2) сводится к перемножению случайных матриц  $\hat{B}$ , описывающих эволюцию магнитного поля в случайном поле скорости  $\mathbf{v}$ . Если, например, матрица  $\hat{A}$  постоянна на промежутке обновления, то  $\hat{B} = \exp \tau(\hat{A})$ , если же матрица  $\hat{A}$  меняется во времени, то вместо экспоненты в

\* E-mail: alinaocirgoraeva259@gmail.com

последнем соотношении возникает мультипликативный интеграл Вольтерра, или (в более физической терминологии)  $t$ -экспонента. Матрицы  $B$ , отвечающие различным интервалам обновления, очевидно, независимы, так что полное решение уравнения (2) сводится к произведению независимых случайных матриц. Если рассматривается стационарная в среднем случайная среда, то эти матрицы равномерно распределены. Определители этих матриц, будучи скалярами, выносятся из матричного произведения, поэтому достаточно рассматривать произведения унимодулярных матриц, а дополнение полученных результатов произведением их определителей проблем не вызывает.

Свойства произведения большого числа независимых унимодулярных случайных матриц хорошо изучены в теории вероятностей и составляют содержание классической теории Ферстенберга (ее основные черты описаны ниже). В частности, выясняется, что это произведение экспоненциально растет с ростом числа сомножителей, предлагаются методы для вычисления показателя Ляпунова, характеризующего скорость этого роста. Обнаруживается также явление перемежаемости, состоящее в том, что скорость роста статистических моментов, нормированная на номер момента, увеличивается с номером момента (см., например, [4, 5]).

Разумеется, полное исследование свойств неустойчивости этим не ограничивается. В частности, приходится так или иначе учитывать роль малой диффузии  $\nu_m$ , однако это достигается уже иными методами.

Описанная выше схема исследования неустойчивости содержит ряд очевидных идеализаций. В частности, она предполагает, что память случайного потока полностью исчезает в моменты обновления. Гораздо более реалистичным является представление о том, что память исчезает не полностью, а последующий интервал обновления сохраняет небольшую память о предыдущем интервале обновления. Остатки этой памяти, экспоненциально уменьшаясь от одного момента обновления к последующему, в принципе сохраняются на протяжении всей эволюции магнитного поля.

Изучение эффектов, связанных в рамках описанного подхода с этой длинной памятью потока, практически отсутствует в литературе. В частности, при наличии подобной памяти перестают действовать аналитические методы теории Ферстенберга, однако исследование этих эффектов методами прямого численного моделирования не вызывает принципиальных затруднений, поскольку система обыкновенных дифференциальных уравнений (2) гораздо проще исходной системы (1). Это исследование и составляет содержание данной работы.

Представляется, что в рамках подобного исследования разумно отделить изучение эффектов памяти от технических проблем вычисления матричных экспонент, показателя Ляпунова и т.п., которые важны сами по себе, но в контексте данной работы играют второстепенную роль. Поэтому мы исследуем эффекты памяти на примере простой модели неустойчивости в случайной среде, которая была предложена Я. Б. Зельдовичем еще в 1964 г. [6]. В этой работе рассматривается распространение света в космологической модели, которая является однородной и изотропной лишь в среднем. Оказывается, что за счет флуктуаций кривизны свет от далеких источников распространяется так, что создается впечатление, что кривизна пространственного сечения отрицательна, даже если средняя плотность Вселенной равна критической. Это происходит за счет своеобразной неустойчивости, в результате которой с удалением от наблюдателя экспоненциально растет расстояние между близкими геодезическими, по которым распространяется свет.

Статья Зельдовича интересна с различных сторон и была воспринята в космологии, хотя сам по себе описанный в ней эффект количественно невелик просто потому, что в естественных для его оценки единицах Вселенная еще очень молода и развитие рассматриваемой неустойчивости еще не успело зайти слишком далеко. Для нас сейчас интересен лишь один аспект этой работы — формальное описание неустойчивости сводится к очень простой системе уравнений, которая, с одной стороны, воспроизводит основные черты более сложных задач, а, с другой стороны, достаточно проста, чтобы не вносить не имеющие прямого отношения к рассматриваемому вопросу и сложные в техническом отношении детали. Поэтому в данной работе мы используем открытую Зельдовичем неустойчивость как модельную задачу для исследования на ее примере эффектов памяти при развитии неустойчивостей в случайной среде.

Развитие неустойчивостей в случайной среде содержит много разнообразных и важных эффектов, которые рассматривались в широко известных работах. Например, в работе [7] предложена качественная картина возникновения экспоненциальной расходимости траекторий динамических систем, а в работе [8] выяснена зависимость скорости роста от корреляционного времени. В данной работе мы ставим перед собой более локальную, но, как нам ка-

жется, осмысленную задачу — выяснить, чем развитие неустойчивости при условии, что память случайной среды теряется мгновенно в предписанные моменты времени, отличается от развития неустойчивости в среде, в которой память теряется постепенно. Поскольку обнаруживаемый при этом эффект невелик, мы проводим свое исследование так, чтобы отделить его от иных эффектов. Поэтому проводимое нами исследование не ориентировано на выяснение зависимости скоростей роста от других параметров задачи. Такому исследованию посвящены, в частности, работы [9, 10].

## 2. ОСНОВНЫЕ УРАВНЕНИЯ

При описании интересующей нас неустойчивости мы опираемся на работу [11], в которой формальное содержание исходной работы Зельдовича в методических целях отделено от наблюдательного аспекта. Исходная работа была написана тогда, когда изучение неустойчивостей в случайных средах еще делало свои первые шаги, так что было неясно, как конкретная ситуация данной задачи вписывается в более общий контекст.

Рассмотрим искривленное риманово многообразие (пространственное сечение космологической модели), точку  $X$  и две близкие геодезические  $\Gamma_1$  и  $\Gamma_2$ , исходящие из этой точки. Пусть  $\theta$  — малый угол между этими геодезическими в точке  $X$ . Одна из геодезических считается базовой и от нее отсчитывается угол  $\theta$ . Отложим на каждой из геодезических отрезок длины  $x$ . Расстояние между полученными таким образом точками пропорционально малому углу  $\theta$ , а возникающий здесь коэффициент пропорциональности  $y$  называется геодезическим отклонением, или полем Якоби. Важным замечанием Зельдовича было то, что описанное построение по существу двумерно, так что можно отвлекаться от трехмерности пространственного сечения космологической модели и считать величину  $y$  скаляром.

Оказывается, что поле Якоби удовлетворяет простому дифференциальному уравнению (уравнение геодезических отклонений):

$$y'' + ky = 0, \quad (4)$$

где производные берутся по расстоянию  $x$ , которое при соответствующем выборе системы единиц можно отождествить со временем  $t$ , а  $k$  — гауссова кривизна в соответствующей точке на базовой геодезической. Если бы мы хотели более последовательно рассматривать четырехмерное пространство-время,

в котором проводится это построение, уравнение (4) обросло бы тензорными индексами, гауссова кривизна двумерного пространства превратилась бы в секционную кривизну, пришлось бы учесть общее космологическое расширение и т.д. Замечательным обстоятельством, в полной мере использованном в оригинальной работе, является то, что все эти усложнения можно вводить в рассмотрение постепенно, а в рамках нашей работы мы от них отвлекаемся.

По смыслу поля Якоби  $y(0) = 0$ , а второе начальное условие, а именно значение  $y'(0)$ , для уравнения Якоби можно рассматривать как нормировку для угла  $\theta$ . Для постоянного  $k > 0$  решение уравнения Якоби осциллирует как  $\sin(\sqrt{k}t)$ , для  $k < 0$  оно экспоненциально растет как  $\exp(\sqrt{|k|}t)$ , а для  $k = 0$  оно растет линейно. На этом различии основано большинство космологических тестов, само построение было предложено еще Гауссом в его работах по геодезической съемке, а идея приложения к космологии восходит к работам Н. И. Лобачевского.

При изучении роли флуктуаций кривизны (в космологическом контексте — плотности) в распространении света величину  $k$  нужно считать не константой, а случайным процессом. Эффект Зельдовича состоит в том, что если среднее значение случайного процесса  $k$  равно нулю (пространственное сечение в среднем является плоским, а плотность в среднем равна критической), то поле Якоби растет не линейно, а экспоненциально, как и для открытой Вселенной.

## 3. РОСТ ПОЛЯ ЯКОБИ БЕЗ УЧЕТА ПАМЯТИ

Для связности изложения напомним кратко, как исследуются решения уравнения Якоби без учета эффектов памяти. Уравнение (4) удобно свести к системе линейных уравнений первого порядка:

$$\frac{dz}{dx} = \mathbf{z}\hat{A}, \quad (5)$$

где двумерный вектор-строка  $\mathbf{z}$  имеет компоненты  $y, y'\tau$ , а бесследовая матрица

$$\hat{A} = \begin{pmatrix} 0 & -K\Delta \\ 1/\Delta & 0 \end{pmatrix} \quad (6)$$

постоянна на каждом интервале обновления. Начальное условие для этой системы имеет вид  $\mathbf{z}_0 = (1, 0)$ . Решение системы (5) на  $n$ -м интервале обновления имеет вид

$$\mathbf{z}_n = \mathbf{z}_{n-1} \hat{B}_n = \mathbf{z}_0 \hat{B}_1 \dots \hat{B}_n, \quad (7)$$

где  $\mathbf{z}_n$  — значение вектора  $\mathbf{z}$  в конце  $n$ -го интервала обновления, а  $\hat{B}_n = \exp \hat{A}_n \tau$  ( $\hat{A}_n$  — значение матрицы  $\hat{A}$  на  $n$ -м интервале обновления). Отметим, что матрицы  $\hat{B}_n$  равномерно распределены, независимы и унимодулярны. Таким образом, задача сводится к изучению поведения произведения большого числа независимых равномерно распределенных унимодулярных случайных матриц.

С помощью представления решения уравнения Якоби в виде (7) рассчитываются различные характеристики роста решения. Проще всего найти скорость роста среднего значения модуля решения, т.е.

$$\gamma_1 = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{\ln \langle |z(n\Delta)| \rangle}{n\Delta}. \quad (8)$$

Для этого достаточно найти среднее значение матриц  $\hat{B}_n$ , которое в силу равномерности этих матриц не зависит от номера  $n$  и тоже представляет собой матрицу  $\langle \hat{B} \rangle$ , а далее старшее собственное значение полученной матрицы, которое и определяет скорость роста первого момента. Несколько более сложное построение [9] дает матрицу, старшее собственное значение определяет скорость роста второго момента:

$$\gamma_2 = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{\ln \langle |z(n\Delta)|^2 \rangle}{2n\Delta}. \quad (9)$$

Скорость роста самого решения (усредняется логарифм модуля решения, а не логарифмируется среднее значение степеней модуля!), т.е. показатель Ляпунова

$$\gamma = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{\langle \ln |z(n\Delta)| \rangle}{n\Delta}, \quad (10)$$

можно найти как решение некоторого интегрального уравнения [10]. Замечательно, что эти характеристики роста не совпадают друг с другом, в чем проявляется явление перемежаемости [4]. В принципе аналогичным образом вычисляются скорости роста решения. Модельная задача, предложенная Зельдовичем, важна потому, что в ней строение матрицы  $\hat{A}$  достаточно просто для того, чтобы ее можно было легко параметризовать с помощью генератора случайных чисел, а потом явно или приближенно найти конкретные скорости роста.

Отметим, что, в принципе, эти скорости роста можно найти и путем прямого численного моделирования решений исходного уравнения со случайной кривизной, хотя для выявления эффекта перемежаемости потребуется очень большой (до полумиллиона) набор реализаций.

Центральную роль в этой аналитической теории играет предположение о том, что в момент обновления полностью теряется память случайного процесса  $K(x)$ . Задача настоящей работы состоит в том, чтобы прояснить, насколько важно это предположение и как небольшая память, переходящая от одного интервала обновления к другому, меняет эти результаты.

## 4. МОДЕЛЬ НЕУСТОЙЧИВОСТИ

### 4.1. Модель потери памяти

Теперь нам необходимо описать, как именно происходит потеря памяти в рассматриваемой модели. Будем отталкиваться от конструкции, в которой значения кривизны  $k$  на различных интервалах обновления, т.е. случайные величины  $k_n$ , независимы в совокупности при различных  $n$ . Заменяем в уравнении (4) случайный процесс  $k(x)$  на другой случайный процесс

$$q_1(t_n) = \frac{k(t_n) + k(t_{n-1})a}{\sqrt{1+a^2}}, \quad (11)$$

где величина  $a \in [0, 1]$  показывает, во сколько раз теряется память при переходе от  $(n-1)$ -го интервала обновления к  $n$ -му интервалу, а знаменатель введен для того, чтобы случайные процессы  $k$  и  $q$  имели равные дисперсии. Случайный процесс  $q_1$ , как и случайный процесс  $k$ , является кусочно-постоянным: оба они принимают постоянные значения на каждом интервале обновления. В стандартном гауссовом случае совпадают и их функции распределения. Однако значения процесса  $q_1$  на различных интервалах обновления не являются независимыми. Память о значении  $q_1$  на  $(n-1)$ -м интервале обновления сохраняется и на  $n$ -м интервале, но уже теряется на  $(n+1)$ -м интервале, хотя на нем процесс еще помнит свое значение на  $n$ -м интервале обновления. Можно сказать, что у процесса  $q_1$  глубина памяти равна  $\tau$ .

Аналогично можно построить процесс с глубиной памяти  $2\tau$ :

$$q_2(t_i) = \frac{k(t_i) + k(t_{i-1})a + k(t_{i-2})a^2}{\sqrt{1+a^2+a^4}}, \quad (12)$$

и при необходимости построить модели со сколь угодно длинной, но фиксированной глубиной памяти.

Подчеркнем, что рассматриваемая модель потери памяти не является единственной возможной, однако она уже достаточно сложна для того, чтобы сделать невозможным использование аналити-



ческих методов, описанных в предыдущем разделе. Для конкретности в данной работе мы не занимаемся развитием аналитических методов и ограничиваемся изучением выборочного роста поля Якоби для нашей модели методами прямого численного моделирования.

#### 4.2. Вычисление показателя Ляпунова

Теоретическое определение показателя Ляпунова предполагает переход к пределу при стремлении к бесконечности числа интервалов обновления. В этих предположениях существование положительного показателя Ляпунова доказано в математической теории Ферстенберга (см. изложение этой теории, ориентированное на читателя-физика в работе [12]). Естественно, в точном смысле слова это свойство нельзя проверить в рамках прямого численного моделирования, которое по своему смыслу предполагает вычисления на конечном отрезке изменения аргумента. Поэтому мы будем (не оговаривая это каждый раз специально) говорить о приближенной оценке скорости роста решения. Доказательство или опровержение того, что при бесконечном увеличении числа интервалов обновления эти оценки сходятся к определенному пределу и в случае нашей модели, представляет собой важную математическую задачу, но не представляет ограниченный интерес для физики, поскольку практически интересные неустойчивости развиваются лишь конечное, хотя и большое время (в случае исходной задачи Зельдовича оно ограничено возрастом Вселенной). Поэтому мы решаем уравнение Якоби на конечном интервале, как правило, составляющем сто времен обновления. Опыт численного моделирования задачи показывает, что без учета эффектов памяти для вычисления показателя Якоби с разумной точностью вполне достаточно ста интервалов обновления. Поскольку показатель Ляпунова, вычисленный разумным образом в нормированных единицах, сопоставим с единицей, то длина этого промежутка интегрирования кажется более чем достаточной в контексте физики.

Искомую оценку показателя Ляпунова мы будем определять по графику, по вертикальной оси которого отложен логарифм решения, а по горизонтальной — длина отрезка интегрирования. Показатель Ляпунова представляет собой угловой коэффициент прямой, аппроксимирующей такую зависимость. Непосредственная мотивация задачи предполагает, что по вертикальной оси откладывается  $\ln |y|$ . Однако  $y$  хотя и растет в целом экспоненциально, в

редких случаях в точках, практически никогда не совпадающих с точками обновления, обращается в нуль, так что на подобном графике образуются узкие и глубокие минимумы (часто говорят — спайки). Они интересны сами по себе. В рамках исходной космологической задачи они интерпретируются как гравитационные линзы, образованные не отдельными небесными телами, а Вселенной как целым. Однако для нашей задачи эти спайки не важны и лишь затрудняют исследование. Поэтому мы вычисляем логарифм от длины вектора  $\mathbf{z}$ , равной  $\sqrt{y^2 + (\tau y')^2}$ . В работе [13] проверено, что таким образом получается правильная оценка показателя Ляпунова в задаче без учета памяти.

Поскольку уравнение Якоби на каждом интервале обновления решается явно в виде некоторой матрицы, действующей на решение на предыдущем интервале обновления, мы получаем решение нашего уравнения за несколько интервалов обновления, просто перемножая соответствующие матрицы.

#### 4.3. Статистические свойства $k$

Для получения оценок показателя Ляпунова мы должны задать распределение вероятностей для  $k$ . В соответствии с исходным смыслом задачи естественно задать плотность вероятности  $k$ , симметричную относительно  $k = 0$ . При этом можно считать  $k$  распределенной по Гауссу. Однако нам представляется разумным рассмотреть и случаи флуктуирующей, но остающейся положительной (а в противоположном случае — отрицательной) кривизны, и сравнивать их с результатами, полученными для знакопеременной кривизны. Дело в том, что интересующая нас неустойчивость может быть трех типов [10]:

- решение экспоненциально растет и без флуктуаций кривизны, но они ответственны за флуктуации скорости роста ( $k < 0$ );
- решение растет на одних интервалах обновления и осциллирует на других, но, как оказывается, рост побеждает осцилляции ( $k$  знакопеременно);
- на всех интервалах обновления решение осциллирует, но может в итоге расти из-за наличия флуктуаций. Это явление похоже на явление резонанса ( $k > 0$ ). Подобное поведение решения похоже на поведение решения системы линейных дифференциальных уравнений вида  $dX/dt = \hat{A}X$  с постоянной матри-

цей в правой части, у которой старшее собственное значение комплексно, причем действительная часть старшего собственного значения положительна.

Исторически Зельдовича интересовал, конечно, второй из этих случаев, но он отмечал необходимость исследования и третьей возможности. В работе [10] показано, что третья ситуация действительно может реализовываться в данной модельной задаче, хотя в других задачах подобное явление было известно и ранее [14]. Мы рассмотрим, как влияет наличие памяти и в этих случаях. Поскольку гауссова случайная величина всегда, пусть и с малой вероятностью, знакопеременна, мы для сохранения знакоопределенности  $k$  рассматриваем модели с равномерным распределением  $k$ .

## 5. РЕЗУЛЬТАТЫ

### 5.1. Равномерное распределение кривизны, симметричное относительно ее нулевого значения

Рассмотрим сначала, как влияет память на рост решения при распределении кривизны, равномерном и симметричном относительно значения  $K = 0$  (рис. 1). На рисунке видно, что решение растет экспоненциально во всех трех случаях, скорости роста (см. таблицу) близки друг к другу, однако в целом график для моделей с памятью лежит даже несколько выше, чем аналогичный график без учета эффектов памяти. Замечательно также, что решение с глубиной памяти 2 лежит выше, чем решение с глубиной памяти 1, хотя различие этих кривых меньше, чем при переходе от первой кривой ко второй. Естественно, результаты несколько зависят от реализации случайной последовательности кривизн. На рис. 1 показаны результаты для двух различных реализаций.

Перед тем, как перейти к более детальному сравнению результатов для модели с памятью с результатами, которые получаются без учета эффектов памяти, обратим внимание на то, что это сравнение можно проводить двумя способами, причем оба способа представляют, как нам кажется, самостоятельный интерес. Во-первых, при построении последовательности случайных кривизн для различных интервалов обновления можно в обеих моделях использовать один и тот же набор случайных чисел. Во-вторых, в этих моделях можно использовать независимые наборы случайных чисел. В пер-

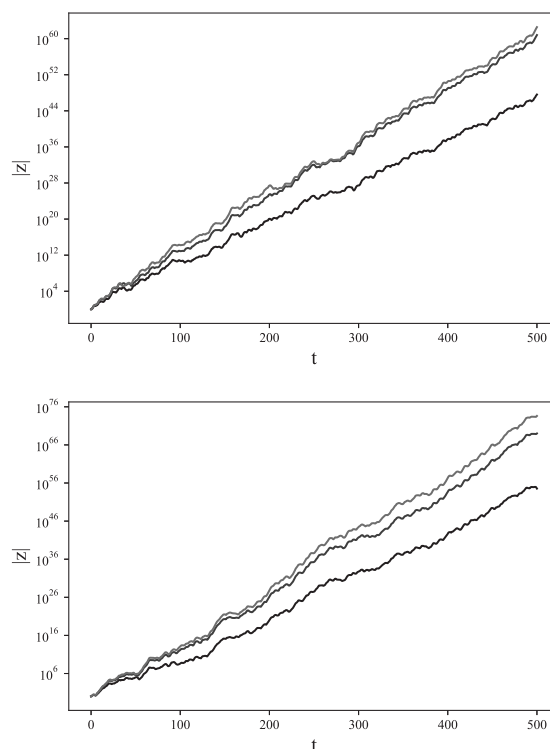


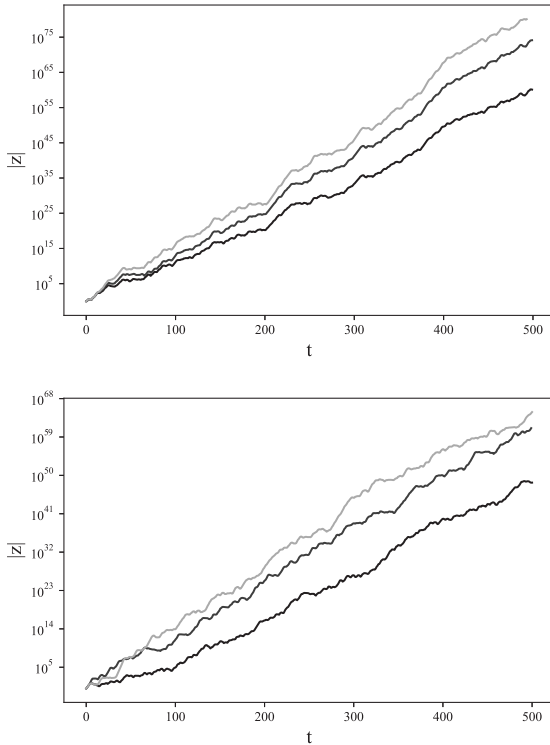
Рис. 1. Зависимости  $|z|$  от  $t$  при  $a = 0.5$ , черные кривые — модель без учета памяти, синие — модель с глубиной памяти 1, красные — модель с глубиной памяти 2. Верхняя и нижняя панели — результаты для двух независимых реализаций  $K$

вом случае мы выявляем, насколько возможно, эффекты памяти, отвлекаясь от всех других эффектов случайности, а во втором — выясняем, насколько велики эти эффекты по сравнению с другими эффектами, вызванными случайностью. Поскольку и то и другое кажется важным, на рис. 2, 3 мы приводим оба вида сравнения.

Оказывается, что дальнейшее увеличение глубины памяти не приводит к существенному изменению роста решения (рис. 2).

Увеличим теперь степень зависимости кривизны, т.е. коэффициент  $a$ . Теперь вторая и третья кривые гораздо больше отстоят друг от друга, чем на предыдущих рисунках. Однако, пожалуй, более значительное отличие состоит в том, что на кривой с наибольшей глубиной памяти хорошо виден участок, на котором рост практически прекращается, так что на графике образуется своеобразная полочка.

Количественные оценки скорости роста для нескольких реализаций в нескольких моделях распределения кривизны приведены в таблице. Эти

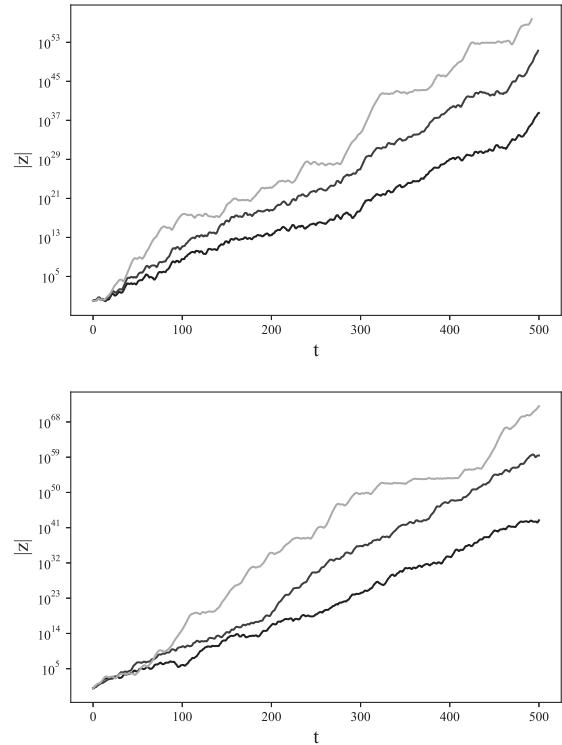


**Рис. 2.** Зависимости  $|z|$  от  $t$  при  $a = 0.5$ , черные кривые — модель без учета памяти, синие — модель с глубиной памяти 1, желтые — модель с глубиной памяти 10. Верхняя панель — сравнение результатов для модели с памятью и без памяти для одного и того же набора случайных чисел, использованных для генерации последовательности кривизн. Нижняя панель — сравнение результатов для моделей, в которых последовательности кривизн порождены различными наборами случайных чисел

данные позволяют судить о степени статистической устойчивости полученных результатов, которая нам представляется соответствующей сделанным выводам.

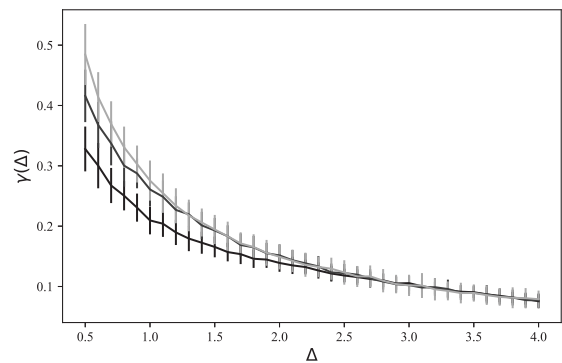
## 5.2. Зависимость показателя Ляпунова от длин временных интервалов обновлений

Примененный нами подход ориентирован на выделение эффектов долгой памяти, а не на исследование параметрического пространства моделей. Однако мы в качестве примера исследовали зависимость показателя Ляпунова от времени памяти. На рис. 4 построены оценки для показателей Ляпунова, усредненные по 100 реализациям, и указаны оценки статистических погрешностей средних. По смыслу задачи мы использовали каждый раз для построения последовательности случайных кривизн незави-



**Рис. 3.** Зависимости  $|z|$  от  $t$  при  $a = 1$ , черные кривые — модель без учета памяти, синие — модель с глубиной памяти 1, желтые — модель с глубиной памяти 10. Верхняя и нижняя панели построены так же, как на рис. 2.

симые наборы случайных чисел, т.е. использовали второй метод сравнения. На рис. 4 видно, что интересный нас эффект больше для малых времен памяти  $\Delta$ , что не кажется противоречащим здравому смыслу.



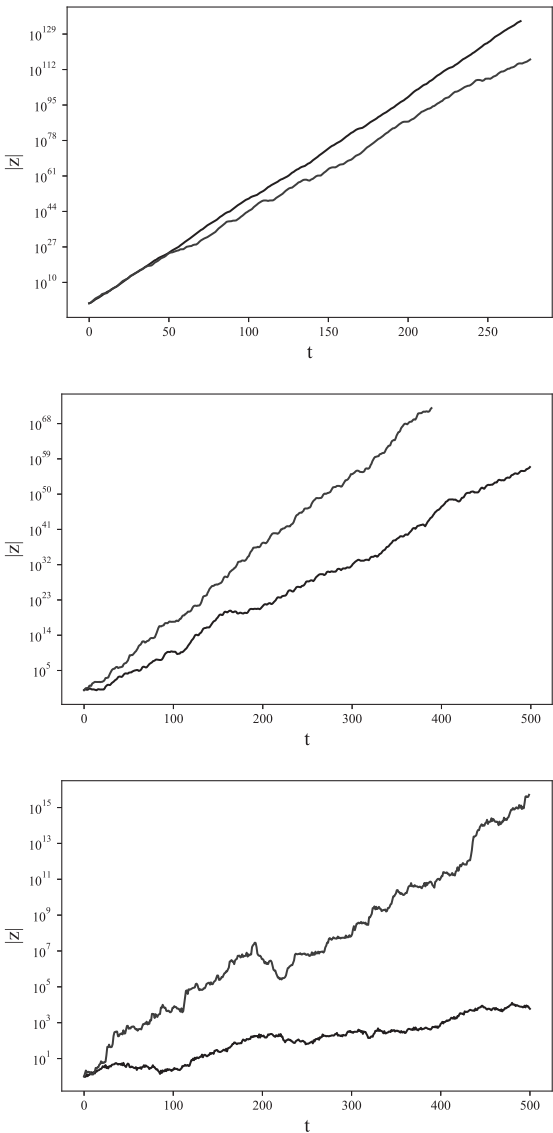
**Рис. 4.** Зависимости  $\gamma(\Delta)$ , черная кривая — модель без учета памяти, синяя — модель с глубиной памяти 1, желтая — модель с глубиной памяти 10

**Таблица.** Значения оценок коэффициента Ляпунова для 10 реализаций в нескольких моделях распределения кривизны и средние значения этих оценок

Угловые коэффициенты						
	Равномерное на $(-1, 1)$			Гаусс $N(0, 1)$		
	Глубина памяти					
$n$	0	1	10	0	1	10
1	0.197	0.257	0.283	0.37	0.43	0.46
2	0.21	0.256	0.283	0.273	0.31	0.312
3	0.196	0.249	0.337	0.333	0.37	0.35
4	0.21	0.29	0.233	0.313	0.347	0.352
5	0.233	0.308	0.343	0.303	0.363	0.372
6	0.22	0.283	0.369	0.34	0.37	0.40
7	0.24	0.288	0.322	0.32	0.378	0.364
8	0.195	0.237	0.286	0.363	0.388	0.432
9	0.208	0.264	0.298	0.298	0.368	0.401
10	0.208	0.281	0.332	0.28	0.328	0.305
$\overline{\gamma}$	0.211	0.272	0.309	0.319	0.365	0.375

6. МОДЕЛЬ С ГАУССОВЫМ РАСПРЕДЕЛЕНИЕМ КРИВИЗНЫ

Поскольку мы изучаем эффекты длинной памяти сравнивая поведение поля Якоби для случаев, когда кривизна флуктуирует, будучи отрицательной, положительной и знакопеременной, то нам неудобно рассматривать в качестве типичного примера гауссово распределение кривизны, которое всегда знакопеременно. Однако вне нашего сопоставления изучение случая, в котором кривизна распределена по Гауссу, представляет также очевидный интерес. Рассмотрение этого случая не вызывает технических трудностей. Для того чтобы сделать результаты сравнимыми с результатами с равномерным распределением, мы выбираем параметры гауссова распределения так, чтобы среднее совпадало со средним в равномерном распределении, т.е. было равно нулю, а среднеквадратичное значение — с половиной размаха равномерного распределения. Соответствующие результаты приведены на рис. 5 и в таблице. Видно, что оценки показателей Ляпунова при переходе к гауссову распределению, как правило, несколько увеличиваются, что, как нам представляется, вписывается в нашу интерпретацию результатов.



**Рис. 5.** Зависимости  $|z|$  от  $t$  при  $a = 0.5$ , синие кривые — модель с использованием распределения Гаусса и глубиной памяти 1, черные — модель с использованием равномерного распределения и глубиной памяти 1. Для первого (сверху вниз) графика среднее равно  $-1$ , для второго —  $0$ , для третьего —  $1$

7. ВЫВОДЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Суммируя полученные результаты, можно отметить следующие выводы. Учет эффектов памяти по крайней мере в рамках рассмотренной модели не приводит к радикальному пересмотру результатов, полученных для модели с обновлением. Решение изучаемой системы по-прежнему растет экспоненциально, полученные скорости роста (показатели Ляпунова) близки к тем, которые получаются

для модели с обновлением, во всяком случае, это величины одного порядка. Естественно, эти результаты, полученные для очень простой модели, хочется экстраполировать на гораздо более сложные задачи — прежде всего, на изучение мелкомасштабного динамо, т.е. на изучение самовозбуждения магнитного поля в турбулентном или конвективном потоке проводящей среды, не связанном непосредственно с эффектами зеркальной асимметрии течения. В этом контексте результаты выглядят оптимистически и снимают естественные опасения, возникающие в связи с пренебрежением эффектами памяти в аналитической теории, опирающейся на уравнение Казанцева. Что касается результатов прямого численного моделирования, то их возможности тоже небезграничны, а интерпретация полученных результатов вызывает непростые проблемы даже в тех случаях, когда решены все проблемы получения решения трехмерных уравнений, управляющих эволюцией магнитного поля и течения (см., например, [15, 16]). Во всяком случае, получение оценок скоростей роста, аналогичных полученным выше, потребовало бы многолетних специализированных исследований научной группы, не испытывающей материальных ограничений в своей работе. В принципе, изучение рассматриваемых вопросов экспериментальными методами тоже возможно, однако даже для тех неустойчивостей, документирование которых представляет непосредственный экономический интерес, обнаружение выборки экспериментальных данных с фиксированными статистическими свойствами и объемом, достаточным для подобных исследований, вызывает серьезные затруднения [17]. Поэтому можно надеяться, что с прагматической точки зрения роль эффектов памяти в рассматриваемом круге задач прояснена достаточно, так что эффекты памяти при экстраполяции имеющихся сведений, скажем, о мелкомасштабном динамо на реалистические ситуации опасений, по крайней мере на имеющемся уровне знаний, не вызывают.

С другой стороны, в полученных результатах есть элементы, которые кажутся неожиданными, контринтуитивными. Прежде всего кажется неожиданным, что учет памяти приводит не к уменьшению, а к некоторому увеличению скорости роста изучаемого поля. Естественно было бы думать, что учет памяти делает среду менее случайной, поэтому эффект, тесно связанный со случайностью, должен уменьшаться.

Хотелось бы более глубоко разобраться в причине, вызывающей такое усиление неустойчивости. Это оказывается возможным, если несколько изме-

нить модель памяти. Будем считать, что в каждый момент обновления случайным образом определяется, останется ли величина  $K$  той же, что и на предыдущем этапе эволюции (это происходит с малой вероятностью  $\mu$ ), или она примет новое значение, независимое от предыдущего (это происходит с вероятностью  $1 - \mu$ ). Эта вероятностная модель тоже, как нам кажется, представляет научный интерес, но ее изучение в полном объеме выходит за рамки данной статьи. Нам однако сейчас важно, что эта модель допускает аналитическое исследование. В рамках этого исследования обнаруживается следующий важный эффект.

Природа рассматриваемой неустойчивости связана с векторным характером эволюционирующей величины. Поэтому в решении (7) эволюционного уравнения фигурируют матрицы, которые, вообще говоря, некоммутативны. Если бы мы рассматривали эволюцию скалярной величины, которая описывается уравнением

$$(d/dt)y = a(t)y, \quad (13)$$

где  $a(t)$  — обновляющийся случайный процесс с нулевым средним и среднеквадратичным значением  $\sigma$ , постоянный на интервалах обновления, то его решение росло бы как

$$y = \exp(\sqrt{t\Delta}\sigma\zeta), \quad (14)$$

где  $\zeta$  — гауссова случайная величина с нулевым средним и единичной дисперсией, т.е. субэкспоненциально (для определенности мы предположили, что  $a$  в каждый момент времени распределено по Гауссу). Если же теперь мы рассмотрим это же уравнение, но предположим, что случайный процесс  $a$  имеет память, описываемую нашей второй моделью, то при вычислении показателя Ляпунова придется отдельно рассмотреть различные варианты того, как теряется память в данной реализации случайного процесса, причем среди этих вариантов возникнет и такой, в котором величина  $a$  примет положительное значение  $a_0 > 0$  и будет сохранять его в ходе всех следующих обновлений. Естественно, статистический вес этого варианта уменьшается как  $\mu^n \propto \exp(t/\Delta \ln \mu)$ , однако уменьшение статистического веса компенсируется экспоненциальным ростом вклада этой реализации  $\propto \exp(a_0 t)$ . В итоге решение может расти экспоненциально, что невозможно без учета эффектов памяти.

Иными словами, по крайней мере часть обнаруженного эффекта памяти связана с тем, что память дает возможность дольше обычного поработать



таким реализациям  $K$ , которые особо благоприятны для роста решения. Понятно теперь, почему возникают и участки решения, на которых рост уменьшается или вовсе прекращается — память иногда дает возможность подольше поработать и неудачным реализациям  $K$ .

Вопрос о том, насколько реалистична модель памяти, которая в принципе дает возможность (пусть и с экспоненциально уменьшающейся вероятностью) возникать реализациям, в которых среда фактически перестает быть случайной, выходит, конечно, за рамки возможностей теории вероятностей или теоретической физики. Во многих случаях такими маловероятными событиями можно свободно пренебрегать, но наличие явлений перемежаемости при развитии неустойчивостей в случайных средах показывает, что здесь это приходится делать с определенной осторожностью. Во всяком случае, такая объяснительная модель непривычна в круге вопросов, рассматриваемых в физике. Отметим однако с некоторым удивлением, что гуманитарные науки легко привлекают подобные модели в тех случаях, когда нужно объяснить, как в группе более-менее однотипных участников конкуренции выделяется бесспорный лидер (см., например, [18]).

## ЛИТЕРАТУРА

1. A. S. Il'yn, A. V. Kopyev, V. A. Sirota, and K. P. Zybin, Phys. Rev. E **105**, 054130 (2022).
2. Д. Д. Соколов, Р. А. Степанов, П. Г. Фрик, УФН **184**, 313 (2014).
3. E. A. Illarionov and D. D. Sokoloff, Phys. Rev. E **104**, 015214 (2021).
4. Я. Б. Зельдович, С. А. Молчанов, А. А. Рuzмайкин, Д. Д. Соколов, УФН **152**, 3 (1987).
5. D. D. Sokoloff and E. A. Illarionov, J. Plasma Phys. **81**, 395810402 (2015).
6. Я. Б. Зельдович, Астрон. ж. **41**, 19 (1964).
7. I. Goldhirsch, P. L. Sulem, and S. A. Orszag, Physica D **27**, 311 (1987).
8. M. Chertkov, G. Falkovich, I. Kolokolov, and V. Lebedev, Phys. Rev. E **51**, 5609 (1995).
9. Д. Д. Соколов, А. А. Чикина, Е. А. Илларионов, Астрон. ж. **98**, 355 (2021).
10. E. A. Illarionov and D. D. Sokoloff, Phys. Rev. E **107**, 044110 (2023).
11. V. Lamburt, D. Sokoloff, and V. Tutubalin, Astrophys. Space Sci. **298**, 409 (2005).
12. Ya. B. Zel'dovich, A. A. Ruzmaikin, S. A. Molchanov, and D. D. Sokoloff, J. Fluid Mech. **144**, 1 (1984).
13. А. Э. Мамедова, Д. Д. Соколов, Вестник МГУ, физика, астрон. **78**, 2350102 (2023).
14. В. Н. Тутубалин, Вестник МГУ, матем., мех. **3**, 6 (1990).
15. A. Brandenburg and D. Sokoloff, Geophys. Astrophys. Fluid Dyn. **96**, 319 (2002).
16. A. Brandenburg, K. Subramanian, and D. Sokoloff, Space Sci. Rev. **169**, 123 (2012).
17. А. О. Калинин, Д. Д. Соколов, В. Н. Тутубалин, Вестник МГУ, физика, астрон. **5**, 17 (2017).
18. Ф. Бродель, *Материальная цивилизация, экономика и капитализм*, т. 1–3, Весь Мир, Москва (2007).

# ФРАКТАЛЬНАЯ СТРУКТУРА ЕЛОВОЙ ЛАПЫ

С. В. Григорьев <sup>a,b\*</sup>, О. Д. Шнырков <sup>a,b</sup>, К. А. Пшеничный <sup>a</sup>, Е. Г. Яшина <sup>a,b</sup>

<sup>a</sup> Петербургский институт ядерной физики им. Б. П. Константинова  
Национального исследовательского центра «Курчатовский институт»  
188300, Гатчина, Ленинградская обл., Россия

<sup>b</sup> Санкт-Петербургский государственный университет  
198504, Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 17 июля 2024 г.,  
после переработки 26 августа 2024 г.  
Принята к публикации 26 августа 2024 г.

Методом численного фурье-анализа исследованы фрактальные свойства структуры еловой ветви. Изучены изображения еловых лап взрослой 26-летней ели, длиной около 13 м, на различной высоте дерева. Для различных лап, сфотографированных в разных проекциях, наблюдается степенная зависимость спектральной интенсивности  $I(q) = Aq^{-N}$ , где  $N = 2$  в диапазоне импульсов  $q$  от 0.07 до  $2 \text{ см}^{-1}$ . Такой степенной закон определяет характерную структуру еловой лапы, описываемую логарифмическим фракталом в двумерном пространстве в диапазоне размеров от 5 до 100 см. Обнаруженная структура представляет собой распределение хвои на еловой ветви и связана с ее функцией фотосинтеза. Транспортные функции ветви обеспечиваются ветвящейся структурой прутьев, которая описывается классическим фракталом с размерностью  $1 < D_f < 2$  в том же диапазоне импульсов от 0.07 до  $2 \text{ см}^{-1}$ .

DOI: 10.31857/S0044451024120125

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Многие объекты, встречающиеся в природе, настолько фрагментированы и раздроблены, что точно описать их в рамках классической геометрии невозможно. Для описания таких объектов во второй половине двадцатого века Бенуа Мандельброт ввел термин «фрактал» и построил новую, необычную, «фрактальную геометрию природы» [1]. Предложенная им концепция очень быстро получила распространение и стала применяться в различных областях науки и техники (от радиоэлектроники до медицины) [2–11]. Для фрактальных объектов помимо фрагментированности характерно еще одно свойство — самоподобие. Основной характеристикой фрактальных объектов является фрактальная размерность, которую используют для классификации этих объектов при описании нетривиальных свойств их структуры. Актуальность задач как по изучению фракталов экспериментальными методами, так и по развитию фрактальной теории обусловлена распространенностью объектов с фрактальными свойствами

ми, а также широким полем применения фрактальной концепции. Можно привести множество примеров, когда строение биологических систем или процессы в них можно описать с помощью фрактальной размерности. Фрактальные закономерности внутри живых организмов используют для диагностики заболеваний и прогноза потенциально опасных состояний [11–14].

Одним из самых наглядных, но в то же время и спорных, примеров фрактальной геометрии природы является дерево [15–21]. Современной основой для описания структуры деревьев является теория метаболического масштабирования, которая была предложена в работах Веста и соавторов [22, 23]. Теория, применяемая к растениям, основывается на предпосылке, что транспорт воды является сопутствующим лимитирующим фактором для фотосинтеза. Поскольку транспорт воды является в значительной степени физическим процессом, зависящим частично от структуры транспортной сети, его масштабирование можно предсказать с помощью относительно простых аллометрических моделей, что приводит к предсказанию масштабирования для всех зависимых метаболических процессов. Модель Веста [22, 23] довольно проста по своей

\* E-mail: grigoryev\_sv@pnpi.nrcki.ru

конструкции. Структура ветвления растения делится на внешние и внутренние компоненты. Внешняя структура следует симметричному и самоподобному ветвлению, что позволяет легко масштабировать структуру. Внешняя структура также соответствует биомеханическим принципам сохранения площади и безопасности от гравитационного выпучивания. Внутренняя структура ветвления представляет собой сеть ксилемных каналов внутри ветвей. Количество и размеры ксилемных каналов связаны простыми правилами с внешней сетью ветвей. Таким образом предполагается, что фрактальная геометрия деревьев является прямым отражением как внутренних, так и пластических, морфологических и физиологических особенностей, которые управляют ростом и выживанием деревьев. Поэтому фрактальная геометрия предоставляет уникальный способ количественного описания структурной сложности крон деревьев — совокупности ветвей и листвы на них. В модели можно предположить, что сосудистые сети деревьев представляют собой «заполняющие пространство» фрактальные сети их ветвей. То есть ветви деревьев подобны фракталам или самоподобны в разных масштабах, причем самоподобие в ветвлении подразумевает, что любая точка ветвления выглядит одинаково независимо от того, наблюдаем ли мы первую или последнюю точку ветвления дерева.

Экспериментально верифицированное описание структуры деревьев с помощью фрактальной концепции до недавнего времени оставалось невыполненным, и лишь в последнее время стали появляться методы, уверенно демонстрирующие фрактальные характеристики деревьев [24–27]. В подавляющем большинстве работ на тему о фрактальных свойствах деревьев исследователи стремились предложить модель (теоретическое построение) древоподобного объекта. Затем делалась попытка определить фрактальную размерность получившегося голема — искусственного построения, претендующего на более или менее качественную симуляцию реального дерева. Естественно, что подобные попытки приводят к результатам, которые лишь приближенно можно ассоциировать с деревьями.

По нашему мнению, осуществление эксперимента с реальными деревьями совершенно необходимо не только для верификации предложенных моделей, но не в последнюю очередь и для экспериментальной подсказки относительно самого предмета исследования: а какую часть дерева считать фрактальной — конфигурацию расположения листьев или структуру ветвления без учета листвы?

Эксперимент также способен прямо указать на наличие фрактальной закономерности, включая пространственные пределы, в которых она наблюдается. И действительно, самоподобие ветвей не сохраняется на всех уровнях иерархии ветвления лиственных деревьев [25,26], а старые ветви и молодые ветви должны рассматриваться отдельно [27]. Критерием деления на молодые и старые ветви может служить наличие/отсутствие листвы на ветвях. То есть молодые ветви являются прямыми участниками фотосинтеза, а старые ветви несут функции транспортной системы в целом организме дерева. Это заметно меняет их структурные характеристики, что и отражается в эксперименте [26,27]. Другими словами, экспериментальные методы определения фрактальной размерности объекта являются ключом для решения задачи описания фрактальных свойств в строении ботанических деревьев.

Существует несколько способов экспериментальной оценки фрактальной размерности деревьев, которые, однако, зависят от модели, описывающей определенные аспекты дерева — лиственный покров, систему ветвления и т. п. [15,19]. Аллометрические модели дают уже количественное описание пространственной и структуры деревьев и связанных с ними метаболических процессов через соотношение масштабирования значимых параметров дерева. Например, в работах [22,23] было показано, что скорость метаболизма  $B$  масштабируется с массой дерева  $M$  в степени  $3/4$  (т. е.  $B \sim M^{3/4}$ ). Это масштабное предсказание можно разбить на два отдельных компонента, которые по отдельности связывают массу и потребление воды с легко измеряемым диаметром ствола  $D$ . Эта концепция опирается на образ дерева как симметричный самоподобный объект. При этом остается неустановленной фрактальная размерность такого объекта, видимо, в виду сложности и многокомпонентности всей задачи. В развитие такого подхода в работе [28] было предложено оценивать метрику «доля пути», которая количественно определяет, в какой степени сеть ветвей «реального» дерева отличается от идеальной самоподобной сети. Метрика доля пути  $P_f$  определена как отношение среднего пути от комля до края последней ветви к максимальному такому пути. Величина  $P_f$  оказывается равной 1,  $P_f = 1$ , для симметричного самоподобного дерева. Такая конструкция в природе характерна для некоторых сортов дуба или для шаровидной ивы. Дерево оказывается несимметричным, если  $P_f = 2/3$  или  $P_f = 1/2$ , при которых начинает формироваться ствол и дерево по форме напоминает березу. В случае  $P_f = 1/3$

ствол доминирует в форме дерева и его по форме можно характеризовать, как ель. Оказалось, что с помощью такой метрики, величина которой колеблется от 0 до 1, можно характеризовать форму дерева. Однако при этом никак не определяется, какая часть дерева является фрактальной, и, конечно, не определяется фрактальная размерность дерева. Более того, такая сеть построена из линейных (путей), а не из объемных элементов, и поэтому так построенное «дерево» оказывается уже обобщенным деревом, далеким от действительности.

Существует способ оценки фрактальной размерности деревьев по методу «двух поверхностей» [29,30], который предполагает, что фрактальная размерность кроны дерева может быть получена из соотношения между общей площадью листьев дерева и площадью поверхности, покрывающей крону. Этот метод оценки можно расширить, а в качестве объема кроны рассматривать объем, занимаемый совместно и листьями, и ветвями [31]. При такой оценке фрактальная размерность принимает значения от 2 до 3, причем размерность, равная 2, означает, что листва распределена по периферии кроны, а поверхность кроны представляет собой классическую плоскую евклидову поверхность. По мере увеличения фрактальной размерности (т.е. при фрактальной размерности большей 2) поверхность кроны становится более фрактальной до тех пор, пока фрактальная размерность не станет равной 3, когда поверхность листвы равномерно распределена в заданном объеме кроны [29,31] (аналог кривой Пеано в трехмерном пространстве). Типичные значения фрактальной размерности при таком измерении составляют величину  $D = 2.2 - 2.3$ , что указывает на тенденцию расположения листового покрова на периферии кроны дерева [19]. При этом очевидно, что метод, скорее, говорит о фрактальной размерности листовенной массы на дереве и, возможно, опосредовано о молодых ветках, покрытых листьями, но не дает информации о строении всего дерева и структуре его ветвления.

Самым известным способом определения структурной сложности деревьев на основе фрактального анализа является метрика покрытия объема (в 3D-пространстве), занимаемого ветвями дерева, в зависимости от размера  $\epsilon$  покрывающего элемента. Экспериментально такое измерение можно провести методом лазерного сканирования трехмерной структуры дерева [24,25], а полученная фрактальная размерность в этом случае может меняться от 1 до 3. Подобная техника покрытия применима и для двумерных изображений деревьев [32]. Однако в случае

вечнозеленых лиственных деревьев ветви и ствол оказываются скрытыми листвой и приходится реконструировать фрактальную размерность объекта по фрактальным свойствам границы изображения дерева, т.е. по фрактальным свойствам его поверхности. К недостаткам такого подхода следует отнести то, что он дает оценку фрактальной размерности всего объекта целиком по измерениям только периферийных участков, причем покрытых листвой. Такой подход неприменим для лиственных деревьев, которые имеют более сложную структуру с разными фрактальными размерностями на разных масштабах, как было установлено в [25].

Тем не менее фрактальный анализ применим к изображениям деревьев без листвы (в зимнее время), когда можно сконцентрироваться на закономерностях ветвления дерева, а не его листового покрова [26,27]). Фрактальную структуру объекта в двумерном пространстве можно исследовать по его изображению методом численного фурье-анализа, моделируя тем самым эксперимент по малоугловому рассеянию света на двумерном объекте [33–38]. Этот метод заключается в нахождении и исследовании пространственных характеристик фурье-образа исследуемого изображения [39]. Использование метода численного фурье-анализа показало [26], что боковые проекции лиственных деревьев на масштабах, соответствующих взрослым веткам, являются логарифмическими фракталами, для которых характерен закон равенства площади поверхности на всех уровнях ветвлений взрослых ветвей. Более того, оказалось, что молодые ветки отличаются по своей фрактальной структуре от взрослых [27]. Следует особо подчеркнуть, что причиной наблюдаемых скейлинговых законов фурье-образов именно силуэтов (двумерных проекций) деревьев является квазидвумерная же структура слоя древесины, обеспечивающего водоснабжение дерева и снабжение его питательными веществами.

Хвойные породы деревьев с моноподиальным ветвлением, приводящим к образованию мощного ствола и многочисленных ветвей на нем, гораздо реже становились объектом изучения с помощью фрактального анализа. В этом случае в качестве объекта фрактальной геометрии следует рассматривать единичную ветвь. Отдельный интерес представляет вопрос о том, каково распределение ветвей (идентичных по своей структуре и морфологии) вдоль ствола. Для одиноко стоящей ели предполагается, что ее ветви распределены равномерно вдоль ствола по высоте и равномерно по азимуту вокруг оси ствола. В работах [18, 40, 41] был предложен

метод определения фрактальной размерности лапы ели. Ветвь рассматривалась как объект, построенный из линейных отрезков, и для определения фрактальной размерности оценивалась суммарная длина ветвей на каждом уровне ветвления. Были предложены формулы в виде сходящихся степенных рядов для вычисления суммарной длины ветвей ели в зависимости от уровня ветвления, и проводились последовательные вычисления суммарной длины ветвей при разных масштабах. Фрактальная размерность определялась как тангенс угла наклона прямой, аппроксимирующей зависимость между масштабной единицей измерения и суммарной длиной ветвей в двойном логарифмическом масштабе. Были проведены расчеты, учитывающие динамику роста ветви и отмирания побегов, а также различные уровни освещенности. При этом отмечалось [40], что аналитическое выражение для оценки фрактальной размерности ветки с учетом хвои на ней становится затруднительным. С одной стороны, хвоя вообще не увеличивает фрактальную размерность ветки, а с другой — существенно увеличивает площадь поверхности. Какова роль хвои в общей фрактальной структуре ветви, осталось невыясненным. Во всяком случае, результаты фрактального анализа, полученные в работах [18, 40, 41], базируются на модели одномерной ветви и не учитывают того факта, что ветвь имеет конечную площадь поверхности и конечный объем.

В своей работе мы даем экспериментальную оценку фрактальной размерности ветвей ели по их изображениям. Для измерения фрактальной размерности используется метод численного фурье-анализа изображений. В этом экспериментальном подходе при измерении учитывается площадь поверхности еловой ветви вместе с хвоей. Установлено, что лапы ели, обрамленные хвоей, формируются, подчиняясь закону логарифмического фрактала в двумерном пространстве, т. е. для них выполняется правило сохранения суммарной площади ветвей до и после ветвления.

Следует отметить, что до сих пор не было установлено связи между результатами теории метаболического масштабирования и экспериментально полученными значениями фрактальной размерности деревьев. В то же время наш подход, по всей видимости, обеспечит результатами, которые такую связь в недалеком будущем установят.

Работа организована следующим образом. В разд. 2 представлено исследование методом численного фурье-анализа изображений ветвей 26-летней ели с различной высоты ствола. В разд. 3 приводят-

ся результаты анализа фрактальной размерности ветвей, обрамленных хвоей. В разд. 4 полученные экспериментальные результаты сравниваются с результатами теоретической модели [18, 40, 41]. В разд. 5 представлены выводы работы.

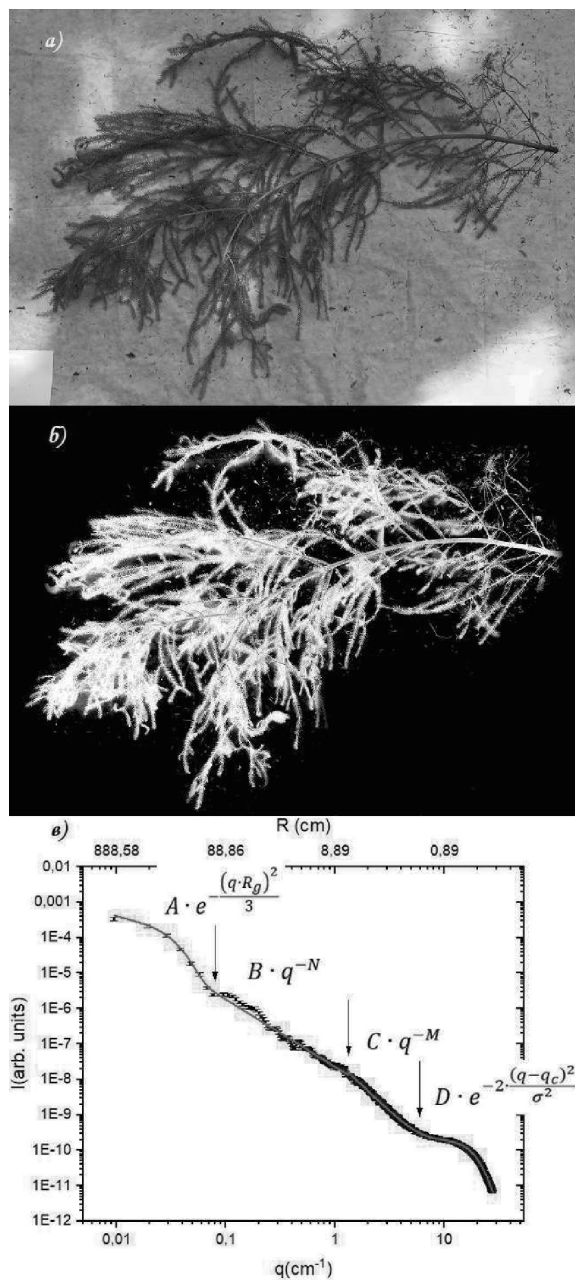
## 2. МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЯ

Еловая лапа представляет собой квазидвумерный объект, основу которого составляет иерархическая моноподиальная система ветвления. От центральной ветви отходит множество вторичных ветвей, которые располагаются в одной плоскости. Эти вторичные ветви дают третичные отростки в этой же плоскости, которые в свою очередь дают свои новые — все в одной плоскости. Такая квазидвумерная конструкция представляется удобным объектом для исследования через ее двумерное изображение — фотографию. При этом информация о структуре ветви не теряется, поскольку отчетливо видны все, даже самые малые, элементы этой структуры. Каждый побег еловой ветви обрамлен плотными рядами хвои, расположенной также в плоскости ветви. Оптический образ еловой ветви в значительной степени составляется из обрамления ветвей хвоей, поэтому еловая ветвь представляет собой совокупность прутьев и хвои как единое целое.

На рис. 1 дано изображение стандартной еловой ветви с небольшим (3–4) количеством ветвлений. Мы используем методику численного фурье-анализа для того, чтобы определить фрактальную размерность объекта в двумерном пространстве по его изображению. Фотография типичной ветви ели представлена на рис. 1 а. Для фурье анализа изображение должно быть как можно более контрастным, а в идеале — бинарным. Для достижения лучшей контрастности изображения фотографировать ветки следует на белом покрывале в пасмурный день, либо в тени при равномерном освещении, чтобы тени и солнечный свет не вносили дополнительные искажения в цвета фотографии. Снимок следует делать с расстояния около 3–4 м так, чтобы вся ветка попала в объектив. Полученные изображения следует обработать с использованием графического редактора так, чтобы сделать их максимально контрастными и черно-белыми. Помимо этого, мягкой кистью следует закрасить все посторонние объекты, попавшие на фотографию (камни, иголки и т. д.).

Контрастное черно-белое изображение той же ветви представлено на рис. 1 б. Затем проводится численное фурье-преобразование изображения дву-





**Рис. 1.** Типичная ветвь ели (а), контрастное черно-белое изображение (б), зависимость спектральной интенсивности  $I$  от переданного импульса  $q$  (фурье-зависимость) (в)

мерной черно-белой картины. Модуль полученного фурье-образа возводят в квадрат, азимутально усредняют, получая при этом зависимость спектральной интенсивности  $I$  от импульса  $q$  (фурье-зависимость) (рис. 1 в). Для реализации этих шагов мы использовали программу fractal [42]. Кривая, полученная при исследовании изображения методами фурье-анализа, имитирует зависимость интенсивности малоуглового рассеяния когерентного

излучения (рентгена, нейтронов, света) от переданного импульса в обратном пространстве (фурье-пространстве), который обратно пропорционально связан с масштабом. Таким образом, полученная кривая характеризует количество вещества в зависимости от масштаба. Более подробное описание этого метода и примеры его применения представлены в работах [34, 39, 43].

Как видно на рис. 1 в, при исследовании фотографий веток ели методом численного фурье-анализа кривую рассеяния можно разделить на четыре участка, каждый из которых демонстрирует свой характер убывания интенсивности с ростом импульса. В области малых импульсов кривая интенсивности описывается функцией Гинье

$$I(q) \propto \exp\left(-\frac{(qR_g)^2}{3}\right)$$

с  $R_g = 64 \pm 3$  см в диапазоне переданных импульсов от 0.01 до 0.07 см<sup>-1</sup>. На втором участке кривая рассеяния в двойном логарифмическом масштабе хорошо аппроксимируется прямой, наклон которой близок к 2, что соответствует структуре логарифмического фрактала [39, 43]. Этот участок кривой описывается зависимостью  $I(q) \propto q^{-N}$  с  $N = 1.90 \pm 0.03$  в диапазоне импульсов от 0.07 до 1.3 см<sup>-1</sup>, что соответствует масштабам в реальном пространстве от 6.8 до 111 см. Следующий участок характеризуется ускорением убывания интенсивности. В двойном логарифмическом масштабе кривая интенсивности на этом участке аппроксимируется прямой с наклоном близким к 3. В диапазоне импульсов от 1.3 до 8.5 см<sup>-1</sup> (от 1 до 6.8 см в реальном пространстве) кривая рассеяния описывается законом  $I(q) \propto q^{-M}$  с  $M = 2.95 \pm 0.01$ . Этот участок соответствует рассеянию на минимальном элементе фрактала, а точка перехода от второго участка к третьему соотносится с размером минимального элемента фрактала. Эта зависимость по сути не является фрактальной и по величине показателя степени  $M$  близкой к 3, и по малому диапазону, в котором она наблюдается. Эта зависимость характеризует ограничение снизу действительно фрактального диапазона с индексом  $N$  в области малых  $q$ . В области больших переданных импульсов наблюдается характерная особенность — «плечо» интенсивности с резким обрывом при максимальных  $q$ . Кривая на этом участке хорошо описывается функцией Гаусса. В диапазоне импульсов от 8.5 см<sup>-1</sup> (менее 1 см в реальном пространстве) кривая рассеяния описывается законом

$$I(q) \propto \exp\left(-2\frac{(q - q_c)^2}{\sigma^2}\right)$$

с  $q_c = 10.3 \pm 0.1 \text{ см}^{-1}$ , что соответствует 0.86 см в реальном пространстве, и  $\sigma = 13.1 \pm 1 \text{ см}^{-1}$ , что соответствует 0.68 см в реальном пространстве. Эта особенность ассоциируется с рассеянием на отдельных игловках или их парах, тройках — т.е. на корреляциях хвои, обрамляющей ветвь ели. Отметим сразу, что кривая спектральной интенсивности численного фурье-преобразования для любых еловых ветвей выглядит совершенно одинаково и характеризуется участком логарифмического фрактала и корреляционным горбом еловой хвои.

### 3. ИССЛЕДОВАНИЕ ИЗОБРАЖЕНИЙ ЛАП 26-ЛЕТНЕЙ ЕЛИ МЕТОДАМИ ЧИСЛЕННОГО ФУРЬЕ-АНАЛИЗА

Для демонстрации универсальности степенных законов, характеризующих изображения еловых ветвей, процедура численного фурье анализа была проведена для всех ветвей отдельной ели, выросшей в парке «Орлова роща» г. Гатчины Ленинградской области. Ель, выросшая в густом ельнике, была свалена ветром в мае 2023 года, после чего и проводили исследование. Возраст ели определяли по числу годовых колец на спиле ствола упавшего дерева в 40 см от корня, он составляет 26 лет. Высота дерева равна 13 метрам.

На примере этого дерева мы изучили структуру ветвей, растущих на разной высоте ели. Живую ветвь упавшей ели отделяли от ствола, фиксируя при этом высоту на которой росла ветвь. Затем, изображение (фотографию) этой ветви делали, соблюдая метод и критерии, описанные в предыдущем разделе. Эти фотографии обрабатывали в графическом редакторе, получая черно-белое изображение, и проводили численный фурье-анализ, используя программу fractal [42].

Полученные результаты свидетельствуют, что спектральные кривые веток, взятых с разных высот, имеют одинаковую структуру. Примеры изображений ветвей и их спектральных кривых представлены на рис. 2–4. На первых 325 см ствола ель не имела ветвей.

На рис. 2 представлена кривая интенсивности  $I$  от импульса  $q$  для ветви ели с высоты 399 см. Зависимость  $I(q)$  делили на два участка: участок больших масштабов при  $q < 2.1 \text{ см}^{-1}$  и участок малых масштабов при  $q > 2.1 \text{ см}^{-1}$ . Граничный импульс  $q = 2.1 \text{ см}^{-1}$  соответствует 4 см в прямом простран-

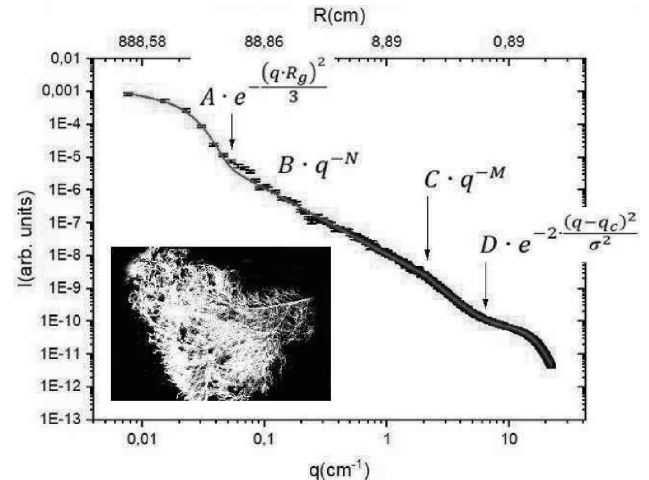


Рис. 2. Спектральная кривая изображения ветви ели с высоты 399 см

стве. Спектральную кривую на больших масштабах (малых  $q$ ) описывали суммой двух функций:

$$I(q) = A \exp\left(-\frac{(qR_g)^2}{3}\right) + Bq^{-N}. \quad (1)$$

При  $q < 0.05 \text{ см}^{-1}$  (177 см в прямом пространстве) преобладает вклад от функции Гинье с радиусом гираций  $R_g = 86 \pm 3 \text{ см}$ , а при  $q > 0.05 \text{ см}^{-1}$  преобладает вклад от степенной функции с показателем степени  $N = 2.02 \pm 0.02$ . Такая степенная зависимость соответствует логарифмической фрактальной структуре. При  $q > 2.1 \text{ см}^{-1}$  (область малых масштабов) кривую интенсивности аппроксимировали суммой функций:

$$I(q) = Cq^{-M} + D \exp\left(-\frac{2(q-q_c)^2}{\sigma^2}\right). \quad (2)$$

Наилучшая сходимость аппроксимации достигалась при  $M = 3.2 \pm 0.02$ ,  $q_c = 9.1 \pm 0.1 \text{ см}^{-1}$ ,  $\sigma = 11.0 \pm 0.05$ . На качественном уровне ясно, что на участке кривой при  $q < 6.2 \text{ см}^{-1}$  (1.4 см в прямом пространстве) доминирует степенная функция, а на участке при  $q > 6.2 \text{ см}^{-1}$  преобладает вклад от функции Гаусса. Этот участок кривой рассеяния соответствует парным корреляциям элементов хвои.

На рис. 3 представлена кривая малоуглового рассеяния от ветви ели с высоты 663 см. Как и в предыдущем случае, зависимость разбивали на два участка. При  $q < 1.5 \text{ см}^{-1}$  (6 см в прямом пространстве) спектральную кривую описывали функцией (1). Параметры аппроксимации  $R_g = 71 \pm 3 \text{ см}$  и  $N = 2.05 \pm 0.02$  близки к величинам, полученным в предыдущем случае. Участок кривой при  $q > 1.5 \text{ см}^{-1}$  описывали выражением (2)

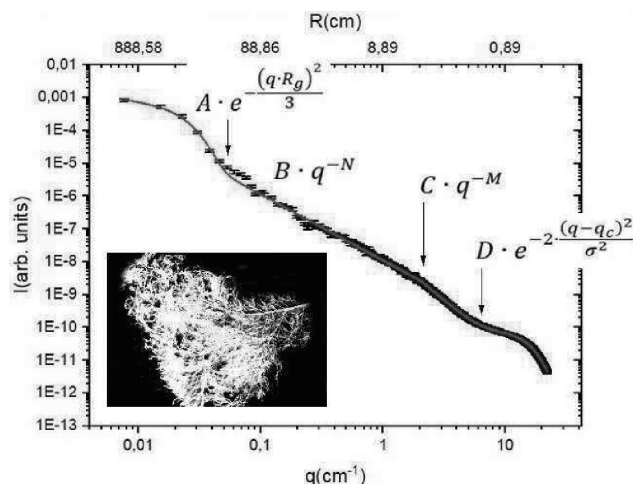


Рис. 3. Кривая малоуглового рассеяния, полученная при исследовании методом численного фурье-анализа ветви ели с высоты 663 см

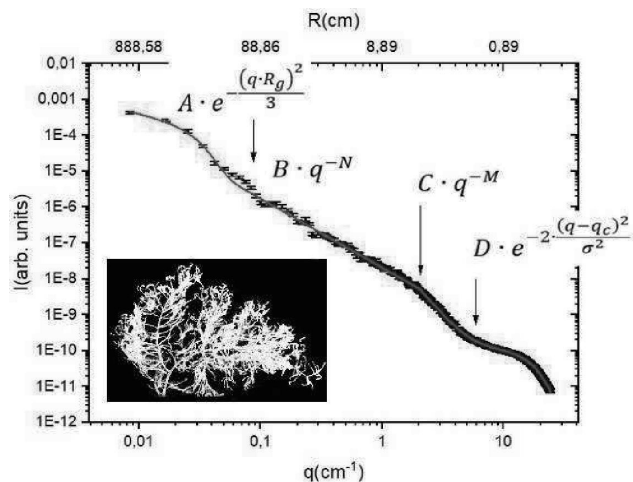


Рис. 4. Кривая малоуглового рассеяния, полученная при исследовании методом численного фурье-анализа ветви ели с высоты 830 см

с характерными параметрами  $M = 3.51 \pm 0.01$ ,  $q_c = 9.0 \pm 0.1 \text{ см}^{-1}$ ,  $\sigma = 12.4 \pm 0.2$ .

На рис. 4 представлена спектральная кривая для ветви ели с высоты 830 см. Для области больших масштабов (малых  $q$ ), т. е. при  $q < 1.8 \text{ см}^{-1}$ , зависимость  $I(q)$  описывали функцией (1) с параметрами  $R_g = 75 \pm 4 \text{ см}$  и  $N = 1.93 \pm 0.02$ . Участок зависимости при  $q > 1.8 \text{ см}^{-1}$  описывали выражением (2) с характерными параметрами  $M = 3.45 \pm 0.02$ ,  $q_c = 6.7 \pm 0.1 \text{ см}^{-1}$ ,  $\sigma = 15.0 \pm 0.1$ .

Фурье-анализ изображений ветвей, произрастающих на различной высоте вдоль ствола дерева, демонстрирует схожесть получаемых спектральных кривых. Все они характеризуются диапазоном Ги-

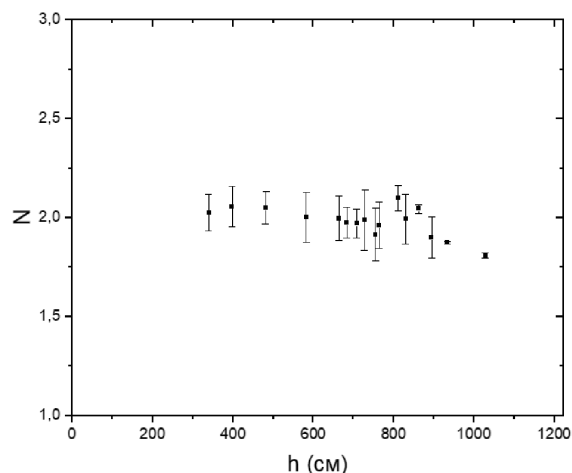


Рис. 5. Зависимость показателя степенной функции  $N$  от высоты произрастания ветки  $h$

нье с радиусом гираций  $R_g \sim 100 \text{ см}$ , широким участком, на котором наблюдается зависимость  $q^{-N}$  с  $N \approx 2$  и максимумом при  $q_c \sim 9 \text{ см}^{-1}$ . Величина показателя степени  $N$  в зависимости от высоты произрастания ветви представлена на рис. 5. В соответствии с моделью моноподиального ветвления несколько ветвей располагаются на определенной высоте ствола. Так, например, на высоте 330 см, 400 см и 480 см располагалось по 3 ветви. Результаты определения фрактальной размерности усреднялись для каждой из этих высот. Из графика видно, что по всей длине ствола ели показатель  $N$  близок к 2. Лишь для веток на верхушке ели показатель уменьшается до величины  $\sim 1.8 - 1.9$ .

Нет сомнений, что все ветви на определенных масштабах характеризуются одним и тем же законом — степенной зависимостью с показателем  $N$  равным 2, т. е. распределение вещества в еловой ветке подчиняется закону логарифмического фрактала. Эта зависимость сверху ограничена величиной  $R_g$ . Диапазон, в котором наблюдается эта степенная зависимость, ограничен снизу величиной  $R_{min}$ , разделяющей область малых и больших масштабов — точкой перехода от зависимости  $q^{-N}$  ( $N \approx 2$ ) к зависимости  $q^{-M}$  ( $M \approx 3$ ). На рис. 6 представлены величины  $R_g$  и  $R_{min}$ , характеризующие диапазон масштабов, на котором наблюдается логарифмический фрактал с  $N \approx 2$ . Этот диапазон примерно одинаков для всех ветвей вдоль ствола и органичивается снизу 3–4 см, а сверху величиной около 80–100 см. Никакой зависимости этого диапазона от высоты произрастания ветви вдоль ствола ели не наблюдается. Во фрактальной теории логарифмический фрактал характеризуется пробной функцией

следующего вида:

$$\rho(r) = r^2 \left( \log \frac{1}{r} \right)^{D_f}. \quad (3)$$

Размерность этого фрактала равна 2, а величина  $D_f$  называется подразмерностью и равна  $-1$ . Для полноты картины на рис. 6 нанесена зависимость параметра  $R_c = 2\sqrt{2}\pi/q_c$ , характеризующего расстояние между иглоками. Оно равно примерно 0.7 см для всех ветвей, изображения которых участвовали в анализе.

Таким образом, все ветви ели характеризуются одной и той же зависимостью, описываемой выражениями (1) и (2) с одними и теми же характерными величинами параметров  $R_g$ ,  $R_{min}$  и  $R_c$ .

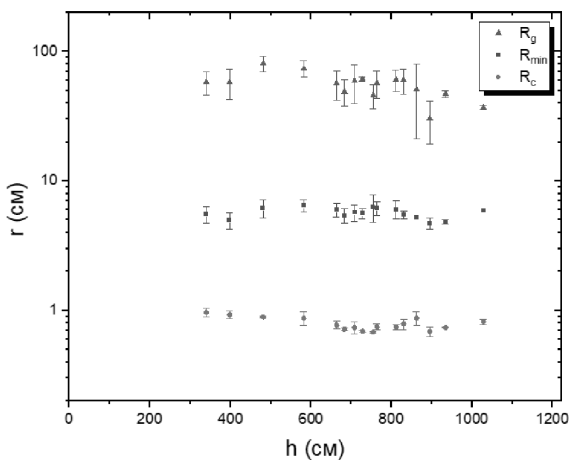


Рис. 6. Зависимости параметров аппроксимации  $R_g$ ,  $R_{min}$ ,  $R_c$  от высоты произрастания ветки  $h$

Интересно сравнить спектральную кривую для ветви с иглоками и для ветви без иголок. На рис. 7 в качестве примера представлена спектральная кривая ветви ели без иголок. Часть кривой при  $q < 2.02 \text{ см}^{-1}$  описывается 1, где  $R_g = 52 \pm 2 \text{ см}$ , а показатель степени  $N = 1.37 \pm 0.02$ . Эта фрактальная зависимость, ассоциирующаяся с классическим фракталом, заменила логарифмический фрактал, демонстрируя тем самым качественное различие структур ветки с иглоками и ветки без иголок. В области малых масштабов, в диапазоне импульсов от 2 до  $20 \text{ см}^{-1}$  (диапазон масштабов от 0.3 до 3 см) спектральная кривая быстро убывает, характеризуя, по-видимому, совокупность поперечных сечений веток. А участок кривой, соответствующий парным корреляциям иголок, вообще отсутствует.

Важно отметить, что в этой ветви отсутствует структура, соответствующая логарифмическому

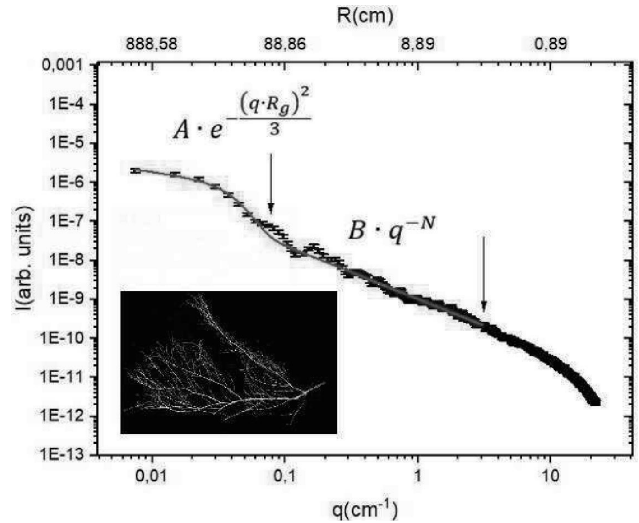


Рис. 7. Спектральная кривая, полученная при исследовании методом численного фурье-анализа ветви ели без иголок

фракталу, т. е. участку, на котором наблюдалась бы зависимость  $Q^{-2}$  или близкая к ней. Отсутствует и спектральная особенность, характеризующая корреляции хвои (иголок) при  $Q_c \approx 10 \text{ см}^{-1}$ . Вместо этого мы наблюдаем фрактальную структуру на основе линейных элементов — отрезков разной длины, заполняющих двумерное пространство. В целом объект выходит за пределы размерности 1 и оказывается объектом с размерностью  $1 < D_f < 2$ , т. е. подпадает под классификацию классических массовых фракталов в двумерном пространстве. Его пробная функция в теории фракталов описывается степенным выражением:

$$\rho(r) = r^{D_f}. \quad (4)$$

Для того чтобы уверенно установить величину фрактальной размерности ветви без иголок, необходимо провести отдельное, статистически достоверное измерение фрактальности сотен сухих ветвей, лишенных хвои. Это исследование еще не выполнено. Тем не менее уже сейчас можно заключить, что хвоя играет важную роль для дерева (ветки) не только сама по себе, но она является важной частью структуры живой, растущей ветви. Другими словами, ветвь с хвоей на масштабах в диапазоне от 3–4 см до 80–100 см является логарифмической фрактальной структурой (в соответствии с (3)) с плоским единичным элементом  $r^2$ . И в том же диапазоне масштабов ветвь без иголок описывается классическим фракталом с линейным единичным элементом  $r$  (в соответствии с (4)). Рассматривая изображения ветвей, интересно отметить качественное различие



иерархии этих двух фракталов: иерархия ветвей по размерам строится от ствола к периферии, а иерархия хвои, наоборот, строится от периферии к стволу.

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ

Экспериментальное исследование фрактальных свойств ветвей ели с помощью численного фурье-анализа их изображений продемонстрировало наличие двух фрактальных структур еловой ветви на масштабах от 3 до 100 см: логарифмического фрактала для расположения иголок на ветви и классического массового фрактала для распределения прутьев, собственно формирующих эту ветвь.

Не задаваясь извечным вопросом о том, какой из двух фракталов первичный, а какой вторичный, отметим, что для вечнозеленых хвойных деревьев ветки обрамлены хвоей, пока они участвуют в жизнедеятельности дерева. При этом именно хвоя играет главную роль в формировании ветки, как логарифмической фрактальной структуры. Распределение живого вещества иголок в пространстве лапы ели оказывается совсем не случайным. Оно подчинено закону квазидвумерной фрактальной конструкции — логарифмического фрактала — так, будто хвоя и есть существенная, определяющая часть этой конструкции. Следует напомнить, что в двумерном случае логарифмический фрактал интерпретируется как закон равенства площади на разных уровнях пространственного масштабирования, что в случае ветки ели выполняется только при учете покрывающей ее хвои. Это не удивительно, если принять во внимание, что именно хвоя, эти «еловые листья», будучи носителем фотосинтеза, служит источником углерода как строительного материала для ветвей и ствола дерева.

С другой стороны, распределение иголок определяется системой ветвления лапы, которое так ясно видно для ветки ели, на которой уже нет иголок. Ветка без иголок характеризуется структурой классического фрактала на плоскости с размерностью  $1 < D_f < 2$ . Этот закон носит случайный характер и ассоциируется с механизмом формирования «диффузионно-ограниченных агрегатов» (diffusion limited aggregation) [8].

Сочетание случайного характера классического фрактала для ветки с жесткими закономерностями логарифмического для хвои буквально камуфлируется высокой симметрией строения еловой лапы. Высокая симметрия — результат генетики. Ветки и вершина ели ежегодно повторяют одно и то же дей-

ствие моноподиального ветвления, предусмотренного генетическим кодом дерева. Факт ветвления для ели обладает высокой симметрией, но рост новых побегов ограничен наличием ресурса для роста, т. е. количеством света для фотосинтеза в иголках и количеством воды и других полезных компонентов, поступающих по стволу и ветке из корней. То есть факт ветвления — генетический фактор, а расположение ветки, как агломерата иголок, в пространстве — результат процесса жизнедеятельности. Этот результат и описывается законом логарифмического фрактала, который подразумевает оптимальное распределение жизненных ресурсов по ветви.

Сопоставим наши экспериментальные результаты и результаты модельной ели, представленной в работе [18]. Авторы (Гурцев и Цельникер) предложили модель ветви ели, основанную на моноподиальном, т. е. высокосимметричном, ветвлении, и определили ее фрактальную размерность на основании зависимости суммарной длины ветви от масштаба измерения. В случае неограниченного числа ветвлений полученная ими фрактальная размерность была больше 2, не ограничиваясь при этом размерностью пространства, как это должно быть, согласно фрактальной теории. Например, при удлинении ветки в 0.75 раз и коэффициенте ветвления 9 они получили фрактальную размерность 6.64. Такой результат объясняется тем, что ветвь с большими коэффициентами ветвления и удлинения очень быстро начала бы самопересекаться и заполнила бы собой все трехмерное пространство несколько раз. Такой случай невозможен в реальном мире, но математические расчеты, проведенные в статье, не учитывали возможности самопересечений веток. В случае модели с ограниченным коэффициентом ветвления фрактальная размерность, полученная в статье, была меньше 2, при этом чем старше становилась ветвь, тем ближе ее фрактальная размерность приближалась к 2. По всей видимости, в отличие от имитационной модели ветви, которая была рассмотрена в статье [18], реальная ель «подбирает» число ветвлений, коэффициент удлинения, а главное, распределение хвои по ветви таким образом, чтобы соблюдался принцип равенства вещества (хвои) на различных уровнях ветвления. То есть параметры строения ветви определяются законом логарифмического фрактала распределения хвои в квазидвумерном пространстве, формируемым плоскостью еловой лапы.

В итоге закон распределения иголок в плоскости ветви построен так, чтобы выполнялись два правила логарифмического фрактала. Одно из них —



фрактал имеет  $n$  генераций, а суммарные площади каждой из генераций, занимаемые иголками в этом объекте, равны [21]

$$d_n^2 = k d_{n+1}^2. \quad (5)$$

Здесь  $d_i$  — линейный размер элемента  $i$ -й генерации,  $k$  — количество разветвлений на каждой итерации. Если количество разветвлений на каждой итерации равно 4, то выражение (5) переписывается в виде  $d_n^2 = (2d_{n+1})^2$ .

Во фрактальной теории количество итераций бесконечно, но в реальном мире оно ограничено. Поэтому второе условие устанавливает соотношение между максимальным и минимальным размерами фрактала:

$$\frac{R_{max}}{R_{min}} = \frac{n d_0}{d_n} = n 2^n. \quad (6)$$

Здесь  $R_{max}$  — линейный размер всего фрактала,  $R_{min}$  — линейный размер минимального элемента. Это правило можно переформулировать в более простом виде: средняя плотность логарифмического фрактала  $n$ -й генерации в двумерном пространстве равна  $\rho_n = 1/n$ . В случае исследуемых ветвей ели можно оценить  $n \approx 3$ , т. е. логарифмическая фрактальная структура имеет 3 генерации. Для модельной ветви с линейным размером около 1 м на ветви обнаруживается 64 пятна размером 3 см, 16 пятен размером 6 см, 4 пятна размером 12 см и 1 пятно размером 24 см. Эти пятна, в свою очередь, сформированы агломератами иголок — хвоей.

Можно грубо оценить плотность хвои на черно-белых рисунках (рис. 2–4) по отношению количества белых пикселей к общей площади рисунка. Это отношение равно  $\rho = 0.33$ –0.4, что также дает значение  $n = 2.5$ –3.

Можно сделать вывод, что такое распределение иголок в пространстве ветви (логарифмический фрактал), по-видимому, обеспечивает максимально эффективный фотосинтез внутри иголок и возникает как результат процессов жизнедеятельности дерева. Это особенно важно в связи с тем, что до сих пор не было установлено связи между результатами теории метаболического масштабирования [22, 23] и экспериментально полученными значениями фрактальной размерности деревьев. Наш подход обеспечивает прямое измерение фрактальной размерности агломератов иголок и тем самым устанавливает прямую связь между объемами продуктов фотосинтеза одной ветви и ее фрактальной структурой. Можно предположить, что установленное в нашей работе количественное описание строения еловой ветки

позволит перейти к математически обоснованному выводу аллометрических закономерностей и отношений, а также к пониманию базовых процессов, которые создают эти закономерности.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом численного фурье-анализа исследованы фрактальные свойства изображений еловых лап 26-летней ели длиной около 13 м на различной высоте дерева. Для еловых лап, сфотографированных в разных проекциях, наблюдается степенная зависимость спектральной интенсивности,  $I(q) = Aq^{-N}$ , где  $N = 2$  в диапазоне переданных импульсов от 0.07 до 2 см<sup>-1</sup>, что соответствует масштабу в реальном пространстве от 3 до 80 см. Во-первых, такой степенной закон характеризует масштабную инвариантность структуры объекта исследования, т. е. объект является самоподобным на разных масштабах. Во-вторых, такой степенной закон характеризует ветвящуюся структуру, описываемую логарифмическим фракталом в двумерном пространстве. Показано, что логарифмическая фрактальная структура относится к агломератам иголок, расположенным на ветви. При этом сама ветвь — расположение прутьев на ветви — описывается законом классического фрактала с  $1 < D_f < 2$  в том же диапазоне переданных импульсов от 0.07 до 2 см<sup>-1</sup>. Мы предположили, что структура прутьев, обеспечивающая транспортные функции в жизнедеятельности ветви, описывается подлежащей и вторичной по отношению к распределению хвои в пространстве, подчиняющемуся закону логарифмического фрактала. Закон логарифмического фрактала в двумерном пространстве интерпретируется как правило сохранения площади агломератов иголок при изменении масштаба:  $d_i^2 = k d_{i+1}^2$ , где  $d_i$  — характерный линейный размер агломерата  $i$ -й генерации,  $k$  — количество агломератов следующей генерации.

**Благодарности.** Авторы благодарны Ю. О. Четверикову за помощь в сборе данных.

**Финансирование.** Работа поддержана Российским научным фондом (грант № 20-12-00188).

## ЛИТЕРАТУРА

1. B. Mandelbrot, *The Fractal Geometry of Nature*, Freeman, New York (1983).

2. Y. Kim and D. L. Jaggard, *The Fractal Random Array*, Proc. of the IEEE **74**, 1278 (1986).
3. C. Puente, *Fractal Design of Multiband Antenna Arrays*, Elec. Eng. Dept. Univ. Illinois, Urbana-Champaign, ECE 477 term project (1993).
4. C. Puente and R. Pous, *Diseco Fractal de Agrupaciones de Antenas*, IX Simposium Nacional URSI, Las Palmas **1**, 227 (1994).
5. X. Yang, J. Chiochetti, D. Papadopoulos, and L. Susman, *Fractal Antenna Elements and Arrays*, Applied Microwave and Wireless **5**, 34 (1999).
6. M. F. Barnsley, *Fractals Everywhere*, Acad. Press, Boston (1988).
7. H. O. Peitgen and P. H. Richter, *The Beauty of Fractals*, Springer, Berlin (1986).
8. Е. Федер, *Фракталы*, Мир, Москва (1991).
9. В. К. Балханов, Ю. Б. Башкуев, *Моделирование разрядов молнии фрактальной геометрией*, ЖТФ **82**(12), 126 (2012).
10. А. Г. Бершадский, *Фрактальная структура турбулентных вихрей*, ЖЭТФ **96**, 625 (1989).
11. *Fractals in Biology and Medicine 1*, ed. by T. F. Nonnenmacher, G. A. Losa and E. R. Weibel, Birkhäuser Verlag, Basel (1994).
12. *Fractals in Biology and Medicine 2*, ed. by G. Losa, T. F. Nonnenmacher, D. Merlini, and E. R. Weibel, Birkhäuser Verlag, Basel (1998).
13. *Fractals in Biology and Medicine 3*, ed. by G. Losa, D. Merlini, T. F. Nonnenmacher and E. R. Weibel, Birkhäuser Verlag, Basel (2002).
14. *Fractals in Biology and Medicine 6*, ed. by G. Losa, D. Merlini, T. F. Nonnenmacher and E. R. Weibel, Birkhäuser Verlag, Basel (2005).
15. N. D. Lorimer, R. G. Haight, and R. A. Leary, *The Fractal Forest: Fractal Geometry and Applications in Forest Science*, General Technical Report NC-1770, Department of Agriculture, St. Paul (1994).
16. L. S. Liebovitch, *Fractals and Chaos Simplified for the Life Sciences*, Oxford Univ. Press, New York (1998).
17. I. C. Andronache, H. Ahammer, H. F. Jelineck et al., *Fractal Analysis for Studying the Evolution of Forests*, Chaos, Solitons, and Fractals **91**, 310 (2016).
18. А. И. Гурцев, Ю. Л. Цельникер, *Фрактальная структура ветви дерева*, Сибирский эколог. ж. **4**, 431 (1999).
19. G. Arseniou and D. W. MacFarlane, *Fractal Dimension of Tree Crowns Explains Species Functional-Trait Responses to Urban Environments at Different Scales*, Ecological Applications **31**, 2297 (2021).
20. C. Eloy, *Leonardo's Rule, Self-Similarity and Wind-Induced Stresses in Trees*, Phys. Rev. Lett. **107**, 258101 (2011).
21. J. O. Indekeu and G. Fleerackers, *Logarithmic Fractals and Hierarchical Deposition of Debris*, Physica A **261**, 294 (1998).
22. G.B. West, J.H. Brown and B.J. Enquist, *A General Model for the Origin of Allometric Scaling Laws in Biology*, Science **276**, 122 (1997).
23. G. B. West, J. H. Brown, and B.J. Enquist, *A General Model for the Structure and Allometry of Plant Vascular Systems*, Nature **400**, 664 (1999).
24. D. Seidel, *A Holistic Approach to Determine Tree Structural Complexity Based on Laser Scanning Data and Fractal Analysis*, Ecology and Evolution **8**, 128 (2018).
25. Y. Malhi, T. Jackson, L. Patrick Bentley, A. Lau, A. Shenkin, M. Herold, K. Calders, H. Bartholomeus, and M.I. Disney, *New Perspectives on the Ecology of Tree Structure and Tree Communities through Terrestrial Laser Scanning*, Interface Focus **8**, 20170052 (2018).
26. S. V. Grigoriev, O. D. Shnyrkov, P. M. Pustovoyt, E. G. Iashina, and K. A. Pshenichnyi, *Experimental Evidence for Logarithmic Fractal Structure of Botanical Trees*, Phys. Rev. E **105**, 044412 (2022).
27. С. В. Григорьев, О. Д. Шнырков, К. А. Пшеничный, Е. Г. Яшина, *Два этапа формирования структуры ветвления листовенного дерева*, ЖЭТФ **165**, 438 (2024).
28. D. D. Smith, J. S. Sperry, B. J. Enquist, V. M. Savage, K. A. McCulloh, and L. P. Bentley, *Deviation from Symmetrically Self-Similar Branching in Trees Predicts Altered Hydraulics, Mechanics, Light Interception and Metabolic Scaling*, New Phytologist **201**, 217 (2014).
29. B. Zeide, *Fractal Analysis of Foliage Distribution in Loblolly Pine Crowns*, Canad. J. Forest Res. **28**, 106 (1998).
30. B. Zeide and C. A. Gresham, *Fractal Dimensions of Tree Crowns in Three Loblolly Pine Plantations of Coastal South Carolina*, Canad. J. Forest Res. **21**, 1208 (1991).

31. B. Zeide and P. Pfeifer, *A Method for Estimation of Fractal Dimension of Tree Crowns*, Forest Sci. **37**, 1253 (1991).
32. D. Zhang, A. Samal, and J.R. Brandle, *A Method for Estimating Fractal Dimension of Tree Crowns from Digital Images*, Int. J. Pattern Recognition and Artificial Intelligence **21**, 561 (2007).
33. R. Zwiggelaar and C.R. Bull, *Optical Determination of Fractal Dimensions Using Fourier Transforms*, Opt. Eng. **34**, 1325 (1995).
34. А. А. Зинчик, Я. Б. Музыченко, А. В. Смирнов, С. К. Стафеев, *Расчет фрактальной размерности регулярных фракталов по картине дифракции в дальней зоне*, Научно-технический вестник СПбГУ ИТМО **60**, 17 (2009).
35. J. Teixeira, *Small-Angle Scattering by Fractal Systems*, J. Appl. Crystallog. **21**, 781 (1988).
36. C. Allain and M. Cloitre, *Optical Diffraction on Fractals*, Phys. Rev. B **33**, 3566 (1986).
37. Дж. Гудмен, *Введение в фурье-оптику*, Мир, Москва (1970).
38. А. Н. Матвеев, *Оптика*, Высшая школа, Москва (1985).
39. П. М. Пустовойт, Е. Г. Яшина, К. А. Пшеничный, С. В. Григорьев, *Классификация фрактальных и нефрактальных объектов в пространстве двух измерений*, Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования **12**, 3 (2020).
40. Ю. Л. Цельникер, *Структура кроны ели*, Лесоведение **4**, 35 (1994).
41. Ю. Л. Цельникер, М. Д. Корзухин, Б.Б. Зейде, *Морфологические и физиологические исследования кроны деревьев*, Мир Урании, Москва (2000).
42. <https://github.com/tre3k/fractal>.
43. С. В. Григорьев, О. Д. Шнырков, К. А. Пшеничный, П. М. Пустовойт, Е. Г. Яшина, *Модель фрактальной организации хроматина в двумерном пространстве*, ЖЭТФ **163**, 428 (2023).

# РЕШЕТОЧНАЯ УПРУГОСТЬ ГОЛУБЫХ ФАЗ ХОЛЕСТЕРИЧЕСКИХ ЖИДКИХ КРИСТАЛЛОВ

*В. А. Чижиков<sup>a,b,\*</sup>, А. В. Мамонова<sup>a,c</sup>, В. Е. Дмитриенко<sup>a,c,\*\*</sup>*

*<sup>a</sup> Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова  
Курчатовского комплекса кристаллографии и фотоники  
НИЦ «Курчатовский институт»  
119333, Москва, Россия*

*<sup>b</sup> МИРЭА — Российский технологический университет  
(Институт радиоэлектроники и информатики)  
119454, Москва, Россия*

*<sup>c</sup> Институт физики твердого тела имени Ю. А. Осипьяна  
Российской академии наук  
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 12 сентября 2024 г.,  
после переработки 25 сентября 2024 г.  
Принята к публикации 26 сентября 2024 г.

Развиты новые теоретические подходы для изучения и количественного описания упругих свойств кубических голубых фаз холестерических жидких кристаллов. В рамках теории Ландау–де Жена на примере простейшей голубой фазы  $O^5$  с пространственной группой симметрии  $I432$  проведены вычисления модуля всестороннего сжатия и двух модулей сдвига в зависимости от силы хиральности и температуры ниже точки кристаллизации из изотропной жидкости. Показано, что используемые приближения жестких тензоров и свободных геликоидов дают качественно похожие результаты, но заметно отличаются количественно, поэтому необходимы дальнейшие экспериментальные исследования и численное моделирование упругости голубых фаз.

DOI: 10.31857/S0044451024120137

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Жидкие кристаллы (ЖК) являются удобным объектом для изучения влияния различных типов упорядочения на упругие свойства. Это могут быть чисто ориентационные упорядочения как в нематических кристаллах, а также различные комбинации ориентационных и одно-, двух- и трехмерных трансляционных упорядочений. Голубые фазы оказываются уникальными в этом ряду, так как, оставаясь жидкими на молекулярном уровне (центры тяжести молекул никак не фиксированы в пространстве), они образуют кристаллы исключительно за счет создания трехмерно периодической структуры в ориентациях молекул, и такие кристаллы об-

ладают сдвиговыми модулями упругости [1–3], хотя и очень малой величины. Экспериментально модули упругости голубых фаз изучались в ряде работ начиная с 1984 г. [4–7], однако эти работы использовали поликристаллические образцы, не позволяющие получить полную количественную информацию.

Разработка возможных практических применений голубых фаз ведется уже давно и по различным направлениям [8–10]. В частности, продемонстрировано, что дисплеи на голубых фазах имеют существенно более высокое быстродействие, чем уже используемые, но их применение пока ограничивается необходимостью высокого управляющего напряжения, которое в свою очередь зависит от упругости голубых фаз.

Следует отметить, что проблема упругости структур с макроскопическими периодами выходит далеко за рамки голубых фаз. Похожие проблемы возникают для трехмерных, двумерных и одномер-

\* E-mail: chizhikov@crys.ras.ru

\*\* E-mail: dmitrien@crys.ras.ru

ных структур, образующихся в жидких кристаллах по весьма разным физическим причинам [11–13]. Более того, имеется, по-видимому, близкая аналогия между поведением холестериков при переходе из изотропной жидкости в голубые фазы [14, 15] и фазовыми переходами в спиральных магнетиках [16]. Сходство этих физических явлений подробно обсуждается в недавнем обзоре [17].

Все это заставляет нас вернуться к исследованию физических свойств голубых фаз жидких кристаллов на новом уровне понимания стоящих проблем и возможностей для их решения, чтобы в дальнейшем использовать полученные результаты для других структур с макроскопическими периодами, таких как скирмионные магнитные решетки, периодически упорядоченные конфокальные домены и т. п.

В настоящей работе проведено рассмотрение упругих свойств на примере самой простой фазы с кубической пространственной группой  $O^5$  ( $I432$ ), образованной шестью эквивалентными геликоидами, направленными вдоль осей второго порядка  $\langle 110 \rangle$ . С одной стороны, эта фаза надежно предсказывается в рамках теории Ландау–де Жена для жидких кристаллов с большой хиральностью [1, 2], но она пока не наблюдалась экспериментально либо из-за того, что хиральность реальных кристаллов недостаточно высока, либо потому, что в высокохиральных кристаллах периоды, а следовательно, и брэгговские рефлексы лежат в далекой ультрафиолетовой области очень трудной для наблюдения. А с другой стороны, она интересна еще и тем, что для нее можно дальше продвинуться в аналитических расчетах физических свойств, не прибегая к громоздкому компьютерному моделированию, практически неизбежному для реально наблюдаемых фаз  $O^2$  и  $O^8$ , которые мы планируем рассмотреть в дальнейшем.

## 2. ПАРАМЕТР ПОРЯДКА И СВОБОДНАЯ ЭНЕРГИЯ ХИРАЛЬНЫХ ЖК

Обычно в качестве параметра порядка нематических и холестерических ЖК, которые можно считать локально одноосными, используют скалярный параметр ориентационного упорядочения, характеризующий усредненный угол локальной разориентации молекул:  $S = (3 \langle \cos^2 \vartheta \rangle - 1)/2$ , а локальное направление средней ориентации молекул описывается единичным вектором  $\mathbf{n}$ , называемым *директором*. В отличие от одноосных нематиков и холесте-

риков, голубые фазы существенно локально двуосны по крайней мере в части объема, и в качестве параметра порядка для феноменологического описания фазового перехода из изотропной жидкости в кристаллические голубые фазы используется бесследовый симметричный тензор  $\hat{Q}$ , имеющий пять независимых компонент, которые описывают и локальное двуосное упорядочение и его ориентацию в пространстве [1, 2]. Например, параметром порядка может быть анизотропная часть тензора локальной диэлектрической проницаемости. Следуя обозначениям классической обзорной статьи Райта и Мермина [2], которая опирается на работы Гребеля, Хорнрайха и Штрикмана [18], плотность свободной энергии Ландау–де Жена можно разделить на градиентную и объемную части:

$$f = f_{\text{grad}} + f_{\text{bulk}},$$

$$f_{\text{grad}} = \frac{1}{4} K_1 \left[ (\nabla \times \hat{Q})_{\alpha\beta} + 2q_0 Q_{\alpha\beta} \right]^2 + \frac{1}{4} K_0 \left[ (\nabla \cdot \hat{Q})_{\alpha} \right]^2, \quad (1)$$

$$f_{\text{bulk}} = c \text{Sp}(\hat{Q}^2) - \sqrt{6}b \text{Sp}(\hat{Q}^3) + a \left[ \text{Sp}(\hat{Q}^2) \right]^2.$$

Здесь

$$(\nabla \times \hat{Q})_{\alpha\beta} = \epsilon_{\alpha\mu\nu} \nabla_{\mu} Q_{\nu\beta},$$

$$(\nabla \cdot \hat{Q})_{\alpha} = \nabla_{\mu} Q_{\mu\alpha},$$

$K_0$  и  $K_1$  — модули упругости ЖК, волновое число  $q_0$  характеризует хиральность жидкого кристалла (шаг спирали холестерика; для нематика  $q_0 = 0$ ), а коэффициент  $c$  при квадратичном члене объемной части зависит от температуры и меняет знак вблизи точки перехода из изотропной фазы в холестерическую. При  $q_0 \neq 0$  удобно обезразмерить выражение для свободной энергии, введя обозначения

$$\varphi = (a^3/b^4)f, \quad \tau = (a/b^2)c,$$

$$\hat{\chi} = (a/b)\hat{Q}, \quad r_{\text{new}} = 2|q_0|r_{\text{old}},$$

и плотность свободной энергии преобразуется к виду

$$\varphi = \varphi_{\text{grad}} + \varphi_{\text{bulk}},$$

$$\varphi_{\text{grad}} = \kappa^2 \left\{ \left[ (\nabla \times \hat{\chi})_{\alpha\beta} \pm \chi_{\alpha\beta} \right]^2 + \eta \left[ (\nabla \cdot \hat{\chi})_{\alpha} \right]^2 \right\}, \quad (2)$$

$$\varphi_{\text{bulk}} = \tau \text{Sp}(\hat{\chi}^2) - \sqrt{6}b \text{Sp}(\hat{\chi}^3) + \left[ \text{Sp}(\hat{\chi}^2) \right]^2.$$



Здесь  $\kappa = |q_0/b|\sqrt{aK_1}$  — безразмерный параметр, определяющий весовое соотношение между градиентной и объемной частями свободной энергии, а  $\eta = K_0/K_1$ . Параметр  $\kappa$  часто называют «хиральностью» [18], поскольку только градиентная энергия не инвариантна относительно инверсии пространственных координат. Знак хиральности определяется выбором между плюсом и минусом в первых квадратных скобках в  $\varphi_{\text{grad}}$ . В дальнейшем мы будем всюду выбирать знак плюс, соответствующий правозакрученному геликоиду.

Заметим, что градиентная часть свободной энергии в (1) содержит только два объемных модуля упругости:  $K_0$  и  $K_1$ , а не три, как в энергии Франка, описывающей упругие свойства нематиков и холестериков, используя понятие директора  $\mathbf{n}$ :

$$f_F = \frac{1}{2}K_1^F(\text{div } \mathbf{n})^2 + \frac{1}{2}K_2^F(\mathbf{n} \cdot \text{rot } \mathbf{n} + q)^2 + \frac{1}{2}K_3^F[\mathbf{n} \times \text{rot } \mathbf{n}]^2. \quad (3)$$

При температуре ниже точки перехода из изотропной жидкости в упорядоченную нематическую или холестерическую фазу можно перейти от тензорного формализма к описанию на языке директора  $\mathbf{n}$  с помощью замены бесследового симметричного тензора  $||Q_{\alpha\beta}||$  на одноосный бесследовый тензор  $S||n_\alpha n_\beta - \frac{1}{3}\delta_{\alpha\beta}||$ . Такое описание хорошо работает во всем объеме ЖК, за исключением небольших областей вокруг дефектов. Полагая  $S = \text{const}$ , легко получить из  $f_{\text{grad}}$  энергию Франка (3) со следующей связью между модулями упругости:

$$K_1^F = K_3^F = \frac{1}{2}S^2(K_0 + K_1), \quad K_2^F = S^2K_1.$$

Таким образом, в теории, основанной на выражении (1) для свободной энергии, два модуля Франка совпадают. Наблюдаемая в эксперименте разница между ними может быть результатом, например, градиентных членов более высоких порядков по тензору  $\hat{Q}$ , но эти эффекты здесь не учитываются. Заметим, что при  $K_0 = K_1$  все объемные модули Франка равны между собой; такое приближение называют однопараметрическим.

Конкуренция градиентного и объемного вкладов в свободную энергию приводит к нетривиальной фазовой диаграмме холестерических ЖК. Так, минимуму градиентной энергии отвечают двусосные геликоиды, образованные гармониками вида

$$\hat{\chi} \sim (\mathbf{m}_1 - i\mathbf{m}_2) \otimes (\mathbf{m}_1 - i\mathbf{m}_2) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}), \quad (4)$$

где волновой вектор  $\mathbf{k}$  имеет единичную длину ( $k = 1$ ), а векторы  $\mathbf{m}_1$  и  $\mathbf{m}_2$  образуют ортонормированный базис в перпендикулярной  $\mathbf{k}$  плоскости

( $[\mathbf{m}_1 \times \mathbf{m}_2] = \mathbf{k}$  для правого геликоида). С другой стороны, объемная энергия минимизируется одноосным тензором  $\hat{\chi}$ , и при температурах существенно ниже точки перехода из изотропной жидкости в холестерическую фазу энергетически выгодной становится одноосная геликоидальная структура, удобно описываемая директором. Вблизи же точки перехода в результате борьбы градиентной и объемной энергий возникают пространственные решетки, образованные суперпозицией нескольких двусосных геликоидов вида (4) со скрещенными волновыми векторами. Такие решетчатые фазы могут существовать в очень узком диапазоне температур, и благодаря их свойству рассеивать свет определенных длин волн их называют голубыми.

Экспериментально наблюдались несколько различных голубых фаз. В типичном холестерике при переходе от изотропной жидкости к одноосному геликоиду в узком температурном интервале последовательно возникают, сменяя друг друга, три фазы: ВР III (также называемая *фоговой*), ВР II и ВР I. Фогова фаза аморфна, две другие обладают кубической симметрией. В электрических полях наблюдали гексагональную фазу, во многом сходную со скирмионной фазой А в кубических гелимагнетиках [19]. Помимо этого, обсуждалась возможность существования других фаз разной симметрии, например икосаэдрической. Как было сказано выше, все голубые фазы образуются суперпозицией скрещенных (правых) геликоидов вида (4) с волновыми векторами  $\mathbf{k}$  одинаковой или по крайней мере близкой длины, чтобы максимально возможно понизить градиентную энергию. При этом способ скрещивания — углы между волновыми векторами, фазы геликоидов — должен в идеале свести к минимуму объемную энергию. Конкуренция градиентной и объемной энергий может привести к некоторому искажению структуры (тензоры  $\hat{\chi}_{\mathbf{k}}$  общего вида, волновые векторы с  $k \neq 1$ ), но вклад в энергию от таких искажений остается незначительным.

Для описания голубых фаз образованных скрещенными геликоидами, особенно в случае периодических структур, удобно перейти к фурье-представлению для параметра порядка:

$$\hat{\chi}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{k}} \hat{\chi}_{\mathbf{k}} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}), \quad (5)$$

где, в силу действительности поля,  $\hat{\chi}(\mathbf{r})$ ,  $\hat{\chi}_{-\mathbf{k}} = \hat{\chi}_{\mathbf{k}}^*$ . Тогда усредненные по объему плотности градиент-

ной и объемной энергий (2) будут иметь вид

$$\langle \varphi_{\text{grad}} \rangle = \kappa^2 \sum_{\mathbf{k}} \left\{ (k^2 + 1) \text{Sp}(\hat{\chi}_{\mathbf{k}} \cdot \hat{\chi}_{\mathbf{k}}^*) + \right. \\ \left. + (\eta - 1) \mathbf{k} \cdot \hat{\chi}_{\mathbf{k}} \cdot \hat{\chi}_{\mathbf{k}}^* \cdot \mathbf{k} + 2i\epsilon_{\alpha\beta\gamma} k_{\alpha} (\hat{\chi}_{\mathbf{k}} \cdot \hat{\chi}_{\mathbf{k}}^*)_{\beta\gamma} \right\}, \quad (6)$$

$$\langle \varphi_{\text{bulk}} \rangle = \tau \sum_{\mathbf{k}} \text{Sp}(\hat{\chi}_{\mathbf{k}} \cdot \hat{\chi}_{\mathbf{k}}^*) - \\ - \sqrt{6} \sum_{\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3 = 0} \text{Sp}(\hat{\chi}_{\mathbf{k}_1} \cdot \hat{\chi}_{\mathbf{k}_2} \cdot \hat{\chi}_{\mathbf{k}_3}) + \\ + 2 \sum_{\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_4 = 0} \text{Sp}(\hat{\chi}_{\mathbf{k}_1} \cdot \hat{\chi}_{\mathbf{k}_2} \cdot \hat{\chi}_{\mathbf{k}_3} \cdot \hat{\chi}_{\mathbf{k}_4}) \quad (7)$$

соответственно. Следует отметить, что такое рассмотрение фазового перехода из изотропной жидкости в кристаллические голубые фазы во многом аналогично теории слабой кристаллизации [20], которая иногда применима и к обычным кристаллам, например когда этот переход является слабым переходом первого рода.

В следующем разделе мы покажем, как минимизировать свободную энергию голубой фазы, описываемую выражениями (6), (7), на примере гипотетической кубической фазы  $O^5$ .

### 3. ГОЛУБАЯ ФАЗА $O^5$

Рассмотрим гипотетическую голубую фазу с кубической пространственной группой  $O^5$  ( $I432$ ), образованную двенадцатью гармониками вида (4) с волновыми векторами направленными вдоль кристаллографических направлений  $\langle 110 \rangle$ . Выбирая в плоскости, перпендикулярной вектору  $\mathbf{k} = (kk0)/\sqrt{2}$ , ортонормированный базис  $\mathbf{m}_1 = (001)$ ,  $\mathbf{m}_2 = (1\bar{1}0)/\sqrt{2}$ , находим из (4):

$$\hat{\chi}_{(kk0)/\sqrt{2}} = \begin{pmatrix} -e & e & -i\sqrt{2}e \\ e & -e & i\sqrt{2}e \\ -i\sqrt{2}e & i\sqrt{2}e & 2e \end{pmatrix}. \quad (8)$$

Остальные тензоры  $\hat{\chi}_{\mathbf{k}}$  получаются из  $\hat{\chi}_{(kk0)/\sqrt{2}}$  преобразованиями симметрии кубического класса  $O$ . Заметим, что, поскольку тензоры  $\hat{\chi}_{\mathbf{k}}$  и  $\hat{\chi}_{-\mathbf{k}} = \hat{\chi}_{\mathbf{k}}^*$  связаны между собой поворотной осью 4, коэффициент  $e$  — действительное число, то есть фазы геликоидов определяются пространственной группой  $O^5$ .

Средняя плотность градиентной энергии (6)

$$\langle \varphi_{\text{grad}} \rangle = 192\kappa^2 e^2 (k - 1)^2 \quad (9)$$

становится равной нулю при  $k = 1$ , и выражение (7) дает нам значение полной плотности энергии

$$\langle \varphi \rangle = \langle \varphi_{\text{bulk}} \rangle = 192\tau e^2 - 1104\sqrt{6}e^3 + 47904e^4 \quad (10)$$

как функцию «температуры»  $\tau$  и единственного параметра порядка  $e$ .

Ниже точки фазового перехода первого рода

$$\tau_c = \frac{1587}{7984} \approx 0.19877 \quad (11)$$

энергия (10) минимизируется значением параметра порядка

$$e = \frac{69\sqrt{6} + \sqrt{28566 - 127744\tau}}{7984}, \quad (12)$$

которое в момент перехода испытывает скачок от нуля к

$$e_c = \frac{23\sqrt{6}}{1996} \approx 0.028226. \quad (13)$$

Было показано, что голубая фаза  $O^5$  может существовать в холестерических ЖК с достаточно высокой хиральностью ( $\kappa > \frac{3}{2}$ ), в которых градиентная энергия превалирует над объемной, делая возможным возникновение структур с двойной закруткой и, как следствие, с повышенной двухосностью. Расчеты для этого случая дают, что фаза  $O^5$  имеет более низкую энергию, чем другие фазы-кандидаты, вблизи  $\tau = 0$ . Однако в холестериках с низкой хиральностью ( $\kappa < \frac{3}{2}$ ), которые, как правило, и наблюдаются в экспериментах, фаза  $O^5$  проигрывает кубическим фазам с пространственными группами  $O^2$  ( $P4_232$ ) и  $O^8$  ( $I4_132$ ). Экспериментально установлено, что именно этими группами симметрии обладают фазы ВР I ( $O^8$ ) и ВР II ( $O^2$ ). Оказывается также, что при достаточно низкой хиральности ( $\kappa < 0.46945$ ) фаза  $O^5$  проигрывает также и геликоидальной фазе при любой температуре ниже  $\tau_c$ .

### 4. УПРУГАЯ ЭНЕРГИЯ ДЕФОРМИРОВАННОЙ ГОЛУБОЙ ФАЗЫ

При приложении механического напряжения в кристалле возникают упругие деформации, описываемые симметричным тензором  $\hat{\varepsilon}$ . Плотность энергии упругой деформации выражается через тензор  $\hat{\varepsilon}$  следующим образом:

$$\varphi_{\text{e.d.}} = \frac{1}{2} \lambda_{\alpha\beta\gamma\delta} \varepsilon_{\alpha\beta} \varepsilon_{\gamma\delta}, \quad (14)$$

где  $\hat{\lambda}$  — тензор упругости, в случае кубического кристалла имеющий три независимые компоненты:

$\lambda_{xxxx}$ ,  $\lambda_{xxxy}$  и  $\lambda_{xyxy}$ . Для их вычисления необходимо установить, какие реальные искажения структуры происходят в голубой фазе при деформации, описываемой тензором  $\hat{\varepsilon}$ . Так, очевидно, что волновые векторы геликоидов  $\mathbf{k}$ , составляющие обратную решетку кристалла, преобразуются строго детерминированным образом. В то же время тензоры  $\hat{\chi}_{\mathbf{k}}$  релаксируют в новое состояние, минимизирующее энергию (2) для искаженной обратной решетки. Это означает, что плотность упругой энергии можно выразить через изменения волновых векторов  $\mathbf{k}$  и тензоров  $\hat{\chi}_{\mathbf{k}}$ :

$$\varphi_{\text{e.d.}} = \frac{1}{2} \sum_{i,j} \frac{\partial^2 \langle \varphi \rangle}{\partial k_{i,\alpha} \partial k_{j,\beta}} \Delta k_{i,\alpha} \Delta k_{j,\beta} - \frac{1}{2} \sum_{i,j} \frac{\partial^2 \langle \varphi \rangle}{\partial \chi_{i,\alpha\beta} \partial \chi_{j,\gamma\delta}} \Delta \chi_{i,\alpha\beta} \Delta \chi_{j,\gamma\delta}. \quad (15)$$

Из сравнения равенств (14) и (15) видно, что достаточно учитывать лишь вклады первого порядка по тензору деформации в  $\Delta \mathbf{k}$  и  $\Delta \hat{\chi}_{\mathbf{k}}$ .

Для начала покажем, как деформируются волновые векторы геликоидов, составляющих голубую фазу холестерического ЖК. Рассмотрим однородную деформацию, при которой точка кристалла с координатой  $\mathbf{r}$  сдвигается на расстояние  $\mathbf{u} = \hat{u} \cdot \mathbf{r}$ , переходя в новое положение

$$\mathbf{r}' = (1 + \hat{u}) \cdot \mathbf{r}. \quad (16)$$

Тензор  $\hat{u}$  связан с тензором деформации нелинейным образом:

$$\hat{\varepsilon} = \frac{1}{2}(\hat{u} + \hat{u}^T + \hat{u} \cdot \hat{u}^T). \quad (17)$$

Заметим, однако, что антисимметричная часть  $\hat{u}$  соответствует пространственному повороту кристалла, а не его деформации. Исключив этот поворот, можно считать  $\hat{u}^T = \hat{u}$ , не нарушая при этом общности рассмотрения. Тогда

$$\hat{\varepsilon} = \hat{u} + \frac{1}{2}\hat{u}^2 \approx \hat{u} \quad (18)$$

и

$$\mathbf{r}' = (1 + \hat{\varepsilon}) \cdot \mathbf{r}. \quad (19)$$

Для того чтобы фаза геликоида  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}$  оставалась неизменной в каждой точке, новый волновой вектор в первом приближении будет равен

$$\mathbf{k}' = (1 - \hat{\varepsilon}) \cdot \mathbf{k}, \quad (20)$$

откуда

$$\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}' - \mathbf{k} = -\hat{\varepsilon} \cdot \mathbf{k}. \quad (21)$$

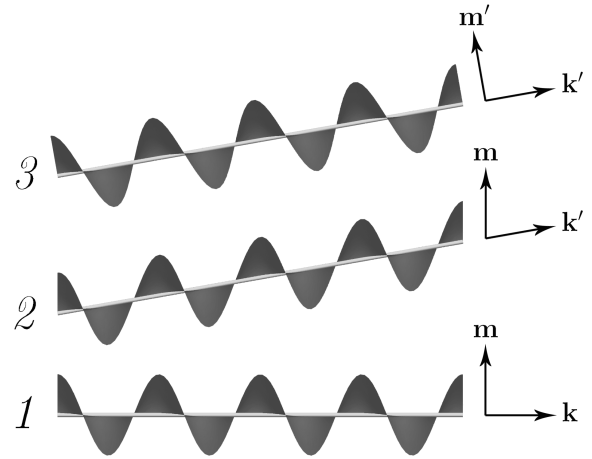


Рис. 1. Волновые векторы и плоскости вращения геликоидов: 1 — геликоид в недеформированном кристалле, 2 — приближение жестких тензоров  $\hat{\chi}$ , 3 — приближение свободных геликоидов

Изменение тензоров  $\hat{\chi}_{\mathbf{k}}$  можно найти, минимизируя плотность энергии (2) при заданных волновых векторах  $\mathbf{k}'$ . Однако некоторые приближенные результаты можно получить в рамках простых моделей, рассмотренных в следующих подразделах.

#### 4.1. Приближение жестких тензоров $\hat{\chi}$

Предположим, что в процессе деформации сильный объемный вклад в свободную энергию жестко фиксирует параметр порядка холестерического ЖК в его начальном состоянии, то есть

$$\hat{\chi}'(\mathbf{r}') = \hat{\chi}(\mathbf{r}). \quad (22)$$

Это означает, что фурье-компоненты тензора  $\hat{\chi}(\mathbf{r})$ , задаваемые выражением (8), не меняются. Соответственно сохраняется объемная составляющая плотности энергии:  $\Delta \langle \varphi_{\text{bulk}} \rangle = 0$ , и энергия упругой деформации полностью определяется изменением волновых векторов  $\mathbf{k}$  в градиентной энергии (6):  $\varphi_{\text{e.d.}} = \Delta \langle \varphi_{\text{grad}} \rangle$ . Заметим, что волновой вектор  $\mathbf{k}'$  деформированной структуры уже не перпендикулярен плоскости вращения тензора  $\hat{\chi}_{\mathbf{k}}$ , определяемой векторами  $\mathbf{m}_1$  и  $\mathbf{m}_2$  (см. рис. 1). Это означает, что образующие голубую фазу геликоидальные спирали приобретают небольшую циклоидальную составляющую. Подстановка в (6) волновых векторов  $\mathbf{k}'$  для деформации общего вида позволяет найти компоненты тензора упругости в приближении жестких тензоров  $\hat{\chi}$ :

$$\begin{pmatrix} \lambda_{1,xxxx} \\ \lambda_{1,xyxy} \\ \lambda_{1,xyxy} \end{pmatrix} = 16\kappa^2 e^2 \begin{pmatrix} 6 + 2\eta \\ 1 - \eta \\ 3 + \eta \end{pmatrix}. \quad (23)$$

Интересно отметить, что компонента  $\lambda_{xyxy}$  принимает отрицательные значения при  $\eta > 1$ , что, однако, не должно привести к отрицательности энергии упругой деформации (последнее означало бы, что кристалл не устойчив по отношению к появлению спонтанной деформации). Действительно, положительная определенность квадратичной формы (14) для несдвиговых деформаций определяется условиями

$$\begin{aligned} \lambda_{xxxx} &> |\lambda_{xyxy}|, \\ \lambda_{xxxx} + 2\lambda_{xyxy} &> 0, \end{aligned} \quad (24)$$

которые выполняются при положительных значениях  $\eta$ . Последнее из условий (24) есть не что иное как требование положительности объемного модуля упругости голубой фазы

$$K = \frac{1}{3}(\lambda_{xxxx} + 2\lambda_{xyxy}). \quad (25)$$

#### 4.2. Приближение свободных геликоидов

В противоположность приближению жестких тензоров можно предложить альтернативную модель, в которой поле  $\hat{\chi}(\mathbf{r})$  задается суперпозицией идеальных невзаимодействующих друг с другом геликоидов. Данный подход, предложенный в [21], строго говоря применим к холестерическим ЖК с высокой хиральностью ( $\kappa \gg 1$ ), в которых можно пренебречь изменением объемной части свободной энергии. В таком случае энергия упругой деформации определяется изменением периодов составляющих голубую фазу геликоидов.

Волновое число каждого геликоида обратно пропорционально его периоду, и следующим образом изменяется при малой деформации

$$k' - k = -\frac{\mathbf{k} \cdot \hat{\varepsilon} \cdot \mathbf{k}}{k}. \quad (26)$$

В неискаженной фазе  $O^5$   $k = 1$  соответствует нулевой градиентной энергии, а после деформации плотность градиентной энергии одной гармоники равна

$$\varphi_{1h} = 16\kappa^2 e^2 (k' - 1)^2 \quad (27)$$

(ср. с выражением (9) для фазы  $O^5$ , составленной из 12 гармоник). Суммируя (27) по всем гармоникам, вычисляем плотность энергии упругой деформации

$$\varphi_{e.d.} = 16\kappa^2 e^2 \sum_{\mathbf{k}} \frac{(\mathbf{k} \cdot \hat{\varepsilon} \cdot \mathbf{k})^2}{k^2}. \quad (28)$$

Сравнивая (28) и (14), находим тензор упругости

$$\lambda_{\alpha\beta\gamma\delta} = 32\kappa^2 e^2 \sum_{\mathbf{k}} \frac{k_\alpha k_\beta k_\gamma k_\delta}{k^2}, \quad (29)$$

симметричный по перестановкам всех индексов.

Для фазы  $O^5$ , просуммировав по всем векторам типа (110)/ $\sqrt{2}$ , получаем

$$\begin{pmatrix} \lambda_{2,xxxx} \\ \lambda_{2,xyxy} \\ \lambda_{2,xyxy} \end{pmatrix} = 16\kappa^2 e^2 \begin{pmatrix} 4 \\ 2 \\ 2 \end{pmatrix}. \quad (30)$$

Можно провести сравнение с результатом (23), полученным в приближении жестких тензоров. Во-первых, заметим, что оба приближения дают одно значение объемного модуля упругости:

$$K = \frac{128}{3} \kappa^2 e^2,$$

поскольку всестороннее растяжение/сжатие всегда влияет только на шаг геликоидов, оставляя неизменными фурье-компоненты  $\hat{\chi}_{\mathbf{k}}$ . Для деформации любого другого типа модель свободных геликоидов всегда дает более низкую энергию упругой деформации, чем приближение жестких тензоров. В принципе, это должно было бы указать на то, что деформация по типу свободных геликоидов энергетически более выгодна. Однако такое сравнение не вполне законно, поскольку не учитывает изменения объемной энергии голубой фазы.

#### 4.3. Учет объемной энергии в приближении свободных геликоидов

Для того чтобы оценить, насколько велика должна быть хиральность  $\kappa$  для применимости приближения свободных геликоидов, необходимо учесть вклад объемной энергии в энергию упругой деформации. Заметим, что в данной модели пока никак не учитывались фазы геликоидов, которые не влияют на градиентный, но важны для вычисления объемного вклада в энергию. Зафиксируем фазу, полагая, например, что вектор поворота перпендикулярен оси геликоида. Это означает, что матрица поворота для геликоида с волновым вектором  $\mathbf{k}$  имеет вид:

$$R(\mathbf{k}, \hat{\varepsilon}) = 1 + \frac{\mathbf{k} \otimes (\hat{\varepsilon} \cdot \mathbf{k}) - (\hat{\varepsilon} \cdot \mathbf{k}) \otimes \mathbf{k}}{k^2}. \quad (31)$$

При этом связанная с данным геликоидом фурье-компонента параметра порядка изменяется как

$$\hat{\chi}'_{\mathbf{k}'} = R(\mathbf{k}, \hat{\varepsilon}) \cdot \hat{\chi}_{\mathbf{k}} \cdot R^{-1}(\mathbf{k}, \hat{\varepsilon}). \quad (32)$$

Подставив (32) в выражение (7) для плотности объемной энергии, найдем вклад в тензор упругости от взаимодействующих геликоидов:

$$\begin{pmatrix} \Delta\lambda_{xxxx} \\ \Delta\lambda_{xxyy} \\ \Delta\lambda_{xyxy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 48\sqrt{6}e^3 + 26496e^4 \\ -24\sqrt{6}e^3 - 13248e^4 \\ 528\sqrt{6}e^3 - 2176e^4 \end{pmatrix}. \quad (33)$$

Прежде всего отметим равенство

$$\frac{1}{3}(\Delta\lambda_{xxxx} + 2\Delta\lambda_{xxyy}) = 0,$$

подтверждающее сделанное выше замечание, что объемная энергия не меняется при всестороннем растяжении/сжатии. При этом отрицательность  $\Delta\lambda_{xxyy}$  не приводит к неустойчивости, поскольку неравенства (24) по-прежнему выполняются. Напротив, отрицательность  $\Delta\lambda_{xyxy}$  при  $e > 0.59436$  указывает на неустойчивость фазы  $O^5$  относительно сдвиговых деформаций при низких температурах.

Сравнивая (30) с (33) в критической точке  $\tau_c$  ( $e_c = 0.028226$ ), определим условие применимости приближения свободных геликоидов. Так, например, неравенство  $\lambda_{xyxy} \gg \Delta\lambda_{xyxy}$  приводит к следующему условию для хиральности:  $\kappa^2 \gg 1.0866$ . Таким образом, как и предполагалось, модель свободных геликоидов хорошо работает для высокой хиральности. Можно также предположить, что при низкой хиральности ( $\kappa < \frac{3}{2}$ ) изменения тензоров  $\chi_{\mathbf{k}}$  будут представлять собой нечто промежуточное между тем, что дают приближение жестких тензоров и приближение свободных геликоидов, и такая интерполяционная модель рассмотрена в следующем разделе.

#### 4.4. Интерполяционная модель

Для количественного описания промежуточного случая между приближением жестких тензоров и приближением свободных геликоидов можно модифицировать выражение (31) следующим образом:

$$R(\mathbf{k}, \hat{\varepsilon}) = 1 + \alpha(\mathbf{k}, \hat{\varepsilon}) \frac{\mathbf{k} \otimes (\hat{\varepsilon} \cdot \mathbf{k}) - (\hat{\varepsilon} \cdot \mathbf{k}) \otimes \mathbf{k}}{k^2}, \quad (34)$$

введя в него коэффициент  $0 \leq \alpha(\mathbf{k}, \hat{\varepsilon}) \leq 1$ , изменяющий угол поворота плоскости вращения геликоида. Тогда, если для всех геликоидов  $\alpha$  равны нулю, то модель совпадает с приближением жестких тензоров, а в случае, когда все  $\alpha$  равны единице, — с приближением свободных геликоидов. Коэффициенты  $\alpha(\mathbf{k}, \hat{\varepsilon})$  не произвольны, а находятся из условия минимума энергии упругой деформации и, таким образом, зависят как от хиральности, так и от температуры.

В случае деформации общего вида число подлежащих определению переменных  $\alpha$  совпадает с числом геликоидов, — для фазы  $O^5$  оно равно шести. Однако можно существенно упростить задачу, используя частного вида деформации, сохраняющие некоторые элементы точечной симметрии голубой фазы. Возьмем, например, тензор деформации

$$\hat{\varepsilon} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix}, \quad (35)$$

соответствующий растяжению/сжатию вдоль оси  $z$  кристалла. Плотность энергии упругой деформации в этом случае равна

$$\varphi_{\text{e.d.}} = \frac{1}{2} \lambda_{xxxx} \varepsilon_{zz}^2, \quad (36)$$

что позволяет непосредственно вычислить компоненту  $\lambda_{xxxx}$  тензора упругости. Точечная симметрия фазы понижается с 432 до 422, а шестерка изначально эквивалентных геликоидов распадается на две группы. Два геликоида первой группы, с осями вдоль кристаллографических направлений  $[110]$  и  $[1\bar{1}0]$ , лежат перпендикулярно оси  $z$ , и повороты плоскостей вращения для них автоматически равны нулю. Другие четыре геликоида:  $[011]$ ,  $[0\bar{1}1]$ ,  $[101]$ ,  $[1\bar{0}1]$  — связаны между собой поворотной осью 4, и в силу симметрии коэффициент  $\alpha$  для них одинаков. Таким образом, задача минимизации плотности энергии (36) сводится к решению квадратного уравнения для числа  $\alpha$ .

Еще одну компоненту тензора упругости,  $\lambda_{xxyy}$ , можно вычислить, используя выражение для объемного модуля упругости (25):

$$\lambda_{xxyy} = \frac{3}{2}K - \frac{1}{2}\lambda_{xxxx} = 64\kappa^2 e^2 - \frac{1}{2}\lambda_{xxxx}. \quad (37)$$

Для вычисления последней компоненты тензора упругости  $\lambda_{xyxy}$  используем деформацию

$$\hat{\varepsilon} = \begin{pmatrix} 0 & \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xy} \\ \varepsilon_{xy} & 0 & \varepsilon_{xy} \\ \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xy} & 0 \end{pmatrix}, \quad (38)$$

соответствующую растяжению/сжатию вдоль оси  $[111]$  кристалла. Плотность энергии упругой деформации в этом случае равна

$$\varphi_{\text{e.d.}} = 6\lambda_{xyxy} \varepsilon_{xy}^2. \quad (39)$$

Точечная симметрия понижается до 32, а шесть геликоидов распределяются по двум группам. Три геликоида перпендикулярные оси  $[111]$  —  $[1\bar{1}0]$ ,  $[01\bar{1}]$ ,



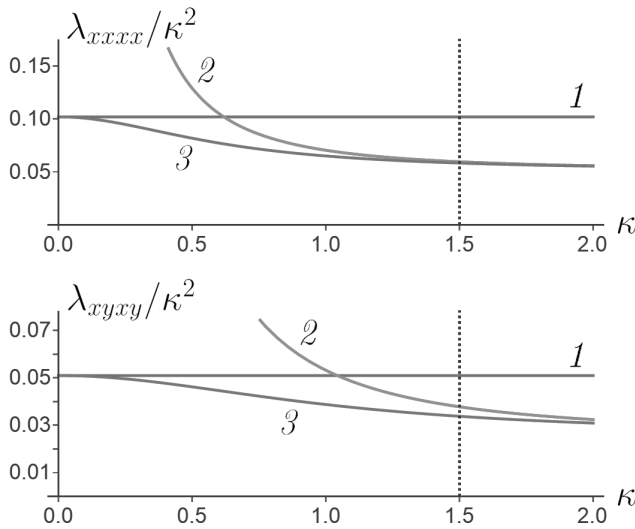


Рис. 2. Зависимость компонент  $\lambda_{xxxx}$  и  $\lambda_{xuyu}$  тензора упругости голубой фазы  $O^5$  от хиральности  $\kappa$  в однопараметрическом приближении ( $\eta = 1$ ) при  $\tau = \tau_c$ : 1 — приближение жестких тензоров  $\hat{\chi}$ , 2 — приближение свободных геликоидов, 3 — интерполяционная модель. Для удобства просмотра все графики поделены на  $\kappa^2$ . Параметр  $\kappa = \frac{3}{2}$  отвечает границе между высокой и низкой хиральностью

$[\bar{1}01]$  — не меняют свои плоскости вращения. Другие три геликоида, с осями вдоль направлений  $[110]$ ,  $[011]$ ,  $[101]$ , связаны между собой поворотной осью 3, и, следовательно, имеют одинаковые коэффициенты  $\alpha$ . Таким образом, задача минимизации энергии упругой деформации снова сводится к определению одного единственного параметра.

Рутинные вычисления приводят к следующему выражению для компонент тензора упругости  $\hat{\lambda}$ :

$$\lambda_{\varpi} = \lambda_{1,\varpi} - \frac{(\lambda_{1,\varpi} - \lambda_{2,\varpi})^2}{\lambda_{1,\varpi} - \lambda_{2,\varpi} + \Delta\lambda_{\varpi}}, \quad (40)$$

где индекс  $\varpi$  принимает значения  $xxxx$ ,  $xxuu$ ,  $xuyu$ . Для ЖК с низкой хиральностью ( $\kappa \rightarrow 0$ ) это выражение дает  $\hat{\lambda} \approx \hat{\lambda}_1$ , соответствующее приближению жестких тензоров. В случае высокой хиральности ( $\kappa \rightarrow \infty$ ) получаем выражение

$$\hat{\lambda} \approx \hat{\lambda}_2 + \Delta\hat{\lambda}$$

для свободных геликоидов. Таким образом, данная модель связывает два рассмотренных ранее приближения, и при этом она применима при любых значениях параметра  $\kappa$ . На рис. 2 приведены характерные зависимости компонент тензора упругости, вычисленные для однопараметрического приближения ( $\eta = 1$ ) вблизи точки перехода  $\tau_c$ . Пример тем-

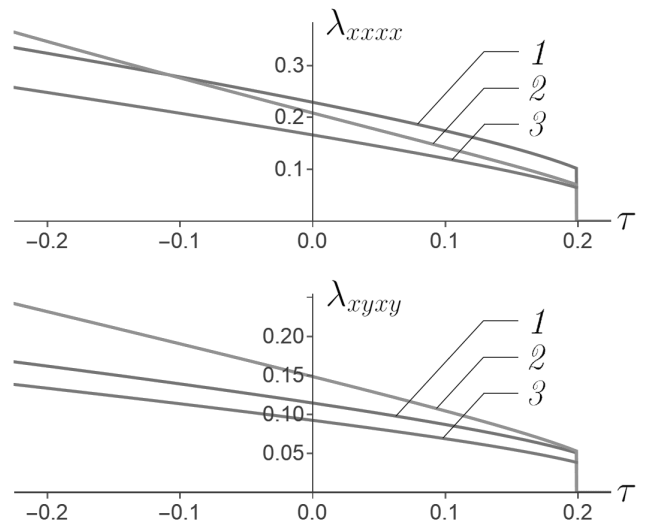


Рис. 3. Температурная зависимость компонент  $\lambda_{xxxx}$  и  $\lambda_{xuyu}$  тензора упругости голубой фазы  $O^5$  в однопараметрическом приближении ( $\eta = 1$ ) при  $\kappa = 1$ : 1 — приближение жестких тензоров  $\hat{\chi}$ , 2 — приближение свободных геликоидов, 3 — интерполяционная модель

пературной зависимости компонент тензора упругости приведен на рис. 3. Необходимо отметить, что равенство (40) не имеет тензорного вида, поскольку связывает соответствующие компоненты тензоров нелинейным образом. Последний факт может указывать на некую скрытую симметрию, не учтенную в нашей простой модели.

## 5. ВЫВОДЫ

Проведенное детальное рассмотрение кристаллических упругих свойств простейшей кубической голубой фазы  $O^5$  в различных моделях позволило получить подробную картину изменения всех трех упругих констант при произвольной температуре и силе хиральности. Выявлены интересные частные случаи: в случае равенства упругих констант в микроскопической свободной энергии Ландау–де Жена ( $\eta = 1$ ) голубая фаза в приближении жестких тензоров оказывается упруго изотропной, а в приближении свободных геликоидов для сдвиговых компонент тензора упругости выполняются условия Коши  $\lambda_{xxuu} = \lambda_{xuyu}$ . В дальнейшем планируется применить разработанные в этой статье подходы к вычислению тензоров упругих констант реально наблюдаемых голубых фаз  $O^2$  и  $O^8$  и гексагональных скирмионных структур в хиральных магнетиках. Было бы также очень интересно учесть негармонические (нелинейные) вклады в

упругую энергию, которые могут оказаться существенными из-за того, что модули упругости гармонической теории упругости аномально малы. Свойственные для слабой кристаллизации заметные флуктуационные явления, которые, по-видимому, приводят к наблюдаемой в эксперименте фоговой фазе ВР III, тоже не получили пока количественного теоретического описания.

**Благодарности.** Авторы признательны М. В. Горкунову, П. В. Долганову, В. К. Долганову и Е. И. Кацу за критические замечания и полезные обсуждения.

**Финансирование.** Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда, грант №23-12-00200. Численная оценка модулей упругости проведена В. А. Чижиговым в рамках выполнения государственного задания НИЦ «Курчатовский институт».

## ЛИТЕРАТУРА

1. В. А. Беляков, В. Е. Дмитриенко, *Голубая фаза жидких кристаллов*, УФН **146**, 369 (1985) [V. A. Belyakov and V. E. Dmitrienko, *the Blue Phase of Liquid Crystals*, Sov. Phys. Usp. **28**, 535 (1985)].
2. D. C. Wright and N. D. Mermin, *Crystalline Liquids: The Blue Phases*, Rev. Mod. Phys. **61**, 385 (1989).
3. P. J. Collings, *The Structures of the Blue Phases*, Chapter 18 in *Handbook of Liquid Crystals*, ed. by J. W. Goodby et al., Wiley-VCH (2014).
4. N. A. Clark, S. T. Vohra, and M. A. Handschy, *Elastic Resonance of a Liquid-Crystal Blue Phase*, Phys. Rev. Lett. **52**, 57 (1984).
5. P. E. Cladis, P. Pieranski, and M. Joanicot, *Elasticity of Blue Phase I of Cholesteric Liquid Crystals*, Phys. Rev. Lett. **52**, 542 (1984).
6. R. N. Kleiman, D. J. Bishop, R. Pindak, and P. Taborek, *Shear Modulus and Specific Heat of the Liquid-Crystal Blue Phases* Phys. Rev. Lett. **53**, 2137 (1984).
7. H. F. Gleeson, R. J. Miller, L. Tian, V. Gortz, and J. W. Goodby, *Liquid Crystal Blue Phases: Stability, Field Effects and Alignment*, Liquid Crystals **42**, 760 (2015).
8. M. D. A. Rahman, S. M. Said, and S. Balamurugan, *Blue Phase Liquid Crystal: Strategies for Phase Stabilization and Device Development*, Sci. Technol. Adv. Mater. **16**, 033501 (2015).
9. S. Khosla, S. Lal, and A. Devi, *Review of Blue Phase Liquid Crystal Devices*, AIP Conf. Proc. **2352**, 020037 (2020).
10. K. Bagchi, T. Emeršič, J. A. Martínez-González, J. J. de Pablo, and P. F. Nealey, *Functional Soft Materials From Blue Phase Liquid Crystals*, Science Advances **9**, eadh9393 (2020).
11. P. V. Dolganov, K. D. Baklanova, and V. K. Dolganov, *Peculiarities of Focal Conic Structure Formed Near the Cholesteric-Isotropic Phase Transition*, Phys. Rev. E **196**, 014703 (2022).
12. К. Д. Бакланова, В. К. Долганов, Е. И. Кац, П. В. Долганов, *Последовательность трехмерных (3D), двумерных (2D) и одномерных (1D) структур, образующихся из холестерического жидкого кристалла при изменении хиральности*, Письма в ЖЭТФ **117**, 537 (2023) [K. D. Baklanova, V. K. Dolganov, E. I. Kats, and P. V. Dolganov, *Sequence of Three-, Two-, and One-Dimensional Structures Formed From a Cholesteric Liquid Crystal at Change in the Chirality*, JETP Lett. **117**, 535 (2023)].
13. C. Blanc, G. Durey, R. D. Kamien, T. Lopez-Leon, M. O. Lavrentovich, and L. Tran, *Helfrich-Hurault Elastic Instabilities Driven by Geometrical Frustration*, Rev. Mod. Phys. **95**, 015004 (2023).
14. С. А. Бразовский, С. Г. Дмитриев, *Фазовые переходы в холестерических жидких кристаллах*, ЖЭТФ **69**, 979 (1975) [S. A. Brazovskii and S. G. Dmitriev, *Phase Transitions in Cholesteric Liquid Crystals*, Sov. Phys. JETP **42**, 497 (1975)].
15. С. А. Бразовский, В. М. Филев, *Критические явления в холестерических жидких кристаллах*, ЖЭТФ **75**, 1140 (1978) [S. A. Brazovskii and V. M. Filyev, *Critical Phenomena in Cholesteric Liquid-Crystals*, Sov. Phys. JETP **48**, 573 (1978)].
16. С. М. Стишов, А. Е. Петрова, *Термодинамические, упругие и электронные свойства веществ с киральной кристаллической структурой: MnSi, FeSi и CoSi*, УФН **193**, 614 (2023) [S. M. Stishov and A. E. Petrova, *Thermodynamic, Elastic, and Electronic Properties of Substances With a Chiral Crystal Structure: MnSi, FeSi, and CoSi*, Phys. Usp. **66**, 576 (2023)].

17. С. В. Демишев, *Спин-флуктуационные переходы*, УФН **194**, 23 (2024) [S. V. Demishev, *Spin-Fluctuation Transitions*, Phys. Usp. **67**, 22 (2024)].
18. H. Grebel, R. M. Hornreich, and S. Shtrikman, *Landau Theory of Cholesteric Blue Phases*, Phys. Rev. A **28**, 1114 (1983).
19. В. А. Чижиков, *Анизотропия магнитных фаз кубических гелимагнетиков*, ЖЭТФ **159**, 656 (2021) [V. A. Chizhikov, *Anisotropy of the Magnetic Phases of Cubic Helimagnets*, JETP **132**, 559 (2021)].
20. E. I. Kats, V. V. Lebedev, and A. R. Muratov, *Weak Crystallization Theory*, Phys. Rep. **228**, 1 (1993).
21. В. Е. Дмитриенко, *Голубая фаза жидких кристаллов: рассеяние света и модули упругости*, Письма в ЖЭТФ **43**, 324 (1986) [V. E. Dmitrienko, *Blue Phase of Liquid Crystals: Light Scattering and Elastic Moduli*, JETP Lett. **43**, 419 (1986)].

## АЛФАВИТНЫЙ УКАЗАТЕЛЬ ТОМА 166 ЗА 2024 г.

Вып.	Стр.	Вып.	Стр.
Каган М. Ю., Иксанов Р. Ш., Ковалев И. А., Красавин А. В., Мазур Е. А. Сверхпроводимость и неоднородные состояния в металлическом водороде и электронных системах с притяжением .....	7 89	Ашихмин В. В. (см. Якушев В. Ф.) ...	9 330
Эдельман В. С. (см. Ермаков А. Б.) ..	9 391	<b>Б</b>	
Bilinskii Yu. M. (see Arseev P. I.) .....	7 38	Багаев С. Н. (см. Прудников О. Н.) ....	10 556
<b>А</b>		Багаев С. Н. (см. Бонерт А. Э.) .....	10 453
Аветисян Ю. А., Трифонов Е. Д. Динамика когерентных атомных волн при рассеянии света на БЭК разреженного газа .....	10 500	Байдак С. Т., Лукоянов А. В. Формирование полупроводникового состояния в оксисульфостибнитах $RSbS_2O$ при $R = Dy, Ho, Er$ .....	9 403
Агафонова Н. Ю. (см. Якушев В. Ф.) .	9 330	Баранов Н. В. (см. Козвонин И. С.) ...	12 822
Альшиц В. И., Колдаева М. В., Петржиц Е. А., Даринская Е. В. Спектры резонансной магнитопластичности в кристаллах $NaCl(Ca + Ni)$ .....	11 696	Батуро В. В., Виноградов В. А., Платонова М. В., Юхновец И. В., Турлапов А. В. Магнитооптические ловушки для калия-39 и калия-40 .....	10 504
Андреев П. А., Труханова М. И. Уравнение эволюции электрической поляризации мультиферроиков, пропорциональной векторному произведению спинов ионов ячейки, под влиянием гамильтониана Гейзенберга .....	11 665	Безуглов Н. Н. (см. Бетеров И. И.) ....	10 535
Антипов А. Г., Уварова С. В. Оценка влияния приближения вращающейся волны на спектры поляризации двухуровневой системы в полихроматическом поле .....	11 575	Белов П. А. (см. Архипов Р. М.) .....	8 162
Архипов М. В. (см. Архипов Р. М.) ....	8 162	Белоненко А. В. (см. Руденко В. Н.) ..	11 632
Архипов М. В. (см. Архипов Р. М.) ....	8 174	Белотелов Г. С., Вялых А. П., Семенко А. В., Восканов М. Л., Слюсарев С. Н. . Метод оценки количества атомов в магнитооптических ловушках .....	10 447
Архипов Р. М., Дьячкова О. О., Белов П. А., Архипов М. В., Пахомов А. В., Розанов Н. Н. Когерентное управление населенностями связанных состояний в квантовых ямах парой полупериодных аттосекундных импульсов .....	8 162	Бетеров И. И., Якшина Е. А., Сулиман Г., Бетлени П. И., Прилуцкая А. А., Скворцова Д. А., Загиров Т. Р., Третьяков Д. Б., Энтин В. М., Безуглов Н. Н., Рябцев И. И. Осцилляции Раби при трехфотонном лазерном возбуждении одиночного ридберговского атома рубидия в оптической дипольной ловушке .....	10 535
Архипов Р. М., Пахомов А. В., Архипов М. В., Розанов Н. Н. Когерентное распространение полужиклового светового импульса в трехуровневой среде .....	8 174	Бетлени П. И. (см. Бетеров И. И.) ....	10 535
		Бибииков А. В., Юдин С. Н., Попова М. М., Киселев М. Д., Грум-Гржимайло А. Н., Грызлова Е. В. Динамика разлета молекулы воды в интенсивном поле высокочастотного излучения .....	12 759
		Бойло И. В., Метлов К. Л. Частотная зависимость гистерезиса движения вакансий в закрытом мемристоре на основе точно решаемой модели управляемой нелинейной диффузии .....	12 858
		Болдуин К. В. (см. Дричко И. Л.) ....	12 868

- Большин В. В., Карпович А. Л., Карелина Л. Н., Шуравин Н. С., Рязанов В. В. Наблюдение возвратной зависимости критического тока джозефсоновских переходов Nb–PdFe–Nb от толщины PdFe-барьера и температуры ..... 12 813
- Бонерт А. Э., Гончаров А. Н., Капуста Д. Н., Прудников О. Н., Тайченачев А. В., Багаев С. Н. Источник ультрахолодных атомов  $^{87}\text{Rb}$  для атомного интерферометра-гравиметра ..... 10 453
- Бражников Д. В. (см. Вишняков В. И.) 10 548
- Быков А. И. (см. Костюченко Н. В.) ... 12 846
- Бычкова Е. А. (см. Костюченко Н. В.) 12 846

## В

- Валиев Э. З. (см. Козвонин И. С.) ..... 12 822
- Васильев П. Н. (см. Пигальский К. С.) 8 246
- Вергелес С. Н. Фазовый переход в точке Большого взрыва в решеточной теории гравитации ..... 12 781
- Вест К. В. (см. Дричко И. Л.) ..... 12 868
- Виглин Н. А., Цвелиховская В. М., Шориков А. О., Павлов Т. Н., Проглядо В. В. Спиновая поляризация электронов в туннельных контактах  $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}/\text{MgO}/\text{InSb}$  ..... 9 374
- Виноградов В. А. (см. Батуро В. В.) .. 10 504
- Вишнёв А. А. (см. Пигальский К. С.) . 8 246
- Вишняков В. И., Бражников Д. В., Скворцов М. Н. Компенсация светового сдвига резонансов когерентного пленения населенностей в парах цезия при использовании двойной частотной и амплитудной модуляции лазерного излучения 10 548
- Власенко В. А. (см. Никитченков И. А.) 12 834
- Восканов М. Л. (см. Белотелов Г. С.) . 10 447
- Врублевская Н. Р., Шипило Д. Е., Илюшин П. Я., Николаева И. А., Косарева О. Г., Панов Н. А. Поиск связанных состояний одномерной квантовой системы степенным методом: практическая реализация ..... 11 612
- Вялых А. П. (см. Белотелов Г. С.) ... 10 447

## Г

- Гальперин Ю. М. (см. Дричко И. Л.) . 12 868
- Глазов М. М., Сулис Р. А. Сверхбыстрый транспорт экситонов в ван-дер-ваальсовых гетероструктурах ..... 7 20
- Глухов И. Л. (см. Каменский А. А.) ... 10 490

- Голубков М. В. (см. Степанов В. А.) .. 11 679
- Голубь А. П. (см. Зеленый Л. М.) ..... 7 133
- Гончаров А. Н. (см. Бонерт А. Э.) ..... 10 453
- Горбачевич А. А. (см. Костюченко Н. В.) ..... 12 846
- Городничев Е. Е., Рогозкин Д. Б. Интерференционная поправка к оптическому кондактансу магнитоактивной среды с рассеивающими неоднородностями ..... 9 316
- Григорьев С. В., Шнырков О. Д., Пшеничный К. А., Яшина Е. Г. Фрактальная структура еловой лапы ..... 12 888
- Грум-Гржимайло А. Н. (см. Бибииков А. В.) ..... 12 759
- Грызлова Е. В. (см. Бибииков А. В.) ... 12 759
- Гурин Ф. С. (см. Руденко В. Н.) ..... 11 632
- Гусаков Е. З. (см. Попов А. Ю.) ..... 11 748
- Гусев А. В. (см. Руденко В. Н.) ..... 11 632

## Д

- Даринская Е. В. (см. Альшиц В. И.) .. 11 696
- Дмитриева М. Ю. (см. Дровосеков А. Б.) ..... 9 383
- Дмитриенко В. Е. (см. Чижииков В. А.) 12 900
- Добрынина Е. А. (см. Якушев В. Ф.) . 9 330
- Донченко С. И. (см. Семенко А. В.) ... 10 475
- Дричко И. Л., Смирнов И. Ю., Сулов А. В., Болдуин К. В., Пфаффер Л. Н., Вест К. В., Миронов О. А., Миронов М., Лидли Д. Р., Гальперин Ю. М. Вигнеровская кристаллизация в двумерных структурах в магнитном поле. Акустические исследования ..... 12 868
- Дровосеков А. Б., Дмитриева М. Ю., Ситников А. В., Николаев С. Н., Рыльков В. В. Происхождение линии ЭПР ( $g \approx 4$ ) в магнитных наноконпозициях — проявление двухквантовых переходов в ферромагнитных гранулах ..... 9 383
- Дубинский А. Ю. (см. Резниченко Ю. С.) ..... 9 422
- Дубрович В. К. (см. Залялютдинов Т. А.) ..... 9 306
- Дуденко А. И. (см. Чайников А. П.) .... 8 194
- Дьячкова О. О. (см. Архипов Р. М.) ... 8 162



## Е

- Емельянец П. С., Свяховский С. Е.** Дифференцирование и интегрирование огибающей фемтосекундного импульса при помощи одномерных фотонных структур с искусственной формой фотонной запрещенной зоны ..... 9 295
- Еникеев Р. И.** (см. Якушев В. Ф.) ..... 9 330
- Ермаков А. Б., Тарасов М. А., Эдельман В. С.** Влияние магнитного поля на проводимость туннельной структуры сверхпроводник–изолятор–нормальный металл ..... 9 391
- Ефимов Н. Н.** (см. Пигальский К. С.) . 8 246

## Ж

- Жаров А. А., Жарова Н. А.** Световой контроль распределения наночастиц в коллоидах с усилением и поглощением . 12 771
- Жарова Н. А.** (см. Жаров А. А.) ..... 12 771
- Жачук Р. А.** Атомный механизм влияния упругих деформаций эпитаксиальных слоев Ge на поверхности Si(111) на диффузию адатомов Ge ..... 8 232
- Жуковский К. В.** О влиянии характеристик электронного пучка на излучение гармоник однопроходных лазеров на свободных электронах ..... 11 588

## З

- Забродин Е. Е., Коротких В. Л., Лохтин И. П., Петрушанко С. В., Снигирев А. М., Чернышов А. С., Эйюбова Г. Х.** Моделирование зарядовых корреляций адронов в соударениях тяжелых ионов при энергиях NICA ..... 9 340
- Загиров Т. Р.** (см. Бетеров И. И.) ..... 10 535
- Залялов Т. М., Исламов Д. Р.** Изменение свойств  $\text{Hf}_{0.5}\text{Zr}_{0.5}\text{O}_2$  при циклической переполяризации сегнетоэлектрических конденсаторов с разными материалами электродов ..... 11 703
- Залялютдинов Т. А., Дубрович В. К., Соловьев Д. А.** Двухфотонная конверсия гравитона на связанных атомных состояниях ..... 9 306
- Захваткин М. В.** (см. Руденко В. Н.) .. 11 632
- Звездин А. К.** (см. Костюченко Н. В.) . 12 846
- Зверев В. Н.** (см. Кузьмин А. В.) ..... 12 795

- Зеленый Л. М., Попель С. И., Голубь А. П.** Магнитные поля в окололунной плазме: свойства, проявления, эффекты ..... 7 133
- Зубарев А. Ю., Искакова Л. Ю., Мусихин А. Ю.** Влияние амплитуды магнитного поля на кинетику перемагничивания магнитных наночастиц ..... 8 238

## И

- Иванов А. В.** (см. Соболева Е. В.) ..... 10 527
- Иванов В. А., Скобло Ю. Э.** Эволюция излучения плазмы барьерного разряда в неоне низкого давления. Атомный спектр 9 434
- Илларионов Е. А.** (см. Очир-Горяева А. П.) ..... 12 878
- Ильенков Р. Я.** (см. Кирпичникова А. А.) ..... 10 517
- Ильина А. Д.** (см. Никитченков И. А.) 12 834
- Илюшин П. Я.** (см. Врублевская Н. Р.) 11 612
- Искакова Л. Ю.** (см. Зубарев А. Ю.) .. 8 238
- Исламов Д. Р.** (см. Залялов Т. М.) .... 11 703
- Ихсанов Р. Ш.** (см. Каган М. Ю.) .... 7 89

## К

- Каменский А. А., Глухов И. Л., Корнев А. С., Манаков Н. Л., Овсянников В. Д., Пальчиков В. Г.** СВЧ радиационные переходы между триплетными ридберговскими состояниями атомов щелочноземельно-подобных элементов группы Pb (Zn, Cd, Hg) и иттербия Yb ..... 10 490
- Капуста Д. Н.** (см. Бонерт А. Э.) ..... 10 453
- Карауш А. А.** (см. Семенко А. В.) ..... 10 475
- Карелина Л. Н.** (см. Больгинов В. В.) . 12 813
- Карпович А. Л.** (см. Больгинов В. В.) 12 813
- Катенков П. Ю.** (см. Костюченко Н. В.) 12 846
- Кирпичникова А. А., Ильенков Р. Я., Прудников О. Н.** Двухтемпературное распределение атомов в условиях субдоплеровского охлаждения ..... 10 517
- Киселев М. Д.** (см. Бибииков А. В.) .... 12 759
- Ковалев И. А.** (см. Каган М. Ю.) ..... 7 89
- Коваленко А. В.** (см. Руденко В. Н.) .. 11 632
- Козабаранов Р. В.** (см. Костюченко Н. В.) ..... 12 846

Козвонин И. С., Терещенко А. А., Овчинников А. С., Баранов Н. В., Валиев Э. З. Роль магнитоупругих взаимодействий в сплаве FeRh при антиферроферромагнитном фазовом переходе ....	12	822
Колдаева М. В. (см. Альшиц В. И.) ...	11	696
Колоколов И. В., Лебедев В. В. Двумерная турбулентность в ограниченной ячейке .....	7	110
Корнев А. С. (см. Каменский А. А.) ...	10	490
Коротких В. Л. (см. Забродин Е. Е.) ..	9	340
Коршунов А. С. (см. Костюченко Н. В.)	12	846
Косарева О. Г. (см. Врублевская Н. Р.) .	11	612
Костюченко Н. В., Плохов Д. И., Терешина И. С., Политова Г. А., Кудасов Ю. Б., Платонов В. В., Сурдин О. М., Маслов Д. А., Стрелков И. С., Козабаранов Р. В., Катенков П. Ю., Коршунов А. С., Макаров И. В., Быков А. И., Филиппов А. В., Бычкова Е. А., Репин П. Б., Селемир В. Д., Горбачев А. А., Звездин А. К. Процесс полного намагничивания и магнитная фазовая диаграмма редкоземельных ферримагнетиков $R_2Fe_{14}B$ .....	12	846
Кочур А. Г. (см. Чайников А. П.) .....	8	194
Красавин А. В. (см. Каган М. Ю.) ....	7	89
Крысенко Д. С. (см. Прудников О. Н.)	10	556
Кудасов Ю. Б. (см. Костюченко Н. В.)	12	846
Кузьмин А. В., Хасанова Э. И., Мелетов К. П., Зверев В. Н., Хасанов С. С. Квазидвумерный органический проводник $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl. Конформационный беспорядок и зарядовая структура проводящих слоев .....	12	795
Кузьмичев С. А. (см. Никитченков И. А.) .....	12	834
Кузьмичева Т. Е. (см. Никитченков И. А.) .....	12	834
Кукушкин И. В. (см. Щепетильников А. В.) .....	7	9
Кулагин В. В. (см. Руденко В. Н.) ....	11	632
Кучинский Э. З., Садовский М. В. Обобщенная динамическая модель Келдыша .....	7	45

## Л

Лапин Н. С. (см. Прудников О. Н.) ....	10	556
Лебедев В. В. (см. Колоколов И. В.) ..	7	110
Лидли Д. Р. (см. Дричко И. Л.) .....	12	868

Лобанова Э. А. (см. Шевченко Ю. А.)	11	655
Лохтин И. П. (см. Забродин Е. Е.) .....	9	340
Лукоянов А. В. (см. Байдак С. Т.) .....	9	403
Любути И. С. (см. Троян И. А.) .....	7	74

## М

Мазур Е. А. (см. Каган М. Ю.) .....	7	89
Макаров И. В. (см. Костюченко Н. В.)	12	846
Малимон А. Н. (см. Семенко А. В.) ...	10	475
Мальцев А. Я. Особенности $\tau$ -приближения для хаотических электронных траекторий на сложных поверхностях Ферми .....	9	409
Мамонова А. В. (см. Чижииков В. А.) .	12	900
Манаков Н. Л. (см. Каменский А. А.) .	10	490
Манучарян Г. Д. (см. Руденко В. Н.) ..	11	632
Маслов Д. А. (см. Костюченко Н. В.) .	12	846
Мелетов К. П. (см. Кузьмин А. В.) ....	12	795
Мелихов А. Н., Михеева Е. В. Нагрев молекулярного облака первичной черной дырой .....	11	618
Метлов К. Л. (см. Бойло И. В.) .....	12	858
Мингалеев А. А. (см. Тиликин И. Н.) .	11	739
Мингалеев А. Р. (см. Тиликин И. Н.) .	11	739
Миронов О. А. (см. Дричко И. Л.) ....	12	868
Миронов М. (см. Дричко И. Л.) .....	12	868
Михеева Е. В. (см. Мелихов А. Н.) ....	11	618
Мосаки И. Н., Турлапов А. В. Интерференция цепочки бозе-конденсатов в приближении Питаевского – Гросса ....	7	30
Мусихин А. Ю. (см. Зубарев А. Ю.) ..	8	238

## Н

Наговицын А. А. (см. Попов А. Ю.) ..	11	748
Нефедев К. В. (см. Шевченко Ю. А.) .	11	655
Никитченков И. А., Кузьмичев С. А., Ильина А. Д., Перваков К. С., Власенко В. А., Кузьмичева Т. Е. Туннельная спектроскопия $BaFe_{2-x}Ni_xAs_2$ с вариацией степени допирования в сверхпроводящем и нормальном состояниях .	12	834
Николаев С. Н. (см. Дровосеков А. Б.)	9	383
Николаева И. А. (см. Врублевская Н. Р.)	11	612

## О

Овсянников В. Д. (см. Каменский А. А.)	10	490
Овчинников А. С. (см. Козвонин И. С.)	12	822
Овчинников П. А. (см. Шевченко Ю. А.) .....	11	655

Онуфриев С. В., Савватимский А. И.  
Физические свойства диборида циркония  
при температуре 2500–5000 К ..... 11 641

## О

от имени Коллаборации LVD (см. Яку-  
шев В. Ф.) ..... 9 330

## О

От Редакции. К 130-летию П. Л. Капи-  
цы ..... 7 5

Очир-Горяева А. П., Соколов Д. Д.,  
Илларионов Е. А. Эффекты длинной  
памяти при развитии неустойчивости в  
случайной среде ..... 12 878

## П

Павлов Т. Н. (см. Виглин Н. А.) ..... 9 374

Пальчиков В. Г. (см. Каменский А. А.) 10 490

Панов Н. А. (см. Врублевская Н. Р.) .... 11 612

Пахомов А. В. (см. Архипов Р. М.) .... 8 162

Пахомов А. В. (см. Архипов Р. М.) .... 8 174

Перваков К. С. (см. Никитченков И. А.) 12 834

Петржик Е. А. (см. Альшиц В. И.) .... 11 696

Петрушанко С. В. (см. Забродин Е. Е.) 9 340

Пигальский К. С., Вишнёв А. А.,  
Ефимов Н. Н., Васильев П. Н., Ша-  
батин А. В., Трахтенберг Л. И. Маг-  
нитные и сверхпроводящие свойства допи-  
рованных Fe высокотемпературных сверх-  
проводников YBaCuO, синтезированных  
золь-гель-методом ..... 8 246

Пикуз С. А. (см. Тиликин И. Н.) ..... 11 739

Платонов В. В. (см. Костюченко Н. В.) 12 846

Платонова М. В. (см. Батуро В. В.) ... 10 504

Плохов Д. И. (см. Костюченко Н. В.) .. 12 846

Политова Г. А. (см. Костюченко Н. В.) 12 846

Попель С. И. (см. Зеленый Л. М.) ..... 7 133

Попель С. И. (см. Резниченко Ю. С.) .. 9 422

Попов А. Ю., Гусаков Е. З., Нагови-  
цын А. А., Симончик Л. В., Усачё-  
нок М. С. Низкопороговый распад обык-  
новенной СВЧ-волны в присутствии круп-  
номасштабных когерентных структур в  
разреженной плазме ..... 11 748

Попов С. М. (см. Руденко В. Н.) ..... 11 632

Попова М. М. (см. Бибикив А. В.) ..... 12 759

Прилуцкая А. А. (см. Бетеров И. И.) . 10 535

Проглядо В. В. (см. Виглин Н. А.) .... 9 374

Прудников О. Н. (см. Кирпичнико-  
ва А. А.) ..... 10 517

Прудников О. Н., Крысенко Д. С.,  
Тайченачев А. В., Юдин В. И., Чепу-  
ров С. В., Лапин Н. С., Багаев С. Н.  
Лазерное охлаждение иона иттербия-171  
без использования магнитного поля .... 10 556

Прудников О. Н. (см. Бонерт А. Э.) ... 10 453

Пудалов В. М. (см. Троян И. А.) ..... 7 74

Пфаффер Л. Н. (см. Дричко И. Л.) ... 12 868

Пшеничный К. А. (см. Григорьев С. В.) 12 888

## Р

Ратников П. В. Диэлектрическая  
электронно-дырочная жидкость в моно-  
слойных гетероструктурах на основе ди-  
халькогенидов переходных металлов .... 11 710

Резниченко Ю. С., Дубинский А. Ю.,  
Попель С. И. Ионосферные плазменно-  
пылевые облака: влияние неустойчивости  
Рэлея – Тейлора ..... 9 422

Репин П. Б. (см. Костюченко Н. В.) ... 12 846

Рогозкин Д. Б. (см. Городничев Е. Е.) . 9 316

Розанов Н. Н. (см. Архипов Р. М.) .... 8 162

Розанов Н. Н. (см. Архипов Р. М.) .... 8 174

Руденко В. Н., Белоненко А. В., Гу-  
сев А. В., Гурин Ф. С., Кулагин В. В.,  
Попов С. М., Манучарян Г. Д., За-  
хваткин М. В., Коваленко А. В.  
Прецизионное измерение гравитационного  
смещения частоты электромагнитных сиг-  
налов ..... 11 632

Рудый С. С. (см. Соболева Е. В.) ..... 10 527

Румянцев Д. А., Шленев Д. М., Чи-  
стяков М. В. Процесс расщепления фо-  
тона в сильном магнитном поле с учетом  
влияния позитрония ..... 8 209

Рыльков В. В. (см. Дровосеков А. Б.) . 9 383

Рябцев И. И. (см. Бетеров И. И.) ..... 10 535

Рязанов В. В. (см. Больгинов В. В.) ... 12 813

## С

Савватимский А. И. (см. Онуфри-  
ев С. В.) ..... 11 641

Садаков А. В. (см. Степанов В. А.) .... 11 679

Садаков А. В. (см. Троян И. А.) ..... 7 74

Садовский М. В. (см. Кучинский Э. З.) 7 45

Сазонов С. В. Самосогласованный квази-  
классический подход к описанию движе-  
ния частицы в диссипативной среде .... 8 153

Сапрыкин Э. Г., Черненко А. А. Эффекты когерентности магнитных подуровней, индуцированные полем волны линейной поляризации, в спектрах насыщенного поглощения и магнитного сканирования в атомах с $\Lambda$ - и V-типами переходов .....	10	460
Свяховский С. Е. (см. Емельянец П. С.) .....	9	295
Селемир В. Д. (см. Костюченко Н. В.)	12	846
Семенко А. В. (см. Белотелов Г. С.)	10	447
Семенко А. В., Карауш А. А., Федорова Д. М., Малимон А. Н., Сутырин Д. В., Слюсарев С. Н., Федотов В. Н., Донченко С. И. Методы и системы сравнения частот территориально удаленных оптических стандартов ...	10	475
Семенов Д. В. (см. Троян И. А.) .....	7	74
Симончик Л. В. (см. Попов А. Ю.) ....	11	748
Ситников А. В. (см. Дровосеков А. Б.)	9	383
Скворцов М. Н. (см. Вишняков В. И.)	10	548
Скворцова Д. А. (см. Бетеров И. И.) ..	10	535
Скобло Ю. Э. (см. Иванов В. А.) .....	9	434
Слюсарев С. Н. (см. Белотелов Г. С.)	10	447
Слюсарев С. Н. (см. Семенко А. В.) ...	10	475
Смирнов Б. М. Равновесия и процессы в диссоциированном воздухе .....	11	727
Смирнов И. Ю. (см. Дричко И. Л.) ...	12	868
Снигирев А. М. (см. Забродин Е. Е.) ..	9	340
Соболева Е. В., Щербинин Д. П., Рудый С. С., Иванов А. В. Оптическая стабилизация заряженных диэлектрических наночастиц в гибридных ловушках	10	527
Соколов Д. Д. (см. Очир-Горяева А. П.)	12	878
Соловьев Д. А. (см. Залялютдинов Т. А.) .....	9	306
Стегайлов В. В. (см. Чичеватов Г. Д.)	9	347
Степанов В. А., Голубков М. В., Садаков А. В., Усольцев А. С., Чарев Д. А. Спектроскопия андреевского отражения FeSe: анализ в рамках двухзонной модели .....	11	679
Стрелков И. С. (см. Костюченко Н. В.)	12	846
Стронгин В. С. (см. Шевченко Ю. А.)	11	655
Сулиман Г. (см. Бетеров И. И.) .....	10	535
Сурдин О. М. (см. Костюченко Н. В.)	12	846
Сулис Р. А. (см. Глазов М. М.) .....	7	20
Суслов А. В. (см. Дричко И. Л.) .....	12	868
Сутырин Д. В. (см. Семенко А. В.) ....	10	475

## Т

Тайченачев А. В. (см. Прудников О. Н.)	10	556
--	----	-----

Тайченачев А. В. (см. Бонерт А. Э.) ..	10	453
Тарасов М. А. (см. Ермаков А. Б.) ....	9	391
Тер-Оганесян А. Е. (см. Тиликин И. Н.)	11	739
Терешина И. С. (см. Костюченко Н. В.)	12	846
Терещенко А. А. (см. Козвонин И. С.)	12	822
Тиликин И. Н., Шелковенко Т. А., Мингалеев А. Р., Мингалеев А. А., Тер-Оганесян А. Е., Пикуз С. А. Особенности работы проволочных X-пинчей на компактном сильноточном генераторе КИНГ .....	11	739
Трахтенберг Л. И. (см. Пигальский К. С.) .....	8	246
Третьяков Д. Б. (см. Бетеров И. И.) ..	10	535
Трефилов И. В. (см. Шевченко Ю. А.)	11	655
Трифонов Е. Д. (см. Аветисян Ю. А.)	10	500
Троян И. А., Семенов Д. В., Садаков А. В., Любутин И. С., Пудалов В. М. Прогресс, проблемы и перспективы комнатно-температурной сверхпроводимости .....	7	74
Труханова М. И. (см. Андреев П. А.)	11	665
Турлапов А. В. (см. Батуро В. В.) ....	10	504
Турлапов А. В. (см. Мосаки И. Н.) ....	7	30
Тюрнев В. В. Расчет эффективной диэлектрической проницаемости композитного материала, содержащего наполнитель с отрицательной диэлектрической проницаемостью .....	11	603

## У

Уварова С. В. (см. Антипов А. Г.) .....	11	575
Усачёнок М. С. (см. Попов А. Ю.) ....	11	748
Усольцев А. С. (см. Степанов В. А.) ...	11	679
Устинов В. В., Ясюлевич И. А. Спиновый резонанс электронов проводимости в металлах в условиях спинового эффекта холла .....	7	63

## Ф

Федорова Д. М. (см. Семенко А. В.) ..	10	475
Федотов В. Н. (см. Семенко А. В.) ....	10	475
Филимонова Н. А. (см. Якушев В. Ф.)	9	330
Филиппов А. В. (см. Костюченко Н. В.)	12	846

## Х

Хасанов С. С. (см. Кузьмин А. В.) ....	12	795
Хасанова Э. И. (см. Кузьмин А. В.) ...	12	795

## Ц

Цвелиховская В. М. (см. Виглин Н. А.) 9 374

## Ч

- Чайников А. П., Кочур А. Г., Дуденко А. И. Моделирование процессов поглощения энергии в воде вблизи поверхности золотой наночастицы при облучении фотонами рентгеновского диапазона ..... 8 194
- Чареев Д. А. (см. Степанов В. А.) ..... 11 679
- Чепуров С. В. (см. Прудников О. Н.) .. 10 556
- Черненко А. А. (см. Сапрыкин Э. Г.) . 10 460
- Чернышов А. С. (см. Забродин Е. Е.) . 9 340
- Чижигов В. А., Мамонова А. В., Дмитриенко В. Е. Решеточная упругость голубых фаз холестерических жидких кристаллов ..... 12 900
- Чистяков М. В. (см. Румянцев Д. А.) . 8 209
- Чичеватов Г. Д., Стегайлов В. В. Точечные дефекты в шпинелях  $\text{FeMe}_2\text{O}_4$  ( $\text{Me} = \text{Fe}, \text{Cr}$ ): исследование в рамках метода DFT+U ..... 9 347

## Ш

- Шабатин А. В. (см. Пигальский К. С.) 8 246
- Шакирьянова И. Р. (см. Якушев В. Ф.) 9 330
- Шевченко Ю. А., Лобанова Э. А., Трефилов И. В., Стронгин В. С., Овчинников П. А., Нефедев К. В. Фазовый переход и кроссоверы на каирской решетке диполей Изинга ..... 11 655
- Шелковенко Т. А. (см. Тиликин И. Н.) 11 739
- Шипило Д. Е. (см. Врублевская Н. Р.) . 11 612
- Шленев Д. М. (см. Румянцев Д. А.) ... 8 209
- Шнырков О. Д. (см. Григорьев С. В.) . 12 888
- Шориков А. О. (см. Виглин Н. А.) .... 9 374
- Шуравин Н. С. (см. Больгинов В. В.) . 12 813

## Щ

- Щепетильников А. В., Кукушкин И. В. Индуцированные микроволновым излучением осцилляции магнитосопротивления двумерных электронных систем ..... 7 9
- Щербинин Д. П. (см. Соболева Е. В.) . 10 527

## Э

- Эйюбова Г. Х. (см. Забродин Е. Е.) .... 9 340
- Энтин В. М. (см. Бетеров И. И.) ..... 10 535

## Ю

- Юдин В. И. (см. Прудников О. Н.) .... 10 556
- Юдин С. Н. (см. Бибииков А. В.) ..... 12 759
- Юхновец И. В. (см. Батуру В. В.) ..... 10 504

## Я

- Яковлев Д. Г. Мощные всплески и магнитоупругие колебания магнитаров ..... 7 121
- 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. Частотно-временной анализ изменений радоновых выбросов в подземной лаборатории LNGS, измеренных детектором LVD ..... 9 330
- Якшина Е. А. (см. Бетеров И. И.) ..... 10 535
- Ясюлевич И. А. (см. Устинов В. В.) ... 7 63
- Яшина Е. Г. (см. Григорьев С. В.) ..... 12 888

## А

- Aleksandrov I. A., Shabaev V. M. Vacuum birefringence and dichroism in a strong plane-wave background ..... 8 182
- Antonov V. N. (see Samsonova A.) ..... 8 255
- Arseev P. I., Maslova N. S., Bilinskii Yu. M. On the microscopic approach to the Andreev current... ..... 7 38
- Avdeev I. D., Nestoklon M. O. Untangling the valley structure of states for intravalley exchange anisotropy in lead chalcogenides quantum dots ..... 8 261

## В

- Brilliantov N. (see Samsonova A.) ..... 8 255
- Budker D. (see Burueva D. B.) ..... 10 566
- Burueva D. B., Eills J., Picazo-Frutos R., Kovtunov K. V., Budker D., Koptug I. V. Detection of metronidazole and fampridine by NMR at zero and ultralow magnetic field ..... 10 566

## D

- Deviatov E. V. (see Kazmin D. Yu.) ..... 11 688

## E

- Eills J. (see Burueva D. B.) ..... 10 566
- Esin V. D. (see Kazmin D. Yu.) ..... 11 688



K

**Kazmin D. Yu., Esin V. D., Timonina A. V., Kolesnikov N. N., Deviatov E. V.** Fractional a. c. Josephson effect as evidence of topological hinge states in a Dirac semimetal  $\text{NiTe}_2$  ..... 11 688

**Klimenko O.** (see Samsonova A.) ..... 8 255

**Kolesnikov N. N.** (see Kazmin D. Yu.) .. 11 688

**Koptug I. V.** (see Burueva D. B.) ..... 10 566

**Kovtunov K. V.** (see Burueva D. B.) .. 10 566

M

**Makhlin Yu., Zorin A. B.** Josephson bifurcation readout: beyond the monochromatic approximation ..... 7 98

**Maslova N. S.** (see Arseev P. I.) ..... 7 38

N

**Nechaev S. K.** BKT transition in Phyllotaxis ..... 8 277

**Nestoklon M. O.** (see Avdeev I. D.) ..... 8 261

P

**Paradezhenko G.** (see Samsonova A.) ... 8 255

**Pervishko A.** (see Samsonova A.) ..... 8 255

**Picazo-Frutos R.** (see Burueva D. B.) ... 10 566

**Prodan D.** (see Samsonova A.) ..... 8 255

S

**Samsonova A., Yegiyan S., Klimenko O., Antonov V. N., Paradezhenko G., Prodan D., Pervishko A., Yudin D., Brilliantov N.** Fabrication and study of the  $p\text{--Si}/\alpha\text{--Si}/\text{Ag}$  memristor crossbar array ..... 8 255

**Shabaev V. M.** (see Aleksandrov I. A.) .. 8 182

T

**Timonina A. V.** (see Kazmin D. Yu.) .... 11 688

Y

**Yegiyan S.** (see Samsonova A.) ..... 8 255

**Yudin D.** (see Samsonova A.) ..... 8 255

Z

**Zakharov B. G.** Effect of color randomization on  $p_T$  broadening of fast partons in turbulent quark-gluon plasma ..... 8 216

**Zorin A. B.** (see Makhlin Yu.) ..... 7 98

ПРЕДМЕТНЫЙ УКАЗАТЕЛЬ ТОМА 166 ЗА 2024 г.

Вып.	Стр.	Вып.	Стр.
<b>1. Атомы, молекулы, оптика</b>		<b>1.7 Взаимодействие атомов и молекул с электромагнитным полем, квантовая и классическая оптика, физика лазеров, нелинейная оптика</b>	
<b>1.1 Общие вопросы квантовой механики</b>			
	Самосогласованный квазиклассический подход к описанию движения частицы в диссипативной среде. <i>Сазонов С. В.</i> ....		Когерентное управление населенностями связанных состояний в квантовых ямах парой полупериодных аттосекундных импульсов. <i>Архипов Р. М., Дьячкова О. О., Белов П. А., Архипов М. В., Пахомов А. В., Розанов Н. Н.</i> .....
8	153	8	162
	Процесс расщепления фотона в сильном магнитном поле с учетом влияния позитрония. <i>Румянцев Д. А., Шленев Д. М., Чистяков М. В.</i> .....		Когерентное распространение полуволнового светового импульса в трехуровневой среде. <i>Архипов Р. М., Пахомов А. В., Архипов М. В., Розанов Н. Н.</i> .....
8	209	8	174
	Поиск связанных состояний одномерной квантовой системы степенным методом: практическая реализация. <i>Врублевская Н. Р., Шипило Д. Е., Илюшин П. Я., Николаева И. А., Косарева О. Г., Панов Н. А.</i> .....		Моделирование процессов поглощения энергии в воде вблизи поверхности золотой наночастицы при облучении фотонами рентгеновского диапазона. <i>Чайников А. П., Кочур А. Г., Дуденко А. И.</i> ...
11	612	8	194
<b>1.6 Взаимодействие фотонов, электронов, атомов и молекул с конденсированными телами и поверхностями</b>			Дифференцирование и интегрирование огибающей фемтосекундного импульса при помощи одномерных фотонных структур с искусственной формой фотонной запрещенной зоны. <i>Емельянцева П. С., Святковский С. Е.</i> .....
	Сверхбыстрый транспорт экситонов в вандер-ваальсовых гетероструктурах. <i>Глазов М. М., Сулис Р. А.</i> .....	9	295
7	20		Интерференционная поправка к оптическому контактансу магнитоактивной среды с рассеивающими неоднородностями. <i>Городничев Е. Е., Rogozkin Д. Б.</i> .....
	Расчет эффективной диэлектрической проницаемости композитного материала, содержащего наполнитель с отрицательной диэлектрической проницаемостью. <i>Тюрнев В. В.</i> .....	9	316
11	603		Метод оценки количества атомов в магнитооптических ловушках. <i>Белотелов Г. С., Вялых А. П., Семенко А. В., Восканов М. Л., Слюсарев С. Н.</i> .....
	Особенности работы проволочных Х-пинчей на компактном сильноточном генераторе КИНГ. <i>Тиликин И. Н., Шелковенко Т. А., Мингалеев А. Р., Мингалеев А. А., Тер-Оганесян А. Е., Пикюз С. А.</i> .....	10	447
11	739		Источник ультрахолодных атомов <sup>87</sup> Rb для атомного интерферометра-гравиметра. <i>Бонерт А. Э., Гончаров А. Н., Капустин Д. Н., Прудников О. Н., Тайченачев А. В., Багаев С. Н.</i> .....
		10	453

- Эффекты когерентности магнитных подуровней, индуцированные полем волны линейной поляризации, в спектрах насыщенного поглощения и магнитного сканирования в атомах с  $\Lambda$ - и V-типами переходов. Сапрыкин Э. Г., Черненко А. А. ... 10 460
- Методы и системы сравнения частот территориально удаленных оптических стандартов. Семенко А. В., Карауш А. А., Федорова Д. М., Малимон А. Н., Сутырин Д. В., Слюсарев С. Н., Федотов В. Н., Донченко С. И. .... 10 475
- СВЧ радиационные переходы между триплетными ридберговскими состояниями атомов щелочноземельно-подобных элементов группы  $\text{Ib}$  (Zn, Cd, Hg) и иттербия Yb. Каменский А. А., Глухов И. Л., Корнев А. С., Манаков Н. Л., Овсянников В. Д., Пальчиков В. Г. .... 10 490
- Динамика когерентных атомных волн при рассеянии света на БЭК разреженного газа. Аветисян Ю. А., Трифонов Е. Д. ... 10 500
- Магнитооптические ловушки для калия-39 и калия-40. Батура В. В., Виноградов В. А., Платонова М. В., Южновец И. В., Турлапов А. В. .... 10 504
- Двухтемпературное распределение атомов в условиях субдоплеровского охлаждения. Кирпичникова А. А., Ильенков Р. Я., Прудников О. Н. .... 10 517
- Оптическая стабилизация заряженных диэлектрических наночастиц в гибридных ловушках. Соболева Е. В., Щербинин Д. П., Рудый С. С., Иванов А. В. .... 10 527
- Осцилляции Раби при трехфотонном лазерном возбуждении одиночного ридберговского атома рубидия в оптической дипольной ловушке. Бетеров И. И., Якшина Е. А., Сулиман Г., Бетлени П. И., Прилуцкая А. А., Скворцова Д. А., Загиров Т. Р., Третьяков Д. Б., Энтин В. М., Безуглов Н. Н., Рябцев И. И. .... 10 535
- Компенсация светового сдвига резонансов когерентного пленения населенностей в парах цезия при использовании двойной частотной и амплитудной модуляции лазерного излучения. Вишняков В. И., Бражников Д. В., Скворцов М. Н. .... 10 548
- Лазерное охлаждение иона иттербия-171 без использования магнитного поля. Прудников О. Н., Крысенко Д. С., Тайченачев А. В., Юдин В. И., Чепуров С. В., Лапин Н. С., Багаев С. Н. .... 10 556
- Detection of metronidazole and fampridine by NMR at zero and ultralow magnetic field. Burueva D. B., Eills J., Picazo-Frutos R., Kovtunov K. V., Budker D., Koptug I. V. .... 10 566
- Оценка влияния приближения вращающейся волны на спектры поляризации двухуровневой системы в полихроматическом поле. Антипов А. Г., Уварова С. В. .... 11 575
- О влиянии характеристик электронного пучка на излучение гармоник однопроходных лазеров на свободных электронах. Жуковский К. В. .... 11 588
- Низкопороговый распад обыкновенной СВЧ-волны в присутствии крупномасштабных когерентных структур в разреженной плазме. Попов А. Ю., Гусakov Е. З., Наговицын А. А., Симончик Л. В., Усачёнок М. С. .... 11 748
- Динамика разлета молекулы воды в интенсивном поле высокочастотного излучения. Бибииков А. В., Юдин С. Н., Попова М. М., Киселев М. Д., Грум-Гржимайло А. Н., Грызлова Е. В. .... 12 759
- Световой контроль распределения наночастиц в коллоидах с усилением и поглощением. Жаров А. А., Жарова Н. А. .... 12 771
- ### 1.8 Классическая электродинамика
- Vacuum birefringence and dichroism in a strong plane-wave background. Aleksandrov I. A., Shabaev V. M. .... 8 182
- Процесс расщепления фотона в сильном магнитном поле с учетом влияния позитрония. Румянцев Д. А., Шленев Д. М., Чистяков М. В. .... 8 209
- Двухфотонная конверсия гравитона на связанных атомных состояниях. Залялотдинов Т. А., Дубрович В. К., Соловьев Д. А. .... 9 306

## 2. Ядра, частицы, поля, гравитация и астрофизика

### 2.1 Структура ядер, столкновения и ядерные реакции

Effect of color randomization on  $p_T$  broadening of fast partons in turbulent quark-gluon plasma. *Zakharov B. G.* ..... 8 216

### 2.2 Физика адронов и КХД

Effect of color randomization on  $p_T$  broadening of fast partons in turbulent quark-gluon plasma. *Zakharov B. G.* ..... 8 216

Моделирование зарядовых корреляций адронов в соударениях тяжелых ионов при энергиях NICA. *Забродин Е. Е., Коротких В. Л., Лохтин И. П., Петрушанко С. В., Смигирев А. М., Чернышов А. С., Эйюбова Г. Х.* ..... 9 340

### 2.3 Электромагнитные и слабые взаимодействия

Прецизионное измерение гравитационного смещения частоты электромагнитных сигналов. *Руденко В. Н., Белоненко А. В., Гусев А. В., Гурин Ф. С., Кулагин В. В., Попов С. М., Манучарян Г. Д., Захваткин М. В., Коваленко А. В.* ..... 11 632

### 2.4 Гравитация и астрофизика

Мощные всплески и магнитоупругие колебания магнитаров. *Яковлев Д. Г.* ..... 7 121

Двухфотонная конверсия гравитона на связанных атомных состояниях. *Залялютдинов Т. А., Дубрович В. К., Соловьев Д. А.* ..... 9 306

Частотно-временной анализ изменений радионуклидных 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.* ..... 9 330

Нагрев молекулярного облака первичной черной дырой. *Мелихов А. Н., Михеева Е. В.* ..... 11 618

Прецизионное измерение гравитационного смещения частоты электромагнитных сигналов. *Руденко В. Н., Белоненко А. В., Гусев А. В., Гурин Ф. С., Кулагин В. В., Попов С. М., Манучарян Г. Д., Захваткин М. В., Коваленко А. В.* ..... 11 632

Фазовый переход в точке Большого взрыва в решеточной теории гравитации. *Вергелес С. Н.* ..... 12 781

## 3. Твердые тела и жидкости

### 3.1 Рассеяние и поглощение частиц и волн, спектры возбуждения

Интерференция цепочки бозе-конденсатов в приближении Питаевского – Гросса. *Мосаки И. Н., Турлапов А. В.* ..... 7 30

### 3.2 Структура, механические свойства, дефекты, рост кристаллов

Атомный механизм влияния упругих деформаций эпитаксиальных слоев Ge на поверхности Si(111) на диффузию адатомов Ge. *Жачук Р. А.* ..... 8 232

Точечные дефекты в шпинелях  $\text{FeMe}_2\text{O}_4$  ( $\text{Me} = \text{Fe}, \text{Cr}$ ): исследование в рамках метода DFT+U. *Чичеватов Г. Д., Стегайлов В. В.* ..... 9 347

Физические свойства диборида циркония при температуре 2500–5000 К. *Онуфриев С. В., Савватимский А. И.* ..... 11 641

Квазидвумерный органический проводник  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu[N(CN)}_2\text{]Cl}$ . Конформационный беспорядок и зарядовая структура проводящих слоев. *Кузьмин А. В., Хасанова Э. И., Мелетов К. П., Зверев В. Н., Хасанов С. С.* ..... 12 795

### 3.3 Тепловые свойства твердых тел и жидкостей

Физические свойства диборида циркония при температуре 2500–5000 К. *Онуфриев С. В., Савватимский А. И.* ..... 11 641

### 3.5 Низкоразмерные системы

- Атомный механизм влияния упругих деформаций эпитаксиальных слоев Ge на поверхности Si(111) на диффузию адатомов Ge. *Жачук Р. А.* ..... 8 232

## 4. Порядок, беспорядок и фазовые переходы в конденсированных средах

### 4.1 Неоднородные, неупорядоченные и частично разупорядоченные системы

- К 130-летию П. Л. Капицы. *От Редакции.* 7 5
- Интерференция цепочки бозе-конденсатов в приближении Питаевского–Гросса. *Мосаки И. Н., Турлапов А. В.* ..... 7 30
- Обобщенная динамическая модель Келдыша. *Кучинский Э.З., Садовский М.В.* ... 7 45
- Спектры резонансной магнитоупругости в кристаллах NaCl(Ca + Ni). *Альшиц В. И., Колдаева М. В., Петрижик Е. А., Даринская Е. В.* ..... 11 696

### 4.2 Магнетизм, пьезо- и сегнето-электричество

- Спиновый резонанс электронов проводимости в металлах в условиях спинового эффекта холла. *Устинов В. В., Ясюлевич И. А.* ..... 7 63
- Влияние амплитуды магнитного поля на кинетику перемагничивания магнитных наночастиц. *Зубарев А. Ю., Исакова Л. Ю., Мусихин А. Ю.* ..... 8 238
- Спиновая поляризация электронов в туннельных контактах Co<sub>0.9</sub>Fe<sub>0.1</sub>/MgO/InSb. *Виглин Н. А., Цвелиховская В. М., Шориков А. О., Павлов Т. Н., Проглядо В. В.* 9 374
- Происхождение линии ЭПР ( $g \approx 4$ ) в магнитных наноконпозиатах — проявление двухквантовых переходов в ферромагнитных гранулах. *Дровосеков А. Б., Дмитриева М. Ю., Ситников А. В., Николаев С. Н., Рыльков В. В.* ..... 9 383
- Фазовый переход и кроссоверы на каирской решетке диполей Изинга. *Шевченко Ю. А., Лобанова Э. А., Трефилов И. В., Стронгин В. С., Овчинников П. А., Нефедов К. В.* ..... 11 655

- Уравнение эволюции электрической поляризации мультиферроиков, пропорциональной векторному произведению спинов ионов ячейки, под влиянием гамильтониана Гейзенберга. *Андреев П. А., Труханова М. И.* ..... 11 665

- Роль магнитоупругих взаимодействий в сплаве FeRh при антиферроферромагнитном фазовом переходе. *Козвонин И. С., Терещенко А. А., Овчинников А. С., Баранов Н. В., Валиев Э. З.* 12 822

- Процесс полного намагничивания и магнитная фазовая диаграмма редкоземельных ферримагнетиков R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B. *Костюченко Н. В., Плохов Д. И., Терешина И. С., Политова Г. А., Кудасов Ю. Б., Платонов В. В., Сурдин О. М., Маслов Д. А., Стрелков И. С., Козабаранов Р. В., Катенков П. Ю., Коршунов А. С., Макаров И. В., Быков А. И., Филиппов А. В., Бычкова Е. А., Репин П. Б., Селемир В. Д., Горбачевич А. А., Звездин А. К.* ..... 12 846

### 4.3 Сверхпроводимость и сверхтекучесть

- On the microscopic approach to the Andreev current... *Arseev P. I., Maslova N. S., Bilinskii Yu. M.* ..... 7 38
- Прогресс, проблемы и перспективы комнатно-температурной сверхпроводимости. *Троян И. А., Семенов Д. В., Садаков А. В., Любутин И. С., Пудалов В. М.* 7 74
- Сверхпроводимость и неоднородные состояния в металлическом водороде и электронных системах с притяжением. *Каган М. Ю., Иксанов Р. Ш., Ковалев И. А., Красавин А. В., Мазур Е. А.* ..... 7 89
- Josephson bifurcation readout: beyond the monochromatic approximation. *Makhlin Yu., Zorin A. B.* ..... 7 98
- Магнитные и сверхпроводящие свойства допированных Fe высокотемпературных сверхпроводников YBaCuO, синтезированных золь-гель-методом. *Пигальский К. С., Вишинёв А. А., Ефимов Н. Н., Васильев П. Н., Шабатин А. В., Трахтенберг Л. И.* ..... 8 246



- Спектроскопия андреевского отражения FeSe: анализ в рамках двухзонной модели . Степанов В. А., Голубков М. В., Садаков А. В., Усольцев А. С., Чареев Д. А. 11 679
- Fractional a. c. Josephson effect as evidence of topological hinge states in a Dirac semimetal NiTe<sub>2</sub>. Kazmin D. Yu., Esin V. D., Timonina A. V., Kolesnikov N. N., Deviatov E. V. .... 11 688
- Наблюдение возвратной зависимости критического тока джозефсоновских переходов Nb–PdFe–Nb от толщины PdFe-барьера и температуры. Большинов В. В., Карпович А. Л., Карелина Л. Н., Шуравин Н. С., Рязанов В. В. .... 12 813
- Туннельная спектроскопия BaFe<sub>2–x</sub>Ni<sub>x</sub>As<sub>2</sub> с вариацией степени допирования в сверхпроводящем и нормальном состояниях . Никитченков И. А., Кузьмичев С. А., Ильина А. Д., Перваков К. С., Власенко В. А., Кузьмичева Т. Е. .... 12 834
- 4.4 Общие вопросы физики фазовых переходов**
- Фазовый переход и кроссоверы на каирской решетке диполей Изинга. Шевченко Ю. А., Лобанова Э. А., Трефилов И. В., Стронгин В. С., Овчинников П. А., Нефедов К. В. .... 11 655
- 5. Электронные свойства твердых тел**
- 5.1 Электронные свойства металлов и диэлектриков**
- К 130-летию П. Л. Капицы. От Редакции. 7 5
- Обобщенная динамическая модель Келдыша. Кучинский Э.З., Садовский М.В. ... 7 45
- Влияние магнитного поля на проводимость туннельной структуры сверхпроводник–изолятор–нормальный металл. Ермаков А. Б., Тарасов М. А., Эдельман В. С. 9 391
- Особенности  $\tau$ -приближения для хаотических электронных траекторий на сложных поверхностях Ферми. Мальцев А. Я. ... 9 409
- Изменение свойств Hf<sub>0.5</sub>Zr<sub>0.5</sub>O<sub>2</sub> при циклической переполяризации сегнетозлектрических конденсаторов с разными материалами электродов. Залялов Т. М., Исламов Д. Р. .... 11 703
- Частотная зависимость гистерезиса движения вакансий в закрытом мемристоре на основе точно решаемой модели управляемой нелинейной диффузии. Бойло И. В., Метлов К. Л. .... 12 858
- 5.2 Сильно коррелированные электронные системы**
- Индукцированные микроволновым излучением осцилляции магнитосопротивления двумерных электронных систем . Щепетильников А. В., Кукушкин И. В. .... 7 9
- Магнитные и сверхпроводящие свойства допированных Fe высокотемпературных сверхпроводников YBaCuO, синтезированных золь–гель-методом. Пигальский К. С., Вишинёв А. А., Ефимов Н. Н., Васильев П. Н., Шабатин А. В., Трахтенберг Л. И. .... 8 246
- Вигнеровская кристаллизация в двумерных структурах в магнитном поле. Акустические исследования . Дричко И. Л., Смирнов И. Ю., Суслов А. В., Болдуин К. В., Пфаффер Л. Н., Вест К. В., Миронов О. А., Миронов М., Лидли Д. Р., Гальперин Ю. М. .... 12 868
- 5.3 Физика полупроводников**
- Индукцированные микроволновым излучением осцилляции магнитосопротивления двумерных электронных систем . Щепетильников А. В., Кукушкин И. В. .... 7 9
- Fabrication and study of the  $p$ –Si/ $\alpha$ –Si/Ag memristor crossbar array . Samsonova A., Yegiyani S., Klimenko O., Antonov V. N., Paradezhenko G., Prodan D., Pervishko A., Yudin D., Brilliantov N. .... 8 255
- Untangling the valley structure of states for intravalley exchange anisotropy in lead chalcogenides quantum dots. Avdeev I. D., Nestoklon M. O. .... 8 261
- Спиновая поляризация электронов в туннельных контактах Co<sub>0.9</sub>Fe<sub>0.1</sub>/MgO/InSb . Виглин Н. А., Цвелиховская В. М., Шориков А. О., Павлов Т. Н., Проглядо В. В. 9 374
- Формирование полупроводникового состояния в оксисульфостибнитах RSbS<sub>2</sub>O при R = Dy, Ho, Er. Байдак С. Т., Лукьянов А. В. .... 9 403

## 5.4 Низкоразмерные системы (электронные свойства)

- Индукцированные микроволновым излучением осцилляции магнитосопротивления двумерных электронных систем . Щепетильников А. В., Кукушкин И. В. .... 7 9
- 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. 9 374
- Диэлектрическая электронно-дырочная жидкость в монослойных гетероструктурах на основе дихалькогенидов переходных металлов. Ратников П. В. .... 11 710
- Вигнеровская кристаллизация в двумерных структурах в магнитном поле. Акустические исследования . Дричко И. Л., Смирнов И. Ю., Суслов А. В., Болдуин К. В., Пфаффер Л. Н., Вест К. В., Миронов О. А., Миронов М., Лидли Д. Р., Гальперин Ю. М. .... 12 868

## 6. Статистическая и нелинейная физика, физика «мягкой» материи

### 6.1 Статистическая физика

- Эффекты длинной памяти при развитии неустойчивости в случайной среде. Очир-Горяева А. П., Соколов Д. Д., Илларионов Е. А. .... 12 878
- Фрактальная структура еловой лапы. Григорьев С. В., Шнырков О. Д., Пшеничный К. А., Яшина Е. Г. .... 12 888

### 6.2 Полимеры, жидкие кристаллы

- Решеточная упругость голубых фаз холестерических жидких кристаллов. Чижиков В. А., Мамонова А. В., Дмитриенко В. Е. .... 12 900

### 6.3 Физика биологических систем

- BKT transition in Phyllotaxis. Nechaev S. K. 8 277
- Фрактальная структура еловой лапы. Григорьев С. В., Шнырков О. Д., Пшеничный К. А., Яшина Е. Г. .... 12 888

### 6.4 Хаос

- Эффекты длинной памяти при развитии неустойчивости в случайной среде. Очир-Горяева А. П., Соколов Д. Д., Илларионов Е. А. .... 12 878

### 6.5 Динамика жидкостей

- Двумерная турбулентность в ограниченной ячейке. Колоколов И. В., Лебедев В. В. . 7 110
- Влияние амплитуды магнитного поля на кинетику перемагничивания магнитных наночастиц. Зубарев А. Ю., Искакова Л. Ю., Мусихин А. Ю. .... 8 238

### 6.6 Физика плазмы, термоядерный синтез

- Сверхбыстрый транспорт экситонов в вандер-ваальсовых гетероструктурах. Глазов М. М., Сулис Р. А. .... 7 20
- Магнитные поля в околосолнечной плазме: свойства, проявления, эффекты. Зеленый Л. М., Попель С. И., Голубь А. П. . 7 133
- Ионосферные плазменно-пылевые облака: влияние неустойчивости Рэлея – Тейлора. Резниченко Ю. С., Дубинский А. Ю., Попель С. И. .... 9 422
- Эволюция излучения плазмы барьерного разряда в неоне низкого давления. Атомный спектр. Иванов В. А., Скобло Ю. Э. 9 434
- Равновесия и процессы в диссоциированном воздухе. Смирнов Б. М. .... 11 727
- Особенности работы проволочных Хпинчей на компактном сильноточном генераторе КИНГ. Тиликин И. Н., Шелковенко Т. А., Мингалеев А. Р., Мингалеев А. А., Тер-Оганесян А. Е., Пикуз С. А. 11 739
- Низкопороговый распад обыкновенной СВЧ-волны в присутствии крупномасштабных когерентных структур в разреженной плазме. Попов А. Ю., Гусakov Е. З., Наговицын А. А., Симончик Л. В., Усачёнок М. С. .... 11 748

### 6.7 Вычислительная физика, сложные системы

- BKT transition in Phyllotaxis. Nechaev S. K. 8 277

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

Свидетельство о регистрации средства массовой информации  
№ПИ ФС 77 - 78167 от 27 марта 2020 г.,  
выдано Министерством связи и массовых коммуникаций

---

Подписано к печати 02.12.2024. Дата выхода в свет 16.12.2024.

Формат 60 x 88 <sup>1</sup>/<sub>8</sub>. Усл. печ. л. 21,0. Уч.-изд. л. 21,0.

Тираж 82 экз. Заказ 1562. Цена свободная.

---

Учредители: Российская академия наук,  
Институт физических проблем им. П. Л. Капицы РАН

---

Издатель: Российская академия наук  
119991, Москва, Ленинский проспект, 14  
Исполнитель по контракту № 4У-ЕП-038-24 ФГБУ «Издательство «Наука»  
121099, г. Москва, Шубинский пер., д. 6, стр. 1.  
Отпечатано в ФГБУ «Издательство «Наука»  
121099, г. Москва, Шубинский пер., д. 6, стр. 1

Журналы РАН, выходящие в свет на русском языке

Автоматика и телемеханика	Лёд и Снег
Агрохимия	Лесоведение
Азия и Африка сегодня	Литология и полезные ископаемые
Акустический журнал	Мембраны и мембранные технологии
Астрономический вестник. Исследования Солнечной системы	Металлы
Астрономический журнал	Микология и фитопатология
Биологические мембраны	Микробиология
Биология внутренних вод	Микроэлектроника
Биология моря	Молекулярная биология
Биоорганическая химия	Нейрохимия
Биофизика	Неорганические материалы
Биохимия	Нефтехимия
Ботанический журнал	Новая и новейшая история
Вестник Дальневосточного отделения Российской академии наук	Общественные науки и современность
Вестник древней истории	Общество и экономика
Вестник Российской академии наук	Океанология
Вестник российской сельскохозяйственной науки	Онтогенез
Водные ресурсы	Палеонтологический журнал
Вопросы истории естествознания и техники	Паразитология
Вопросы ихтиологии	Петрология
Вопросы языкознания	Письма в Астрономический журнал
Вулканология и сейсмология	Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики
Высокомолекулярные соединения. Серия А	Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования
Высокомолекулярные соединения. Серия Б	Почвоведение
Высокомолекулярные соединения. Серия С	Приборы и техника эксперимента
Генетика	Прикладная биохимия и микробиология
Геология рудных месторождений	Прикладная математика и механика
Геомагнетизм и аэрономия	Проблемы Дальнего Востока
Геоморфология и палеогеография	Проблемы машиностроения и надежности машин
Геотектоника	Проблемы передачи информации
Геохимия	Программирование
Геоэкология. Инженерная геология. Гидрогеология. Геокриология	Психологический журнал
Государство и право	Радиационная биология. Радиоэкология
Дефектоскопия	Радиотехника и электроника
Дифференциальные уравнения	Радиохимия
Доклады Российской академии наук. Математика, информатика, процессы управления	Расплавы
Доклады Российской академии наук. Науки о жизни	Растительные ресурсы
Доклады Российской академии наук. Науки о Земле	Российская археология
Доклады Российской академии наук. Физика, технические науки	Российская история
Доклады Российской академии наук. Химия, науки о материалах	Российская сельскохозяйственная наука
Журнал аналитической химии	Российский физиологический журнал им. И.М. Сеченова
Журнал высшей нервной деятельности им. И.П. Павлова	Русская литература
Журнал вычислительной математики и математической физики	Русская речь
Журнал неорганической химии	Сенсорные системы
Журнал общей биологии	Славяноведение
Журнал общей химии	Современная Европа
Журнал органической химии	Социологические исследования
Журнал прикладной химии	Стратиграфия. Геологическая корреляция
Журнал физической химии	США & Канада: экономика, политика, культура
Журнал эволюционной биохимии и физиологии	Теоретические основы химической технологии
Журнал экспериментальной и теоретической физики	Теплофизика высоких температур
Записки Российского минералогического общества	Успехи современной биологии
Зоологический журнал	Успехи физиологических наук
Известия Российской академии наук. Механика жидкости и газа	Физика Земли
Известия Российской академии наук. Механика твердого тела	Физика и химия стекла
Известия Российской академии наук. Серия биологическая	Физика металлов и металловедение
Известия Российской академии наук. Серия географическая	Физика плазмы
Известия Российской академии наук. Серия литературы и языка	Физикохимия поверхности и защита материалов
Известия Российской академии наук. Серия физическая	Физиология растений
Известия Российской академии наук. Теория и системы управления	Физиология человека
Известия Российской академии наук. Физика атмосферы и океана	Химическая физика
Известия Российской академии наук. Энергетика	Химия высоких энергий
Известия Русского географического общества	Химия твердого топлива
Исследование Земли из космоса	Цитология
Кинетика и катализ	Человек
Коллоидный журнал	Экология
Координационная химия	Экономика и математические методы
Космические исследования	Электрохимия
Кристаллография	Энтомологическое обозрение
Латинская Америка	Этнографическое обозрение
	Ядерная физика