

ISSN 0044-4510

Том 164, Выпуск 3

Сентябрь 2023



**ЖУРНАЛ  
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ  
и  
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ  
ФИЗИКИ**

[www.sciencejournals.ru](http://www.sciencejournals.ru)



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

ОСНОВАН В МАРТЕ 1873 ГОДА

ТОМ 164, ВЫПУСК 3 (9)

ВЫХОДИТ 12 РАЗ В ГОД

СЕНТЯБРЬ 2023

МОСКВА

РАН

ЖУРНАЛ ИЗДАЕТСЯ ПОД РУКОВОДСТВОМ ОТДЕЛЕНИЯ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК РАН

**СОДЕРЖАНИЕ**

**АТОМЫ, МОЛЕКУЛЫ, ОПТИКА**

- О возможности регулирования излучения второй гармоники лазера на свободных электронах с помощью второй гармоники поля ондулятора ..... Жуковский К. В. 315
- Спутники дипольно-запрещенных переходов в низколежащие возбужденные состояния  $^2S_{1/2}$  и  $^2D_{3/2,5/2}$  атомов K, Rb и Cs в спектрах газофазных смесей с  $CF_4$  ..... Алексеев В. А., Вартанян Т. А., Пазгалев А. С., Сердобинцев П. Ю. 328
- Пик когерентного обратного рассеяния для излучения с пониженной пространственной когерентностью ..... Кузьмин В. Л., Вальков А. Ю., Жаворонков Ю. А. 340
- Одноэлектронная перезарядка при столкновениях быстрых ионов с молекулярным водородом в представлении параметра удара ..... Горяев Ф.Ф. 349

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

- О методиках оценки деполяризационных потерь ультрахолодных нейтронов в магнитных ловушках ..... Ключников Г. Н., Серебров А. П. 365
- О проверке Т-инвариантности в полном сечении взаимодействия нейтронов с неполяризованными ядрами с применением теоремы Поляризация–Асимметрия ..... Ской В. Р. 380
- Периодические вариации концентрации радона в подземной Лаборатории Гран Сассо, измеренные с помощью LVD ..... Агафонова Н. Ю., Добрынина Е. А., Филимонова Н. А., Шакирьянова И. Р., от имени Коллаборации LVD 386

**ТВЕРДЫЕ ТЕЛА И ЖИДКОСТИ**

- Планарные дефекты в кремнии как способ описания явного ангармонизма его высокотемпературных термодинамических свойств ..... Кондрин М. В., Лебедь Ю. Б., Бражкин В. В. 396

© Российская академия наук, 2023

© Редакция журнала ЖЭТФ (составитель), 2023

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

Магнитный отклик электронов проводимости в немагнитных гексаборидах $Yb_6$ , $LaV_6$ и $YbV_6$ с электронной и структурной неустойчивостью .....	
..... Случанко Н. Е., Кузнецов А. В., Азаревич А. Н., Богач А. В., Шичевалова Н. Ю., Половец С. Е., Филипов В. Б., Цветков А. Ю., Гаврилкин С. Ю.	406
Пиннинг магнитного потока в поликристаллических ВТСП $YBa_2Cu_3O_{6.92}$ при охлаждении в слабом магнитном поле .....	
..... Трусевич Н. Г., Гаврилкин С. Ю., Трахтенберг Л. И.	413
Влияние примесей на адгезию на границе раздела $TiAl/Al_2O_3$ .....	
..... Бакулин А. В., Кульков А. С., Кулькова С. Е.	420
Динамика вихрей в сверхпроводящей полоске $MoN$ с боковым разрезом .. ..	
Уставщиков С. С., Левичев М. Ю., Пашенькин И. Ю., Гусев Н. С., Гусев С. А., Водолазов Д. Ю.	432

**ЭЛЕКТРОННЫЕ СВОЙСТВА ТВЕРДЫХ ТЕЛ**

О точном решении для жидкости Латтинжера с отталкиванием и одной точечной примесью .....	
..... Афонин В.В., <span style="border: 1px solid black; padding: 2px;">В.Ю. Петров</span>	445
Гармоники высшего порядка в гексагональных графеновых квантовых точках .....	
..... Седракан Х. В., Казарян А. Г., Авчян Б. Р., Погосян К. С., Маркосян Т. М.	457
Динамика ян-теллеровского упорядочения в параэлектрической фазе $BiMn_7O_{12}$ : зондовая мессбауэровская диагностика на ядрах $^{57}Fe$ .....	
Соболев А. В., Ниценко В. И., Белик А. А., Глазкова Я. С., Кондратьева М. С., Пресняков И. А.	467

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

Влияние выбора поверхностного барьера на расчет коэффициентов распыления вольфрама изотопами водорода .....	
Михайлов В. С., Бабенко П. Ю., Шергин А. П., Зиновьев А. Н.	478

# О ВОЗМОЖНОСТИ РЕГУЛИРОВАНИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ ЛАЗЕРА НА СВОБОДНЫХ ЭЛЕКТРОНАХ С ПОМОЩЬЮ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ ПОЛЯ ОНДУЛЯТОРА

*К. В. Жуковский\**

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

Поступила в редакцию 14 февраля 2023 г.,  
после переработки 10 марта 2023 г.  
Принята к публикации 13 марта 2023 г.

Исследуется излучение второй гармоники однопроходного лазера на свободных электронах (ЛСЭ) и его зависимость от второй гармоники поля ондулятора. При исследовании свойств материалов важным эффектом является нелинейная генерация второй гармоники как отклик на облучение. В этом контексте генерация второй гармоники собственно источника излучения, ЛСЭ, является нежелательной, так как она маскирует исследуемый сигнал. В других случаях напротив излучение второй гармоники ЛСЭ может быть востребовано как более высокочастотное. Нами исследуется возможность подавления или напротив усиления мощности второй гармоники ЛСЭ в зависимости от фазы и напряженности второй гармоники поля ондулятора ЛСЭ. Предложенный подход в принципе не зависит от частоты излучения. Рассмотрены примеры LCLS, PAL-XFEL в рентгеновском, SPARC и LEUTL в видимом диапазонах. Показано более эффективное влияние гармоники поля ондулятора при работе с узкими пучками электронов

DOI: 10.31857/S0044451023090018  
EDN: KBPZMV

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Генерация второй гармоники (SHG) является интересным нелинейным эффектом как в источниках излучения так и при исследовании отклика вещества на его облучение извне. В современных исследованиях все чаще используют лазеры на свободных электронах (ЛСЭ) и когерентное ондуляторное излучение в диапазонах от видимого до рентгеновского. При этом в основном в ЛСЭ используют плоские или спиральные ондуляторы, где вторая гармоника на оси в идеале не излучается, а в реальности излучается относительно слабо в зависимости от характеристик пучка электронов. Излучение второй гармоники источника может быть нежелательным при исследовании материалов [1–4], так как вторая гармоника излучения маскирует нелинейный отклик исследуемого образца и затрудняет его изучение [5]. С другой стороны, при необ-

ходимости получить высокочастотное излучение от ЛСЭ, использование гармоник излучения является, пожалуй, наиболее простым способомкратно повысить частоту [6]. Принцип ЛСЭ с высоким усилением высших гармоник (high gain harmonic generation, HGHG) был предложен в [7–9], и реализован на установках [10, 11]; использование гармоник ЛСЭ позволяет уменьшить энергию электронов и размеры установки по сравнению с теми, которые требуются при использовании основного тона той же частоты [12–14]. Генерация второй гармоники в XUV диапазоне [15] наблюдалась при облучении Ti M<sub>2,3</sub> лазером на свободных электронах. Генерация второй гармоники при облучении ЛСЭ используются при исследовании материалов [16–18] и поверхностей [19], включая органические соединения [20, 21]. Ниже мы рассмотрим и теоретически изучим влияние второй гармоники поля ондулятора на излучение гармоник ЛСЭ с целью получить возможность регулировать излучение его четных гармоник. Нелинейная генерация четных гармоник основного тона видимого света [2, 3] при исследовании физико-химических свойств молекул, пленок и поверхностей может указывать на нарушение внутренней симмет-

\* E-mail: zhukovsk@physics.msu.ru

рии исследуемых образцов [4, 21]; в рентгеновском диапазоне отклик второй гармоники используется также при исследовании ядерного резонанса. По сравнению с мощностью облучения образца, мощность генерируемых в нем гармоник мала; поэтому содержание второй гармоники собственно источника излучения нужно по возможности уменьшить.

Вторая гармоника ЛСЭ экспериментально зафиксирована в излучении в диапазоне от видимого (LEUTL, см. [22, 23]) до жесткого рентгеновского (LCLS см. [24–27]). Вторая гармоника ондуляторного излучения (ОИ) появляется в спектре вследствие неотъемлемых в реальных устройствах угловых и бетатронных эффектов; последние в свою очередь имеют место во всех реальных пучках конечного сечения. Отметим, что только в идеально узком пучке электронов строго на оси длинного плоского ондулятора, излучение второй гармоники в принципе отсутствует, так как оно приходит в противофазе с соседних периодов ондулятора. Гармонику поля ондулятора можно получить в двоякопериодическом гармоническом поле; ее амплитуда может достигать порядка 10–15% основного поля ондулятора. Влияние третьей гармоники поля на ОИ изучалось во многих предыдущих работах (см., например, [28–31]). Излучение гармоник ЛСЭ, в том числе четных, теоретически исследовалось в [32–36]; механизм генерации четных гармоник исследовался в особенности в [37–41]; анализ поляризаций излучения проводился в [42–44] и других работах.

В настоящей работе используется аналитический подход, выявляющий физические причины возникновения четных гармоник ОИ и ЛСЭ, и предлагается возможность ослабить излучение второй гармоники приблизительно на 1–2 порядка наложением второй гармоники поля ондулятора с амплитудой  $\sim 10\%$  основного поля; конструктивно это возможно в ондуляторах с двумя параллельными гребенками магнитов со сдвигом относительно друг друга с обеих сторон оси ондулятора.

Рассмотрим двоякопериодическое ондуляторное поле со второй гармоникой ( $h = 2$ ), с амплитудой  $dH_0$  основного поля амплитуды  $H_0$ :

$$H = H_0 \sin 2\pi z / \lambda_u, \quad H_{h,d} = H_0 d \sin h 2\pi z / \lambda_u.$$

Здесь  $\lambda_u$  — период ондулятора, ось ондулятора направлена по оси  $z$ . Параметр дипольности равен

$$k \approx \lambda_u [\text{см}] H_0 [\text{Тл}] / 1.07.$$

Теория ОИ в мультипериодическом поле была представлена ранее во многих публикациях; опуская детали, ниже мы используем готовые проверенные

формулы, например, из работ [29–31]. Так, длина волны  $\lambda_n = 2\pi c / \omega_n$  гармоники  $n$  ОИ определяется следующим выражением:

$$\lambda_n = \frac{\lambda_u}{2n\gamma^2} \left( 1 + \frac{k_{eff}^2}{2} + (\gamma\theta)^2 \right),$$

$$k_{eff}^2 = k^2 \varpi, \quad \varpi = 1 + (d/h)^2, \quad (1)$$

где эффективный параметр  $k_{eff}$  определяется обычным ондуляторным параметром  $k$  и относительной амплитудой  $d$  гармоники поля с номером  $h$ ; излучение рассматривается под нормированным углом  $\gamma\theta$  к оси, где  $\gamma$  — релятивистский фактор электронов. В идеале для плоского ондулятора с единственной гармоникой поля,  $d = 0$ , в дальней (волновой) зоне в случае бесконечно узкого пучка электронов на оси излучаются только нечетные гармоники, а для спирального ондулятора,  $d = h = 1$ , на оси в этом случае излучается только основной тон. В реальности картина излучения и само поле ондулятора значительно более сложные: в поле всегда присутствуют гармоники, чтобы удовлетворить уравнениям Максвелла во всем магнитом зазоре ондулятора, а в пучке конечной ширины возникают бетатронные колебания (см., например, [45]). Излучаются при этом все гармоники ОИ с различной интенсивностью, но в узких релятивистских пучках электронов влияние бетатронных колебаний на мощность четных гармоник ОИ оказывается малым. Тогда определяющим фактором для излучения четных гармоник становятся угловые эффекты. Это касается в первую очередь рентгеновских ЛСЭ; как было показано в [37–39], на оси и вблизи нее в узком пучке с сечением  $\sigma_{x,y} \sim 10\text{--}50$  мкм вклад бетатронных колебаний в мощность четных гармоник излучения существенно меньше по сравнению с вкладом от эффективного угла  $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y} / L_g$ , под которым электроны взаимодействуют с излучением на длине усиления ЛСЭ ( $L_g$ ). В длинных ондуляторах LCLS и других рентгеновских ЛСЭ пучок может существенно отклоняться от оси из-за неидеальности поля и внешних наводок. Угол отклонения при этом может быть сравним с углом  $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y} / L_g$  [24].

## 2. ВЛИЯНИЕ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ ПОЛЯ НА СПЕКТР ОИ

Коэффициенты Бесселя  $f_{n;x,y}$  для гармоники излучения  $n$  определяют по сути нормированную интенсивность ОИ этой гармоники с поляризациями  $x, y$ . Для плоского ондулятора со слабой второй

гармоникой поля и с учетом угловых и бетатронных эффектов в пучке релятивистских электронов конечного сечения, коэффициенты Бесселя аналитически записываются следующим образом (см., например, [29, 39]):

$$f_{n;x} \approx \sum_p \tilde{J}_p | (J_{n+1}^n + J_{n-1}^n) + \frac{d}{h} (J_{n+h}^n + J_{n-h}^n) + J_n^n \frac{2}{k} \gamma \theta \cos \varphi |, \quad (2)$$

$$f_{n;y} \approx \sum_p \left( \tilde{J}_p J_n^n \frac{2}{k} \gamma \theta \sin \varphi + J_n^n \frac{\sqrt{2}\pi y_0}{\lambda_u} \left( (\tilde{J}_{p+1} - \tilde{J}_{p-1}) + \frac{d}{h} (\tilde{J}_{p+h} - \tilde{J}_{p-h}) \right) \right) \quad (3)$$

где  $y_0$  — расстояние от оси. Коэффициенты Бесселя  $f_{n;x,y}$  выражаются в терминах обобщенных форм функций Бесселя:

$$J_n^m = \int_{-\pi}^{\pi} \frac{d\alpha}{2\pi} \times \exp \left[ i \left( n\alpha + \frac{mk^2(\xi_0 + \xi_1 + \xi_2 + \xi_3 + \xi_4 + \xi_5)}{1 + \gamma^2\theta^2 + (k_{eff}^2/2)} \right) \right], \quad (4)$$

$$\tilde{J}_p = \int_{-\pi}^{\pi} \frac{d\alpha}{2\pi} \exp[i(n\alpha - \kappa \sin \alpha - \eta \sin(2\alpha))],$$

аргументы  $\xi_{0,\dots,5} \equiv \xi_{0,\dots,5}(\alpha)$  которых зависят от параметров ондулятора и пучка:

$$\begin{aligned} \xi_0 &= \frac{2d\gamma\theta \cos \varphi \sin(h\alpha)}{kh^2}, & \xi_1 &= \frac{\sin(2\alpha)}{4}, \\ \xi_2 &= \frac{d \sin((h-1)\alpha)}{h(h-1)}, & \xi_3 &= \frac{d \sin((h+1)\alpha)}{h(h+1)}, \\ \xi_4 &= \frac{d^2 \sin(2h\alpha)}{4h^3}, & \xi_5 &= \frac{2}{k} \gamma \theta \cos \varphi \sin \alpha, \\ \kappa &= \frac{4\pi\theta y_0 \gamma^2}{\lambda_u(1 + (k^2/2))}, & \eta &= \frac{\pi^2 \gamma y_0^2 k}{\sqrt{2}\lambda_u^2(1 + (k^2/2))}. \end{aligned} \quad (5)$$

Итак, коэффициенты Бесселя  $f_{n;x,y}$  зависят от параметров установки сложным образом, явно и неявно. Напомним, что магнитное поле и эффекты в одной плоскости, например,  $(x, z)$ , порождают ОИ с поляризацией в перпендикулярной ей плоскости  $(y, z)$ ; в идеале в плоском ондуляторе излучение имеет поляризацию, только перпендикулярную плоскости вектора магнитного поля и оси, но в реальности

излучение имеет обе поляризации, хотя преобладает перпендикулярная полю. Азимутальный угол  $\theta$  соответствует отклонению от оси; для разумных отклонений в пределах сечения пучка это практически не влияет на мощность нечетных гармоник, а главным образом влияет на мощность четных гармоник спонтанного ОИ. Вынужденное излучение ЛСЭ определяется взаимодействием электронов с фотонами. Для гармоник ЛСЭ проявляется повышенная чувствительность электрон-фотонного взаимодействия на длинах волн гармоник к разного рода потерям за счет разброса энергий электронов, угловых эффектов, эмиттанса, дифракции и др. Кроме того, нужно учесть, что определяющим углом в коэффициентах Бесселя (2)–(5) для ЛСЭ становится не угол между осью и направлением на наблюдателя (излучение ЛСЭ рассматривается на оси), и даже не расходимость пучка, а эффективный угол  $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y}/L_g$ , под которым электроны взаимодействуют с излучением на длине усиления ЛСЭ, а также возможное отклонение узкого пучка от оси на угол, который в некоторых случаях сравним с  $\bar{\theta}$ . Так на ЛСЭ LCLS юстировка пучка должна производиться с точностью  $\sim 5$  мкм, при этом были зарегистрированы отклонения от оси на 10–15 мкм на длине  $\sim 1$  м при сечении пучка  $\sim 25$  мкм [24], а полная длина ондуляторов LCLS порядка 100 м. Что же касается полярного угла  $\varphi$ , то при повороте на  $\varphi \approx 0 - \pi/2$  происходит перераспределение мощности излучения вокруг оси, но это не меняет полную мощность гармоник ЛСЭ, если пучок предполагается аксиально-симметричным. Асимметрия и динамика в реальном времени в трехмерном случае могут быть учтены при решении комплекса уравнений в специализированных численных программах для расчета ЛСЭ, которые требуют значительных вычислительных мощностей и подготовленного персонала. Аналитически учесть все детали выбранной установки и параметры пучка по длине ондуляторов практически невозможно. Даже простое интегрирование коэффициентов Бесселя по углам  $\theta$  должно выполняться с соответствующим весом для распределения электронной плотности в пространстве, не говоря уже об интегрировании по длине  $z$ . То же касается и аксиальной асимметрии и интегрированию по углу  $\varphi$ . В этом случае аналитическое вычисление выражений для интенсивности даже спонтанного излучения становится практически невозможным, а численное вычисление долгим. Детальный точный расчет излучения ЛСЭ гораздо сложнее и производится численно; однако, в отличие от численного, аналитический подход позволяет выде-

литель, проследить и понять влияние каждого физического фактора на излучение.

Проводя расчет интенсивности спонтанного излучения на оси ондулятора длины  $N\lambda_u$  по аналитический формуле

$$\frac{d^2 I}{d\omega d\Omega} = \frac{e^2 \gamma^2 N^2 k^2}{c(1 + (k_{eff}^2/2) + (\gamma\theta)^2)} \times \sum_{n=-\infty}^{\infty} n^2 \text{sinc}^2 \left( \pi n N \left( \frac{\omega}{\omega_n} - 1 \right) \right) (f_{n;x}^2 + f_{n;y}^2), \quad (6)$$

с учетом расходимости пучка и его сечения в коэффициентах Бесселя  $f_n$  и учитывая разброс энергий электронов,

$$\frac{d^2 I(\sigma_e)}{d\omega d\Omega} = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d^2 I(\nu_n + 4\pi n N \varepsilon) e^{-\varepsilon^2/2\sigma_e^2} d\varepsilon}{d\omega d\Omega \sqrt{2\pi}\sigma_e}, \quad (7)$$

получаем интенсивности гармоник, близкие к полученным в результате точного численного счета, например, с помощью программы SPECTRA для большинства установок; это было показано в работах [29, 37, 46, 47]. В частности было показано соответствие аналитических и численных результатов для LCLS, в том числе для четных гармоник его спонтанного ОИ; в ондуляторах ЛСЭ LCLS параметр дипольности  $k = 3.5$ , период  $\lambda_u = 3$  см, длина секции 3.4 м, эмиттанс пучка  $\gamma\varepsilon = 0.4$  мм× мрад,  $\gamma$ -фактор  $\gamma = 8400$ . В ЛСЭ расходимость пучка обычно меньше его отклонения от оси; в рентгеновских ЛСЭ она существенно меньше угла  $\bar{\theta}$ . Ранее было показано (см. [32–35, 38–40]), что излучаемая мощность четных гармоник всех основных действующих ЛСЭ объясняется, если учесть угол  $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y}/L_g$ .

Рассмотрим ондуляторы LCLS и предположим, что они модифицированы с двоякопериодическим полем с амплитудой второй гармоники 10% напряженности основного поля. Тогда с учетом эффективного угла  $\gamma\bar{\theta} \approx 0.07 - 0.08$ , получающегося для LCLS с длиной волны  $\lambda = 1.5$  нм, с учетом длины усиления, сечения пучка и его отклонения от оси на  $\sim 10-15$  мкм на длине 1–2 м [24–27], получаем из выражений (2)–(4) следующие значения коэффициентов Бесселя  $f_n$  при  $d = +0.1, h = 2$ :

$$f_{h=2, d=0.1, n=1, 2, 3, 4, 5} \approx \{0.74, \mathbf{0.11}, 0.32, \mathbf{0.13}, 0.19\}. \quad (8)$$

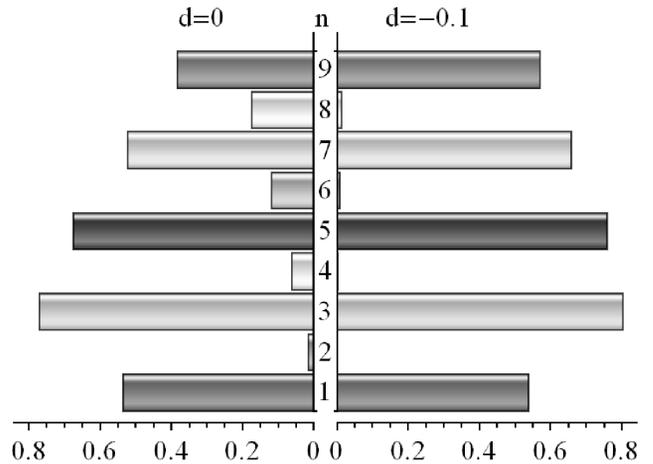


Рис. 1. Мощность гармоник ОИ LCLS под углом  $\gamma\bar{\theta} \approx 0.07$  для стандартного ондулятора,  $d = 0$ , и для ондулятора со второй гармоникой поля,  $h = 2$ , и противофазной амплитудой  $d = -0.1$

Отметим, что в (8) значения  $f_{2,4,\dots}$  четных гармоник по порядку близки к значениям  $f_{3,5}$  нечетных гармоник. Для сравнения, для стандартного ондулятора LCLS без второй гармоники поля с эффективным углом  $\gamma\bar{\theta} \approx 0.07$  коэффициенты Бесселя  $f_{2,4,\dots}$  меньше:

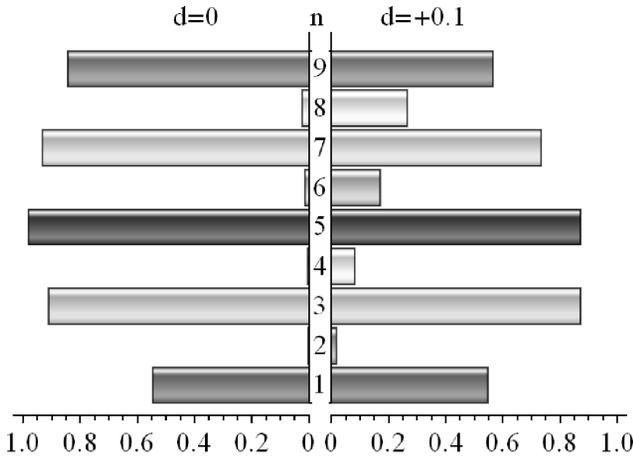
$$f_{h=d=0, n=1, 2, 3, 4, 5} \approx \{0.74, \mathbf{0.08}, 0.33, \mathbf{0.08}, 0.22\}. \quad (9)$$

Изменяя фазу второй гармоники поля с «+» на «-», получаем для ондулятора с  $d = -0.1, h = 2$  с эффективным углом  $\gamma\bar{\theta} \approx 0.07$  еще меньшие значения  $f_{2,4,\dots}$ :

$$f_{h=2, d=-0.1, n=1, 2, 3, 4, 5} \approx \{0.74, \mathbf{0.03}, 0.34, \mathbf{0.03}, 0.23\}. \quad (10)$$

Аналитические результаты для интенсивности спонтанного излучения гармоник LCLS на основе расчета коэффициентов Бесселя  $f_n$  подтверждаются численным счетом с помощью программы SPECTRA. Сравнительная интенсивность гармоник ОИ с  $d = 0$  и с  $h = 2, d = -0.1$  показана на рис. 1: вторая гармоника поля с  $d = -0.1$  ослабляет четные гармоники излучения. При  $d = +0.1$  получаем, наоборот, усиление высших четных гармоник. Отметим, что представленный на рис. 1 результат должен рассматриваться в контексте ЛСЭ, так как выбранный нами угол  $\gamma\bar{\theta} \approx 0.07$  имеет смысл именно для ЛСЭ LCLS.

Для четных гармоник спонтанного ОИ на оси играют роль сечение и расходимость пучка, которые



**Рис. 2.** Мощность гармоник ОИ LCLS с учетом эмиттанса пучка под углом  $\gamma\theta_{div} \sim 0.02$  для стандартного ондулятора,  $d = 0$ , и для ондулятора со второй гармоникой поля,  $h = 2$ , и синфазной амплитудой,  $d = +0.1$

малы для LCLS,  $\gamma\theta_{div} \approx 0.02$ , что дает очень слабые четные гармоники (см. рис. 2 слева,  $d = 0$ ). В этом случае в ондуляторе с синфазной второй гармоникой поля  $d = +0.1$  возможно усиление четных гармоник ОИ, как показано на рис. 2. Сравнивая рис. 2 и рис. 1, можно увидеть, что ОИ обычного ондулятора под углом  $\gamma\bar{\theta} \approx 0.07$  (рис. 1 слева,  $d = 0$ ) сравнимо с ОИ ондулятора со второй гармоникой под углом  $\gamma\theta_{div} \approx 0.02$  в фазе  $h = 2$ ,  $d = +0.1$  с учетом сечения (рис. 2 справа,  $d = +0.1$ ). Спектр ОИ обычного ондулятора под углом  $\gamma\theta_{div} \approx 0.02$  с учетом только сечения (рис. 2 слева,  $d = 0$ ) сравним со спектром ОИ под углом электрон-фотонного взаимодействия  $\gamma\bar{\theta} \sim 0.07$  со второй гармоникой поля ондулятора в противофазе:  $h = 2$ ,  $d = -0.1$  (рис. 1 справа,  $d = -0.1$ ).

Таким образом, можно видеть, как угловые эффекты в генерации гармоник спонтанного ОИ могут быть скомпенсированы за счет второй гармоники поля ондулятора с ее соответствующей фазой. Отметим, что при больших углах и сечениях результаты численного счета в SPECTRA отличаются от результатов, полученных с помощью аналитических вычислений хотя бы потому, что мы используем эффективное среднее значение углов, не проводя по ним интегрирование.

### 3. АНАЛИТИЧЕСКОЕ ОПИСАНИЕ МОЩНОСТИ ГАРМОНИК ЛСЭ

Теория вынужденного излучения однопроходного ЛСЭ широко представлена в литературе (см., на-

пример, [48–54]). В режиме когерентного излучения мощность растет экспоненциально по длине ондуляторов:

$$P(z) \propto P_0 e^{z/L_{g0}},$$

в отличие от ОИ, где мощность пропорциональна  $z^2$ ; длина усиления  $L_{g0} = 1/\sqrt{3}\Gamma$  обратно пропорциональна (безразмерному) параметру Пирса  $\rho = \lambda_u \Gamma / 4\pi$ , где  $\Gamma$  — усиление. Для гармоники  $n$  ЛСЭ, ее параметр Пирса  $\rho_n$  записывается через параметры электронного пучка и ондулятора следующим образом [55–57]:

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_n &= \frac{\rho_n}{\kappa}, \\ \rho_n &= \frac{1}{2\gamma} \left( \frac{J}{4\pi i} \right)^{1/3} (\lambda_u k_{eff} |f_n|)^{2/3}, \\ \kappa &= \sqrt[3]{1 + \lambda_u \lambda_n / 16\pi \rho_n \Sigma}, \end{aligned} \quad (11)$$

где коэффициент  $\kappa$  описывает дифракцию пучка,  $i = 4\pi\epsilon_0 mc^3/e$  — размерная постоянная тока Альфвена,  $i \approx 1.7045 \cdot 10^4$  [A],  $I_0$  — электронный ток, а  $J = I_0/\Sigma$  — его плотность,  $\Sigma \approx 2\pi\sigma_{x,y}^2$  — поперечное сечение пучка электронов сечением  $\sigma_{x,y}$ . В терминах параметра Пирса  $\rho$  выражаются основные характеристики излучения ЛСЭ. А именно, максимальная мощность гармоники  $n$ , не ограниченная насыщением основного тона:

$$P_{F,n} \approx \sqrt{2} \tilde{\rho}_n P_{beam},$$

где  $P_{beam}$  — мощность электронного пучка, длина усиления гармоники:

$$L_{n,g} \approx \lambda_u / (4\pi\sqrt{3}n^{1/3}\tilde{\rho}_n),$$

а также длина насыщения ЛСЭ:

$$L_s \approx \lambda_u / \rho \sim (10 - 20)L_g.$$

Для ЛСЭ с самоусилением спонтанного излучения (SASE) когерентное излучение и начальная мощность зарождаются из случайных когерентных осцилляций шума электронного банча; оценка такова:

$$P_{noise} \approx 1.6\rho^2 e 4\pi c P_e / (I_0 \lambda),$$

см. [55]. Для ЛСЭ в режиме усилителя, затравочная мощность дается из внешнего источника, в самозатравочном ЛСЭ начальная мощность получается после фильтрации на монохроматоре излучения предыдущих секций ЛСЭ SASE; также могут использоваться гармоники самозатравочного или внешнего затравочного излучения. Разброс энергий

электронов  $\sigma_e$  и конечный эмиттанс пучка  $\varepsilon_{x,y}$  увеличивают длину усиления  $L_{n,g} \rightarrow L_{n,g} \kappa \Phi_n$  и уменьшают мощность. С насыщением ЛСЭ прекращается рост мощности и начинаются ее осцилляции около мощности насыщения  $P_{n,F}$ . Обычно полная мощность гармоник  $P_{F,n}$  не достигается,  $P_{n,F} < P_{F,n}$ , так как рост мощности гармоник идет медленнее, чем основного тона, и ограничен его насыщением. Длина усиления и мощность насыщения гармоник в режиме нелинейной генерации однопроходного ЛСЭ, были аппроксимированы сложными полиномами с дробными степенями в [58] с высокой точностью. С этим согласуется выражение, предложенное в [55–57]; его модификация с учетом осцилляций мощности такова:

$$P_{n,F} = P_{beam} \frac{\rho_1 \eta_n}{\kappa^2 \sqrt{n}} \left( \frac{f_n}{n f_1} \right)^2 \times \left( 1 + 0.3 \cos \left( \frac{z - L_s}{1.3 L_{n,g}} \right) \right). \quad (12)$$

Коэффициенты в (12) феноменологические; зависимость от  $\mu$ ,

$$\Phi_n \propto e^{0.034 \mu_n^2}, \quad \mu_n \propto 1/n^{1/3},$$

предложена в [56]; другие числа и зависимость от  $\zeta$  калиброваны нами по данным численных симуляций и ЛСЭ:

$$\Phi_n \approx (\zeta \sqrt{n} + 0.165 \mu_n^2) e^{0.034 \mu_n^2}, \quad \mu_n \approx \frac{2 \sigma_e}{n^{1/3} \tilde{\rho} n}, \quad (13)$$

$$\eta_n \approx 0.942 (e^{-\Phi_n (\Phi_n - 0.9)} + 1.57 (\Phi_n - 0.9) / \Phi_n^3).$$

Параметр  $\zeta$  зависит от эмиттансов и параметров Твисса  $\beta_{x,y}$  пучка и обычно для согласованного с ондулятором пучка  $\zeta \approx 1 - 1.05$ , за исключением редких случаев очень большого эмиттанса и широкого пучка, как в ЛСЭ LEUTL, где  $\zeta \approx 1.2 - 1.4$ ; формула для  $\zeta$  громоздкая (не приводим для краткости) и представлена в [55–57]. Длина усиления и мощность насыщения, посчитанные по формулам выше, согласуются с более аккуратными оценками по сложным формулам, предложенным в работе [58]. Отметим, что коэффициенты Бесселя  $f_n$  считаются по точным формулам (2)–(4) и справедливы для всех гармоник, включая четные. При этом учитывается конечный эмиттанс и угловые эффекты. Последние должны включать также эффективный угол электрон-фотонного взаимодействия  $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y} / L_{gain}$ , который обычно значительно больше угла расходимости и

больше угла отклонения пучка от оси. Справедливость такого подхода для всех ЛСЭ с доступными документированными характеристиками была проверена в работах [32–35], где было показано соответствие аналитического расчета данным независимых измерений на ЛСЭ. Отметим, что в режиме нелинейной генерации гармоник рост их мощности в конце ЛСЭ и в насыщении практически невозможно точно описать аналитически. Сложный для моделирования процесс сопровождается осцилляциями, скачками и приближенно описан формулой, калиброванной в среднем по данным многих ЛСЭ и численным моделям [59]:

$$Q_n(z) \approx \frac{\tilde{P}_{n,0} e^{nz/L_g}}{1 + (e^{nz/L_g} - 1) (\tilde{P}_{n,0} / \tilde{P}_{n,F})} + \frac{P_{n,0} e^{nz/L_g}}{1 + (e^{nz/L_g} - 1) (P_{n,0} / \tilde{P}_{n,F})}. \quad (14)$$

где начальные мощности ондуляторных каскадов усиления

$$P_{n,0} \approx c_n b_n^2 P_{n,F}, \quad \tilde{P}_{n,0} \approx d_n b_n^2 P_F |_{\eta_n \rightarrow \tilde{\eta}_n}$$

задаются банчингом

$$b_n^2 \approx (P_{0,1} / P_e \tilde{\rho}_1)^n,$$

параметры

$$\tilde{\eta}_n = \eta_n |_{\Phi_n \rightarrow \tilde{\Phi}_n}, \quad \tilde{\Phi}_n = \Phi_n |_{\mu_{\varepsilon,n} \rightarrow \tilde{\mu}_{\varepsilon,n}}, \quad \tilde{\mu}_{\varepsilon,n} \approx n \mu_{\varepsilon,n}$$

описывают сильно нелинейный рост и скачок вблизи насыщения,  $P_{0,1}$  — начальная мощность основного тона, а процесс осцилляций описан модуляциями мощности

$$\hat{P}_{n,F} \approx P_{n,F} (z/L_s)^{n/2} - 0.5 \tilde{P}_{n,F}$$

и

$$\tilde{P}_{n,F} = P_{n,F} |_{\eta \rightarrow \tilde{\eta}}.$$

Калиброванные численные коэффициенты

$$c_n \approx [1, 1.3, 2, 5, 10], \quad d_n \approx [1, 3, 8, 40, 120]$$

дают в формуле соответствие данным многих ЛСЭ в среднем.

Независимый рост мощности проще и описывается экспонентой

$$S_n(z) \propto e^{z/L_{n,g}}$$

с выходом на насыщение [56, 57]:

$$P_{L,n}(z) \approx \frac{P_{0,n} S_n(z)}{1 + (P_{0,n} S_n(z)/P_{n,F})}, \quad (15)$$

где экспоненциальная функция  $S_n$  представлена по-разному в разных работах, например, в [56, 57] она имеет вид

$$S_n(\tilde{z})|_{\tilde{z}=\frac{z}{L_{n,g}}} \approx \left| \cosh \tilde{z} - e^{\tilde{z}} \cos \left( \frac{\pi}{3} + \frac{\sqrt{3}\tilde{z}}{2} \right) - e^{-\frac{\tilde{z}}{2}} \cos \left( \frac{\pi}{3} - \frac{\sqrt{3}\tilde{z}}{2} \right) \right|. \quad (16)$$

Детали феноменологического описания эволюции гармоник с помощью аналитических формул даны в [32, 33, 35–38] и др. работах. В них, а также в [60, 61] показано хорошее согласие с результатами численных моделей. Теоретические результаты также согласуются с результатами численного моделирования, проведенного независимо от нас в [62] и в др. работах. Теоретические результаты эволюции мощности гармоник по длине ондуляторов обычно воспроизводятся в экспериментах с точностью до порядка величины. Для четных и высших гармоник это соответствие хуже. Хорошее приближение предложено в работах [63, 64] для мощности второй гармоники  $P_2$ , выраженной через  $P_1$  с учетом числа Френеля

$$\Gamma = 4\pi\sigma_{x,y}^2/N\lambda_u\lambda_1,$$

где учтена длина волны  $\lambda$ , сечение пучка  $\sigma_{x,y}$ , и длина ондулятора  $N\lambda_u$ :

$$P_2^{Gelsoni} \approx P_1 \frac{A^2 + B^2}{450\pi K F^2} \times \frac{\ln(1 + 1/(4\Gamma^2))}{\arctan(1/\Gamma) + (\Gamma/2) \ln(\Gamma^2/(1 + \Gamma^2))}, \quad (17)$$

где

$$A = 2KG + J_1(K),$$

$$B = J_1(K),$$

$$F = J_0(K/2) - J_1(K/2),$$

$$G = J_0(K) - J_2(K),$$

$J_i(K)$  — обычные функции Бесселя от аргумента  $K = k^2/(2 + k^2)$  [63]. Мощность второй гармоники  $P_2$  проанализирована также в работе [65]. Результат сформулирован в терминах обычных функций Бесселя и включает зависимость от сечения пучка  $\sigma_{x,y}$  и параметров ондулятора, а также мощность излучения ЛСЭ  $P_1$  и коэффициенты группировки (банчинги)  $b_{1,2}$ . Значения банчинга не всегда известны,

и это затрудняет расчет мощности. Результат [65] можно переформулировать в терминах числа Френеля по аналогии с подходом в [63]:

$$P_{Huang2}^{Fresnel} = P_1 \frac{\Xi}{\Gamma}, \quad \Xi = \frac{K}{\pi N} \left( \frac{G b_2}{F b_1} \right)^2. \quad (18)$$

В работе [65] также предложена простая формула для третьей гармоники, мощность которой  $P_3$  выражается как

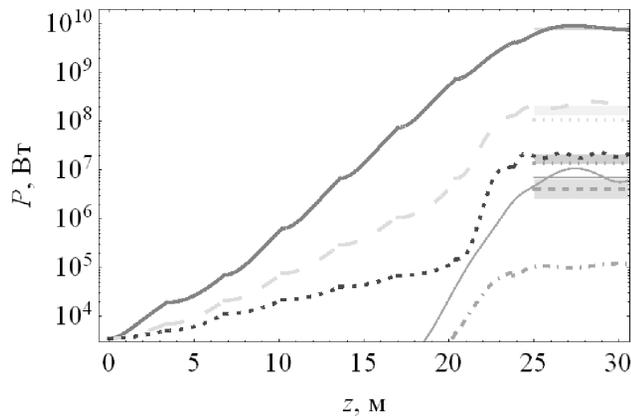
$$P_{Huang3} = \Theta \rho P_{beam} (P_1/\rho P_{beam})^3, \quad (19)$$

где  $\Theta$  — численный множитель,  $\Theta \sim 0.1$ . Теоретический результат (19), однако, превышает данные практически всех ЛСЭ на порядок. Согласие восстанавливается, если положить коэффициент  $\Theta \sim 0.01$ . Для второй гармоники результат (18) близок к измеренной мощности большинства ЛСЭ, расхождение обычно находится в пределах одного порядка. Отметим, что формулы (17), (18) из независимых исследований [63–65] не учитывают гармоники поля и применимы только для ЛСЭ с обычным плоским ондулятором.

#### 4. ВЛИЯНИЕ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ ПОЛЯ НА СПЕКТР ЛСЭ

Подробное описание экспериментов и работы ЛСЭ LCLS дано в [24–26]. Для определенности рассмотрим излучение в мягком рентгеновском диапазоне, где были измерены первая, вторая ( $< 0.1\%$ ) и третья ( $\sim 2\text{--}3\%$ ) гармоники в насыщении, а содержание пятой гармоники оценено в  $10\%$  от третьей. Длина волны излучения  $\lambda_1 = 1.5$  нм, энергия электронов  $E = 4.3$  ГэВ, разброс энергий  $\sigma_e = 3 \cdot 10^{-4}$ , ток  $I_0 = 1$  кА, период ондулятора  $\lambda_u = 3$  см, параметр  $k = 3.5$ . На рис. 3 показана мощность гармоник ЛСЭ в случае использования ондуляторов со второй гармоникой поля,  $h = 2$ , и с амплитудой  $d = -0.1$  основного поля и без нее.

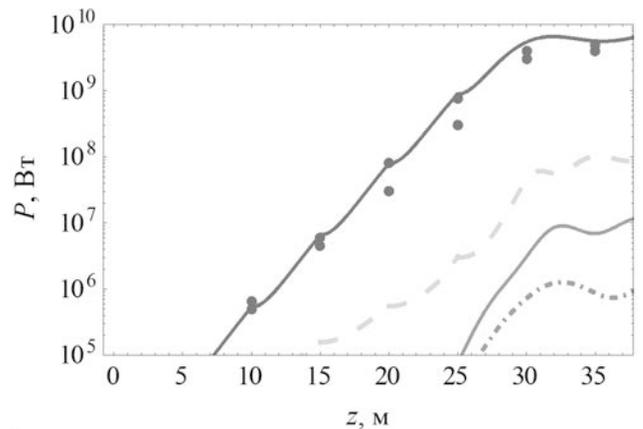
Результаты теоретического расчета мощности излучения гармоник ЛСЭ по формулам (2)–(16) для стандартных ондуляторов LCLS были представлены ранее во многих работах (см., например, [32, 33, 38, 39]). Они дают характеристики излучения, которые хорошо согласуются с экспериментальными данными. Отметим на рис. 3, что мощность второй гармоники ЛСЭ при наличии второй гармоники поля ондулятора (штрих-пунктирная оранжевая линия на рис. 3) оказывается значительно, на два порядка, ниже, чем для стандартных ондуляторов LCLS (сплошная оранжевая линия). В послед-



**Рис. 3.** Мощность гармоник ЛСЭ LCLS по длине ондуляторов;  $E = 4.3$  ГэВ,  $\lambda_1 = 1.5$  нм,  $\sigma_e = 0.3 \cdot 10^{-3}$ ,  $I_0 = 1$  кА,  $\gamma\varepsilon_{x,y} = 0.4$  мм·мрад,  $\beta = 10$  м. Гармоники обозначены линиями:  $n = 1$  — сплошная красная,  $n = 3$  — штриховая зеленая,  $n = 5$  — пунктирная синяя;  $n = 2$  — оранжевая, сплошная для обычного ондулятора, штрих-пунктирная для ондулятора со второй гармоникой поля,  $h = 2$ ,  $d = -0.1$ ; экспериментальные значения в цветных диапазонах; мощности насыщения  $P_{Huang3}$  — пунктирная зеленая,  $P_{Huang2}$  — штриховая и сплошная оранжевая,  $P_{Geloni2}$  — пунктирная оранжевая

нем случае отметим хорошее согласие с измеренными значениями. В то же время, вторая гармоника поля не приводит к существенным изменениям мощности нечетных гармоник излучения. Итак, показано, что ондулятор со слабой второй гармоникой поля с амплитудой 10% в противофазе основному полю может подавить излучение второй гармоники ЛСЭ LCLS на два порядка и более. Мы учли значение эффективного угла  $\gamma\bar{\theta} \sim 0.07-0.08$  электрон-фотонного взаимодействия в ЛСЭ и коэффициенты Бесселя (9) и (10). При учете только эмиттанса получаем содержание второй гармоники обычного ондулятора на два порядка ниже измеренного значения  $\sim 0.04-0.1\%$ . Отметим, что спонтанное излучение второй гармоники в ондуляторах LCLS под углом  $\gamma\bar{\theta}$  тоже удается скомпенсировать второй гармоникой поля примерно до уровня излучения второй гармоники обычного ондулятора LCLS на оси с учетом эмиттанса пучка.

В сравнении с ЛСЭ LCLS интересно проанализировать генерацию и излучение второй гармоники в ЛСЭ PAL-XFEL [65–69] на почти той же длине волны,  $\lambda = 1.52$  нм [65–69], что в LCLS. В отличие от LCLS, излучение на  $\lambda_1 = 1.52$  нм в PAL-XFEL происходит от более широкого пучка электронов с большим эмиттансом и меньшей энергией электронов  $E = 3$  ГэВ в ондуляторе с более коротким пе-



**Рис. 4.** Мощность гармоник PAL-XFEL,  $E = 3$  ГэВ,  $\lambda_1 = 1.5$  нм,  $\sigma_e = 0.5 \cdot 10^{-3}$ ,  $I_0 = 2.2$  кА,  $\gamma\varepsilon_{x,y} = 0.55$  мм·мрад,  $\beta = 25$  м. Гармоники обозначены линиями:  $n = 1$  — сплошная красная,  $n = 3$  — штриховая зеленая,  $n = 2$  — оранжевая сплошная для обычного ондулятора, оранжевая штрих-пунктирная для ондулятора со второй гармоникой поля,  $h = 2$ ,  $d = -0.1$ ; измеренные значения обозначены точками

риодом и меньшим параметром дипольности  $k$ . Ранее проделанное нами аналитическое моделирование PAL-XFEL в [33], а также независимое численное моделирование в [70] и др. работах показывают гармоники  $n = 2$  и  $n = 3$ , которые, однако, не были измерены, хотя последняя и была зарегистрирована в экспериментах. На рис. 4 приведено сравнение результатов моделирования эволюции мощности гармоник PAL-XFEL с обычным ондулятором и с ондулятором со второй гармоникой поля. В отличие от ЛСЭ LCLS, в PAL-XFEL влияние второй гармоники поля ондулятора на излучение второй гармоники ЛСЭ менее выражено.

При той же длине волны излучения гармоника поля с той же амплитудой 10% основного поля дает эффект подавления второй гармоники ЛСЭ PAL-XFEL на порядок или более, в отличие от эффекта в два порядка и более в LCLS. Объяснение этому не очевидно. Вероятно, что причина в более широком пучке электронов в PAL-XFEL. Отметим, что в PAL-XFEL более слабый ондулятор. Однако ниже мы рассмотрим пример другой пары ЛСЭ, где в ЛСЭ с большим эмиттансом стоит более сильный ондулятор, и в таком ЛСЭ эффективность второй гармоники поля понижена. Причины такой разницы еще не до конца понятны; по-видимому, влияют в основном сечение пучка и длина усиления ЛСЭ. Действительно, параметры ондулятора вместе с углом множителем  $\gamma\theta$  присутствуют перед функци-

ей  $J_n^n$ , а также в аргументе функций Бесселя,

$$\xi_0 \sim \frac{2d}{kh^2} \gamma \theta.$$

Угловой вклад отдельно входит в аргумент функции Бесселя,

$$\xi_5 \sim \frac{2}{k} \gamma \theta,$$

а гармоника поля ондулятора отдельно и независимо от углов присутствует в аргументах  $\xi_{2,3,4}$ . Сечение пучка входит в аргументы бетатронных функций Бесселя  $\tilde{J}_p$ , вместе с углом в параметр

$$\kappa \approx \frac{\theta 2\pi \sigma_{x,y}}{\lambda_1},$$

и отдельно от угла в параметр

$$\eta \approx \frac{\Sigma \pi k}{\lambda_u \lambda_1 4\sqrt{2} \gamma}.$$

Учитывая, что наибольшим является угол  $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y}/L_g$  электрон-фотонного взаимодействия, мы провели оценку для действующих ЛСЭ с излучением в диапазонах от видимого до рентгеновского с сечением пучков  $\sigma \sim 25\text{--}250$  мкм и выяснили, что во всех рассмотренных установках  $\kappa$  на порядок больше  $\eta$ :  $\kappa \sim 10\eta$ . В аргументы  $\kappa$  и  $\eta$  не входят параметры второй гармоники поля  $d$ ,  $h$ , а входят сечение и эффективный угол электрон-фотонного взаимодействия  $\gamma\bar{\theta}$ .

Рассмотрим теперь ЛСЭ LEUTL с длиной волны  $\lambda = 532$  нм и энергией электронов  $E = 217$  МэВ (см. [22, 23]). Сечение пучка этого ЛСЭ составляло  $\sigma_{x,y} \sim 0.25$  мм, что на порядок больше, чем в LCLS и в два раза больше, чем в SPARC с излучением в видимом диапазоне на близкой длине волны  $\lambda = 498$  нм, который мы тоже рассмотрим для сравнения. Мы рассчитали мощности гармоник по длине ЛСЭ LEUTL с обычным ондулятором и со второй гармоникой поля, а также исследовали зависимости мощности насыщения гармоник, длины усиления и угла  $\bar{\theta}$  от сечения пучка (см. рис. 5–7).

С увеличением сечения уменьшаются плотность тока и усиление ЛСЭ, увеличивается длина усиления  $L_g$  (синяя сплошная линия на рис. 5); в результате угол  $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y}/L_g$  (красная штриховая линия на рис. 5) растет медленнее, чем сечение. В отношении мощности второй гармоники можно сказать, что два эффекта противодействуют друг другу: с увеличением сечения пучка мощность второй гармоники излучения сначала растет при малом сечении (см. оранжевую штрих-пунктирную линию на рис. 6), что в основном определяется растущим углом  $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y}/L_g$  (см. красную штриховую линию на

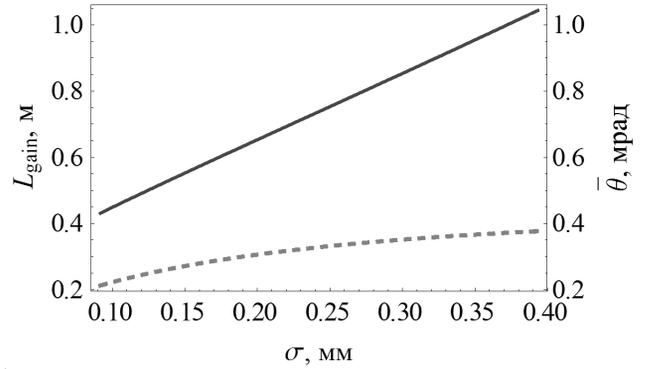


Рис. 5. Зависимости длины усиления  $L_g$  (сплошная синяя линия) и эффективного угла электрон-фотонного взаимодействия  $\bar{\theta} \approx \sigma_{x,y}/L_g$  (штриховая красная линии) от сечения пучка LEUTL,  $E = 217$  МэВ,  $\lambda_1 = 532$  нм,  $\sigma_e = 1 \cdot 10^{-3}$ ,  $I_0 = 210$  А

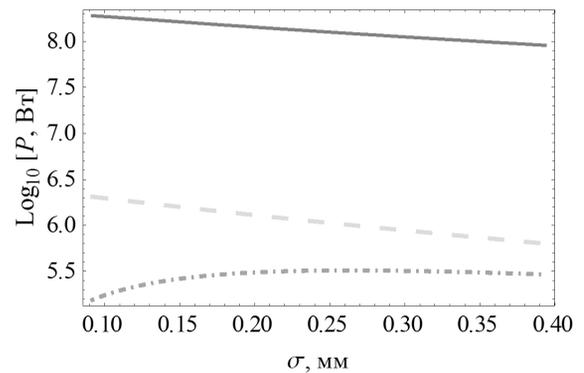
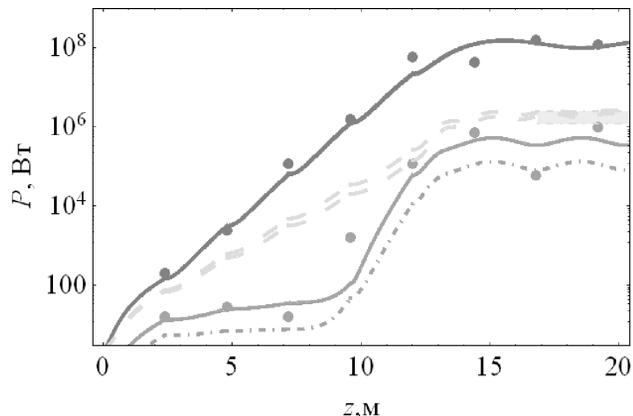


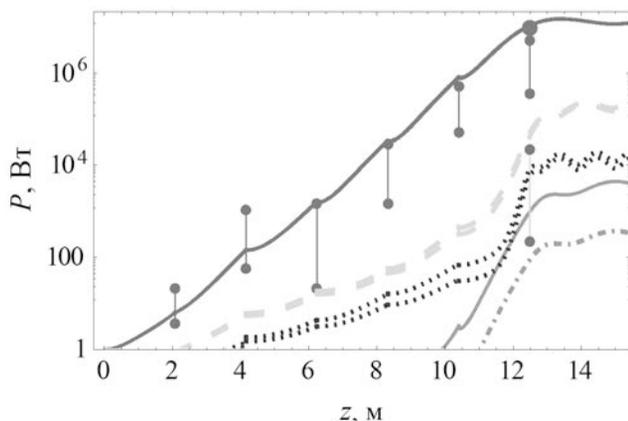
Рис. 6. Зависимости мощности гармоник ЛСЭ LEUTL,  $E = 217$  МэВ,  $\lambda_1 = 532$  нм,  $\sigma_e = 1 \cdot 10^{-3}$ ,  $I_0 = 210$  А от сечения пучка. Гармоники обозначены линиями:  $n = 1$  — сплошная красная,  $n = 3$  — штриховая зеленая,  $n = 2$  — штрих-пунктирная оранжевая

рис. 5). Это происходит на фоне ослабления роста  $\bar{\theta}$  и уменьшения общей мощности ЛСЭ (см. красную сплошную линию на рис. 6) из-за уменьшения плотности тока, соответствующего уменьшения параметра Пирса  $\rho$  и увеличения длины усиления  $L_g$  (см. синюю сплошную линию на рис. 5). Мощность в целом падает с увеличением сечения пучка, а четные гармоники сначала медленно растут; этот рост замедляется и прекращается с увеличением сечения при фиксированном токе (см. рис. 6).

Эволюция мощности гармоник по длине ондуляторов LEUTL показана на рис. 7. Исследованы случаи ондуляторов LEUTL со второй гармоникой поля,  $h = 2$ ,  $d = -0.1$  и обычного ондулятора. По сравнению с излучением ЛСЭ с обычным ондулятором с  $d = 0$ , подтвержденным экспериментальными данными [22], мощность второй гармоники излучения



**Рис. 7.** Мощность гармоник ЛСЭ LEUTL,  $E = 217$  МэВ,  $\lambda_1 = 532$  нм,  $\sigma_e = 1 \cdot 10^{-3}$ ,  $I_0 = 210$  А,  $\gamma\varepsilon_x = 6.2\pi$  мм·мрад,  $\beta_{x,y} = 1.5$  м. Гармоники обозначены линиями:  $n = 1$  — сплошная красная,  $n = 3$  — штриховая зеленая,  $n = 2$  — оранжевая сплошная для обычного ондулятора, оранжевая штрих-пунктирная для ондулятора со второй гармоникой поля,  $h = 2$ ,  $d = -0.1$ ; измеренные значения обозначены точками



**Рис. 8.** Мощность гармоник ЛСЭ SPARC,  $E = 152$  МэВ,  $\lambda_1 = 498$  нм,  $\sigma_e = 1 \cdot 10^{-3}$ ,  $I_0 = 53$  А,  $\beta_{x,y} = 1.5$  м,  $\gamma\varepsilon_x = 2.8 \cdot 10^{-6}$  мм·мрад. Гармоники обозначены линиями:  $n = 1$  — сплошная красная,  $n = 3$  — штриховая зеленая,  $n = 5$  — пунктирная синяя,  $n = 2$  — сплошная оранжевая для обычного ондулятора, штрих-пунктирная оранжевая для ондулятора со второй гармоникой поля,  $h = 2$ ,  $d = -0.1$ ; измеренные значения в диапазонах между точками

в присутствии второй гармоникой поля уменьшились всего в четыре–пять раз (ср. оранжевую сплошную и оранжевую пунктирную линии на рис. 7) и осталась в пределах разброса измерений с обычным ондулятором (оранжевые точки на рис. 7). Третья гармоника ЛСЭ почти не чувствует влияние второй гармоникой поля (зеленая линия на рис. 7), а основной

тон вообще не меняется (красная линия на рис. 7). Отметим, что для ЛСЭ LEUTL с пучком электронов сечением  $\sigma_{x,y} \sim 0.25$  мм на длине усиления  $L_g \approx 0.75$  м имеем угол взаимодействия  $\bar{\theta} \approx 0.35$  мрад и, соответственно,  $\gamma\bar{\theta} \approx 0.14$ . Для LEUTL с ондулятором со второй гармоникой поля,  $h = 2$ ,  $d = -0.1$ , коэффициенты Бесселя равны

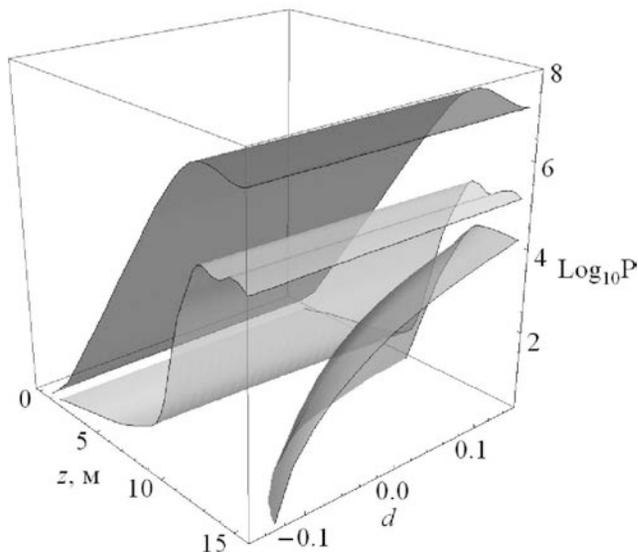
$$f_{n=1,2,3,4}^{e-\gamma \text{ angle}} = \{0.75, \mathbf{0.12}, 0.32, \mathbf{0.13}\},$$

в то время как для LEUTL с обычным ондулятором они равны

$$f_n = \{0.75, \mathbf{0.18}, 0.30, \mathbf{0.18}\}.$$

Разница значений  $f_{n=2,4}$  для ондулятора с гармоникой поля и без нее не столь большая. Причина этого, вероятно, в том, что угловой вклад  $\gamma\theta \approx 0.14$  большой и для его компенсации недостаточно амплитуды 10% второй гармоникой поля. Отметим, что в ОИ углы  $\gamma\theta > 0.1$  вызывают существенное изменение излучения и генерацию сильных четных гармоник. Таким образом, рассмотренное значение  $d = -0.1$  второй гармоникой поля ондулятора недостаточно для эффективного подавления второй гармоникой излучения LEUTL.

Для сравнения рассмотрим ЛСЭ SPARC с похожей длиной волны излучения, но более узким



**Рис. 9.** Мощность гармоник ЛСЭ SPARC (данные ЛСЭ такие же, как на рис. 8) со второй гармоникой поля,  $h = 2$ , в зависимости от ее амплитуды  $d$ . Гармоники обозначены цветными поверхностями:  $n = 1$  — красная,  $n = 3$  — зеленая,  $n = 2$  — оранжевая

пучком электронов с в два раза меньшим сечением пучка:  $\sigma_{x,y} \sim 0.12$  мм, и значительно меньшим эмиттансом. Теоретические результаты расчета эволюции мощности гармоник ЛСЭ SPARC с обычным ондулятором и в присутствии второй гармоники поля ондулятора  $h = 2$ ,  $d = -0.1$ , показаны на рис. 8.

Отметим, что вторая гармоника поля ондулятора SPARC с  $d = -0.1$  уменьшает мощность излучения второй гармоники ЛСЭ на порядок; это эффективнее ее влияния в ЛСЭ LEUTL со сравнимой длиной волны излучения в видимом диапазоне и гораздо большим эмиттансом пучка. При этом ондулятор в SPARC слабее, чем в LEUTL. При сравнении рентгеновских ЛСЭ LCLS и PAL-XFEL оказалось, что разница в эффективности подавления второй гармоники излучения в них также сопровождалась разницей их эмиттансов и сечений, но параметр ондулятора  $k$  был наоборот сильнее у LCLS, где наблюдалось большая эффективность второй гармоники поля в подавлении излучения второй гармоники ЛСЭ. Мы проанализировали влияние амплитуды  $d$  второй гармоники поля ондулятора на излучение гармоник ЛСЭ. Результат для SPARC приведен на рис. 9. По сравнению с рис. 8, рис. 9 дает более общую картину и показывает возможность управлять излучением второй гармоники ЛСЭ, усиливая или ослабляя ее примерно на порядок в зависимости от амплитуды и фазы второй гармоники поля.

В то же время рис. 8 дает больше деталей в отношении эволюции гармоник по длине ондуляторов и влияния на нее поля второй гармоники с заданной амплитудой и фазой. Возможность управлять второй гармоникой ЛСЭ LEUTL значительно меньше, чем на ЛСЭ SPARC, а в ЛСЭ LCLS полный диапазон изменения мощности второй гармоники излучения превышает два порядка ее величины.

## 5. ВЫВОДЫ

Продемонстрировано, что с увеличением сечения пучка электронов при фиксированном токе мощность насыщения второй гармоники ЛСЭ несколько увеличивается при малых сечениях и потом остается в целом неизменной, а общая мощность ЛСЭ естественно уменьшается в первую очередь из-за уменьшения плотности тока.

Вторая гармоника поля ондулятора влияет на излучение второй гармоники спонтанного ОИ и ЛСЭ. Рассмотрено слабое поле ( $\sim 10\%$  от основного) второй гармоники ондулятора и показано, что

оно может подавить излучение второй гармоники ЛСЭ, практически не затрагивая излучение нечетных гармоник. Эффективность влияния второй гармоники ондулятора при этом зависит от ЛСЭ. Показано, что для ЛСЭ LCLS с узким хорошо центрированным пучком излучение второй гармоники ослабевает приблизительно на два порядка в присутствие второй гармоники в поле ондулятора с отрицательной фазой и амплитудой 10%; положительная фаза этого поля может усилить вторую гармонику LCLS почти до 10 раз. Мы показали, что для PAL-XFEL на той же длине волны LCLS вторая гармоника излучения может быть ослаблена почти на порядок при той же амплитуде 10% второй гармоники поля; усиление второй гармоники PAL-XFEL возможно почти в пять раз. При этом оба ЛСЭ излучают примерно на одной длине волны  $\lambda = 1.5$  нм. Для ЛСЭ SPARC на длине волны  $\lambda = 498$  нм можно ослабить излучение второй гармоники ЛСЭ на порядок, примерно как для PAL-XFEL. Для LEUTL на близкой к SPARC длине волны  $\lambda = 532$  нм эффект второй гармоники поля с той же амплитудой, что и для других рассмотренных ЛСЭ,  $h = 2$ ,  $d = -0.1$ , меньше: происходит уменьшение мощности второй гармоники излучения примерно в пять раз.

Эффективность изменения мощности второй гармоники ЛСЭ под влиянием гармоники поля непосредственно связана со значением ее коэффициента Бесселя, который зависит в первую очередь от угловых эффектов, и компенсацией влияния последних второй гармоникой поля ондулятора. Установлено уменьшение влияния второй гармоники поля на излучение ЛСЭ при использовании пучков с большим эмиттансом. Разница в эффективности для разных ЛСЭ может превышать один порядок, в зависимости от ЛСЭ.

В практических целях эффективное подавление излучения второй гармоники ЛСЭ дает возможность использовать ЛСЭ для исследования и анализа нелинейного отклика образца на его облучение в виде генерации второй гармоники на фоне ослабленного излучения ЛСЭ на той же частоте.

**Финансирование.** Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки РФ, грант 075-15-2021-1353.

## ЛИТЕРАТУРА

1. L. Wu, S. Patankar, T. Morimoto et al., Nat. Phys. **13**, 350 (2016).

2. G. Boyd, T. Bridges, and E. Burkhardt, *IEEE J. Quantum Electron.* **4**, 515 (1968).
3. G. C. Bhar, S. Das, and K. L. Vodopyanov, *Appl. Phys. B* **61**, 187 (1995).
4. M. Nuriya, S. Fukushima et al., *Nat. Commun.* **7**, 11557 (2016).
5. T. Sumi, M. Horio, T. Senoo et al., *E-J. Surf. Sci. Nanotech.* **20**, 31 (2021); DOI 10.1380/ejssnt.2022-002
6. K.-J. Kim, Z. Huang, and R. Lindberg, *Synchrotron Radiation and Free Electron Lasers; Principles of Coherent X-Ray Radiation*, Cambridge University Press, Cambridge CB2 8BS, United Kingdom (2017).
7. L.-H. Yu, *Science* **289**, 932 (2000).
8. T. Shaftan and Li H Yu, *Phys. Rev. E* **71**, 046501 (2005).
9. K. C. Prince, E. Allaria, C. Callegari et al., *Nat. Photonics* **10**, 176 (2016).
10. E. Allaria, L. Badano, S. Bassanese et al., *J. Synchrotron Radiat.* **22**, 485 (2015).
11. B. Faatz, M. Braune, O. Hensler et al., *Appl. Sci.* **7**, 1114 (2017).
12. K. Zhukovsky, *Opt. Commun.* **418**, 57 (2018).
13. K. Zhukovsky, *J. Appl. Phys.* **122**, 233103 (2017).
14. K. Zhukovsky, *EPL* **119**, 34002 (2017).
15. T. Helk, E. Berger, S. Jamnuch et al., *Sci. Adv.* **7**, eabe2265 (2021).
16. S. Shwartz, M. Fuchs, J. B. Hastings et al., *Phys. Rev. Lett.* **112**, 163901 (2014).
17. S. Yamamoto, T. Omi, H. Akai et al., *Phys. Rev. Lett.* **120**, 223902 (2018).
18. E. Berger, S. Jamnuch, C. Uzundal et al., *arXiv:2010.03134* (2020).
19. R. K. Lam, S. L. Raj, T. A. Pascal et al., *Phys. Rev. Lett.* **120**, 023901 (2018).
20. C. P. Schwartz, S. L. Raj, S. Jamnuch et al., *arXiv:2005.01905* (2020).
21. P. J. Campagnola L. M. and Loew, *Nat. Biotechnol.* **21**, 1356 (2003).
22. S. G. Biedron et al., *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **483**, 94 (2002).
23. S.V. Milton, E. Gluskin, N. D. Arnold et al., *Science* **292**, 2037 (2000).
24. P. Emma, R. Akre, J. Arthur et al., *Nature, Photonics* **4**, 641 (2010).
25. P. Emma, *Proc. of PAC09*, Vancouver, BC, Canada, (2009).
26. D. Ratner, A. Brachmann, F. J. Decker et al., *Phys. Rev. ST-AB* **14**, 060701 (2011).
27. Z. Huang and S. Reiche, in: *Proc. of the FEL 2004 Conference*, ed. by R. Bakker et al., Italy, Trieste (2004), p. 201.
28. K. V. Zhukovsky and A. M. Kalitenko, *Phys. Rus. J.* **62**, 354 (2019).
29. K. Zhukovsky and I. Fedorov, *Symmetry* **13**, 135 (2021).
30. K. Zhukovsky, *Results in Physics* **13**, 102248 (2019).
31. K. V. Zhukovsky, *J. Synchrotron Rad.* **26**, 1481 (2019).
32. K. Zhukovsky, *Rad. Phys. Chem.* **189**, 109698 (2021).
33. K. Zhukovsky, *Ann. der Physik* **533**, 2100091 (2021).
34. К. В. Жуковский, *ЖТФ* **91**, 495 (2021).
35. K. V. Zhukovsky, *Radiophys. Quantum Electronics* **65**, 88 (2022).
36. K.V. Zhukovsky, *Rus. Phys. J.* **65**, 1451 (2023).
37. K. Zhukovsky and I. Fedorov, *Mosc. Univ. Phys. Bull.* **77** (1), 11 (2022).
38. K. Zhukovsky, *Physics Uspekhi* **64**, 304 (2021).
39. K. Zhukovsky, *Opt. Laser Technol.* **143**, 107296 (2021).
40. K. Zhukovsky, I. Fedorov, N. Gubina, *Opt. Laser Technol.* **159**, 108972 (2023).
41. K. Zhukovsky, *EPL* **141**, 45002 (2023).

42. D. K. V. Attwood, *Soft X-Rays and Extreme Ultraviolet Radiation*, Cambridge University Press (1999), Chap. 5.
43. H. Kitamura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **19**, L185 (1980).
44. H. P. Freund and P. J. M. van der Slot, *J. Phys. Comm.* **8**, 085011 (2021).
45. V. G. Bagrov, V. F. Zalmez, M. M. Nikitin, and V. Y. Epp, *Nucl. Instr. Meth. A* **261**, 54 (1987).
46. И. А. Федоров, К. В. Жуковский, *ЖЭТФ* **162**, 181 (2022).
47. K. Zhukovsky, I. Fedorov, *Symmetry* **14**, 1353 (2022).
48. B. W. J. McNeil, N. R. Thompson, *Nature Photonics* **4**, 814 (2010).
49. C. Pellegrini et al., *Rev. Mod. Phys.* **88**, 015006 (2016).
50. G. Margaritondo, *Rivista del Nuovo Cimento* **40**, 411 (2017).
51. Z. Huang and K. J. Kim, *Phys. Rev. ST-AB*, **10**, 034801 (2007).
52. Z. Huang, K.-J. Kim, *Phys. Rev. E* **62**, 7295 (2000).
53. E. L. Saldin, E. A. Schneidmiller, and M. V. Yurkov, *The Physics of Free Electron Lasers*, Berlin, Heidelberg, Springer-Verlag (2000).
54. R. Bonifacio et al., *Opt. Comm.* **50**, 373 (1984).
55. L. Giannessi, in *Synchrotron Light Sources and Free-Electron Lasers*, ed. by E.J. Jaeschke et al., Springer International Publishing, Switzerland (2016).
56. G. Dattoli, L. Giannessi, P. L. Ottaviani, and C. Ronsivalle, *J. Appl. Phys.* **95**, 3206 (2004).
57. G. Dattoli, P. L. Ottaviani, and S. Pagnutti, *J. Appl. Phys.* **97**, 113102 (2005).
58. M. Xie, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **445**, 59 (2000).
59. K.V. Zhukovsky, *Mosc. Univ. Phys. Bull.* **74** № 5 480 (2019).
60. K. Zhukovsky, A. Kalitenko, *J. Synchrotron Rad.* **26**, 159 (2019).
61. L. Gianessi, in *Proc. of 28th Int. Free Electron Laser Conf.*, Berlin, Germany, MOPPH026 (2006).
62. H. P. Freund and P. J. M. van der Slot, *J. Phys. Commun.* **5**, 085011 (2021).
63. G. Geloni et al., *Opt. Comm.* **271**, 207 (2007).
64. E. Saldin, E. Schneidmiller, and M. Yurkov, *Nucl. Instr. and Meth. A* **539**, 499 (2005).
65. Z. Huang and K.-J. Kim, *Nucl. Instrum. Meth. A.* **475**, 112 (2001).
66. H.-S. Kang et al., *Nature Photonics* **11**, 708 (2017).
67. H. Yang and H.-S. Kang, *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A* **911**, 51 (2018).
68. J. Hong, J.-H. Han et al., *High Power Laser Science Eng.* **3**, 9 (2015).
69. I. S. Ko, H.-S. Kang, H. Heo et al., *Appl. Sci.* **7**, 479 (2017).
70. A. M. Kalitenko, *J. Synchrotron Rad.* **28**, 681 (2021).

# СПУТНИКИ ДИПОЛЬНО-ЗАПРЕЩЕННЫХ ПЕРЕХОДОВ В НИЗКОЛЕЖАЩИЕ ВОЗБУЖДЕННЫЕ СОСТОЯНИЯ ${}^2S_{1/2}$ И ${}^2D_{3/2,5/2}$ АТОМОВ K, Rb И Cs В СПЕКТРАХ ГАЗОФАЗНЫХ СМЕСЕЙ С $CF_4$

В. А. Алексеев<sup>a\*</sup>, Т. А. Вартамян<sup>b</sup>, А. С. Пазгалев<sup>c</sup>, П. Ю. Сердобинцев<sup>d</sup>

<sup>a</sup> Институт химии силикатов им. И. В. Гребенщикова Российской академии наук  
199034, Санкт-Петербург, Россия

<sup>b</sup> Университет ИТМО  
197101, Санкт-Петербург, Россия

<sup>c</sup> Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук  
194021, Санкт-Петербург, Россия

<sup>d</sup> Санкт-Петербургский государственный университет  
199034, Санкт-Петербург, Россия

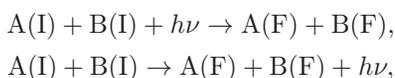
Поступила в редакцию 21 февраля 2023 г.,  
после переработки 4 мая 2023 г.  
Принята к публикации 4 мая 2023 г.

В спектрах возбуждения люминесценции на резонансной линии  $D_1$  атомов K, Rb, Cs в газофазных смесях с  $CF_4$  обнаружены переходы-спутники, отвечающие переходу атома в состояния  $(n-1)d\ {}^2D_{3/2,5/2}$  и  $(n+1)s\ {}^2S_{1/2}$ , где  $n = 4, 5, 6$  для K, Rb, Cs соответственно, с одновременным возбуждением колебаний молекулы  $CF_4$  на частоте ИК-активной моды  $\nu_3$  с энергией кванта  $1283\text{ см}^{-1}$ ,  $A(ns\ {}^2S_{1/2}) + CF_4(\nu_3 = 0) + h\nu \rightarrow A((n-1)d\ {}^2D_{3/2,5/2}) + CF_4(\nu_3 = 1)$  и  $A(ns\ {}^2S_{1/2}) + CF_4(\nu_3 = 0) + h\nu \rightarrow A((n+1)s\ {}^2S_{1/2}) + CF_4(\nu_3 = 1)$ , где  $A = K, Rb, Cs$ . Показано, что возникновение оптической связи между верхним и нижним состояниями этих асимптотически (при  $R_{A-CF_4} \rightarrow \infty$ ) запрещенных переходов обусловлено взаимодействием дипольного момента колебательного перехода  $\nu_3 = 1 \leftrightarrow \nu_3 = 0$  в молекуле  $CF_4$  с дипольными моментами электронных переходов  $np\ {}^2P_{1/2,3/2} \leftrightarrow (n-1)d\ {}^2D_{3/2,5/2}$  и  $np\ {}^2P_{1/2,3/2} \leftrightarrow (n+1)s\ {}^2S_{1/2}$  в атоме щелочного металла, в результате которого верхнее состояние перехода-спутника приобретает примеси резонансных состояний  $A(np\ {}^2P_{1/2,3/2})CF_4(\nu_3 = 0)$ .

DOI: 10.31857/S004445102309002X  
EDN: KBWOUR

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Парные оптические переходы типа



где I и F — начальное и конечное состояния атомов соответственно, в результате которых две частицы одновременно изменяют свое квантовое состояние

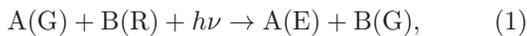
при поглощении или излучении фотона, представляют интерес для физики атомных столкновений, спектроскопии и методов анализа структуры вещества. С научной точки зрения прежде всего представляет интерес построение физической модели, на основании которой возможно описание основных характеристик парного оптического перехода, включая его сечение, энергию и спектральную форму полосы. В пределе бесконечно больших расстояний между частицами такие переходы запрещены, однако становятся возможными в области межъядерных расстояний, в которой взаимодействие между частицами нельзя считать пренебрежимо малым. Необходимым условием для этого является наличие вза-

\* E-mail: vadim-alekseev@mail.ru

имодействия, в результате которого конечное (начальное) состояние приобретает примесь некоего состояния, которое связано разрешенным однофотонным переходом с начальным (конечным) состоянием.

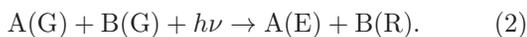
Интенсивность парных переходов пропорциональна произведению концентраций,  $I \propto [A][B]$ , и с практической точки зрения такие переходы могут найти применение для решения задач анализа структуры объектов, когда требуется знание распределения пар частиц в изучаемой системе. В частности, парные переходы, несомненно, представляют интерес для спектроскопии протяженных астрофизических объектов, так как их присутствие в спектре непосредственно свидетельствует о нахождении частиц А и В в одной и той же области пространства.

Теория парных переходов впервые рассмотрена в работе [1] для случая так называемых радиационных столкновений атомов (лазерно-индуцированного переноса энергии),



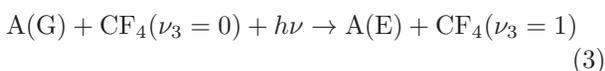
где G, R и E — основное, резонансное и возбужденное (нерезонансное) состояния атомов соответственно. Многочисленные экспериментальные исследований процессов этого типа были выполнены в 1970-е и 1980-е годы (см. обзор [2]).

Для перехода (1) требуется предварительное возбуждение атома В в резонансное состояние. Однако парные оптические переходы наблюдались и для случая, когда атомы находятся в основном электронном состоянии,



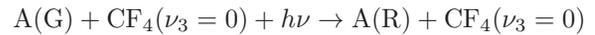
В частности, переходы этого типа наблюдались в спектрах паров атомов щелочных и щелочноземельных металлов (Cs, Rb, Cs–Rb, Ba, Ba–Tl) [3, 4].

Исследования спектров смесей атомарных газов с  $CF_4$  выявили замечательную способность этой молекулы индуцировать переходы типа (2) на комбинированных частотах, отвечающих энергиям состояний атома, увеличенных на энергию кванта ИК-активной  $\nu_3$ -моды  $CF_4$  ( $1283 \text{ см}^{-1}$ , что приблизительно соответствует максимуму Q-ветви),



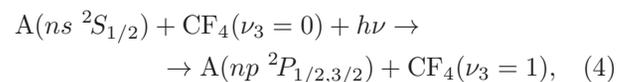
(см. работу [5] и ссылки в ней). Такие переходы-спутники имеют особенно большую интенсивность

в тех случаях, когда энергия этого перехода близка к энергии перехода в одно из резонансных состояний атома и при этом состояние A(E) связано с A(R) разрешенным оптическим переходом. При выполнении этих условий верхнее состояние перехода спутника  $A(E)CF_4(\nu_3 = 1)$  располагается вблизи  $A(R)CF_4(\nu_3 = 0)$  и связано с ним взаимодействием дипольных моментов  $\mu$  переходов  $A(R \leftrightarrow E)$  и  $CF_4(\nu_3 = 1 \leftrightarrow \nu_3 = 0)$ . Так как переход



разрешен, приобретаемая в результате диполь-дипольного взаимодействия (ДДВ) примесь состояния  $A(R)CF_4(\nu_3 = 0)$  обеспечивает оптическую связь верхнего состояния перехода-спутника с основным состоянием столкновительной пары.

В рамках рассмотренного выше механизма состояние E, в котором оказывается атом в результате перехода (3), должно быть связано разрешенным оптическим переходом с резонансными состояниями. С учетом правил отбора из этого следует, что переход  $A(G \leftrightarrow E)$  является запрещенным. Однако наряду со спутниками запрещенных переходов (СЗП) в спектрах смесей атомарных газов с  $CF_4$  наблюдаются также спутники резонансных переходов (СРП). Впервые СРП были обнаружены в спектрах смеси Xe и  $CF_4$  в области вакуумного ультрафиолета [6]. Недавние исследования [5, 7] выявили спутники главного резонансного дублета атомов щелочных металлов (АЩМ),



где A = Na, K, Rb, Cs. Аналогично случаю СЗП, дипольный момент перехода (4) обусловлен взаимодействием состояний, в результате которого волновая функция верхнего состояния перехода имеет примесь волновой функции некоего состояния, которое связано оптически с нижним состоянием. Однако, в отличие от СЗП, в данном случае ДДВ не может привести к появлению таких «резонансных примесей», причем это справедливо в любом порядке теории возмущений. Действительно, ДДВ связывает верхнее состояние (4) с состояниями типа  $A(\dots s \ ^2S_{1/2}$  или  $\dots d \ ^2D_{3/2,5/2}) CF_4(\nu_3 = 0)$  (для краткости индекс главного квантового числа опущен), которые, в свою очередь, связаны с состояниями типа  $A(\dots s \ ^2P_{1/2,3/2}) CF_4(\nu_3 = 1)$ , к которым относится верхнее состояние (4). Возможно также наличие «резонансных примесей» и в нижнем состоянии перехода (4). Например, оптическая связь с

верхним состоянием (4) возникнет при наличии примеси состояний типа  $A(\dots s^2S_{1/2})CF_4(\nu_3 = 1)$ . По аналогии со случаем верхнего состояния, не сложно убедиться, что ДДВ не может привести к появлению такой примеси.

Как показано в [7], ДДВ приводит к появлению примесей резонансных состояний во втором порядке теории возмущений при учете поляризации атома в поле молекулы. Действительно, если в электрическом поле молекулы резонансные состояния  $A(\dots p^2P_{1/2,3/2})$  приобретают примеси запрещенных состояний  $A(\dots s^2S_{1/2}$  или  $\dots d^2D_{3/2,5/2})$ , то механизм возникновения дипольного момента у СРП становится таким же как у СЗП.

В рассматриваемом механизме дипольный момент СРП возникает во втором порядке теории возмущений и его величина зависит от ДДВ состояний  $A(\dots d^2D_{3/2,5/2}$  или  $\dots s^2S_{1/2})CF_4(\nu_3 = 1)$  с резонансными состояниями  $A(\dots p^2P_{1/2,3/2})CF_4(\nu_3 = 0)$ . Оценки показывают, что в случае спутников главного резонансного дублета  $A(ns^2S_{1/2} \rightarrow np^2P_{1/2,3/2})$  определяющий вклад вносит взаимодействие с ближайшими по энергии состояниями  $A((n-1)d^2D_{3/2,5/2})$  и  $A((n+1)s^2S_{1/2})$ . В связи с этим представляет интерес вопрос о возможности наблюдать СЗП, отвечающие указанным состояниям,

$$A(ns^2S_{1/2}) + CF_4(\nu_3 = 0) + h\nu \rightarrow A((n-1)d^2D_{3/2,5/2}) + CF_4(\nu_3 = 1), \quad (5a)$$

$$A(ns^2S_{1/2}) + CF_4(\nu_3 = 0) + h\nu \rightarrow A((n+1)s^2S_{1/2}) + CF_4(\nu_3 = 1) \quad (5b)$$

( $A = K, Rb, Cs$  и  $n = 4, 5, 6$  соответственно). В отличие от СРП (4), дипольный момент СЗП (5) возникает уже в первом порядке теории возмущений. На основании этого можно ожидать, что при тех же самых экспериментальных условиях (концентрация АЦМ и  $CF_4$ ), при которых наблюдаются СРП (4), должны также наблюдаться и СЗП (5). Экспериментальная проверка этого вывода является основной задачей данной работы.

Следует отметить, что процесс типа (5а) наблюдался ранее для запрещенного перехода [8, 9]  $Na(3s^2S_{1/2} \rightarrow 3d^2D_{3/2,5/2})$ ,

$$Na(3s^2S_{1/2}) + CF_4(\nu_3 = 0) + h\nu \rightarrow Na(3d^2D_{3/2,5/2}) + CF_4(\nu_3 = 1). \quad (6)$$

Данный СЗП располагается примерно на  $180 \text{ см}^{-1}$  выше резонансного дублета  $Na(3s^2S_{1/2} \rightarrow 4p^2P_{1/2,3/2})$ , при этом состояния

$Na(3d^2D_{3/2,5/2})$  связаны с разрешенными переходами, имеющими сравнительно большой дипольный момент 10–15 ат. ед. Фактически в данном случае реализуется наиболее благоприятный сценарий для появления интенсивного спутника (см. выше).

Как показано в данной работе, переходы (5) наблюдаются и в спектрах смесей  $K, Rb$  и  $Cs$  с  $CF_4$ , но при этом резонансные состояния  $A(np^2P_{1/2,3/2})$ , взаимодействие с которыми приводит к появлению «резонансной примеси», располагаются на удалении  $\Delta \sim 10000 \text{ см}^{-1}$ , что значительно больше чем в случае СЗП (6). Отметим, что резонансные состояния  $A((n+1)p^2P_{1/2,3/2})$  располагаются несколько ближе,  $\Delta \sim 2000 \text{ см}^{-1}$ . Тем не менее их вклад в дипольный момент перехода (5) сравнительно мал, поскольку  $\mu_{(ns \leftrightarrow (n+1)p)} \ll \mu_{(ns \leftrightarrow np)}$ . В этом смысле СЗП (6) является особым случаем —  $(n+1)p$ -состояния  $Na(4p^2P_{1/2,3/2})$  располагаются на порядок ближе к верхнему состоянию данного спутника ( $\Delta \approx 180 \text{ см}^{-1}$ , см выше), вследствие чего взаимодействие с этими состояниями вносит определяющий вклад в дипольный момент.

Результаты исследования спектроскопии смесей АЦМ с  $CF_4$  могут представлять прикладной интерес — как отмечалось в работе [5],  $CF_4$  может оказаться перспективным для лазеров на переходах щелочных металлов в качестве компонента рабочей смеси (вместо  $CH_4$ ), ускоряющего процесс передачи заселенности между резонансными состояниями  $^2P_{1/2}$  и  $^2P_{3/2}$  (см. обзор [10] и ссылки в нем). Отметим также значительный интерес к  $CF_4$  в контексте исследований парникового эффекта [11].

## 2. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Смесь паров АЦМ с  $CF_4$  в нагретой кварцевой кювете возбуждалась излучением перестраиваемого импульсного лазера на красителе (Quantel TDL-90, накачка излучением третьей гармоники  $Nd:YAG$ -лазера Quantel YG 980E-10, длительность импульса около 10 нс). Переходы-спутники (5) регистрировались по резонансной люминесценции атомов на переходе  $A(np^2P_{1/2} \rightarrow ns^2S_{1/2})$ , возникавшей благодаря столкновительно-индуцированному заселению уровня  $A(np^2P_{1/2})$  из заселяемого лазером уровня  $A((n-1)d^2D_{3/2,5/2}$  или  $(n+1)s^2S_{1/2})$ . Люминесценция  $A(np^2P_{1/2} \rightarrow ns^2S_{1/2})$  регистрировалась под углом  $90^\circ$  относительно направления лазерного излучения с помощью монохроматора МУМ-1, за выходной щелью которого был установлен фотомножитель Hamamatsu R928. Для дополнительной

защиты системы регистрации от рассеянного излучения лазера использовались фильтры из цветного стекла и интерференционные фильтры с максимумом пропускания на длине волны указанного резонансного перехода.

Печка для нагревания кюветы была изготовлена из медной трубки. Торцы трубки были закрыты фланцами с кварцевыми окнами. В средней части трубки имелось отверстие для регистрации люминесценции. Остальная поверхность обматывалась стеклотканью, поверх которой наматывалась нихромовая проволока. Температура кюветы контролировалась термопарным датчиком Masteth M838. Согласно результатам выполненных нами калибровочных измерений с использованием ртутного термометра, точность показаний этого датчика в области температур  $T > 150^\circ\text{C}$  составляет  $\pm 3\%$ .

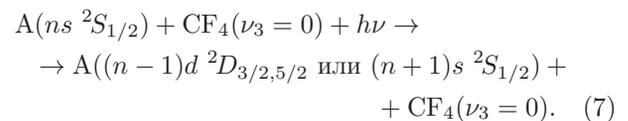
В данной работе использовались запаянные кюветы. Для наполнения щелочным металлом и  $\text{CF}_4$ , кювета подсоединялась к вакуумной системе через переходную трубку, припаянную к краю одного из торцевых окон. При этом в трубке находилась вскрытая ампула со щелочным металлом. В процессе откачки кювета несколько раз нагревалось тепловым феном для удаления воды и других адсорбированных на стенках газов. После откачки кювета наполнялась парами щелочного металла посредством нагрева феном переходной трубки с ампулой. Пары АЦМ конденсировались на охлаждаемые боковые стенки кюветы, образуя на них сплошную зеркальную пленку. Для охлаждения использовался смоченный водой асбест. Металл, который конденсировался на торцевые окна, удалялся нагревом. Далее кювета наполнялась  $\text{CF}_4$  до давления 0.8 атм и отпаивалась от вакуумной системы.

Интенсивность исследуемых парных переходов пропорциональна концентрации АЦМ и, соответственно, температуре кюветы. Однако при большой концентрации атомов наблюдалась их конденсация на торцевых окнах кюветы в виде пленки, в результате чего кювета становилась непрозрачной для возбуждающего излучения. Пленку оказалось достаточно сложно удалить с поверхности посредством нагревания: присутствие  $\text{CF}_4$  замедляло диффузию атомов в глубь кюветы и — что более критично — для разрушения пленки требовалась температура, при которой происходили химические реакции между щелочным металлом и  $\text{CF}_4$ . С учетом этих обстоятельств кювета нагревалась постепенно. Измерения спектров проводились при достижении температуры, при которой парные переходы наблюдались с приемлемым соотношением сигнал/шум. При

отключении питания нагревателя кюветы после завершения эксперимента АЦМ преимущественно адсорбировались на поверхность металлической пленки, покрывающей боковые стенки кюветы, так как энергия связи с металлом больше, чем с поверхностью кварца. Благодаря этому торцевые окна оставались чистыми и кювету можно было использовать многократно. Отметим, что ограничения с выбором температурного режима прежде всего связаны с использованием отпаянных кювет. Образование пленки на торцевых окнах, как правило, влекло за собой весьма трудоемкую работу по повторному наполнению кюветы. Для кюветы, подсоединенной к вакуумной системе, удаление пленки не представляло бы проблемы после откачки  $\text{CF}_4$ .

Переходы-спутники (5) располагаются в спектральной области от 440 нм ( $A = \text{K}$ ) до 630 нм ( $A = \text{Cs}$ ). В данной работе мы ограничились исследованием сравнительно узких спектральных областей, включающих асимптотические энергии переходов (5). Фактически эксперимент сводился к подтверждению наличия полосы в ожидаемой области спектра. Для разных атомов требовались разные лазерные красители:  $\text{K} - \text{C-120}$ ,  $\text{Rb} - \text{C-102}$ ,  $\text{Cs} - \text{DCM}$  и  $\text{C-307}$  для переходов (5a) и (5b) соответственно. Как правило, спектры возбуждения измерялись во всей области перестройки длины волны лазерного излучения, доступной для выбранного красителя.

Наряду с (5) представляют также интерес другие переходы в спектрах смесей АЦМ с  $\text{CF}_4$  и, в частности, переходы, отвечающих возбуждению атома в запрещенное состояние  $(n-1)d^2D_{3/2,5/2}$ , или  $(n+1)s^2S_{1/2}$  без изменения колебательного состояния молекулы:



Переходы этого типа в спектрах смесей АЦМ с инертными газами хорошо известны (см., например, обзор [2]). Их появление обусловлено столкновительно-индуцированным нарушением правил отбора. В данной работе переходы (7) наблюдались в спектре смеси  $\text{Rb}$  с  $\text{CF}_4$ . Благодаря стечению обстоятельств, энергии этих переходов оказались в спектральной области, которая исследовалась в связи с поиском переходов-спутников (5). Для других атомов целенаправленных исследований переходов (7) не проводилось.

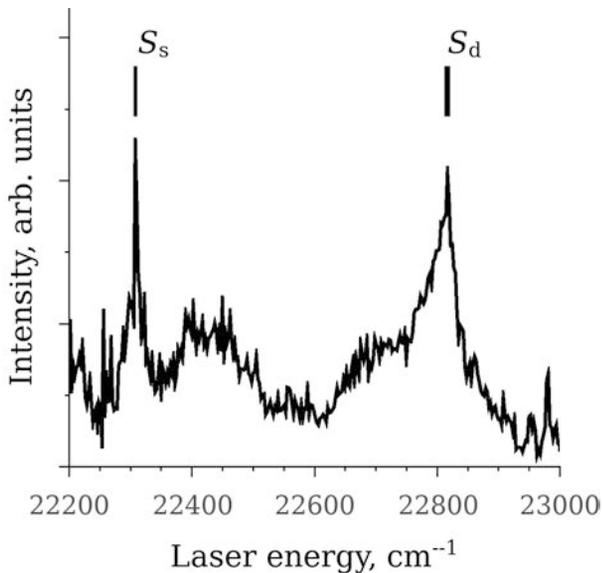


Рис. 1. Спектр возбуждения люминесценции на переходе  $K(4p\ ^2P_{1/2} \rightarrow 4s\ ^2S_{1/2})$  в смеси паров атомов К с  $CF_4$  ( $[CF_4] = 1.9 \cdot 10^{19}\text{ см}^{-3}$ ) при температуре  $T = 258^\circ\text{C}$ . Вертикальные линии  $S_s$  и  $S_d$  отвечают асимптотическим энергиям состояний  $K(5s\ ^2S_{1/2}) + CF_4(\nu_3 = 1)$  и  $K(3d\ ^2D_{3/2,5/2}) + CF_4(\nu_3 = 1)$  соответственно (различие энергий состояний  $K(3d\ ^2D_{3/2,5/2})$  составляет  $2.3\text{ см}^{-1}$ , поэтому соответствующие асимптоты в масштабе рисунка неразличимы)

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1, 2 и 4 представлены спектры возбуждения резонансной люминесценции  $A(np\ ^2P_{3/2} \rightarrow ns\ ^2S_{1/2})$  в смесях паров АЩМ с  $CF_4$  при сканировании частоты лазера в спектральной области, включающей СЗП из основного состояния в состояния  $A((n-1)d\ ^2D_{3/2,5/2})$  и  $A((n+1)s\ ^2S_{1/2})$ . Как можно видеть, положение полосы  $S_d$  совпадает с суммой энергий состояния  $A((n-1)d\ ^2D_{3/2,5/2})$  и  $\nu_3$ -кванта  $CF_4$ . На основании этого можно заключить, что  $S_d$  соответствуют процессу парного возбуждения (5а). В свою очередь,  $S_s$  соответствуют процессу (5b). Обсудим полученные результаты более подробно для каждого из исследованных щелочных металлов.

#### 3.1. Атом К

На рис. 1 представлен спектр возбуждения люминесценции на переходе  $K(4p\ ^2P_{1/2} \rightarrow 4s\ ^2S_{1/2})$  в смеси паров атомов К с  $CF_4$  ( $[CF_4] = 1.9 \cdot 10^{19}\text{ см}^{-3}$ ) при температуре  $T = 258^\circ\text{C}$ . Вертикальные линии  $S_s$  и  $S_d$  отвечают асимптотическим энергиям состояний  $K(5s\ ^2S_{1/2}) + CF_4(\nu_3 = 1)$  и

$K(d\ ^2D_{3/2,5/2}) + CF_4(\nu_3 = 1)$  соответственно (различие энергий состояний  $K(3d\ ^2D_{3/2,5/2})$  составляет  $2.3\text{ см}^{-1}$ , поэтому соответствующие асимптоты в масштабе рисунка неразличимы). Отметим, что данный спектр измерялся неоднократно, и на основании полученных результатов можно утверждать, что СЗП  $S_d$  и  $S_s$  сравнимы по интенсивности. Для получения численного значения отношения интенсивностей, а также для сравнения спектральной формы этих СЗП требуется более качественный спектр с лучшим соотношением сигнал-шум. Интенсивность сигнала определяется прежде всего концентрацией атомов К. К сожалению, при повышении температуры выше указанной (с целью увеличения концентрации атомов К) смесь становится химически нестабильной.

#### 3.2. Атом Rb

Наряду со спутниками  $S_d$  и  $S_s$  в спектре смеси  $Rb + CF_4$  (рис. 2) наблюдается еще несколько полос, причем одна из них перекрывается с  $S_d$ . Для сравнения на рис. 2 показан также спектр смеси с  $Ar$ . Для отнесения переходов в спектрах обратимся к литературным данным.

Согласно работам [12, 13], полоса с максимумом вблизи  $20170\text{ см}^{-1}$  соответствует переходу из основного состояния квазимолекулы (столкновительной пары)  $RbAr$  в состояние, коррелирующее с состоянием  $Rb(6s\ ^2S_{1/2})$ . Спектральное положение соответствующего перехода, который запрещен в изолированном атоме рубидия, но становится разрешенным в процессе столкновения с атомом аргона, показано вертикальным отрезком вблизи оси энергии.

Широкая полоса в области  $20300\text{--}21350\text{ см}^{-1}$  обусловлена наличием в газовой смеси димеров  $Rb_2$  и отвечает переходу  $Rb_2(X\ ^1\Sigma_g^+ \rightarrow 2\ C\ ^1\Pi_u)$ , верхнее состояние которого  $C\ ^1\Pi_u$  коррелирует с  $Rb(4d\ ^2D_{3/2}) + Rb(5s\ ^2S_{1/2})$  [14]. При возбуждении молекул  $Rb_2$  в области перехода  $Rb_2(X\ ^1\Sigma_g^+ \rightarrow 2\ C\ ^1\Pi_u)$  наблюдалась  $D_2$ -линия рубидия, что объясняется преддиссоциацией состояния  $2\ C\ ^1\Pi_u$  отталкивательным триплетным состоянием  $3\Sigma_u^+$ , сходящимся к пределу  $Rb(5p\ ^2P_{3/2}) + Rb(5s\ ^2S_{1/2})$  [14] (см. также обсуждение механизма преддиссоциации в работах [15, 16]). Отметим, что в работе [14] для получения молекул  $Rb_2$  использовался метод молекулярного пучка, что исключает столкновительные процессы передачи возбуждения между компонентами тонкой структуры. В нашем эксперименте появление люминесценции на длине волны линии  $D_1$

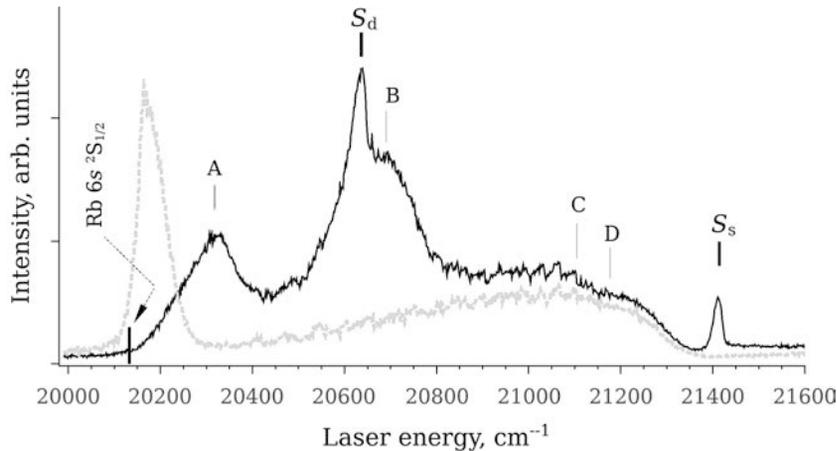


Рис. 2. (В цвете онлайн) Спектр возбуждения люминесценции на переходе  $\text{Rb}(5p\ ^2P_{1/2} \rightarrow 5s\ ^2S_{1/2})$  в смеси паров атомов Rb с  $\text{CF}_4$  (сплошная черная линия) и Ar (штриховая зеленая),  $([\text{CF}_4] = [\text{Ar}] = 1.9 \times 10^{19}\ \text{см}^{-3})$ ,  $T = 189^\circ\text{C}$ . Вертикальные линии  $S_s$  и  $S_d$  соответствуют асимптотическим энергиям состояний  $\text{Rb}(6s\ ^2S_{1/2}) + \text{CF}_4(\nu_3 = 1)$  и  $\text{Rb}(4d\ ^2D_{3/2,5/2}) + \text{CF}_4(\nu_3 = 1)$  (различие энергий состояний  $\text{Rb}(4d\ ^2D_{3/2,5/2})$  составляет  $0.5\ \text{см}^{-1}$ ). Вертикальные линии A, B, C, D соответствуют частотам, на которые настраивался лазер при измерении временных зависимостей сигнала люминесценции (рис. 3). Показано также положение оптически запрещенного состояния  $\text{Rb}(6s\ ^2S_{1/2})$

рубидия при возбуждении в области перехода  $\text{Rb}_2(X\ ^1\Sigma_g^+ \rightarrow 2C\ ^1\Pi_u)$  обусловлено столкновительными процессами (см. следующий раздел).

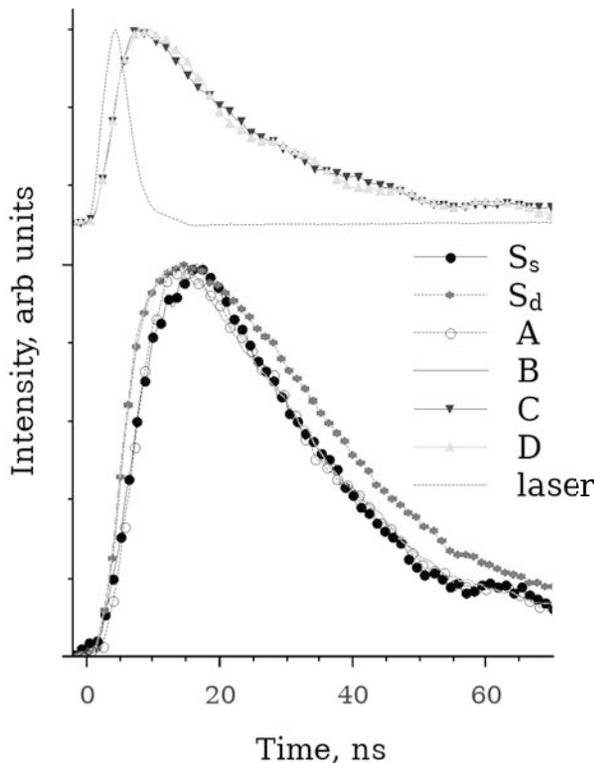
### 3.2.1. Кинетика люминесценции смеси паров рубидия с $\text{CF}_4$

На рис. 3 представлены результаты измерения зависимостей интенсивности сигнала от времени при возбуждении на частотах  $\nu_{S_d}$  и  $\nu_{S_s}$ , отвечающих положению переходов-спутников  $S_d$  и  $S_s$ , а также на частотах  $\nu_A$ ,  $\nu_B$ ,  $\nu_C$  и  $\nu_D$ , отмеченных на рис. 2 тонкими вертикальными линиями. Во всех случаях люминесценция регистрировалась на длине волны линии  $D_1$  рубидия. Для сравнения на рис. 3 также показан импульс возбуждающего лазерного излучения. Как следует из рис. 3, импульсы сигнала люминесценции при возбуждении на частотах  $\nu_C$  и  $\nu_D$  имеют одинаковую форму, при этом интенсивность сигнала достигает максимума к концу импульса лазера, тогда как при возбуждении на других частотах максимум достигается с некоторой задержкой. Частоты  $\nu_C$  и  $\nu_D$  приходятся на область перехода  $\text{Rb}_2(X\ ^1\Sigma_g^+ \rightarrow 2C\ ^1\Pi_u)$ . Как отмечалось выше, состояние  $2C\ ^1\Pi_u$  преддиссоциировано отталкивательным состоянием  $^3\Sigma_u^+$ , распадающимся на  $\text{Rb}(5p\ ^2P_{3/2})$  и  $\text{Rb}(5s\ ^2S_{1/2})$ . Согласно [17], сечение процесса передачи заселенности  $\text{Rb}(5p\ ^2P_{3/2}) + \text{CF}_4 \leftrightarrow \text{Rb}(5p\ ^2P_{1/2}) + \text{CF}_4$  составляет около  $10\ \text{\AA}$ . В условиях нашего эксперимента ( $[\text{CF}_4] = 1.9 \cdot 10^{19}\ \text{см}^{-3}$ )

при таком сечении процесса термодинамически равновесная заселенность состояний тонкой структуры устанавливается за время менее 1 нс, что существенно меньше длительности лазерного импульса. Как следствие этого, при возбуждении в полосе перехода  $\text{Rb}_2(X\ ^1\Sigma_g^+ \rightarrow 2C\ ^1\Pi_u)$  максимум интенсивности сигнала люминесценции  $\text{Rb}(5p\ ^2P_{1/2})$  достигается к концу лазерного импульса.

Переход-спутник  $S_s$  располагается в спектральной области, в которой нет перекрытия с другими переходами (рис. 2), поэтому при настройке лазера на частоту  $\nu_{S_s}$  заселяется только состояние  $\text{Rb}(6s\ ^2S_{1/2})$ . Как видно на рис. 3, сигналы люминесценции при возбуждении на частотах  $\nu_{S_s}$  и  $\nu_A = 20280\ \text{см}^{-1}$  имеют приблизительно одинаковую временную зависимость (волнистая структура в области максимума сигнала появляется после вычитания фонового сигнала, регистрируемого при заблокированном луче лазера). Таким образом, поглощение излучения на частоте  $\nu_A = 20280\ \text{см}^{-1}$  также приводит к заселению состояния  $\text{Rb}(6s\ ^2S_{1/2})$ . Полоса  $20280\ \text{см}^{-1}$ , вероятно, соответствует переходу типа (7) и является аналогом полосы  $20170\ \text{см}^{-1}$  в смеси с Ar (рис. 2). Однако для подтверждения этого вывода необходимы дополнительные исследования.

В отличие от  $S_s$ , спутник  $S_d$  перекрывается с широкой и интенсивной полосой, максимум которой располагается вблизи  $20700\ \text{см}^{-1}$ . Временные зависимости интенсивности сигналов на частотах  $\nu_{S_d}$  и



**Рис. 3.** (В цвете онлайн) Временные зависимости сигнала люминесценции на переходе  $\text{Rb}(5p\ ^2P_{1/2} \rightarrow 5s\ ^2S_{1/2})$  в смеси паров  $\text{Rb}$  с  $\text{CF}_4$  ( $[\text{CF}_4] = 1.9 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ),  $T = 189^\circ \text{C}$ . Частоты возбуждающего лазерного излучения отмечены на рис. 2 вертикальными линиями  $S_s, S_d, A, B, C, D$ . Показана также временная зависимость интенсивности возбуждающего лазерного излучения

$\nu_B$  различаются (рис. 3), что свидетельствует о заселении различных состояний столкновительной пары  $\text{Rb}-\text{CF}_4$  или (что более вероятно с учетом частичного перекрытия полос  $S_d$  и  $B$ ) заселении тех же самых групп возбужденных состояний, но в разной пропорции. Более подробно полоса  $20700 \text{ см}^{-1}$  (полоса  $B$ ) обсуждается в следующем разделе.

Обратим также внимание на различие в форме импульса люминесценции при возбуждении на частотах спутников  $S_d$  и  $S_s$ . Как можно видеть на рис. 3, при возбуждении на частоте  $S_d$  интенсивность сигнала нарастает быстрее и, после достижения максимума, убывает несколько медленнее, чем при возбуждении на частоте спутника  $S_s$ . Качественно более быстрый рост сигнала может быть объяснен относительным расположением состояний: между  $\text{Rb}(4d\ ^2D_{3/2,5/2})$  и резонансными состояниями  $\text{Rb}(5p\ ^2P_{1/2,3/2})$  нет других состояний атома, поэтому заселение  $\text{Rb}(5p\ ^2P_{1/2,3/2})$  из  $\text{Rb}(4d\ ^2D_{3/2,5/2})$  возможно только в результате прямого процесса

$\text{Rb}(4d\ ^2D_{3/2,5/2}) + \text{CF}_4 \rightarrow \text{Rb}(5p\ ^2P_{1/2,3/2}) + \text{CF}_4$ , тогда как при заселении резонансных состояний из  $\text{Rb}(6s\ ^2S_{1/2})$  возможен как прямой, так и каскадный механизм релаксации с заселением  $\text{Rb}(4d\ ^2D_{3/2,5/2})$  на промежуточной стадии.

### 3.3. Атом Cs

Вследствие сравнительно большого расщепления между состояниями  $\text{Cs}(5d\ ^2D_{3/2})$  и  $\text{Cs}(5d\ ^2D_{5/2})$ , соответствующие СЗП наблюдаются как отдельные полосы  $S_{d3/2}$  и  $S_{d5/2}$  (рис. 4а). Отношение интегральных интенсивностей составляет  $I(S_{d5/2})/I(S_{d3/2}) \approx 1.7$ . Полосы имеют приблизительно одинаковую форму с полушириной  $\text{FWHM} \approx 16 \text{ см}^{-1}$  и несколько затянутым коротковолновым крылом.

В отличие от спутников  $S_d$ , спутник  $S_s$  представляет собой симметричную полосу (рис. 4б). Отметим, что фоновый сигнал в спектральной области, в которой располагается спутник  $S_s$ , имеет приблизительно одинаковый уровень, тогда как в области спутников  $S_d$  наблюдается структурный фон, состоящий из сравнительно широких полос, происхождение которых остается неизвестным. Для исследования всей спектральной области, в которой располагаются спутники  $S_d$  и  $S_s$  атома  $\text{Cs}$ , требуются два разных красителя. Смена красителя сопровождается изменением ряда параметров эксперимента, влияющих на интенсивность регистрируемого сигнала (в частности, изменяется положение лазерного луча относительно бокового окна кюветы, которое используется для регистрации люминесценции), что затрудняет определение величины отношения интенсивностей спутников  $S_d$  и  $S_s$ . Проведение более детальных исследований для определения величины этого соотношения не входило в задачи данной работы.

### 4. ОБСУЖДЕНИЕ

В соответствии с ожиданиями (см. Введение), проведенные в данной работе исследования спектров смесей атомов АЩМ с  $\text{CF}_4$  выявили наличие переходов-спутников, отвечающих процессам (5). Некоторые результаты заслуживают более подробного обсуждения. Отметим, в частности, следующее.

Согласно сделанному в разд. 3.2 отнесению полос в спектре смеси  $\text{Rb}$  с  $\text{CF}_4$  (см. рис. 2), полоса  $20280 \text{ см}^{-1}$  соответствует переходу в состояние, коррелирующее с  $\text{Rb}(6s\ ^2S_{1/2}) + \text{CF}_4(\nu_3 = 0)$ . Этот

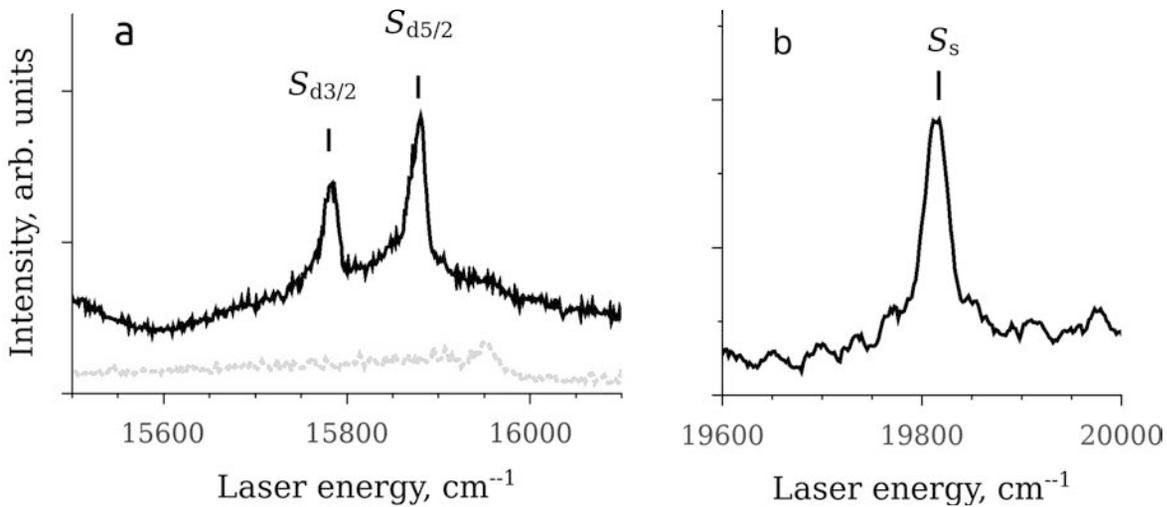


Рис. 4. (В цвете онлайн) а) Спектр возбуждения люминесценции на переходе  $Cs(6p\ ^2P_{1/2} \rightarrow 6s\ ^2S_{1/2})$  в смеси паров атомов Cs с  $CF_4$  (сплошная черная линия) и Ar (штриховая зеленая),  $[CF_4] = [Ar] = 1.9 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ , температура смеси  $T = 180^\circ\text{C}$ . Вертикальные линии  $S_{d3/2}$  и  $S_{d5/2}$  отвечают асимптотическим энергиям состояний  $Cs(5d\ ^2D_{3/2,5/2}) + CF_4(\nu_3 = 1)$ . б) Спектр возбуждения люминесценции той же самой смеси с  $CF_4$  при  $T = 172^\circ\text{C}$  в другой спектральной области. Вертикальная линия  $S_s$  отвечает асимптотической энергии состояния  $Cs(7s\ ^2S_{1/2}) + CF_4(\nu_3 = 1)$

асимптотически запрещенный переход является «родительским» по отношению спутнику  $S_s$ . Появление этой полосы в спектре обусловлено снятием оптического запрета в результате взаимодействия атома с молекулой. Это также справедливо и для асимптотически запрещенных переходов-спутников. Отличие «родительского» перехода от его спутника как по форме полосы, так и по величине ее смещения от асимптотической энергии перехода объясняется разными механизмами появления примесей резонансных состояний в волновой функции верхнего состояния этих переходов. Верхнее состояние спутника  $Rb(6s\ ^2S_{1/2})CF_4(\nu_3 = 1)$  связано с резонансными состояниями  $Rb(5p\ ^2P_{3/2,1/2})CF_4(\nu_3 = 0)$  дальнедействующим ДДВ, тогда как в случае верхнего состояния «родительского» перехода  $Rb(6s\ ^2S_{1/2})CF_4(\nu_3 = 0)$  такое взаимодействие отсутствует и подмешивание резонансного состояния происходит при сравнительно малых межъядерных расстояниях в результате взаимодействия иной природы. В частности, состояние  $Rb(6s\ ^2S_{1/2})$  может приобрести примеси резонансных состояний  $Rb(5p\ ^2P_{3/2,1/2})$  в электрическом поле октупольного момента, которым обладает молекула  $CF_4$  [18]. Отметим, что, по сравнению с диполем, поле октуполя значительно быстрее убывает с расстоянием,  $1/R^3$  и  $1/R^5$  соответственно.

Представляет также интерес вопрос о происхождении полосы  $20700\ \text{см}^{-1}$  в спектре смеси Rb с  $CF_4$  (см. рис. 2). В работе [19] представлены результаты неэмпирических расчетов потенциалов взаимодействия молекулы  $CF_4$  с атомом Rb в основном  $5s\ ^2S_{1/2}$  и возбужденных  $5p\ ^2P_{1/2,3/2}$  состояниях. Исследовались две геометрии расположения атома относительно молекулы — на стороне ее вершины и на стороне основания, образованного тремя атомами F; в обоих случаях атом Rb находился на оси симметрии молекулы, проходящей через атом F в вершине, центральный атом C и центр «треугольника», образованного тремя атомами F. Расчеты выявили значительное влияние геометрического фактора на характер взаимодействия (вплоть до перехода от притяжения к отталкиванию для некоторых электронных состояний). Следствием зависимости потенциала от геометрического фактора является большая спектральная ширина переходов (по сравнению со случаем двухатомной молекулы RbAr). С учетом этого нельзя исключить, что полоса  $20700\ \text{см}^{-1}$ , как и полоса  $20280\ \text{см}^{-1}$ , также относится к переходу в состояние, сходящееся к  $Rb(6s\ ^2S_{1/2}) + CF_4(\nu_3 = 0)$ . К этому следует добавить, что дипольный момент этого асимптотически запрещенного перехода «по определению» сильно зависит от межъядерного расстояния, что может оказать существенное влияние

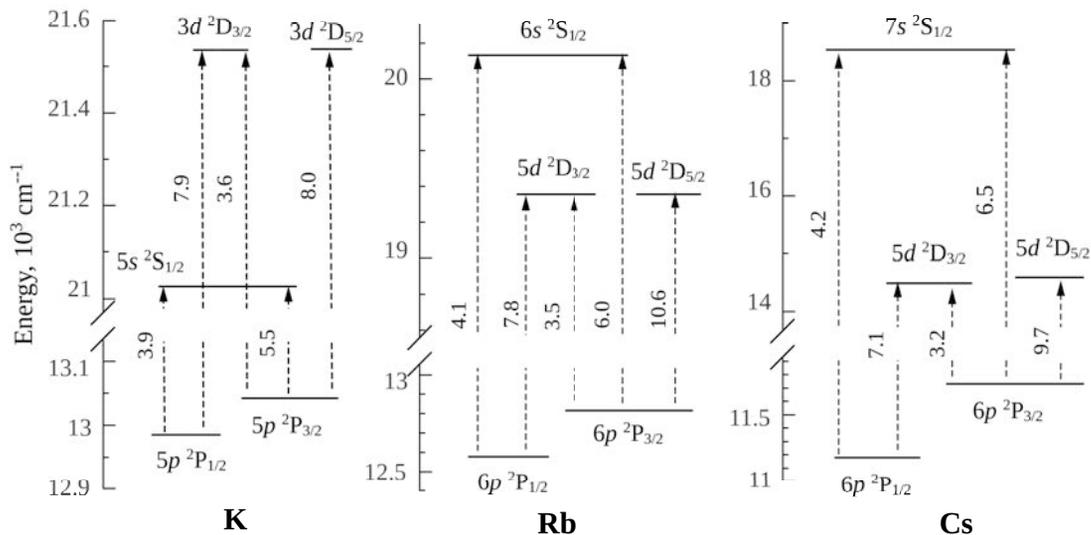


Рис. 5. Энергии состояний  $np \ ^2P_{1/2,3/2}$ ,  $(n-1)d \ ^2D_{3/2,5/2}$  и  $(n+1)s \ ^2S_{1/2}$  атомов К ( $n = 4$ ), Rb ( $n = 5$ ) и Cs ( $n = 6$ ). Стрелками показаны разрешенные оптические переходы. Рядом со стрелкой приводится дипольный момент перехода в единицах  $a_0e$ , где  $a_0$  — борковский радиус, а  $e$  — заряд электрона [21]

на распределение интенсивности в спектре перехода.

Для однозначного отнесения полосы  $20700 \text{ см}^{-1}$  требуется дальнейшее исследование электронной структуры молекулы  $\text{RbCF}_4$  и, в частности, расчет потенциалов состояний, коррелирующих с близлежащими (разность энергий  $\Delta \approx 780 \text{ см}^{-1}$ , см. рис. 5) состояниями  $\text{Rb}(6s \ ^2S_{1/2})$  и  $\text{Rb}(4d \ ^2D_{3/2,5/2})$ , а также функций дипольного момента оптических переходов в эти асимптотически запрещенные состояния при разных геометриях расположения атома и молекулы.

В заключение рассмотрим вопрос об относительной интенсивности спутников  $S_d$  и  $S_s$ . В нулевом приближении волновые функции молекулы  $\text{ACF}_4$  могут быть представлены в виде произведения электронных волновых функций атома А и колебательных волновых функций молекулы. В первом порядке теории возмущений волновая функция данного состояния молекулы приобретает примеси состояний, с которыми данное состояние связано ДДВ. Для определенности рассмотрим волновую функцию состояния молекулы  $\text{RbCF}_4$ , которое коррелирует с  $\text{Rb}(6s \ ^2S_{1/2}) + \text{CF}_4(\nu_3 = 1)$ , и ограничимся рассмотрением примесей, обусловленных ДДВ этого состояния с резонансными состояниями  $\text{RbCF}_4$ , коррелирующими с  $\text{Rb}(5p \ ^2P_{1/2,3/2})$ .

В первом порядке теории возмущений волновая функция этого состояния имеет вид

$$\Psi^I(\text{Rb}(6s \ ^2S_{1/2}), \text{CF}_4(\nu_3 = 1)) =$$

$$= c_0 \Psi(\text{Rb}(6s \ ^2S_{1/2})) \Psi(\text{CF}_4(\nu_3 = 1)) + c_{R_1} \Psi(\text{Rb}(5p \ ^2P_{1/2})) \Psi(\text{CF}_4(\nu_3 = 0)) + c_{R_2} \Psi(\text{Rb}(5p \ ^2P_{3/2})) \Psi(\text{CF}_4(\nu_3 = 0)), \quad (8)$$

где  $c_0 \approx 1$ , а коэффициенты  $c_{R_n} \ll 1$  определяются отношением матричного элемента ДДВ к величине энергетического зазора между взаимодействующими состояниями. Например, для коэффициента  $c_{R_1}$  можно записать

$$c_{R_1} = \frac{\mu_{(6s \leftrightarrow 5p_{1/2})} \mu_{\nu_3} \Phi(\Theta)}{R^3 \hbar(\omega_{S_s} - \omega_{5p_{1/2}})}, \quad (9)$$

где  $\mu_{(6s \leftrightarrow 5p_{1/2})}$  и  $\mu_{\nu_3}$  — дипольные моменты переходов в атоме и молекуле,  $\Phi(\Theta)$  — параметр, зависящий от относительной ориентации взаимодействующих диполей, а

$$\hbar(\omega_{S_s} - \omega_{5p_{1/2}}) = E(6s \ ^2S_{1/2}) + \hbar\nu_3 - E(5p \ ^2P_{1/2})$$

— «отстройка» энергии спутника  $S_s$  от энергии резонансного перехода  $\text{Rb}(5p \ ^2P_{1/2} \leftrightarrow 5s \ ^2S_{1/2})$ . Аналогичное выражение можно записать для коэффициента  $c_{R_2}$ .

Дипольный момент оптического перехода из основного состояния молекулы  $\text{RbCF}_4$  в состояние (8) определяется выражением

$$\mu_{S_s} = \frac{\mu_{(5s \leftrightarrow 5p_{1/2})} \mu_{(6s \leftrightarrow 5p_{1/2})} \mu_{\nu_3} \Phi(\Theta)}{\hbar(\omega_{S_s} - \omega_{5p_{1/2}}) R^3} + \frac{\mu_{(5s \leftrightarrow 5p_{3/2})} \mu_{(6s \leftrightarrow 5p_{3/2})} \mu_{\nu_3} \Phi(\Theta)}{\hbar(\omega_{S_s} - \omega_{5p_{3/2}}) R^3}. \quad (10)$$

Аналогичные выражения можно получить для дипольных моментов переходов-спутников  $S_d$ . При этом выражение для дипольного момента спутника  $S_{d5/2}$  содержит только одно слагаемое, так как состояние  $\text{Rb}(4d^2D_{5/2})$  связано оптически только с резонансным состоянием  $\text{Rb}(5p^2P_{3/2})$ :

$$\mu_{S_{d5/2}} = \frac{\mu_{(5s \leftrightarrow 5p_{3/2})} \mu_{(4d_{5/2} \leftrightarrow 5p_{3/2})} \mu_{\nu_3} \Phi(\Theta)}{\hbar(\omega_{S_{d5/2}} - \omega_{5p_{3/2}}) R^3}. \quad (11)$$

Спутники  $S_d$  и  $S_s$  относятся к процессам типа (2). Подход к описанию этих процессов по сути аналогичен хорошо изученным процессам типа (1). Используя результаты работ [1, 20], для сечения поглощения в максимуме полосы  $S_{d5/2}$  можно записать

$$\sigma_{S_{d5/2}} = \frac{2\pi}{\hbar^4} \left( \frac{\mu_{(5s \leftrightarrow 5p_{3/2})} \mu_{(4d_{5/2} \leftrightarrow 5p_{3/2})} \mu_{\nu_3}}{\omega_{S_{d5/2}} - \omega_{5p_{3/2}}} \frac{E}{v_{av} \rho_0} \right)^2, \quad (12)$$

где  $E$  — напряженность электрического поля лазера на частоте СЗП,  $v_{av}$  — средняя скорость движения атома, а  $\rho_0 = (3C_6/8\hbar v_{av})^{1/5}$  — радиус Вейскопфа, где  $C_6$  — коэффициент при слагаемом  $1/R^6$  в разложении по степеням  $R$  потенциала конечного состояния (при этом потенциал начального состояния полагается не зависящим от  $R$ ; в общем случае  $\rho_0$  зависит от разности потенциалов начального и конечного состояний [1]).

Как следует из выражения (12), сечение поглощения  $\sigma_{S_{d5/2}}$  пропорционально квадрату отношения произведения дипольных моментов трех переходов к величине отстройки частоты СЗП от резонансной линии  $D_2$ ,

$$\sigma_{S_{d5/2}} \propto \alpha_{S_{d5/2}} = \left( \frac{\mu_{(5s \leftrightarrow 5p_{3/2})} \mu_{(4d_{5/2} \leftrightarrow 5p_{3/2})} \mu_{\nu_3}}{\omega_{S_{d5/2}} - \omega_{5p_{3/2}}} \right)^2. \quad (13)$$

Согласно выражению (10) дипольный момент спутника  $S_s$  определяется суммой вкладов от ДДВ с обоими резонансными состояниями. Это также справедливо и для спутника  $S_{d3/2}$ . Соответствующие расчеты показывают, что параметры  $\alpha_{S_{d5/2}}$ ,  $\alpha_{S_{d3/2}}$ ,  $\alpha_S$  относятся как 1 : 1.3 : 1.2 (К), 2.9 : 2.3 : 1.7 (Rb) и 9.8 : 6.3 : 2.4 (Cs).

Приведенные выше соотношения получены с использованием известных из литературы величин дипольных моментов переходов в атомах щелочных металлов [21]. На рис. 5 показаны энергии и дипольные моменты переходов между состояниями

$np^2P_{1/2,3/2}$ ,  $(n-1)d^2D_{3/2,5/2}$  и  $(n+1)s^2S_{1/2}$  атомов К ( $n=4$ ), Rb ( $n=5$ ), Cs ( $n=6$ ). Как можно видеть, дипольные моменты соответствующих переходов в разных атомах имеют близкие значения. Возрастающее  $\alpha$  в ряду К, Rb и Cs прежде всего обусловлено уменьшением энергетического зазора между верхними состояниями СЗП и резонансными состояниями главного дублета. Отметим также, что различие величин  $\alpha_{S_{d5/2}}$ ,  $\alpha_{S_{d3/2}}$ ,  $\alpha_S$  для данного атома сравнительно невелико. Это согласуется с экспериментальными данными. В частности, в согласии с расчетом интенсивности спутников  $S_d$  и  $S_s$  в спектре смеси К с  $\text{CF}_4$  (см. рис. 1) близки. Показателен также и тот факт, что для атома Cs величина отношения  $\alpha_{S_{d5/2}}/\alpha_{S_{d3/2}} \approx 1.4$  близка к экспериментальному значению отношения интенсивностей  $I_{S_{d5/2}}/I_{S_{d3/2}} \approx 1.7$  (см. разд. 3.3). Приведенные выше оценки относительной интенсивности спутников не учитывают зависимость сечения от параметра  $\rho_0$ . Отметим, что если различие энергий верхнего состояния перехода-спутника и резонансного состояния сравнимо с энергией ДДВ, то поведение потенциалов этих состояний при больших расстояниях между частицами определяется взаимодействием этого типа и, соответственно, величина  $C_6$  может быть определена из соотношения  $C_6 = (4/3)\mu_1^2\mu_2^2/\hbar\Delta\omega$ , где  $\mu_1, \mu_2$  — дипольные моменты и  $\hbar\Delta\omega$  — разность энергий взаимодействующих состояний [20]. Спутники  $S_d$  и  $S_s$  не удовлетворяют этому условию, так как резонансные состояния находятся на огромном удалении (в масштабе энергии ДДВ). Для расчета  $C_6$  требуется более детальные данные о потенциалах верхнего и нижнего состояний СЗП. Такие данные могут быть получены с использованием неэмпирических методов квантовой химии.

В заключение отметим, что при выводе соотношений (10) и (11) учитывались вклады только от резонансных состояний главного дублета. Однако такое приближение оправдано, так как дипольные моменты переходов из основного состояния  $A(ns^2S_{1/2})$  в резонансные состояния  $A((n+k)p^2P_{1/2,3/2}, k > 0)$  быстро уменьшаются с ростом главного квантового числа. Например, дипольный момент перехода  $\text{Rb}(5s^2S_{1/2} \leftrightarrow (5+k)p^2P_{1/2})$  равен 4.5, 0.11, 0.013 в единицах  $a_0e$  соответственно для  $k=0, 1, 2$  [21].

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В спектрах возбуждения резонансной люминесценции атомов К, Rb и Cs в смеси с  $\text{CF}_4$  обнаружены переходы-спутники, отвечающие

возбуждению атома в оптически запрещенные состояния  $(n - 1)d^2D_{3/2,5/2}$  или  $(n + 1)s^2S_{1/2}$ , где  $n = 4, 5, 6$  для К, Rb, Cs соответственно, с одновременным возбуждением колебаний молекулы  $CF_4$  на частоте ИК-активной моды  $\nu_3$  с энергией кванта  $1283 \text{ см}^{-1}$ . Дипольный момент этих асимптотически ( $R_{A-CF_4} \rightarrow \infty$ ) запрещенных переходов обусловлен взаимодействием дипольных моментов разрешенных оптических переходов  $np^2P_{1/2,3/2} \leftrightarrow (n - 1)d^2D_{3/2,5/2}$ ,  $np^2P_{1/2,3/2} \leftrightarrow (n + 1)s^2S_{1/2}$  в атоме с дипольным моментом перехода  $\nu_3 = 0 \leftrightarrow \nu_3 = 1$  в молекуле  $CF_4$ , в результате которого верхние состояния переходов-спутников приобретают примеси резонансных состояний  $A(np^2P_{1/2,3/2})CF_4(\nu_3 = 0)$ .

Проведенные в данной работе исследования спектров К и Cs в смеси с  $CF_4$  по сути ограничиваются демонстрацией наличия переходов-спутников. Для смеси Rb +  $CF_4$  получен ряд дополнительных результатов. В частности, для перехода Rb( $5s^2S_{1/2} \leftrightarrow 4s^2S_{1/2}$ ) в спектрах наблюдался не только его спутник, но и сама полоса, отвечающая данному запрещенному переходу. Отметим также результаты исследования временных зависимостей сигналов резонансной люминесценции Rb в смеси с  $CF_4$  при возбуждении на разных частотах, включая частоты спутников  $S_d$  и  $S_s$ . Аналогичные результаты могут быть получены и для атомов К и Cs.

Дальнейшие спектроскопические исследования смесей щелочных металлов с  $CF_4$ , а также исследования кинетики релаксационных процессов в этих смесях при оптическом возбуждении, несомненно, представляют интерес. Для интерпретации результатов исследования и расчета сечений оптических переходов, включая переходы-спутники, необходимы надежные данные об электронной структуре молекул  $ACF_4$  и, в частности, потенциалы электронных состояний, которые сходятся к состояниям  $(n - 1)d^2D_{3/2,5/2}$  и  $(n + 1)s^2S_{1/2}$  атома щелочного металла, а также функции дипольного момента оптических переходов в эти асимптотически запрещенные состояния при разных геометриях расположения атома и молекулы.

Сечение парного оптического перехода зависит от выполнения определенных условий и, в частности, от близости энергии этого перехода к энергии перехода в резонансное состояние одной из частиц. Такие резонансы являются результатом случайного стечения обстоятельств, что ограничивает число объектов исследования. Примером случайного резонанса является процесс (6). При этом исследова-

ние систем, где присутствуют такие резонансы, во многих случаях требует специальных экспериментальных условий. В частности, для исследования процессов типа (1) в смесях паров атомарных газов необходимы сравнительно высокие температуры для получения требуемых концентраций атомов, а также дополнительный источник света (лазер накачки) для возбуждения в резонансное состояние. Вероятно, вследствие случайного характера, а также требований к эксперименту, за периодом активного исследования этих процессов в 1970-х и 1980-х годах (см. Введение) последовал длительный спад, о чем свидетельствует анализ публикаций по этой тематике.

Как показывают исследования систем «атом + молекула  $CF_4$ », парные переходы могут сравнительно легко наблюдаться даже при значительном удалении (порядка  $10000 \text{ см}^{-1}$ ) от резонансных переходов, о чем убедительно свидетельствуют результаты данной работы. С этой точки зрения, парные переходы уже не являются «экзотическим» процессом, сечение которого критически зависит от случайного стечения обстоятельств, благодаря которому выполняется условие резонанса. Мы надеемся, что наша работа будет способствовать возобновлению интереса к исследованию парных оптических переходов.

**Благодарности.** Эксперименты выполнены на оборудовании Ресурсного центра «Физические методы исследования поверхности» СПбГУ.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Л. И. Гудзенко, С. И. Яковленко, ЖЭТФ **62**, 1686 (1972).
2. J. Szudy and W. E. Baylis, Phys. Rep. **266**, 127 (1996).
3. R. Hotop and R. Niemax, J. Phys. B **13**, L93 (1980).
4. J. C. White, G. A. Zdasiuk, J. F. Young, and S. E. Harris, Opt. Lett. **4**, 137 (1979).
5. V. A. Alekseev, A. A. Pastor, A. S. Pazgalev, P. A. Petrov, P. Yu. Serdobintsev, and T. A. Vartanyan, JQSRT **258**, 107339 (2021).
6. В. А. Алексеев, Н. К. Бибинов, И. П. Виноградов, Опт. Спектр. **73**, 269 (1992).
7. В. А. Алексеев, А. А. Пастор, П. Ю. Сердобинцев, Т. А. Вартамян, Письма ЖЭТФ **114**, 60 (2021).
8. V. A. Alekseev and N. Schwentner, Chem. Phys. Lett. **463**, 47 (2008).

9. V. A. Alekseev, J. Grosser, O. Hoffmann, and F. Rebernot, *J. Chem. Phys.* **129**, 201102 (2008).
10. G. A. Pitz and M. D. Anderson, *Appl. Phys. Rev.* **4**, 041101 (2017).
11. M. Carlos, O. Gruson, C. Richard, V. Boudon, M. Rotger, X. Thomas, C. Maul, C. Sydow, A. Domanskaya, R. Georges, P. Soulard, O. Pirali, M. Goubet, P. Asselin, and T. R. Huet, *JQSRT* **201**, 75 (2017).
12. G. Moe, A. C. Tam, and W. Happer, *Phys. Rev. A* **14**, 349 (1976).
13. V. Dubourg, M. Ferray, J. P. Visticot, and B. Sayer, *J. Phys. B* **19**, 1165 (1986).
14. E. J. Bredford and F. Engelke, *Chem. Phys. Lett.* **75**, 132 (1980).
15. D. Edvardsson, S. Lunell, and Ch. M. Marian, *Mol. Phys.* **101**, 2381 (2003).
16. Y. Lee, S. Lee, and B. Kim, *J. Phys. Chem. A* **112**, 6893 (2008).
17. M. D. Rotondaro and G. P. Perram, *Phys. Rev. A* **57**, 4045 (1998).
18. S. Brode, Ch. Kolmel, H. Schiffer, and R. Ahlrichs, *Z. Phys. Chem.* **155**, 23 (1987).
19. В. А. Алексеев, *Опт. Спектр.* **130**, 1343 (2022).
20. S. E. Harris and J. C. White. *IEEE J. Quant. Electron.* **12**, 972 (1977).
21. A. Kramida, Yu. Ralchenko, J. Reader, and NIST ASD Team (2020), NIST Atomic Spectra Database (version 5.8) [Online]. Available: <https://physics.nist.gov/asd> [May 31, 2021]; National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD; DOI: <https://doi.org/10.18434/T4W30F>

# ПИК КОГЕРЕНТНОГО ОБРАТНОГО РАССЕЯНИЯ ДЛЯ ИЗЛУЧЕНИЯ С ПОНИЖЕННОЙ ПРОСТРАНСТВЕННОЙ КОГЕРЕНТНОСТЬЮ

*В. Л. Кузьмин<sup>a\*</sup>, А. Ю. Вальков<sup>a,b\*\*</sup>, Ю. А. Жаворонков<sup>b\*\*\*</sup>*

<sup>a</sup> Санкт-Петербургский политехнический университет им. Петра Великого  
195251, Санкт-Петербург, Россия

<sup>b</sup> Санкт-Петербургский государственный университет  
198504, Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 25 февраля 2023 г.,  
после переработки 3 апреля 2023 г.  
Принята к публикации 3 апреля 2023 г.

Развита теория и выполнено численное моделирование эффекта когерентного обратного рассеяния в сильнонеоднородной случайной среде с конечной длиной пространственной когерентности. В рамках метода Монте-Карло показано, что ограничение числа актов рассеяния соответствует понижению когерентности падающего излучения и приводит к угловому уширению пика обратного рассеяния, расширяя возможности использования когерентного обратного рассеяния для биомедицинских приложений. Впервые на основе диаграммного метода развито моделирование когерентного обратного рассеяния за рамками лестничного приближения.

DOI: 10.31857/S0044451023090031  
EDN: KCCFMX

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Открытие когерентных [1–8] и корреляционных [9, 10] эффектов многократного рассеяния излучения в случайных средах породило широкую область биомедицинских приложений в инфракрасной и ближней инфракрасной областях, таких как ближняя инфракрасная спектроскопия (near infrared spectroscopy, NIRS) и диффузная корреляционная спектроскопия (diffuse correlation spectroscopy, DCS) [11–14]. Такие эффекты, как волны фотонной плотности [15, 16] и временные корреляции [17] интенсивности, легли в основу инновационных методов неинвазивной диагностики биотканей, в том числе в реальной биомедицинской практике [13, 18, 19]. Однако применение эффекта усиления когерентного обратного рассеяния (КОР), наиболее наглядно проявляющего волновую природу света в режиме многократного рассеяния, в биомедицинских приложениях почти не находит применения, и его развитие сильно замедлилось по

сравнению с такими приложениями, как NIRS и DCS, в связи с малостью ширины углового конуса КОР, определяемого величиной  $W_0 \sim (kl_{tr})^{-1}$  [6–8], где  $k$  — волновое число,  $l_{tr}$  — транспортная длина.

Известно, что конечность длины когерентности объясняет [20, 21], почему отношение когерентной и некогерентной компонент обратного рассеяния не достигает теоретически предсказанного удвоения при рассеянии строго назад. Аналогично конечность длины когерентности используется для объяснения того, почему не выполняется соотношение Зигерта в работах по изучению и применению временной корреляционной функции интенсивности [18, 20]. В работах [22–27] была разработана новая методика, использующая излучение с низкой когерентностью, создающее более широкий угловой конус КОР, наблюдаемый в реальных биомедицинских условиях. В работах [24, 25, 28] был рассмотрен и использован эффект конечности понижения пространственной когерентности падающего излучения при наблюдении КОР. Возникающее при этом угловое уширение конуса КОР использовалось в реальной медицинской диагностике [25, 28].

В данной работе методом Монте-Карло выполнено численное моделирование эффекта КОР для излучения с конечной длиной когерентности. Впер-

\* E-mail: kuzmin\_vl@mail.ru

\*\* E-mail: alexvalk@mail.ru

\*\*\* E-mail: zhavoronkov95@gmail.com

вые разработана теория эффектов обратного рассеяния за пределами лестничного приближения с явным учетом конечности длины когерентности. Некогерентная составляющая обратного рассеяния формируется лестничными диаграммами, каждая из которых состоит из произведений двух комплексносопряженных полей, рассеивающихся на одной и той же последовательности случайных неоднородностей. Ряд лестничных диаграмм обеспечивает теоретическую основу для диффузионного приближения. Теория когерентного обратного рассеяния основана на суммировании максимальных перекрестных (или циклических) диаграмм, топологически эквивалентных лестничным диаграммам. Низкокогерентное обратное рассеяние требует дополнительного учета интерференционных вкладов, происходящих от корреляций диэлектрической проницаемости высоких порядков рассеяния, описание которых в терминах диаграмм требует выхода за рамки лестничных или максимально-перекрестных диаграмм. Мы впервые рассматриваем такие диаграммы для трехкратного рассеяния, учитывая интерференцию между парами полей, распространяющимися в случайной среде. В настоящей работе, принимая максимальное число событий рассеяния  $n_{sc}$  в качестве параметра, определяющего пространственную длину когерентности  $L_c = n_{sc}l_s$ , где  $l_s$  — длина рассеяния, мы показали, что использование низкокогерентного излучения позволяет получить конус КОР с шириной и относительной высотой, близкими к экспериментальным значениям из работы [6].

В работах [24, 25] высказано предположение, что при понижении когерентности двукратный вклад может стать доминирующим. Выполненное нами моделирование указывает, что такое доминирование низких кратностей реализуется только при очень больших углах обратного рассеяния, за пределами обычно наблюдаемого конуса КОР [29]. Мы обнаружили, что при больших углах обратного рассеяния вклад членов высоких порядков приводит к интерференционному уменьшению обратного рассеяния.

## 2. ДИАГРАММНОЕ ПРЕДСТАВЛЕНИЕ ПОЛЯ И ИНТЕНСИВНОСТИ

Пусть волновые уравнения для случайного поля  $E_{rand}$  и его функции Грина  $T_{rand}$  схематично представлены в виде

$$\begin{aligned} E_{rand} &= E_0 + T_0 \delta\varepsilon E_{rand}, \\ T_{rand} &= T_0 + T_0 \delta\varepsilon T_{rand}, \end{aligned} \quad (1)$$

где нижний индекс «0» относится к нерассеиваю-

щей среде,  $\delta\varepsilon$  — флуктуации диэлектрической проницаемости, а произведения обозначают интегральные свертки. В  $(\mathbf{r}, \omega)$ -представлении

$$T_0(\mathbf{r}) = k_0^2 \exp(ik_0 r)/4\pi r,$$

$k_0 = \sqrt{\varepsilon_0}\omega/c$ ,  $\varepsilon_0$  — средняя диэлектрическая проницаемость,  $c$  — скорость света в вакууме.

Усредняя по флуктуациям диэлектрической проницаемости, получаем уравнения Дайсона для усредненного макроскопического поля  $E = \langle E_{rand} \rangle$  и макроскопической функции Грина  $T = \langle T_{rand} \rangle$ :

$$E = E_0 + T_0 \Pi E, \quad T = T_0 + T_0 \Pi T, \quad (2)$$

где ядро  $\Pi = \Pi(\mathbf{r})$  известно как оператор поляризации (ядро массового оператора/компактный блок) [30, 31] и представляется в виде суммы неприводимых диаграмм. Мнимая часть его фурье-образа  $\Pi(k)$  определяет длину рассеяния  $l_s$ , что фактически соответствует оптической теореме, связывающей полное сечение рассеяния с длиной рассеяния [32]. В дальней зоне для  $|\Pi(k_0)| \ll 1$  уравнение Дайсона дает

$$T(r) \simeq k_0^2 \exp(ikr)/4\pi r,$$

где  $k \simeq k_0(1 + \Pi(k_0)/2)$ . Таким образом, для длины рассеяния получаем

$$l_s = (\text{Im}(k_0 \Pi(k_0)))^{-1}.$$

Итерируя выражения (1), можно представить корреляционную функцию поля в виде операторного ряда:

$$\begin{aligned} \langle \delta E \delta E^* \rangle &= \langle (T \delta\varepsilon + (T \delta\varepsilon)^2 + \dots) E \times \\ &\quad \times (T^* \delta\varepsilon^* + (T^* \delta\varepsilon^*)^2 + \dots) E^* \rangle, \end{aligned} \quad (3)$$

где угловые скобки означают статистическое усреднение по случайным неоднородностям диэлектрической проницаемости,  $\delta E$  — флуктуация поля.

Парный коррелятор поля может быть представлен в виде ряда по порядкам рассеяния

$$\begin{aligned} \langle \delta E(\mathbf{r}'_0) \delta E^*(\mathbf{r}'_0) \rangle &= \sum_{n=1}^{\infty} \int d\mathbf{r}'_1 d\mathbf{r}''_1 \dots d\mathbf{r}'_n d\mathbf{r}''_n \times \\ &\quad \times T(\mathbf{r}'_0, \mathbf{r}'_1) T^*(\mathbf{r}''_0, \mathbf{r}''_1) \prod_{i=2}^n T(\mathbf{r}'_{i-1} - \mathbf{r}'_i) T^*(\mathbf{r}''_{i-1} - \mathbf{r}''_i) \times \\ &\quad \times K(\mathbf{r}'_n, \mathbf{r}''_n, \dots, \mathbf{r}'_1, \mathbf{r}''_1) E(\mathbf{r}'_n) E^*(\mathbf{r}''_n), \end{aligned} \quad (4)$$

где ядро  $K(\mathbf{r}_n, \mathbf{r}''_n, \dots, \mathbf{r}_1, \mathbf{r}''_1)$  представляет собой многочастичный коррелятор флуктуаций  $\delta\varepsilon$ .

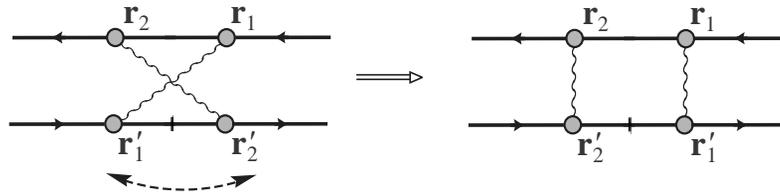


Рис. 1. Топологическая эквивалентность лестничной  $D_L^{(2)}$  и перекрестной  $D_C^{(2)}$  диаграмм второго порядка рассеяния

В предположении гауссова характера флуктуаций, согласно теореме Вика, ядро  $K$  представляется в виде суммы произведений парных корреляторов,

$$K(\mathbf{r}'_n, \mathbf{r}''_n, \dots, \mathbf{r}'_1, \mathbf{r}''_1) = \sum_{j_1, \dots, j_n} \prod_{i=1}^n \langle \delta\varepsilon(\mathbf{r}'_i) \delta\varepsilon^*(\mathbf{r}''_{j_i}) \rangle, \quad (5)$$

по всем перестановкам  $j_1, \dots, j_n$  чисел  $1, 2, \dots, n$ .

Разложение интенсивности (4) представляет собой ряд по кратностям рассеяния, полученный итерированием уравнения Бете – Солпитера. Основной вклад для почти всех углов вносят слагаемые лестничного приближения, когда пара комплексно-сопряженных полей проходит одну и ту же последовательность флуктуаций, или неоднородностей диэлектрической проницаемости, сохраняя при этом исходную разность фаз. Однако при рассеянии строго назад когерентность сохраняется также для случая, когда поля проходят неоднородности  $\delta\varepsilon$  в обратном порядке. В этом случае наблюдается эффект усиления обратного рассеяния.

Приведем диаграммы, описывающие двукратные и трехкратные вклады рассеяния. На рис. 1 показаны диаграммы двукратного рассеяния,

$$D^{(2)} = D_L^{(2)} + D_C^{(2)}, \quad (6)$$

а на рис. 2 – трехкратного рассеяния,

$$D^{(3)} = D_L^{(3)} + D_C^{(3)} + D_{LC}^{(3)} + D_{CL}^{(3)} + D_{CCL}^{(3)} + D_{LLC}^{(3)}. \quad (7)$$

В (7) мы опустили быстроосциллирующие диаграммы, в которых поля и сопряженные поля имеют разный порядок, так называемые грибовидные диаграммы.

Первые члены в (6) и (7) известны как лестничные диаграммы. Они описывают основной, некогерентный вклад в многократное рассеяние, поскольку осциллирующие фазовые коэффициенты комплексно-сопряженных пар коррелированных полей в точности компенсируются.

Максимально-перекрестные диаграммы топологически эквивалентны своим лестничным аналогам. Эта эквивалентность продемонстрирована на рис. 1 и на верхнем изображении на рис. 2 – если повернуть нижнюю линию на  $180^\circ$ , то одна диаграмма

переходит в другую. На этом основано явление когерентного обратного рассеяния, теоретически предсказанного [1–4] и экспериментально подтвержденного [5–8] в середине восьмидесятых годов прошлого века. Для обратного рассеяния строго назад максимально-перекрестные диаграммы равны лестничным. Обозначая явно зависимость от волновых векторов входящей и выходящей волн, получаем

$$D_C^{(2)}(\mathbf{k}_{out}, \mathbf{k}_{out}^* | \mathbf{k}_{in}, \mathbf{k}_{in}^*) = D_L^{(2)}(\mathbf{k}_{out}, -\mathbf{k}_{in}^* | \mathbf{k}_{in}, -\mathbf{k}_{out}^*).$$

Четыре оставшиеся диаграммы в (7) также разбиваются на две топологически эквивалентные пары, как показано на среднем и нижнем изображениях на рис. 2. Эти диаграммы сильно зависят от углов входа и выхода, и поэтому в широких угловых пределах они могут оказаться важными. Мы будем называть их случайно-интерференционными диаграммами.

### 3. ДИАГРАММЫ 2-ГО И 3-ГО ПОРЯДКОВ

При вычислении диаграмм проводится интегрирование по пространственным координатам  $\mathbf{r}'_i$  и  $\mathbf{r}''_i$ , связывающим парную корреляцию. Удобно перейти к переменным интегрирования по координатам «центра масс»  $\mathbf{r}_i = (\mathbf{r}'_i + \mathbf{r}''_i)/2$  и разностным координатам  $\mathbf{r}'''_i = \mathbf{r}'_i - \mathbf{r}''_i$ . Диапазон координат центра масс  $\mathbf{r}_i$  определяет длина рассеяния  $l_s$ , а масштаб расстояния  $\mathbf{r}'''_i$  – длина корреляций диэлектрической проницаемости  $r_c \ll l_s$ .

Функции Грина, входящие в выражение (4), для  $2 \leq i \leq n$  можно представить в виде

$$T(\mathbf{r}'_{i-1} - \mathbf{r}'_i) = \frac{k_0^2}{4\pi} \tilde{T}(\mathbf{r}_{i-1} - \mathbf{r}_i) \times \exp(i\mathbf{q}_i \cdot (\mathbf{r}'''_{i-1} - \mathbf{r}'''_i)/2), \quad (8)$$

где  $\mathbf{q}_i$  – вектор рассеяния на  $i$ -м шаге,

$$\tilde{T}(r) = r^{-1} \exp((ik_0 - \mu_s/2)r)$$

– основной пространственно-зависимый фактор функции Грина, коэффициент рассеяния  $\mu_s = l_s^{-1}$ .

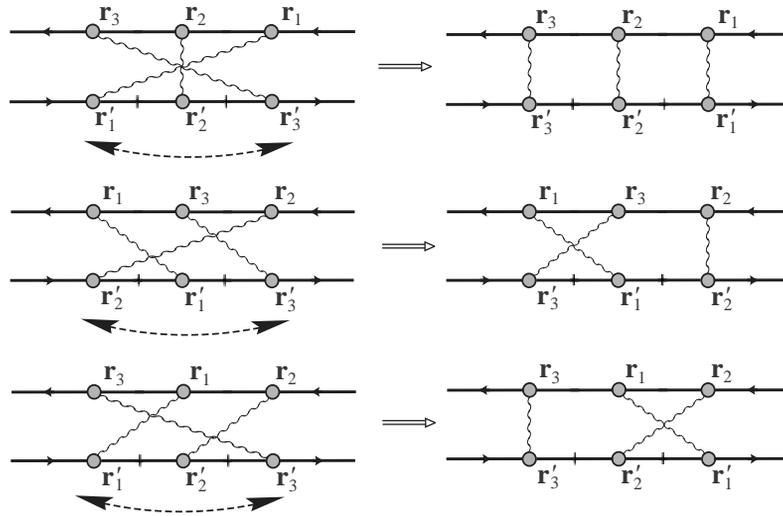


Рис. 2. Топологическая эквивалентность диаграмм третьего порядка: лестничной  $D_L^{(3)}$  и максимально-перекрестной  $D_C^{(3)}$ , и двух пар интерференционных диаграмм третьего порядка  $D_{CLL}^{(3)}$  и  $D_{LC}^{(3)}$ ,  $D_{LLC}^{(3)}$  и  $D_{CL}^{(3)}$

В силу трансляционной инвариантности парная корреляционная функция  $\langle \delta\varepsilon(\mathbf{r}'_i) \delta\varepsilon^*(\mathbf{r}''_i) \rangle$  зависит только от разностных переменных  $\mathbf{r}'''_i$ :

$$G(\mathbf{r}''') = \langle \delta\varepsilon(\mathbf{r}_i + \mathbf{r}'''_i/2) \delta\varepsilon^*(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}'''_i/2) \rangle.$$

Для изотропного рассеяния радиус корреляции  $r_c$  много меньше длины волны  $\lambda$ ; мы имеем, фактически,  $G(\mathbf{r}''') \propto \delta(\mathbf{r}''')$ , и интегралы по  $\mathbf{r}'''_i$  берутся тривиально. В общем случае эти интегралы производят фазовую функцию  $p(\mathbf{q})$  с дополнительным множителем  $\mu_s$ , поскольку, согласно оптической теореме,

$$\frac{k_0^4}{(4\pi)^2} \int d\mathbf{r}''' G(\mathbf{r}''') \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}''') = \mu_s p(\mathbf{q}).$$

Представим вклады диаграмм второго порядка, лестничную и перекрестную, в виде

$$J_{\alpha\beta\gamma\delta}^{(2)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) = \mu_s \int_0^\infty dz_1 \int d\mathbf{r}_2 D_{\alpha\beta\gamma\delta}^{(2)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f).$$

Индексы  $\alpha, \beta, \gamma, \delta$  обозначают номера координат (см. рис. 3) пары входящих  $\mathbf{k}_i$  и выходящих  $\mathbf{k}_f$  плоских волн. Набор  $\alpha = \beta = 1, \gamma = \delta = 2$  соответствует лестничной диаграмме  $D_{1122}^{(2)} = D_L^{(2)}$ , набор  $\alpha = \delta = 1, \beta = \gamma = 2$  — перекрестной диаграмме  $D_{1221}^{(2)} = D_C^{(2)}$ . Для диаграмм третьего порядка

$$J_{\alpha\beta\gamma\delta}^{(3)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) = \mu_s \int_0^\infty dz_1 \int d\mathbf{r}_2 d\mathbf{r}_3 D_{\alpha\beta\gamma\delta}^{(3)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f).$$

Нижние индексы задают при  $\alpha = \beta = 1$  и  $\gamma = \delta = 3$  лестничную диаграмму  $D_{1133}^{(3)} = D_L^{(3)}$ , а

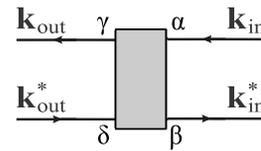


Рис. 3. Справа изображена пара плоских волн, падающих на систему, а слева — те же волны, покидающие систему в результате многократного рассеяния

при  $\alpha = \delta = 1$  и  $\beta = \gamma = 3$  максимально-перекрестную диаграмму  $D_{1331}^{(3)} = D_C^{(3)}$ , остальные — случайно-интерференционные диаграммы

$$\begin{aligned} D_{1231}^{(3)} &= D_{CLL}^{(3)}, & D_{1132}^{(3)} &= D_{LC}^{(3)}, \\ D_{1332}^{(3)} &= D_{LLC}^{(3)}, & D_{1233}^{(3)} &= D_{CL}^{(3)}. \end{aligned}$$

Определим геометрию рассеяния. Пусть плоская волна падает нормально на слой  $0 < z < T$ , где  $z$  — декартова координата нормальной границы раздела, а  $T$  — толщина слоя.

Определим элементы падающих и рассеянных плоских волн,  $\mathbf{k}_i = (0, 0, k)$  и  $\mathbf{k}_f = k(\sin \theta_s, 0, -\cos \theta_s)$ , где  $\theta_s$  — угол обратного рассеяния, отсчитываемый от обратного направления, с учетом затухания в рассматриваемой геометрии обратного рассеяния как

$$\begin{aligned} F_{\alpha\beta}^{(in)}(\mathbf{k}_i) &= \exp\left(i\mathbf{k}_i \cdot (\mathbf{r}_\alpha - \mathbf{r}_\beta) - \frac{\mu_s}{2}(z_\alpha + z_\beta)\right), \\ F_{\gamma\delta}^{(out)}(\mathbf{k}_f) &= \exp\left(i\mathbf{k}_f \cdot (\mathbf{r}_\gamma - \mathbf{r}_\delta) - \frac{\mu_s}{2}(z_\gamma + z_\delta)\right). \end{aligned}$$

Лестничная диаграмма содержит тривиальную зависимость, обусловленную угловой зависимостью

коэффициентов рассеяния  $\mu_s / \cos \theta$  при наклонном выходе или входе. Максимально-перекрестная диаграмма содержит сильную угловую зависимость из-за интерференции падающего и рассеянного полей. Другие диаграммы могут демонстрировать сильную угловую зависимость также из-за интерференции входящего и выходящего полей. Для декартовой параметризации волновых векторов получаем

$$F_{in}^{(L)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1)F_{out}^{(L)}(\mathbf{r}_n, \mathbf{r}_n) = \exp(-\mu_s(z_1 + z_n/\cos \theta_f)),$$

$$F_{in}^{(C)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_n)F_{out}^{(C)}(\mathbf{r}_n, \mathbf{r}_1) = \exp(ik(x_1 - x_n) \sin \theta_f + ik(z_1 - z_n)(1 - \cos \theta_f) - \mu_s(z_1 + z_n/\cos \theta_f)).$$

Тогда лестничные и максимально-перекрестные диаграммы второго и третьего порядков примут вид

$$D_L^{(2)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) = \mu_s^2 p(\mathbf{q}_1) p(\mathbf{q}_2) F_{11}^{(in)}(\mathbf{k}_i) \Lambda(r_{12}) F_{22}^{(out)}(\mathbf{k}_f),$$

$$D_C^{(2)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) = \mu_s^2 p(\mathbf{q}_1) p(\mathbf{q}_2) F_{12}^{(in)}(\mathbf{k}_i) \Lambda(r_{12}) F_{21}^{(out)}(\mathbf{k}_f),$$

$$D_L^{(3)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) = \mu_s^3 p(\mathbf{q}_1) p(\mathbf{q}_2) p(\mathbf{q}_3) F_{11}^{(in)}(\mathbf{k}_i) \Lambda(r_{12}) \times \Lambda(r_{23}) F_{33}^{(out)}(\mathbf{k}_f),$$

$$D_C^{(3)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) = \mu_s^3 p(\mathbf{q}_1) p(\mathbf{q}_2) p(\mathbf{q}_3) F_{13}^{(in)}(\mathbf{k}_i) \Lambda(r_{12}) \times \Lambda(r_{23}) F_{31}^{(out)}(\mathbf{k}_f),$$

Стандартные алгоритмы моделирования многократного рассеяния [33] используют оператор  $\Lambda(r) = |\tilde{T}(r)|^2$  — пропагатор уравнения переноса излучения (включая уравнение Бете–Солпитера в лестничном приближении).

В некогерентных вкладах, описываемых лестничными диаграммами, остаются только затухающие множители, а осциллирующие полностью компенсируются. В максимально-перекрестных диаграммах полная компенсация осциллирующих множителей реализуется только при рассеянии строго назад,  $\mathbf{k}_f = -\mathbf{k}_i$ . Все остальные диаграммы содержат осциллирующие множители из-за несовпадения как пар входящих или выходящих полей, так и функций Грина. Например, диаграмма

$$D_{1332}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) = \mu_s^3 p(\mathbf{q}_1) p(\mathbf{q}_2) p(\mathbf{q}_3) F_{13}^{(in)}(\mathbf{k}_i) \times F_{32}^{(out)}(\mathbf{k}_f) \Lambda(r_{12}) \tilde{T}(r_{23}) \tilde{T}^*(r_{31}) \quad (9)$$

содержит нескомпенсированный осциллирующий множитель. Осциллирующие множители сильно затрудняют прямое стохастическое моделирование. Очевидно, что при больших значениях случайной переменной вида  $k(R_{23} - R_{13})$ , где  $R_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$ , или  $k(z_1 - z_3)$  вкладом таких конфигураций можно пренебречь. Поэтому при моделировании мы выполняли обрезание высокочастотных стохастических флуктуаций.

#### 4. МОДЕЛИРОВАНИЕ МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО

В численном моделировании интенсивность рассеяния представляется в виде ряда по кратностям рассеяния:

$$J(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) = \sum_{n=1}^{\infty} J^{(n)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f), \quad (10)$$

где  $J^{(n)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f)$  — вклад  $n$ -го порядка рассеяния.

В рамках лестничного приближения на основе уравнения Бете–Солпитера мы представляем член  $n$ -го порядка  $J^{(n)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f)$  как среднее по выборке  $N_{ph}$  падающих фотонов:

$$J^{(n)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) = \frac{1}{N_{ph}} \sum_{i=1}^{N_{ph}} W_n^{(i)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) \times p(\hat{\mathbf{k}}_{n-1}^{(i)} \hat{\mathbf{k}}_f) f_{BLB}(\mathbf{k}_f, z_n^{(i)}), \quad (11)$$

где  $W_n^{(i)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f)$  и  $z_n^{(i)}$  — соответственно вес и расстояние до границы от точки  $\mathbf{r}_n^{(i)}$   $n$ -го акта рассеяния. Экспоненциальный множитель Бугера–Ламберта–Бера  $f_{BLB}(\mathbf{k}_f, z_n^{(i)})$  описывает затухание рассеянного излучения, распространяющегося от точки  $z_n^{(i)}$  последнего события рассеяния до границы в приближении Фраунгофера. Он зависит от оптических параметров среды на пути фотона, движущегося к границе. Для однородной среды

$$f_{BLB}(\mathbf{k}_f, z) = \exp(-\mu_s z / \cos \theta_s).$$

Вес  $W_n^{(i)}$  представляет собой случайное значение многократного пространственного интеграла, возникшего как итерация  $n$ -го порядка уравнения Бете–Солпитера. Вычисляя его, можно смоделировать стохастическую последовательность точек рассеяния  $\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_n$ . Полную сумму лестничных диаграмм, практически не зависящую от угла обратного рассеяния (кроме зависимости вида  $\exp(-\mu_s z / \cos \theta_s)$  для входящих и выходящих плоских волн) в области пика обратного рассеяния, обозначим как

$$J_L(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) = \sum_n J_L^{(n)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f),$$

а полную сумму максимально-перекрестных диаграмм — как

$$J_C(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) = \sum_n J_C^{(n)}(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f).$$

Метод Монте-Карло в теории переноса излучения основан на хорошо известной процедуре обрат-

ного преобразования [33, 34]. Обратное преобразование позволяет перестроить интеграл с экспоненциальным распределением по полубесконечному интервалу  $[0, \infty]$  в интеграл по случайной величине, равномерно распределенной в единичном интервале  $[0, 1]$ . В рамках стандартного алгоритма затухающий множитель в пропагаторе  $\Lambda(r)$  представляется как плотность вероятности экспоненциального распределения  $f(r) = \mu_s^{-1} \exp(-\mu_s r)$  случайной величины  $r$ , описывающей расстояние между двумя актами рассеяния. Кумулятивная функция экспоненциального распределения легко вычисляется:

$$\xi(r) = 1 - \exp(-\mu_s r), \quad (12)$$

где  $\xi$  или  $\xi' = 1 - \xi$  — случайные величины, равномерно распределенные в единичном интервале  $[0, 1]$ . Обратное преобразование дает

$$r = -\mu_s^{-1} \ln \xi'. \quad (13)$$

В диаграммах третьего порядка и выше появляются функции Грина без соответственной комплексно-сопряженной пары, что не позволяет описать перенос излучения в терминах пропагатора  $\Lambda(r)$ . Для таких диаграмм мы используем метод обратного преобразования пространственных интегралов, содержащих полевые функции Грина, а не стандартный метод, ориентированный на пропагатор  $\Lambda(r)$ . Представляя экспоненциально затухающий множитель функции Грина как величину, распределенную с плотностью вероятности

$$f(r) = (\mu_s/2)^{-1} \exp(-\mu_s r/2),$$

получим  $r = -(\mu_s/2)^{-1} \ln \xi'$ . Для случая, когда все функции Грина можно «спарить» со своими сопряженными, оба выбора функции распределения в методе обратного преобразования — в виде как пропагатора переноса излучения  $\Lambda(r)$ , так и функции Грина, дают одинаковые результаты.

К интегралам по угловым переменным метод обратного преобразования применяется, как обычно. Угловую переменную  $t = \cos \theta$ , представленную в виде случайной величины, распределенной на основе заданной фазовой функции, заменяют на равномерно распределенную случайную величину  $\chi$ . Определим кумулятивную функцию, распределенную в интервале  $[0, 1]$ :

$$\chi = F(t) = 2\pi \int_{-1}^t p(t') dt', \quad (14)$$

где  $p(t)$  — фазовая функция. Затем выполняем обратное преобразование  $t = F^{-1}(\chi)$ . Наиболее

часто используемой в биомедицинских приложениях является фазовая функция Хеньи–Гринштейна, важным достоинством которой является тот факт, что обратное преобразование кумулятивной функции (14) выполняется аналитически в явном виде. Описание однократного рассеяния фазовой функцией Рэля–Ганса позволяет моделировать оптические свойства ткани или биофантома на основе физической модели суспензии, но требует существенных математических усложнений [35, 36]. В данной работе мы ограничимся при моделировании функцией Хеньи–Гринштейна. Отметим, что интенсивность рассеяния, вычисленная с помощью выражения (11), может быть интерпретирована как среднее значение экспоненты  $\exp(-\mu_s z_n^{(i)})/\cos \theta_s$ , которая описывает затухание фотона, возвращающегося из объемной среды к границе после  $n$  актов рассеяния. Поскольку среда ограничена, фотон возвращается в среду, если он достиг границы, в силу закона отражения [15]. Таким образом, вес  $W_n^{(i)}$  является произведением коэффициентов отражения Френеля. В частном случае отсутствия отражения и адсорбции он равен единице или нулю.

## 5. РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

Основным препятствием для применения эффекта усиления КОР в биомедицинской практике является малая ширина пика. В работах [24, 25] показано, что ширина пика значительно увеличивается при понижении пространственной когерентности падающего излучения, а его высота одновременно уменьшается. Понижение пространственной когерентности в рассматриваемой нами расчетной схеме моделируется путем понижения максимального числа актов рассеяния  $n_{sc}$ . Для сравнения результатов моделирования КОР с известными экспериментальными результатами мы взяли значения оптических параметров из известной работы [6]:  $\lambda = 0.633$  мкм, показатель преломления  $n = 1.33$ ,  $g = 0.93$ ,  $l_s = 2.6$  мкм.

На рис. 4 показана индикатриса КОР, а именно, угловая зависимость величины

$$h(\theta_s) = (J_{BG} + J_{CBS}(\theta_s))/J_{BG},$$

представляющей собой отношение суммарной интенсивности обратного рассеяния к фоновой интенсивности  $J_{BG}$  за пределами угловой области усиления КОР. На практике  $J_{BG}$  — это вклад лестничных диаграмм,  $J_{BG} = J_L$ . В интересующей нас сравнительно узкой области углов  $J_{BG}$  можно считать

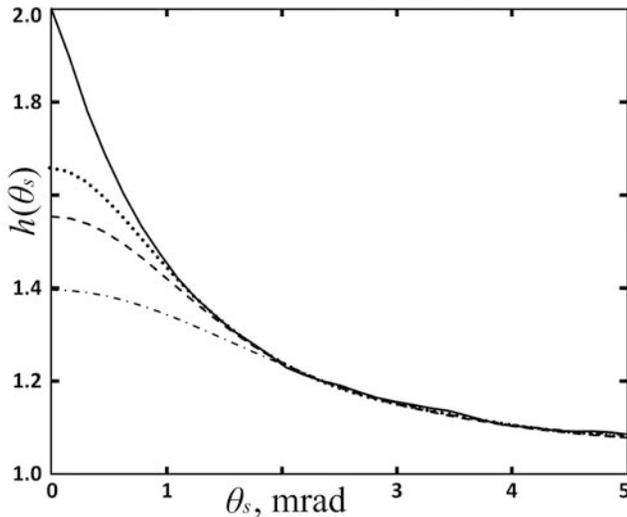


Рис. 4. Зависимости относительной интенсивности обратного рассеяния  $h(\theta_s) = (J_{BG} + J_{CBS}(\theta_s))/J_{BG}$  от угла обратного рассеяния  $\theta_s$  при различных значениях максимального числа актов рассеяния: сплошная линия —  $n_{sc} = 5 \cdot 10^5$ ; пунктирная линия —  $n_{sc} = 340$ ; штриховая линия —  $n_{sc} = 200$ ; штрихпунктирная линия —  $n_{sc} = 100$ . Параметр анизотропии рассеяния  $g = 0.93$

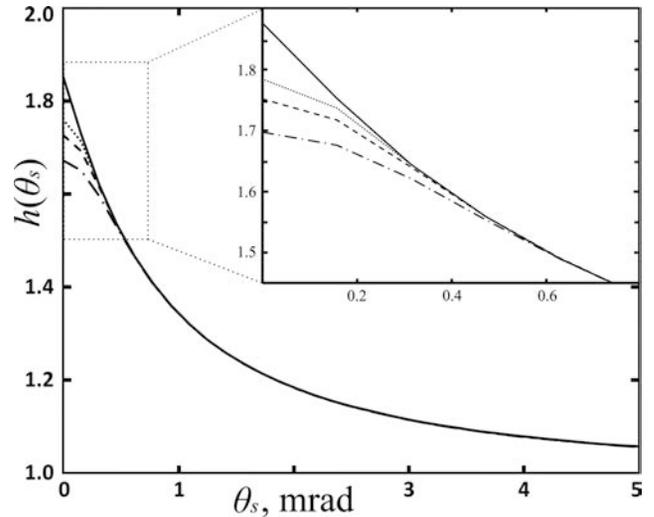


Рис. 5. То же, что на рис. 4 для изотропного рассеяния ( $g = 0$ )

Таблица. Уменьшение высоты и угловое уширение пика КОР с понижением когерентности

$n_{sc}$	$h(0)$	$\theta_{HW}$ , мрад	$L_c$ , мкм
$5 \cdot 10^5$	1.99	0.78	$3.9 \cdot 10^5$
340	1.64	1.50	884
200	1.55	1.73	520
100	1.39	2.36	260

величиной, не зависящей от  $\theta_s$ . Мы использовали  $n_{sc} = 5 \cdot 10^5$ , что соответствует практически бесконечной длине когерентности, а также  $n_{sc} = 340$ ,  $n_{sc} = 200$  и  $n_{sc} = 100$  для учета пониженной когерентности излучения. Значение  $n_{sc} = 340$  соответствует длине когерентности  $L_c \sim n_{sc} l_s \approx 880$  мкм, а  $n_{sc} = 200$  и  $n_{sc} = 100$  — соответственно длинам  $L_c = 520$  мкм и  $L_c = 260$  мкм. Видно, что при таких  $L_c$  происходит заметное уширение пика КОР, причем ширина пика возрастает с уменьшением когерентности излучения. В таблице приведены соответствующие высоты  $h(0)$ , полуширины  $\theta_{HW}$  пиков КОР (НВНМ — полуширина на полувывоте пика,  $J_{CBS}(\theta_{HW}) = J_{CBS}(0)/2$ ) и длины когерентности  $L_c$ .

Практически во всех экспериментальных работах, начиная с пионерских [6–8, 29], значение параметра усиления КОР  $h(0)$  заметно не достигает предельного теоретического значения  $h(0) = 2$ .

В частности, в работе [6] получено экспериментальное значение  $h(0) = 1.64$ , которое совпадает с результатом нашего численного расчета при выборе  $n_{sc} = 340$ . Рассчитанная при этом значении  $n_{sc}$  полуширина пика КОР  $\theta_{HW} = 1.50$  мрад также неплохо согласуется с экспериментальным значением  $\theta_{HW} = 1.58$  мрад [6]. Добавим, что согласно априорной оценке имеем величину  $\theta_{HW} \sim W_0 = (kl_{tr})^{-1} \approx 2.0$  мрад, где  $l_{tr} = l_s/(1-g)$ , а  $g$  — параметр анизотропии среды. Диффузионное приближение дает  $\theta_{HW} = 3.3$  мрад [8], что по порядку величины также согласуется с нашими данными из таблицы.

Отметим, что в работе [25] эффект КОР применялся в реальной биомедицинской практике при изучении рака тканей толстой кишки человека с помощью низкокогерентного оптического излучения. Полученная в этой работе высота пика  $h(0)$  составляла около 1.07, а полуширина  $\theta_{HW} \approx 3.5$  мрад. Наше моделирование методом Монте-Карло дает такую величину  $h(0)$  при  $n_{sc} = 20$ .

При  $\theta_s \gtrsim 2$  мрад индикатрисы на рис. 4 для  $n_{sc} = 5 \cdot 10^5, 340, 200, 100$  практически совпадают, т.е. роль очень высоких кратностей рассеяния при больших углах существенно понижается. Это происходит за счет того, что, во-первых, положительные вклады от лестничных диаграмм при больших углах рассеяния достаточно быстро убывают (по закону  $n_{sc}^{-3/2}$  [37]), а во-вторых, потому, что в этой области максимально-перекрестные диаграммы практически полностью компенсируют друг друга, поскольку при больших углах их вклад может быть как положительным, так и отрицательным.

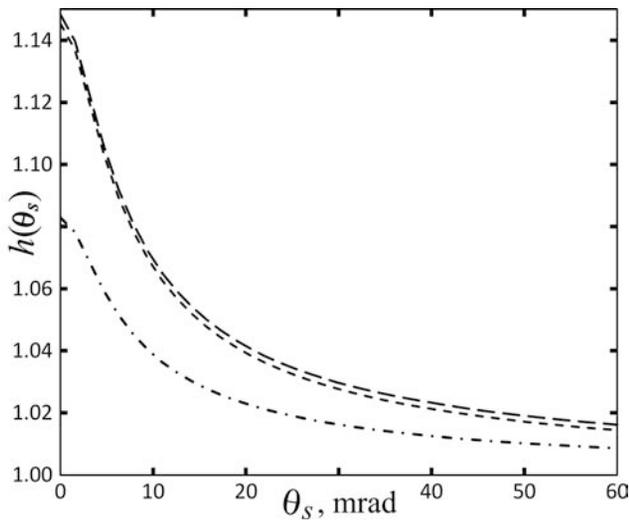


Рис. 6. Вклад низших нелестничных диаграмм в  $h(\theta_s)$  для изотропного рассеяния в области  $\theta_s \geq 10$  мрад. Длинные штрихи — сумма всех диаграмм второго и третьего порядков, короткие штрихи — сумма максимально-перекрестных диаграмм второго и третьего порядков; штрихпунктирная линия — двукратная перекрестная диаграмма

Для сравнения на рис. 5 приводятся индикатрисы в той же области углов, рассчитанные для изотропной среды. Здесь эффект уширения пика КОР также имеет место, но для тех же длин когерентности выражен заметно меньше.

Для случая изотропного рассеяния мы также рассчитали угловую зависимость  $h(\theta_s)$ , включая вклады нелестничных диаграмм третьего порядка (последние четыре диаграммы на рис. 2). Оказалось (рис. 6), что их вклад в области пика КОР составляет около 1% от вклада максимально-перекрестных диаграмм, возрастая до 5–8% при углах более 50 мрад.

На рис. 6 мы приводим также график угловой зависимости вклада двукратного рассеяния. Этот вклад составляет менее 10% от высоты пика КОР, что делает неоправданным предположение [24,25] об основной роли двукратного рассеяния в образовании пика КОР для низкокогерентного излучения.

## 6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мы выполнили моделирование эффекта обратного когерентного рассеяния в широкой угловой области. Развита алгоритм моделирования методом Монте-Карло на основе итерационного решения уравнения Бете–Солпитера. Использование описания интенсивности многократного рассеяния в

терминах полевых функций Грина позволило нам учесть вклады нелестничных диаграмм, которые мы называем случайно-интерференционными. Моделирование в рамках стандартного описания КОР в терминах оператора переноса  $\Lambda(r)$  и описания на основе функций Грина показало, что при малых углах обратного рассеяния относительный вес случайно-интерференционных диаграмм составляет около 1%, достигая 5–8% при углах рассеяния около 50 мрад, актуальных при применении излучения с пониженной когерентностью в биомедицинской практике.

Для вклада интерференционных диаграмм мы получили оценку ширины пика обратного рассеяния, в несколько раз превосходящую априорную оценку  $W \sim W_0 = (kl_{tr})^{-1}$ . Это свойство уширения пика КОР наблюдается только у части перекрестных диаграмм,  $D_{1332}^{(3)}$  и  $D_{1231}^{(3)}$ , с явными корреляциями между входящими и выходящими полями и может быть использовано в приложениях. Диаграммы  $D_{1132}^{(3)}$  и  $D_{1233}^{(3)}$  представляют собой первую поправку к лестничному приближению уравнения Бете–Солпитера. Указанные диаграммы практически не зависят от угла рассеяния в рассматриваемом угловом диапазоне КОР, вплоть до  $\theta_s = 60$  мрад, и представляют фактически фон пика КОР.

Принимая максимальное число событий рассеяния  $n_{sc}$  в качестве параметра, определяющего пространственную длину когерентности  $L_c = n_{sc}l_s$ , где  $l_s$  — длина рассеяния, мы показали, что использование низкокогерентного излучения позволяет получить конус КОР с шириной и относительной высотой, близкими к экспериментальным значениям [6].

Для сравнения с экспериментом мы взяли данные из работы [7]. Однако значения оптических параметров, представляющих в настоящее время интерес в биомедицинской практике, лежат в другом интервале, где рассеяние существенно меньше. Для типичных биологических тканей коэффициент рассеяния лежит в пределах от 200 до 500 см<sup>-1</sup>. Для длины рассеяния это дает интервал 20–50 мкм, который на порядок больше типичных значений длин рассеяния суспензий, использованных в работах [6–8]. Для реального использования КОР в биотканях требуется добиться более широкой угловой области усиления обратного рассеяния, в том числе за счет различных механизмов понижения когерентности, включая рассмотренный в настоящей работе.

**Финансирование.** Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда, грант №23-22-00035, <https://rscf.ru/project/23-22-00035/>.

## ЛИТЕРАТУРА

1. K. M. Watson, *J. Math. Phys.* **10**, 688 (1969).
2. D. A. de Wolf, *IEEE Trans. Antennas Propag.* **19**, 254 (1971).
3. Ю. Н. Барабаненков, *Изв. вузов, Радиофизика* **16**, 88 (1973).
4. А. Г. Виноградов, Ю. А. Кравцов, В. И. Татарский, *Изв. вузов, Радиофизика* **16**, 1064 (1973).
5. Y. Kuga and A. Ishimaru, *J. Opt. Soc. Am. A* **1**, 831 (1984).
6. M. P. Van Albada and A. Lagendijk, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2692 (1985).
7. P.-E. Wolf and G. Maret, *Rev. Lett.* **55**, 2696 (1985).
8. E. Akkermans, P. Wolf, R. Maynard, and G. Maret, *J. de Phys.* **49**, 77 (1988).
9. D. J. Pine, D. A. Weitz, P. M. Chaikin, and E. Herbolzheimer, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1134 (1988).
10. P. Wolf, G. Maret, E. Akkermans, and R. Maynard, *J. de Phys.* **49**, 63 (1988).
11. T. Durduran, R. Choe, W. B. Baker, and A. G. Yodh, *Rep. Prog. Phys.* **73**, 076701 (2010).
12. A. P. Tran, S. Yan, and Q. Fang, *Neurophoton.* **7**, 015008 (2020).
13. A. Sabeeh and V. V. Tuchin, *J. Biomed. Photon. Engineer.* **6**, 040201 (2020).
14. В. В. Тучин, *Оптика биологических тканей. Методы рассеяния света в медицинской диагностике*, IPR Media, Москва (2021).
15. T. H. Pham, O. Coquoz, J. B. Fishkin, E. Anderson, and B. J. Tromberg, *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 2500 (2000).
16. R. C. Haskell, L. O. Svaasand, T.-T. Tsay, T.-C. Feng, B. J. Tromberg, and M. S. McAdams, *J. Opt. Soc. Am. A* **11**, 2727 (1994).
17. D. A. Boas, L. E. Campbell, and A. G. Yodh, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1855 (1995).
18. X. Cheng, D. Tamborini, S. A. Carp, O. Shatrovov, B. Zimmerman, D. Tyulmankov, A. Siegel, M. Blackwell, M. A. Franceschini, and D. A. Boas, *Opt. Lett.* **43**, 2756 (2018).
19. H. Wabnitz, J. Rodriguez, I. Yaroslavsky, A. Yaroslavsky, and V. V. Tuchin, *Handbook of Optical Biomedical Diagnostics. Light-Tissue Interaction*, Vol. 1, SPIE Press, Bellingham, Washington (2016).
20. D. A. Boas, S. Sakadzic, J. Selb, P. Farzam, M. A. Franceschini, and S. A. Carp, *Neurophotonics* **3**, 031412 (2016).
21. S. Etemad, R. Thompson, M. J. Andrejco, S. John, and F. C. MacKintosh, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1420 (1987).
22. T. Okamoto and T. Asakura, *Opt. Lett.* **21**, 369 (1996).
23. A. Wax, C. Yang, and J. A. Izatt, *Opt. Lett.* **28**, 1230 (2003).
24. Y. L. Kim, P. Pradhan, H. Subramanian, Y. Liu, M. H. Kim, and V. Backman, *Opt. Lett.* **31**, 1459 (2006).
25. Y. L. Kim, Y. Liu, V. M. Turzhitsky, H. K. Roy, R. K. Wali, H. Subramanian, P. Pradhan, and V. Backman, *J. Biomed. Opt.* **11**, 041125 (2006).
26. H. Subramanian, P. Pradhan, Y. L. Kim, Y. Liu, X. Li, and V. Backman, *Appl. Opt.* **45**, 6292 (2006).
27. M. Xu, *Opt. Lett.* **33**, 1246 (2008).
28. J. Liu, Z. Xu, Q. Song, R. L. Konger, Y. L. Kim, *J. Biomed. Opt.* **15**, 037011 (2010).
29. D. S. Wiersma, M. P. van Albada, and A. Lagendijk, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1739 (1995).
30. С. М. Рытов, Ю. А. Кравцов, В. И. Татарский, *Введение в статистическую радиофизику. Часть 2. Случайные поля*, Наука, Москва (1978).
31. V. Kuzmin, V. Romanov, and L. Zubkov, *Phys. Rep.* **248**, 71 (1994).
32. В. Л. Кузьмин, *ЖЭТФ* **127**, 1173 (2005).
33. L. Wang, S. L. Jacques, and L. Q. Zheng, *Comput. Meth. Prog. Bio.* **47**, 131 (1995).
34. L. Devroye, *Non-Uniform Random Variate Generation*, Springer, New York (1986).
35. В. Л. Кузьмин, А. Ю. Вальков, *Письма в ЖЭТФ* **105**, 261 (2017).
36. В. Л. Кузьмин, А. Ю. Вальков, Л. А. Зубков, *ЖЭТФ* **155**, 460 (2019).
37. T. M. Nieuwenhuizen and J. M. Luck, *Phys. Rev. E* **48**, 569 (1993).

# ОДНОЭЛЕКТРОННАЯ ПЕРЕЗАРЯДКА ПРИ СТОЛКНОВЕНИЯХ БЫСТРЫХ ИОНОВ С МОЛЕКУЛЯРНЫМ ВОДОРОДОМ В ПРЕДСТАВЛЕНИИ ПАРАМЕТРА УДАРА

Ф.Ф. Горяев <sup>a\*</sup>

<sup>a</sup> Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук  
119991, Москва, Россия

Поступила в редакцию 15 марта 2023 г.,  
после переработки 15 марта 2023 г.  
Принята к публикации 21 марта 2023 г.

Представлен теоретический метод для расчета сечений одноэлектронной перезарядки при столкновениях быстрых ионов с молекулой  $H_2$  в основном состоянии. Задача рассеяния при ион-молекулярных столкновениях формулируется в представлении параметра удара с использованием связи между квантовомеханической и квазиклассической амплитудами перезарядки. Амплитуды перезарядки и соответствующие вероятности захвата электрона в состояния  $(nlm)$  налетающего иона получены в приближении Бринкмана–Крамерса. Выведены общие аналитические выражения для амплитуд вероятности одноэлектронной перезарядки в  $n$ -состояния, просуммированные по квантовым числам  $l$  и  $m$ , из которых затем вычисляются соответствующие вероятности перезарядки с использованием процедуры многоканальной нормировки. Для столкновений  $H^+ + H_2$  рассмотрена зависимость дифференциальных сечений перезарядки, проинтегрированных по параметру удара налетающего иона, от ориентации молекулы  $H_2$  и даны сравнения с измерениями и другими расчетами. Вычислены полные сечения одноэлектронной перезарядки, проинтегрированные по ориентациям молекулы  $H_2$  и просуммированные по  $n$ -состояниям, для ряда голых ядер и многозарядных ионов, и представлено их сравнение с имеющимися экспериментальными данными и результатами расчетов с помощью других теоретических методов.

DOI: 10.31857/S0044451023090043

EDN: KCHXFJ

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Процессы переноса заряда при столкновениях ионов с молекулярными мишенями представляют большой интерес в фундаментальных и прикладных исследованиях, таких как астрофизика, физика плазмы, термоядерный синтез, физика ускорителей, химия, и др. В расчетах сечений процессов при ион-молекулярных столкновениях часто пользуются правилом аддитивности Брэгга для интерпретации экспериментальных данных. Согласно этому правилу эффективное сечение взаимодействия налетающей частицы с молекулой определяется как сумма сечений взаимодействия со всеми атомами молекулы. Этот подход является достаточно удовлетвори-

тельным в случае процессов обдирки (т.е. ионизации налетающих частиц молекулами) и захвата электронов мишени (процесс перезарядки) для большинства молекулярных мишеней, тогда как для простейшей молекулы  $H_2$  ситуация оказывается сложнее и правило Брэгга нарушается. В частности, в работе [1] на основе экспериментальных данных было исследовано отношение сечений одноэлектронной перезарядки многозарядных ионов на молекулярном и атомарном водороде. В [1] было установлено, что это отношение изменяется в пределах  $0.76 \leq \sigma_{EC}(H_2)/\sigma_{EC}(H) \leq 3.84$  ( $EC$  – electron capture) и оказывается примерно равным 2 для скалярных энергий  $E(\text{кэВ/нуклон})/q^{4/7} \approx 50$  ( $q$  – заряд налетающего иона).

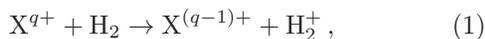
Сечения перезарядки при столкновениях быстрых ионов с мишенями  $H_2$  требуются для определения времен жизни ионных пучков в ускорителях и накопительных кольцах (см., например, [2] и приводимые там ссылки). Молекулярный водород, используемый в качестве газовой мишени для быст-

\* E-mail: goryaev\_farid@mail.ru

рых ионных пучков, широко применяется для получения высокозарядных и узких зарядовых распределений ионов [3]. В недавней работе [4] были выполнены измерения зарядовых распределений тяжелых ионов с энергиями 0.74 и 1.4 МэВ/нуклон, проходящих через различные газы, и было установлено, что молекулы  $\text{H}_2$  являются одними из лучших газовых мишеней для обдирки налетающих ионов. Поэтому знание сечений перезарядки при ион-молекулярных столкновениях оказывается важным как для теоретических предсказаний, так и для планирования экспериментов.

Сечения одноэлектронной перезарядки при ион-молекулярных столкновениях также важны для проблемы детектирования сверхтяжелых элементов (СТЭ) с атомным номером  $Z > 92$ , когда используются газонаполненные сепараторы с газом  $\text{H}_2$  или  $\text{He}$  (или их смесь) [5, 6]. После прохождения через газовую камеру устанавливается равновесное распределение ионных фракций со средним зарядом  $\bar{q}$ , с помощью которого можно оценить требуемую для детектирования СТЭ величину магнитного поля  $B$ . Один из способов определить средний заряд  $\bar{q}$  состоит в решении уравнений баланса для зарядовых фракций, в которые входят в качестве коэффициентов рассчитанные сечения обдирки и перезарядки [2]. В работе [7] такие расчеты были выполнены для элементов с  $Z = 80 - 120$ , проходящих через газ  $\text{He}$ .

В настоящее время используется несколько теоретических подходов к рассмотрению процесса захвата электрона быстрым ионом у молекулярного водорода в реакции переноса заряда



где  $\text{X}^{q+}$  обозначает налетающий ион с зарядом  $q$ : квантовомеханический подход (см., например, [8–12]), квазиклассический метод параметра удара (IP — impact parameter) (см., например, [13–15]) и метод классических траекторий Монте-Карло (СТМС — Classical Trajectory Monte Carlo) [16–18].

Следует заметить, что большинство работ, посвященных исследованию реакции (1), в основном рассматривали захват электрона голыми ядрами и главным образом для столкновений  $\text{H}^+ + \text{H}_2$  и  $\text{He}^{2+} + \text{H}_2$ . Теоретические расчеты для голых ядер с зарядом  $q > 2$  немногочисленны (см., например, [16–18]) или, в частности для налетающих ионов с электронной оболочкой (далее везде для них используется термин «многозарядные ионы»), практически отсутствуют. Кроме того, большинство теорети-

ческих подходов ограничивались рассмотрением захвата электрона в состояния с  $n = 1$  и  $2$  (см., например, [8, 13, 14]), что является более или менее адекватным приемом при интерпретации экспериментальных данных только для ионов  $\text{H}^+$  и  $\text{He}^{2+}$ . При увеличении заряда  $q$  налетающего иона становится существенным (а при определенных условиях даже доминирующим) захват в возбужденные состояния с большими значениями  $n$ . Для того чтобы учесть захват во все конечные состояния налетающего иона, в работах [19, 20], в которых использовался метод искаженных кулоновских волн (CDW — Continuum Distorted Wave), авторы вычисляли полные сечения перезарядки

$$\sigma_{tot} = \sum_n \sigma_n$$

для голых ядер  $\text{H}^+$ ,  $\text{He}^{2+}$  и  $\text{Li}^{3+}$ , суммируя сечения для  $n = 1 - 3$  и применяя экстраполяцию  $n^{-3}$  для захвата в состояния с  $n > 3$ . Этот экстраполяционный закон, являясь достаточно пригодным для определения полных сечений при высоких энергиях и небольших зарядах  $q$ , оказывается не вполне надежным для вычисления парциальных сечений  $\sigma_n$  при больших  $q$ , когда становится существенным захват в состояния с  $n \sim q$ . Более того, когда в процессе (1) участвуют многозарядные ионы, у которых основному состоянию образующегося иона  $\text{X}^{(q-1)+}$  соответствует главное квантовое число  $n > 1$ , расчеты сечений перезарядки в состояния с высокими  $n$  без использования экстраполяции  $n^{-3}$  становятся критически необходимыми.

В настоящей работе представлен теоретический метод для получения сечений одноэлектронной перезарядки при столкновениях быстрых ионов с молекулярным водородом для средних и больших энергий столкновения. Процесс (1) рассматривается в IP-представлении, которое является обобщением на ион-молекулярные столкновения подхода, разработанного в [21, 22] для ион-атомных столкновений. В этом подходе для процесса (1) в приближении Бринкмана–Крамерса (БК) выводится соотношение, связывающее квантовомеханическую и квазиклассическую амплитуды перезарядки. Затем применяется процедура многоканальной нормировки для вычисления вероятностей перезарядки и на их основе парциальных сечений перезарядки  $\sigma_n$ . Приводятся сравнения с экспериментальными данными и другими теоретическими расчетами, для чего также используется база данных [23] для сечений перезарядки в ион-атомных столкновениях. В статье всюду используются атомные единицы, если не оговорено противное.

## 2. ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ И ОСНОВНЫЕ ФОРМУЛЫ

### 2.1. Формулировка проблемы

Рассмотрим ион, налетающий на покоящуюся молекулу  $\text{H}_2$  с фиксированной ориентацией. Для описания геометрии столкновения, соответствующей процессу (1), далее используются обозначения из работы [8], которая была первой теоретической моделью для рассмотрения одноэлектронной перезарядки при столкновениях протонов с молекулами водорода. Два электрона с номерами 1 и 2 характеризуются векторами  $\mathbf{r}_1$  и  $\mathbf{r}_2$  относительно протонов А и В в молекуле  $\text{H}_2$ , соответственно, которые разделены межъядерным расстоянием, связанным с вектором  $\boldsymbol{\rho} = \mathbf{BA}$ . Налетающий ион Р находится на расстоянии  $\mathbf{R}$  относительно центра масс (ЦМ) молекулярной мишени, а активный электрон 1 (т.е. электрон, захватываемый ионом) характеризуется вектором  $\mathbf{r}'_1$  относительно иона Р. Для быстрых столкновений колебательным и вращательным движениями молекулы можно пренебречь, тогда молекулярная мишень остается фиксированной в течение быстрого столкновения. Ориентация молекулы  $\text{H}_2$ , связанная с вектором  $\boldsymbol{\rho}$ , определяется тогда полярным и азимутальным углами  $(\theta_\rho, \phi_\rho)$  относительно оси  $z$  вдоль скорости  $\mathbf{v}$  налетающего иона.

В IP-приближении относительное движение налетающей частицы и мишени описывается прямой траекторией с постоянной скоростью  $\mathbf{v}$  и параметром удара  $\mathbf{b}$ . В этом случае вектор  $\mathbf{R}(t)$ , характеризующий положение иона Р относительно ЦМ, дается выражением

$$\mathbf{R}(t) = \mathbf{b} + \mathbf{v}t, \quad \mathbf{b} \cdot \mathbf{v} = 0, \quad (2)$$

где значение  $\mathbf{b} = 0$  в момент времени  $t = 0$  соответствует прохождению через ЦМ молекулы.

Чтобы установить выражение для амплитуды захвата, соответствующей процессу (1), возьмем для простоты начало координат в центре вектора  $\mathbf{R}$ . Это можно сделать, так как конечный результат не зависит от этого выбора (см., например, [24] для деталей). Согласно [25], начальное и конечное состояния полной системы можно записать в виде

$$\Psi_i = \Phi_M(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \boldsymbol{\rho}) e^{-i\frac{1}{2}\mathbf{v} \cdot \mathbf{r} - i\frac{1}{8}v^2 t}, \quad (3)$$

$$\Psi_f = \Phi_I(\mathbf{r}_2, \boldsymbol{\rho}) u(\mathbf{r}'_1) e^{i\frac{1}{2}\mathbf{v} \cdot \mathbf{r} - i\frac{1}{8}v^2 t}, \quad (4)$$

где  $\Phi_M$ ,  $\Phi_I$  и  $u(\mathbf{r}'_1)$  — волновые функции молекулы  $\text{H}_2$ , молекулярного иона  $\text{H}_2^+$  и иона  $\text{X}^{(q-1)+}$  соответственно;  $\mathbf{r}$  — вектор положения активного электрона

1 относительно начала координат, который связан с  $\mathbf{r}_1$  и  $\mathbf{r}'_1$  следующим образом:

$$\mathbf{r}_1 = \mathbf{r} + \mathbf{R}/2 - \boldsymbol{\rho}/2, \quad (5)$$

$$\mathbf{r}'_1 = \mathbf{r} - \mathbf{R}/2. \quad (6)$$

Зависящий от скорости фазовый фактор в уравнениях (3) и (4) является трансляционным фактором, учитывающим переносное движение захватываемого электрона относительно выбранного начала координат. Волновые функции молекулы  $\text{H}_2$ ,  $\Phi_M$ , и молекулярного иона  $\text{H}_2^+$ ,  $\Phi_I$ , имеют вид

$$\begin{aligned} \Phi_M(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \boldsymbol{\rho}) = N_M \{ & u_m(r_1)u_m(r_2) + \\ & + u_m(|\mathbf{r}_2 - \boldsymbol{\rho}|)u_m(|\mathbf{r}_1 + \boldsymbol{\rho}|) + c[u_m(r_1)u_m(|\mathbf{r}_2 - \boldsymbol{\rho}|) + \\ & + u_m(r_2)u_m(|\mathbf{r}_1 + \boldsymbol{\rho}|)] \}, \quad (7) \end{aligned}$$

$$\Phi_I(\mathbf{r}_2, \boldsymbol{\rho}) = N_I^\pm [u_i(|\mathbf{r}_2 - \boldsymbol{\rho}|) \pm u_i(r_2)], \quad (8)$$

где нормировочные коэффициенты  $N_M$  и  $N_I^\pm$  равны

$$N_M = 1/\{2[(1+c^2)(1+\Delta_M^2) + 4c\Delta_M]\}^{1/2},$$

$$\Delta_M = \left(1 + Z_M\rho + \frac{1}{3}Z_M^2\rho^2\right) e^{-Z_M\rho},$$

и

$$N_I^\pm = 1/[2(1 \pm \Delta_I)]^{1/2},$$

$$\Delta_I = \left(1 + Z_I\rho + \frac{1}{3}Z_I^2\rho^2\right) e^{-Z_I\rho}.$$

В уравнениях (7) и (8)  $u_m$  и  $u_i$  являются водородоподобными волновыми функциями основного состояния с эффективными зарядами  $Z_M$  молекулы  $\text{H}_2$  и  $Z_I$  иона  $\text{H}_2^+$  соответственно, а  $c$  — вариационный параметр. Знаки  $(\pm)$  в (8) и далее обозначают четное ( ${}^2\Sigma_g^+$ ) и нечетное ( ${}^2\Sigma_u^+$ ) основные состояния иона  $\text{H}_2^+$  соответственно.

Амплитуда вероятности перезарядки для процесса (1) определяется следующим выражением:

$$a(\mathbf{b}, v) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\omega t} \langle \Psi_f | V_i | \Psi_i \rangle, \quad (9)$$

где  $V_i$  является так называемым «*prig*» взаимодействием (см. ниже);  $\omega = I_M - I_X$  — дефект резонанса реакции (1) ( $I_M$  и  $I_X$  — энергии связи захватываемого электрона в молекуле  $\text{H}_2$  и образующемся ионе  $\text{X}^{(q-1)+}$  соответственно); матричный элемент в формуле (9) имеет вид

$$\langle \Psi_f | V_i | \Psi_i \rangle =$$

$$= \int \Phi_I^*(\mathbf{r}_2, \boldsymbol{\rho}) u^*(\mathbf{r}'_1) V_i \Phi_M(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \boldsymbol{\rho}) e^{-i\mathbf{v}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r} d\mathbf{r}_2. \quad (10)$$

Ргюг-взаимодействие  $V_i$  далее рассматривается как взаимодействие между налетающим ионом и активным электроном 1, что соответствует БК-приближению (т.е.  $V_i = V(r'_1)$ ). Используя далее волновые функции (7) и (8) и интегрируя по  $\mathbf{r}_2$ , приводим матричный элемент (10) к виду

$$\langle \Psi_f | V_i | \Psi_i \rangle = N_t^\pm [I_{1P}(A) \pm I_{1P}(B)], \quad (11)$$

$$I_{1P}(A) = \int u^*(\mathbf{r}'_1) V(r'_1) u_m(r_1) e^{-i\mathbf{v}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r},$$

$$I_{1P}(B) = \int u^*(\mathbf{r}'_1) V(r'_1) u_m(|\boldsymbol{\rho} + \mathbf{r}_1|) e^{-i\mathbf{v}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r},$$

где член  $I_{1P}(A)$  соответствует захватываемому электрону, связанному с протоном  $A$ , а  $I_{1P}(B)$  тому же электрону, связанному с протоном  $B$ ; коэффициент  $N_t^\pm$  выражается формулой

$$N_t^\pm = N_M N_I^\pm (1 \pm c) (\Delta_{IM} \pm \chi_{IM}), \quad (12)$$

где

$$\begin{aligned} \Delta_{IM} &= \frac{8(Z_I Z_M)^{3/2}}{(Z_I + Z_M)^3}, \\ \chi_{IM} &= \frac{8(Z_I Z_M)^{3/2}}{\rho \mu^3} [Z_I(\rho \mu - 4Z_M) e^{-Z_M \rho} + \\ &\quad + Z_M(\rho \mu + 4Z_I) e^{-Z_I \rho}], \\ \mu &= Z_I^2 - Z_M^2. \end{aligned}$$

Далее, используя преобразования Фурье

$$u^*(\mathbf{r}'_1) V(r'_1) = (2\pi)^{-3} \int g^*(\mathbf{p}) e^{-i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}'_1} d\mathbf{p},$$

$$u_m(r_1) = (2\pi)^{-3} \int g_m(\mathbf{q}) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_1} d\mathbf{q}, \quad (13)$$

$$u_m(|\boldsymbol{\rho} + \mathbf{r}_1|) = (2\pi)^{-3} \int g_m(\mathbf{q}) e^{i\mathbf{q}\cdot(\boldsymbol{\rho} + \mathbf{r}_1)} d\mathbf{q}$$

и соотношения (5) и (6), амплитуду захвата (9) можно представить в виде

$$a(\mathbf{b}, v) = N_t^\pm \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\omega t} [I_{1P}(A) \pm I_{1P}(B)], \quad (14)$$

$$\begin{aligned} I_{1P}(A) &= (2\pi)^{-6} \int g_m(\mathbf{q}) g^*(\mathbf{p}) \times \\ &\quad \times e^{i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{r} + \mathbf{R}/2 - \boldsymbol{\rho}/2) - i\mathbf{p}\cdot(\mathbf{r} - \mathbf{R}/2) - i\mathbf{v}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r} d\mathbf{p} d\mathbf{q}, \quad (15) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} I_{1P}(B) &= (2\pi)^{-6} \int g_m(\mathbf{q}) g^*(\mathbf{p}) \times \\ &\quad \times e^{i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{r} + \mathbf{R}/2 + \boldsymbol{\rho}/2) - i\mathbf{p}\cdot(\mathbf{r} - \mathbf{R}/2) - i\mathbf{v}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r} d\mathbf{p} d\mathbf{q}. \quad (16) \end{aligned}$$

Интегрируя последовательно по переменным  $\mathbf{r}$  и  $t$  в уравнениях (14)–(16) и используя дельта-функции  $\delta(\mathbf{q} - \mathbf{p} - \mathbf{v})$  и  $\delta(\mathbf{q}\mathbf{v} + \omega - v^2/2)$ , появляющиеся в процессе интегрирования, получим окончательно общее выражение для амплитуды вероятности перезарядки:

$$a(\mathbf{b}, v) = N_t^\pm [a(\mathbf{B}_-) e^{-iq_z \rho_z/2} \pm a(\mathbf{B}_+) e^{iq_z \rho_z/2}], \quad (17)$$

где

$$a(\mathbf{B}_\mp) = \frac{1}{(2\pi)^2 v} \int_P f(\mathbf{q}, v) e^{i\mathbf{q}_\perp \cdot \mathbf{B}_\mp} d^2\mathbf{q}, \quad (18)$$

$$f(\mathbf{q}, v) = g_m(\mathbf{q}) g^*(\mathbf{q} - \mathbf{v}), \quad (19)$$

$$\mathbf{q} - \mathbf{p} = \mathbf{v}, \quad p^2 - q^2 = 2\omega. \quad (20)$$

Интегрирование в (18) проводится по плоскости

$$P = \{\mathbf{q}\mathbf{v} + \omega - v^2/2 = 0\};$$

$q_z = v/2 - \omega/v$ ,  $\rho_z = \rho \cos \theta_\rho$ ,  $\mathbf{q}_\perp$  — поперечная компонента вектора  $\mathbf{q}$ ; векторы  $\mathbf{B}_\mp = \mathbf{b} \mp \boldsymbol{\rho}_\perp/2$  характеризуют положение траектории налетающего иона относительно двух ядерных центров молекулы  $\text{H}_2$  ( $\boldsymbol{\rho}_\perp$  — поперечная компонента вектора  $\boldsymbol{\rho}$ ). Произведение фурье-компонент (19) является квантовомеханической амплитудой в БК-приближении, а соотношение (18) связывает квазиклассическую IP-амплитуду перезарядки с квантовомеханической.

Вычисление интеграла (18) выполняется аналогично процедуре, использованной в [21, 22] для ион-атомных столкновений. Для интегрирования в (18) по плоскости  $P$  следует перейти от трехмерных векторов  $\mathbf{p}$  и  $\mathbf{q}$  к их поперечной компоненте  $\mathbf{k}$  ( $\mathbf{k}\cdot\mathbf{v} = 0$ ):

$$\mathbf{q} = \mathbf{k} + \frac{\mathbf{v}}{v} \left( \frac{v}{2} - \frac{\omega}{v} \right), \quad \mathbf{p} = \mathbf{k} - \frac{\mathbf{v}}{v} \left( \frac{v}{2} + \frac{\omega}{v} \right). \quad (21)$$

Фурье-компонента  $g_m(\mathbf{q})$  в (19) легко вычисляется:

$$g_m(\mathbf{q}) = \frac{2^3 (\pi Z_M^5)^{1/2}}{(Z_M^2 + q^2)^2}. \quad (22)$$

Факторизуя затем угловую и радиальную части фурье-преобразования  $g^*(\mathbf{p})$  в (19) для перехода в состояние  $(nlm)$  образующегося иона  $X^{(q-1)+}$ , получим амплитуду вероятности в виде

$$a(\mathbf{B}_\mp) = \frac{8 Z_M^{5/2} C_{lm}}{v} \times$$

$$\times \int_0^\infty \frac{P_l^m(\cos \theta_p) \tilde{R}_{nl} \left( \sqrt{k^2 + (v/2 + \omega/v)^2} \right)}{(Z_M^2 + k^2 + (v/2 - \omega/v)^2)^2} \times J_m(k|\mathbf{B}_\mp|) k dk, \quad (23)$$

$$C_{lm} = [(2l + 1)(l - m)! / (l + m)!]^{1/2},$$

$$\cos \theta_p = \frac{v/2 + \omega/v}{\sqrt{k^2 + (v/2 + \omega/v)^2}},$$

$P_l^m$  — присоединенный полином Лежандра,  $J_m$  — функция Бесселя и

$$|\mathbf{B}_\mp| = (b^2 + \rho_\perp^2 / 4 \mp b \rho_\perp \cos(\phi_b - \phi_\rho))^{1/2} \quad (24)$$

с азимутальным углом  $\phi_b$  параметра удара  $\mathbf{b}$ . Функция  $\tilde{R}_{nl}$  является радиальной частью фурье-преобразования  $g^*(\mathbf{p})$ :

$$\tilde{R}_{nl}(p) = \int_0^\infty R_{nl}(r) j_l(pr) V(r) r^2 dr, \quad (25)$$

где  $j_l(x)$  — сферическая функция Бесселя.

Используя уравнения (17) и (18), получаем вероятность перезарядки

$$P(\mathbf{b}, v) = |a(\mathbf{b}, v)|^2 = (N_t^\pm)^2 [|a_1|^2 + |a_2|^2 \pm 2a_1 a_2 \cos(q_z \rho_z)], \quad (26)$$

где  $a_1 = a(\mathbf{B}_-)$ ,  $a_2 = a(\mathbf{B}_+)$ . Последний член в квадратных скобках справа в формуле (26) определяет интерференцию между амплитудами  $a_1$  и  $a_2$  при рассеянии на двух центрах в молекуле  $\text{H}_2$ . Парциальное сечение одноэлектронной перезарядки для фиксированной ориентации молекулы  $\text{H}_2$  получается путем интегрирования вероятности захвата (26) по полярным координатам  $(b, \phi_b)$  вектора  $\mathbf{b}$ :

$$\sigma(\theta_\rho, \phi_\rho) = 2 \int P(\mathbf{b}, v) d^2\mathbf{b}, \quad d^2\mathbf{b} = b db d\phi_b, \quad (27)$$

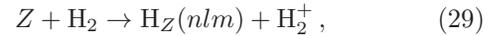
где множитель 2 связан с тем фактом, что любой из двух электронов молекулы может быть захвачен. Наконец, парциальное сечение перезарядки, усредненное по всем ориентациям молекулы, вычисляется по формуле

$$\sigma(v) = \frac{1}{4\pi} \int \sigma(\theta_\rho, \phi_\rho) d\Omega_\rho, \quad (28)$$

где  $d\Omega_\rho = \sin \theta_\rho d\theta_\rho d\phi_\rho$ .

## 2.2. Голые ядра

Рассмотрим случай, когда налетающее голое ядро с зарядом  $Z$  захватывает электрон у молекулы водорода



где  $\text{H}_Z$  — атом водорода или водородоподобный ион. В различных приложениях часто требуется знать вероятности захвата и сечения перезарядки для реакции



т.е. просуммированные по квантовым числам  $(lm)$ . Чтобы получить замкнутую аналитическую формулу для IP-амплитуды перезарядки

$$|a_n|^2 = \sum_{lm} |a_{nlm}|^2,$$

соответствующей реакции (30), в настоящей работе применялся подход, аналогичный использовавшемуся в работе [22] для случая ион-атомных столкновений. С этой целью применялось правило суммы [26] для фурье-преобразований водородоподобных волновых функций, чтобы получить фурье-компоненту  $g_n(p)$  (см. уравнения (13) и (19)), усредненную по  $l$  и  $m$ :

$$|g_n(p)|^2 = \sum_{lm} |g_{nlm}(p)|^2 = \frac{2^4 \pi Z^5}{n^3 (p^2 + Z^2/n^2)^2} = \frac{2^4 \pi Z^5}{n^3 (q^2 + 2I_M)^2}. \quad (31)$$

Предполагая, что дефект резонанса  $\omega$  реакции (30) в приближении водородоподобных функций слабо зависит от квантовых чисел  $l$  и  $m$  и подставляя амплитуды  $|g_n(p)|$  из формулы (31) и  $g_m(q)$  из формулы (22) в (18), окончательно получаем IP-амплитуду перезарядки для реакции (30):

$$a_n(\mathbf{B}_\mp) = \frac{2^4 (Z_M Z)^{5/2}}{v n^{3/2} (Z_M^2 - 2I_M)^2} \times \left[ \frac{(Z_M^2 - 2I_M) |\mathbf{B}_\mp| K_1(x_\mp)}{2 (q_z^2 + Z_M^2)^{1/2}} + K_0(x_\mp) - K_0(y_\mp) \right], \quad (32)$$

$$x_\mp = |\mathbf{B}_\mp| (q_z^2 + Z_M^2)^{1/2},$$

$$y_\mp = |\mathbf{B}_\mp| (q_z^2 + 2I_M)^{1/2},$$

где  $K_0$  и  $K_1$  — функции Макдональда нулевого и первого порядков соответственно. Используя формулу (32) в выражениях (26) — (28), можно найти вероятности захвата  $P_n(\mathbf{b}, v)$  и парциальные сечения перезарядки  $\sigma_n(\theta_\rho, \phi_\rho)$  (уравнение (27)) и  $\sigma_n(v)$  (уравнение (28)) для процесса (30).

### 2.3. Нормированные вероятности перезарядки и асимптотика при больших энергиях

Поскольку выражение (18) для амплитуды перезарядки выведено в первом порядке теории возмущений, соответствующие вероятности и сечения перезарядки часто оказываются значительно завышенными по сравнению с экспериментом, особенно в области малых относительных скоростей  $v \lesssim \sqrt{2|\omega|}$ . В этом случае вероятности переходов становятся больше 1 из-за нарушения условия унитарности в задаче рассеяния. Для преодоления этой проблемы в настоящей работе применяется метод многоканальной нормировки для вероятности перезарядки (26), ранее также использовавшийся в [22] для рассмотрения ион-атомных столкновений. Нормированные вероятности перезарядки  $P^{(N)}(\mathbf{b}, v)$  вычисляются следующим образом:

$$P_n^{(N)}(\mathbf{b}, v) = \frac{P_n(\mathbf{b}, v)}{1 + \sum_{k=n_0}^{n_{max}} P_k(\mathbf{b}, v)}, \quad (33)$$

где  $P_n(\mathbf{b}, v)$  — ненормированная вероятность одноэлектронной перезарядки в состоянии  $n$  налетающего иона; сумма в знаменателе распространяется на все конечные состояния  $k$  образующегося иона  $X^{(q-1)+}$ ;  $n_0$  — минимальное главное квантовое число, соответствующее нижней электронной оболочке иона  $X^{(q-1)+}$ ;  $n_{max}$  — максимальное главное квантовое число, учитываемое в расчетах. Процедура нормировки играет роль при низких и средних относительных скоростях ( $v/q^{1/2} \lesssim 1 - 2$ ).

Другой важный момент, который учитывается в настоящей работе, касается асимптотического поведения сечений одноэлектронной перезарядки при больших относительных скоростях сталкивающихся частиц ( $v/q^{1/2} \gg 1$ ). В работе [27] на примере столкновения  $H^+ + H$  было показано, что в пределе больших скоростей сечение перезарядки, вычисленное с учетом второго порядка борновского приближения, составляет около 1/3 от сечения, рассчитанного в БК-приближении. Аналогичный результат был получен в [28] для реакций, связанных с столкновениями  $H^+ + H$  и  $H^+ + He$ . Реакция  $H^+ + H_2$  была исследована во втором порядке приближения Борна в работе [29], где было показано, что коэффициент, равный примерно 1/3, также сохраняется. Основываясь на этих результатах, выражение (33) переписываем в виде

$$P_n^{(N)}(\mathbf{b}, v) = \frac{\frac{1}{3}P_n(\mathbf{b}, v)}{1 + \frac{1}{3} \sum_{k=n_0}^{n_{max}} P_k(\mathbf{b}, v)}. \quad (34)$$

Используя нормированные вероятности перезарядки (34) для вычисления парциальных сечений  $\sigma_n(\theta_\rho, \phi_\rho)$  и  $\sigma_n(v)$  в соответствии с уравнениями (27) и (28), можно затем получить полные сечения перезарядки  $\sigma_{tot}(v)$ , суммируя парциальные сечения по  $n$ :

$$\sigma_{tot}(v) = \sum_{n=n_0}^{n_{max}} \sigma_n(v). \quad (35)$$

### 2.4. Многозарядные ионы

Для налетающих ионов с электронной оболочкой (будем называть их многозарядными ионами) радиальные функции  $R_{nl}(r)$  оптического (или захваченного) электрона в уравнении (25) рассматриваются в настоящей работе как водородоподобные, т.е.

$$R_{nl}^{Z^*}(r) = (Z^*)^{3/2} R_{nl}^H(Z^*r), \quad (36)$$

где  $R_{nl}^H(r)$  являются радиальными функциями атома водорода, а  $Z^*$  — эффективный заряд, в котором движется оптический электрон в образовавшемся ионе  $X^{(q-1)+}$  (см. также [22] для деталей). Имеются две существенные причины для использования водородоподобных волновых функций. Во-первых, захват электрона в высоковозбужденные (водородоподобные) состояния многозарядных ионов вносит заметный вклад (для  $n \sim q$ ) в полные сечения перезарядки. Во-вторых, численные расчеты сечений перезарядки в этом случае существенно упрощаются (см. разд. 2.2).

Эффективный заряд  $Z^*$  в водородоподобном приближении берется в виде

$$Z^* = n\sqrt{2I_n}, \quad (37)$$

где  $I_n$  — усредненная по электронной оболочке с номером  $n$  энергия связи захваченного электрона в конечном состоянии  $n$  образовавшегося иона  $X^{(q-1)+}$ . Когда  $n$  растет,  $Z^*$  асимптотически приближается к значению заряда  $q$  налетающего иона  $X^{q+}$ . Обычно достаточно найти энергии связи  $I_n$  для нескольких ( $\approx 4-7$ ) первых оболочек, начиная с нижней электронной оболочки  $n_0$ , чтобы получить условие  $Z^* \simeq q$  с хорошей точностью.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

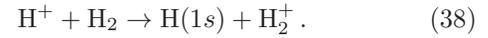
Для расчетов вероятностей и сечений перезарядки можно использовать разные волновые функции мишени  $\Phi_M$  и  $\Phi_I$  в зависимости от значений параметров  $c$ ,  $Z_M$  и  $Z_I$ . Для эффективного заряда молекулярного иона использовалось значение  $Z_I = 1.4$ . В случае волновой функции молекулы  $H_2$  в расчетах обычно используют три набора параметров  $c$  и  $Z_M$ : для волновой функции, соответствующей предельным атомным орбиталам,  $c = 0$ ,  $Z_M = 1.166$  [30]; для промежуточной волновой функции Вайнбаума  $c = 0.256$ ,  $Z_M = 1.193$  [31]; для предельных молекулярных орбиталей  $c = 1$ ,  $Z_M = 1.193$ . Отличия в расчетах при использовании указанных трех наборов параметров для волновой функции молекулы  $H_2$  в столкновении  $H^+ + H_2$  обсуждались в работах [8, 10], в которых авторы получили незначительные расхождения в результатах. В настоящей работе представлены результаты расчетов, выполненные с волновой функцией Вайнбаума [31]; эта функция также использовалась во многих исследованиях (см., например, [8, 10, 11, 14]) и считается в целом наилучшей волновой функцией молекулы  $H_2$  из указанных выше. Также, в соответствии с принципом Франка–Кондона, межъядерное расстояние  $\rho$  между протонами в молекуле  $H_2$  в расчетах принималось равным  $\rho = 1.4$  а.е.д. до и после столкновения.

Далее, переходы в нечетное (ungerade) состояние иона  $H_2^+$  в расчетах не учитывались. Расчеты, выполненные в настоящей работе, показали, что вклад в нечетное состояние пренебрежимо мал в сравнении с вкладом для перехода в четное (gerade) состояние иона  $H_2^+$ . В случае волновой функции Вайнбаума разница для переходов в четное и нечетное состояния составляет приблизительно порядок величины. Аналогичные выводы о переходах в нечетное состояние и его незначительном вкладе в сечения перезарядки в сравнении с четным состоянием были также получены в работах [8, 10, 14].

#### 3.1. Зависимость вероятностей перезарядки $P(\mathbf{b})$ от ориентации молекулы

Рассмотрим сначала зависимость вероятности перезарядки  $P(\mathbf{b})$  (см. уравнение (26)) как функции параметра удара  $b$  от различных ориентаций молекулярной оси. Плоскость рассеяния при этом предполагается фиксированной при азимутальном угле  $\phi_b = 0$  параметра удара  $\mathbf{b}$  и рассматривается также как базисная плоскость для ориентации молекулы.

Зависимость вероятности  $P(\mathbf{b})$  от ориентации молекулы  $H_2$  иллюстрируется на примере реакции переноса заряда



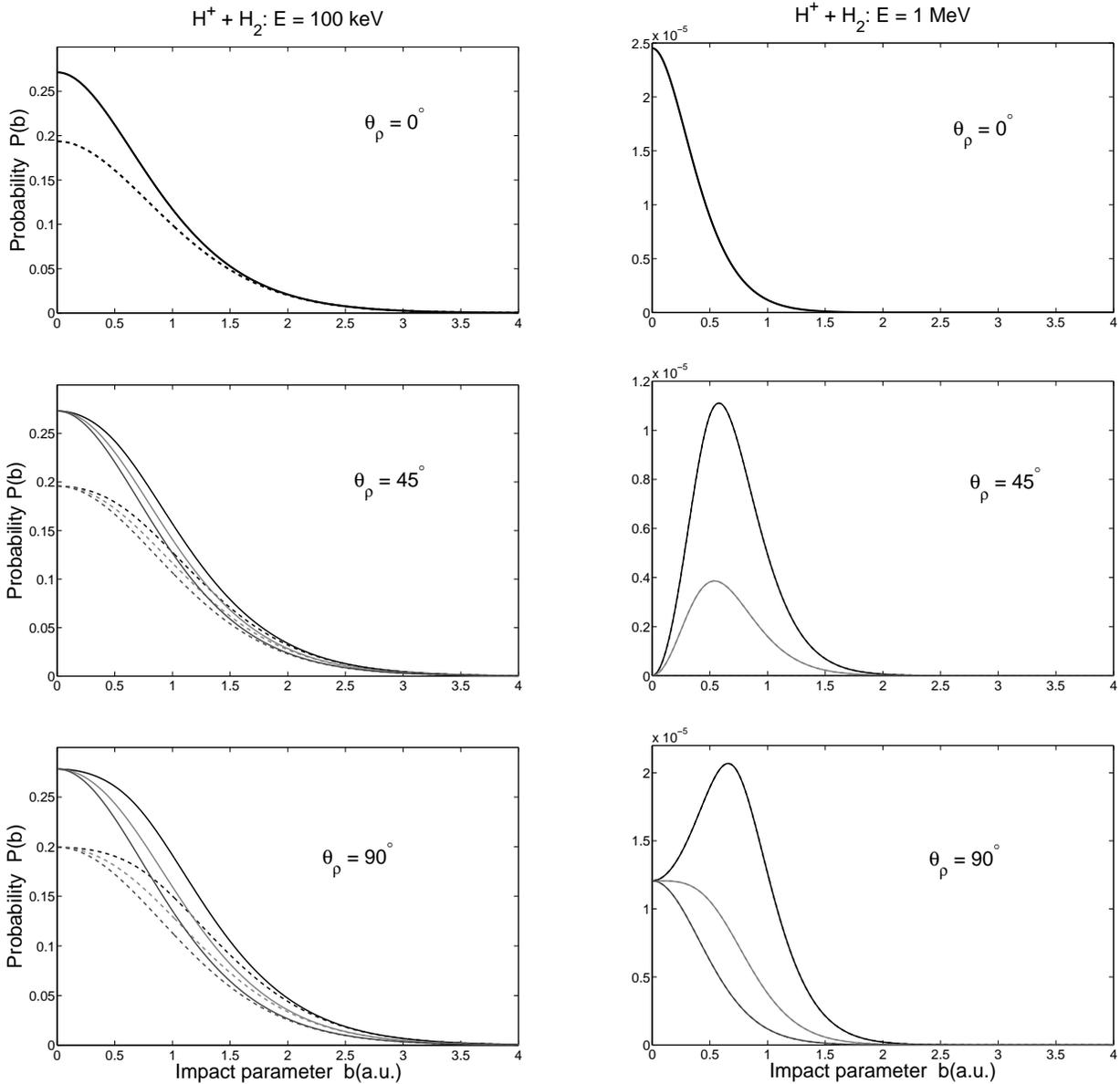
На рис. 1 вероятности перезарядки  $P(\mathbf{b})$  представлены как функции параметра удара для энергий столкновения 100 кэВ и 1 МэВ при фиксированных ориентациях молекулярной оси, соответствующих углам  $\theta_\rho$  и  $\phi_\rho$ , равным 0, 45° и 90°.

На рис. 1 видно, что величина  $P(\mathbf{b})$  слабо зависит от азимутального угла  $\phi_\rho$  для средней энергии столкновения 100 кэВ и полярных углов  $\theta_\rho = 45^\circ$  и  $90^\circ$ . Этот вывод находится в согласии с результатами работы [13]. Зависимость вероятности перезарядки от угла  $\phi_\rho$  для большой энергии 1 МэВ становится более существенной. Далее, как видно на рис. 1, процедура нормировки заметно уменьшает вероятности перезарядки при 100 кэВ, тогда как для энергии 1 МэВ нормированные вероятности  $P(\mathbf{b})$  практически совпадают с ненормированными. Численные расчеты показывают, что нормировка вероятностей играет существенную роль для энергий столкновения  $\sim 10$ –100 кэВ, а при энергиях  $\gtrsim 200$  кэВ ее влияние становится незначительным. Расчеты вероятностей перезарядки, выполненные в настоящей работе для энергии столкновения 1 МэВ, хорошо согласуются с результатами [14], которые также были получены для процесса (38) в IP-приближении.

#### 3.2. Зависимость сечений перезарядки от ориентации молекулы

Интерференция между амплитудами рассеяния от двух ядерных центров мишени  $H_2$  приводит к ориентационным эффектам в сечениях перезарядки. Процесс переноса возбуждения в столкновениях быстрых протонов (0.3, 0.7, 1.0 и 1.3 МэВ) с молекулами  $H_2$  был экспериментально исследован в работах [32, 33], где соответствующие дифференциальные сечения измерялись как функции полярного угла  $\theta_\rho$  между осью молекулы и траекторией налетающего иона. Эти измерения выявили существенную угловую зависимость от ориентации молекул из-за интерференционных эффектов, связанных с наличием двух атомных центров в молекуле  $H_2$ .

Метод, представленный в настоящей работе, также применяется к расчетам дифференциальных сечений одноэлектронной перезарядки в столкновениях  $H^+ + H_2$  и сравнивается с экспериментальными данными [32, 33] и с результатами других теоретических расчетов. Значения дифференциальных се-



**Рис. 1.** Вероятность перезарядки  $P(\mathbf{b})$  для реакции  $\text{H}^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{H}(1s) + \text{H}_2^+$  как функция параметра удара  $b$  при энергиях 100 кэВ (левая колонка) и 1 МэВ (правая колонка) для разных ориентаций молекулы  $\text{H}_2$ . Сплошные кривые соответствуют ненормированным, а штриховые кривые — нормированным вероятностям (в правой колонке, при энергии 1 МэВ, сплошные и штриховые кривые практически совпадают). Цветные кривые маркируют разные азимутальные углы:  $\phi_\rho = 0^\circ$  (черный),  $\phi_\rho = 45^\circ$  (красный),  $\phi_\rho = 90^\circ$  (синий). При энергии 1 МэВ и для ориентации  $\theta_\rho = 45^\circ$  и  $\phi_\rho = 90^\circ$ ,  $P(\mathbf{b})$  пренебрежимо мало, но имеет максимум при  $b = 0$

чений получаются путем интегрирования по полярным координатам  $(b, \phi_b)$  параметра удара  $\mathbf{b}$  в уравнении (27), где плоскость рассеяния берется фиксированной при угле  $\phi_b = 0$  и является базисной плоскостью для обоих азимутальных углов  $\phi_b$  и  $\phi_\rho$ . Вероятность перезарядки  $P(\mathbf{b}, v)$  содержит угол  $\phi_\rho$  в виде разности  $(\phi_b - \phi_\rho)$  (см. уравнение (24)). В резуль-

тате, интегрирование в уравнении (27) по углу  $\phi_b$  снимает зависимость от угла  $\phi_\rho$  и приводит к дифференциальному сечению  $d\sigma/d(\cos\theta_\rho)$  как функции полярного угла  $\theta_\rho$ .

На рис. 2 представлены кривые зависимостей дифференциальных сечений перезарядки для реакции  $\text{H}^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{H}(n) + \text{H}_2^+$  для энергий столкнове-

ния 0.3, 0.7, 1.0 и 1.3 МэВ. Расчеты сравниваются с измерениями [32, 33] для относительных дифференциальных сечений. На рис. 2 показаны два расчета, полученных в настоящей работе: (i) одноэлектронная перезарядка в состоянии  $1s$  налетающего иона (сплошная зеленая кривая) и (ii) сумма дифференциальных сечений по состояниям  $n = 1-100$  (сплошная черная кривая). На рис. 2 видно, что эти две кривые практически не отличаются для всех приведенных энергий. Настоящие расчеты также сравниваются с расчетами из [32] (штриховые кривые), основанными на IP-методе [14], и результатами [12] (штрихпунктирные кривые), основанными на первом борновском приближении с корректными граничными условиями (В1В). Все расчеты, представленные на рис. 2, учитывают только канал электронного захвата в общем процессе передачи возбуждения и основываются на предположении, что остальное возбуждение не влияет на угловую зависимость (см. [32]). Следует отметить, что экспериментальные исследования [34] по перезарядке в столкновениях  $H^+ + H_2$  показали, что процессы диссоциации и ионизации не вносят заметного вклада в сравнении с механизмами недиссоциативного переноса заряда.

Рисунок 2 показывает, что наблюдаемые вариации численных и экспериментальных данных качественно находятся в согласии, которое также улучшается количественно с увеличением энергии столкновения. Это, очевидно, является следствием использования первого порядка борновского приближения, которое имеет тенденцию к улучшению численных результатов с ростом энергии столкновения. Результаты всех расчетов относительно близки для энергий 0.3 и 1.3 МэВ, тогда как для 0.7 и 1.0 МэВ они заметно различаются. Настоящие расчеты и измерения также имеют очень хорошее согласие в области значений полярных углов  $\theta_p \approx 60^\circ-120^\circ$  для энергий 0.7, 1.0 и 1.3 МэВ.

### 3.3. Полные сечения перезарядки: налетающие голые ядра

Эксперименты, связанные с измерениями сечений перезарядки в ион-молекулярных столкновениях, обычно содержат информацию о столкновительных характеристиках, усредненных по всем молекулярным ориентациям. Более того, в различных приложениях часто требуются полные сечения перезарядки как функции энергии (или относительной скорости) столкновения, усредненные по ориентациям молекулы и просуммированные по кван-

товым числам  $n$  конечных состояний налетающего иона. Ниже рассчитанные в настоящей работе полные сечения одноэлектронной перезарядки (см. уравнение (35)) для нескольких налетающих ионов, являющихся голыми ядрами, сравниваются с экспериментальными данными и результатами других расчетов.

Рисунок 3 демонстрирует результаты расчетов с помощью метода, представленного в настоящей работе, для процесса захвата электрона у молекулы  $H_2$  протоном  $H^+$  в диапазоне энергий 2–8000 кэВ/нуклон, которые сравниваются с измерениями и другими расчетами. На рис. 3 приведены расчеты, основанные на следующих теоретических методах (с указанием диапазонов энергий, для которых соответствующие расчеты были проведены): (1) модель сильной связи с атомными орбиталями (АО — atomic-orbital) [13], в которой волновая функция молекулярной мишени  $H_2$  записывается в виде линейной комбинации атомных орбиталей для двух атомов молекулы, а амплитуда перезарядки представляется в первом порядке теории возмущений (АО 1); (2) метод классических траекторий Монте-Карло [16, 17] (СТМС 1) и тот же метод с некоторыми модификациями [18] (СТМС 2); (3) молекулярная версия первого порядка борновского приближения с корректными граничными условиями (В1В) и приближение Оппенгеймера–Бринкмана–Крамерса (ОВК) из [35]; (4) метод искаженных кулоновских волн (CDW), представленный работами [19] (CDW 1) и [20] (CDW 2). Большинство экспериментальных измерений на рис. 3 взяты из компилированных данных, собранных в [36], и несколько измерений в области больших энергий 2–8 МэВ/н воспроизведены из [37]. Стоит отметить заметную дисперсию в экспериментальных данных, представленных на рис.3. Рекомендованные данные [38], собранные и оцененные на основе опубликованных экспериментальных и теоретических данных, также представлены на рис.3 и в среднем хорошо описывают измерения, собранные в [36].

Расчеты, представленные на рис. 3 и основанные на методах АО 1, В1В и ОВК, соответствуют захвату электрона только в состояние  $1s$  атома  $H$  и поэтому они недооценивают вклад перезарядки в состоянии налетающего протона с  $n > 1$ . В то же время, расчеты, основанные на приближениях CDW 1 и CDW 2, учитывают электронный захват в состояния с  $n > 3$  с помощью экстраполяции  $n^{-3}$  (см. разд. 1). Результаты метода ОВК [35] демонстрируют хорошо известную переоценку данных измерений фактора

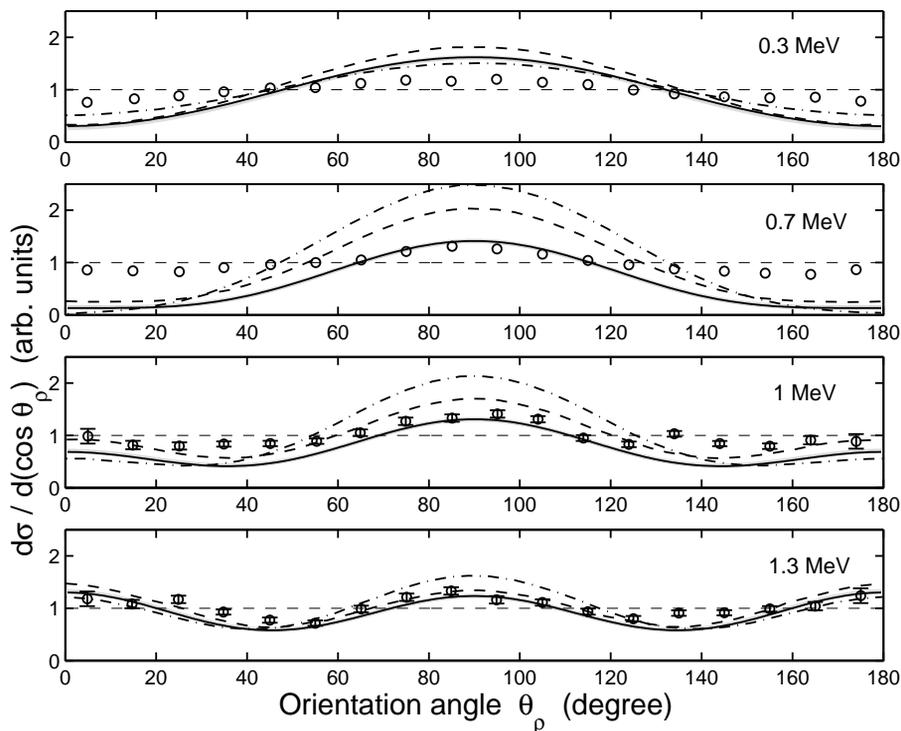


Рис. 2. Угловые распределения дифференциальных сечений одноэлектронной перезарядки для столкновения  $H^+ + H_2$  при энергиях 0.3, 0.7, 1.0 и 1.3 МэВ как функции полярного угла  $\theta_p$ . Кружки обозначают экспериментальные данные [32, 33] для процесса переноса возбуждения (интервал погрешностей для энергий 0.3 и 0.7 МэВ соответствует размеру кружков). Сплошные кривые представляют результаты настоящей работы: толстые зеленые кривые соответствуют захвату электрона в состояние  $1s$  налетающего иона, а тонкие черные кривые представляют полные дифференциальные сечения, просуммированные по состояниям  $n = 1 - 100$ . Штриховые кривые — это расчеты [32], основанные на IP-формализме [14]. Штрихпунктирные линии представляют расчеты [12] методом В1В (см. текст). Тонкие горизонтальные штриховые линии — сечения (приведенные к единице) без учета интерференционного члена при расчете сечений

3, который можно учесть во втором порядке приближения Борна (см. разд. 2.3). Далее, на рис. 3а видно, что при низких энергиях,  $E \lesssim 25$  кэВ/нуклон (относительная скорость  $v \lesssim 1$ ), результаты настоящей работы заметно превышают другие расчеты и измерения, что связано с использованием основанного на теории возмущений приближения Борна. При низких энергиях столкновения преобладает квази-резонансный механизм захвата, который не учитывается в рамках борновского приближения. В области средних ( $v \sim 1$ ) и относительно высоких энергий ( $E \approx 100 - 500$  кэВ/нуклон,  $v \approx 2 - 4$ ), настоящие расчеты превышают результаты методов CDW 1 и CDW 2, хорошо согласуются с расчетами В1В и в среднем находятся в согласии с измерениями в пределах 30–50%. Рис. 3b показывает, что при больших энергиях  $E \approx 0.5 - 8$  кэВ/нуклон результаты настоящей работы согласуются очень хорошо с расчетами В1В и CDW 1 и лучше описывают измерения [37]

в пределах около 20% за исключением одной точки при 2 МэВ/н.

На рис. 4 представлены полные сечения одноэлектронной перезарядки для молекулярной мишени  $H_2$  в столкновениях с ионами  $He^{2+}$ . В дополнение к численным расчетам, выполненным с помощью приведенных на рис. 3 методов, также представлены расчеты, выполненные в [39] для одноэлектронной перезарядки в области низких и средних энергий (2–100 кэВ/нуклон) с помощью модели сильной связи с атомными орбиталями (АО 2) с некоторыми улучшениями и модификациями в сравнении с методом АО 1 [13]. Расчеты методом АО 1 на рис. 4 включают только захват в состояния с  $n = 1$  и  $n = 2$  иона  $He^+$ . Результаты В1В [40] получены расчетом сечений перезарядки в состояния с  $n = 1$  и 2, а состояния с  $n > 2$  учтены с помощью экстраполяции  $n^{-3}$ . Экспериментальные данные на рис. 4 представлены в основном компиляцией из [36], а также из

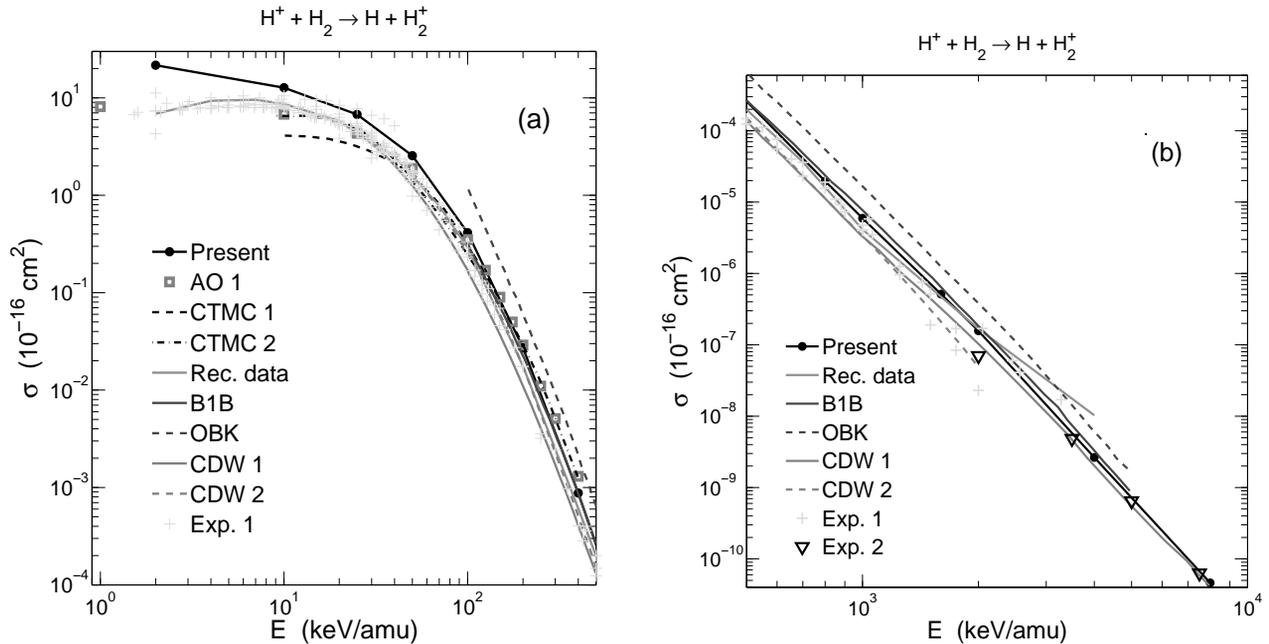


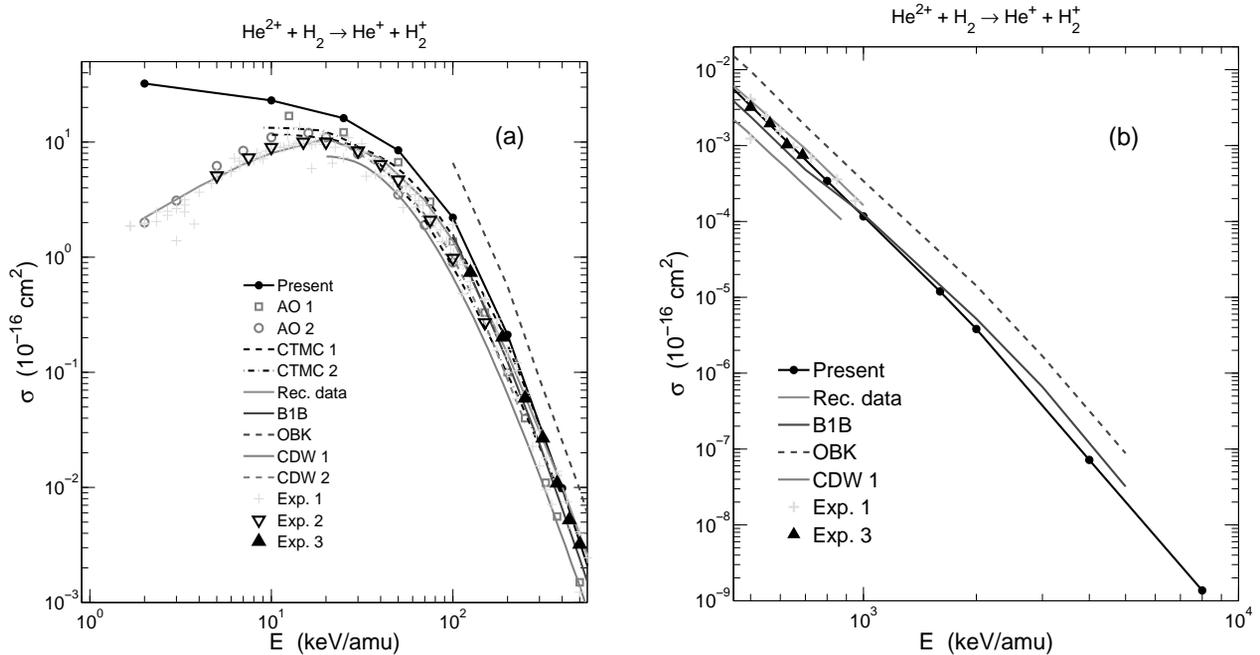
Рис. 3. Полные сечения одноэлектронной перезарядки (уравнение (35)) в столкновениях  $H^+ + H_2$  для энергий 2–500 кэВ/нуклон (а) и 0.5–8 МэВ/н (b). Расчеты: сплошные черные кривые с закрашенными кружками — настоящая работа; красные квадратики — АО 1 [13] (1–400 кэВ/нуклон); штриховая черная кривая — СТМС 1 [16, 17] (10–150 кэВ/нуклон); штрихпунктирная черная кривая — СТМС 2 [18] (10–400 кэВ/нуклон); сплошные пурпурные кривые — рекомендованные данные [38] (2–4000 кэВ/нуклон); сплошные синие кривые — В1В [35] (0.1–5 МэВ/н); штриховые синие кривые — ОБК [35] (0.1–5 МэВ/н); сплошные красные кривые — CDW 1 [19] (0.02–8 МэВ/н); штриховые красные кривые — CDW 2 [20] (40–2000 кэВ/нуклон). Эксперимент: зеленые крестики — компилированные данные из [36]; перевернутые треугольники — [37]

мерениями [41] и недавними данными [42]. Для области энергий на рис. 4а можно сделать аналогичные выводы, как и для рис. 3а: результаты настоящей работы демонстрируют превышение над другими расчетами и измерениями при относительных скоростях  $v \lesssim 1$  и имеют хорошее согласие с рекомендованными и экспериментальными данными при  $v \approx 2 - 4$ . Также стоит отметить очень хорошее согласие настоящих расчетов с недавними измерениями [42] на рис. 4а и b, особенно для энергий около 300–700 кэВ/нуклон, в пределах 20%.

Рисунок 5 демонстрирует данные для полных сечений перезарядки в столкновениях молекулы  $H_2$  с ионами  $V^{5+}$  (диаграмма а) и  $C^{6+}$  (диаграмма b). Для этих более тяжелых ионов имеющиеся расчеты и измерения не так многочисленны, как в случае ионов  $H^+$  и  $He^{2+}$ . Для иона  $V^{5+}$  настоящие расчеты сравниваются с расчетами СТМС 2 [18] и экспериментальными данными [36, 43]. При энергиях около 100–200 кэВ/нуклон результаты СТМС 2 недооценивают измерения из [36], тогда как результа-

ты настоящей работы переоценивают экспериментальные данные [36] в пределах приблизительно 50%. Недавние измерения [43] удовлетворительно согласуются с настоящими расчетами: при энергии 334 кэВ/нуклон согласие находится в пределах 30%, а для энергии 752 кэВ/нуклон эксперимент превышает расчет приблизительно в 2 раза.

Для иона  $C^{6+}$  результаты настоящей работы сравниваются с расчетами СТМС 1 [16, 17] и СТМС 2 [18], а также с рекомендованными данными [44] и измерениями [36, 45, 46]. На рис. 5b видно, что настоящие расчеты хорошо согласуются с результатами СТМС 1 и СТМС 2 при средних ( $v \sim 1$ ) и больших энергиях столкновения и с рекомендованными данными при энергиях около 100–1300 кэВ/нуклон. Далее, стоит заметить, что наблюдается очень хорошее согласие между настоящими результатами и компилированными экспериментальными данными [36] (включая даже область низких энергий) в пределах около 30%. Кроме того, расчеты настоящей работы очень хо-



унках

**Рис. 4.** То же, что на рис. 3 в столкновениях  $\text{He}^{2+} + \text{H}_2$  для энергий 2–500 кэВ/нуклон (a) and 0.5–8 МэВ/н (b). Расчеты: сплошные черные кривые с закрашенными кружками — настоящая работа; красные квадратики — АО 1 [13] (10–500 кэВ/нуклон); красные кружки — АО 2 [39] (2–100 кэВ/нуклон); штриховая черная кривая — СТМС 1 [16, 17] (10–300 кэВ/нуклон); штрихпунктирная черная кривая — СТМС 2 [18] (10–400 кэВ/нуклон); сплошные пурпурные кривые — рекомендованные данные [38] (2–1000 кэВ/нуклон); сплошные синие кривые — В1В [40] (0.1–5 МэВ/н); штриховые синие кривые — ОБК [40] (0.1–5 МэВ/н); сплошные красные кривые — CDW 1 [19] (20–900 кэВ/нуклон); штриховые красные кривые — CDW 2 [20] (20–250 кэВ/нуклон). Эксперимент: зеленые крестики — компилированные данные из [36]; перевернутые треугольники — [41]; закрашенные треугольники — [42]

**Таблица 1.** Полные сечения одноэлектронной перезарядки для столкновения  $\text{O}^{8+} + \text{H}_2$

$E$ , кэВ/нуклон	500	625	781	1000	1250
$\sigma$ , $10^{-16}$ см <sup>2</sup>	0.184	$6.62 \cdot 10^{-2}$	$2.39 \cdot 10^{-2}$	$7.93 \cdot 10^{-3}$	$2.97 \cdot 10^{-3}$
Данная работа					
$\sigma$ , $10^{-16}$ см <sup>2</sup>	0.56	0.18	$7.2 \cdot 10^{-2}$	$2.2 \cdot 10^{-2}$	$9.6 \cdot 10^{-3}$
[15]					

рошо согласуются с измерениями [45] — в пределах 10%. Согласие с экспериментом [46] находится в пределах около 50%, причем расчет переоценивает измерение для энергии 833 кэВ/нуклон, тогда как при 1830 кэВ/нуклон настоящий результат недооценивает эксперимент. Сравнение расчетов и имеющихся измерений для налетающих ионов  $\text{V}^{5+}$  и  $\text{C}^{6+}$  показывает, что для надежных выводов о точности теоретических методов, использу-

щихся в расчетах сечений перезарядки, требуется существенно больше экспериментальных данных.

В работе [15] расчеты полных сечений одноэлектронной перезарядки в столкновениях  $\text{O}^{8+} + \text{H}_2$  также рассматривались в IP-представлении для энергий 500, 625, 781, 1000 и 1250 кэВ/нуклон. Вклад в полное сечение захвата электрона в состоянии  $n > 1$  в [15] учитывался путем использования водородоподобных волновых функций  $u_n(Z) = n u_{1s}(Z/n)$

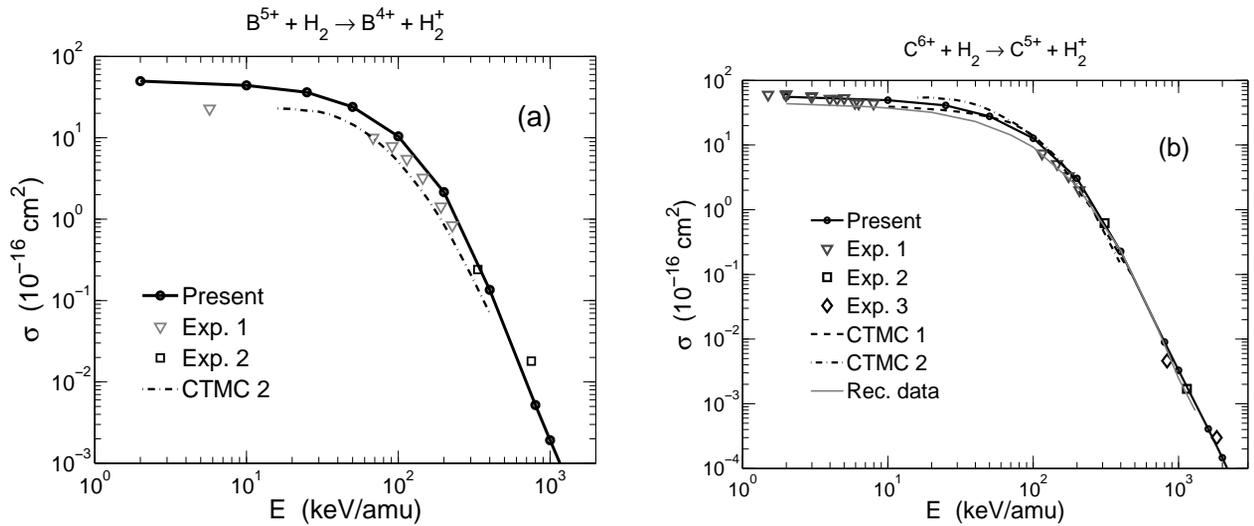


Рис. 5. То же, что на рис. 3 в столкновениях  $B^{5+} + H_2$  для энергий 2–1000 кэВ/нуклон (a) и в столкновениях  $C^{6+} + H_2$  для энергий 2–2000 кэВ/нуклон (b). Расчеты: сплошные черные кривые с закрашенными кружками — настоящая работа; штриховая черная кривая — СТМС 1 [16, 17] (10–500 кэВ/нуклон); штрихпунктирная черная кривая — СТМС 2 [18] (15–400 кэВ/нуклон); сплошная красная кривая на диаграмме (b) — рекомендованные данные [44] (2–1300 кэВ/нуклон). Эксперимент: перевернутые треугольники на диаграммах (a) и (b) — компилированные данные из [36]; квадратики на диаграмме (a) — из [43]; квадратики на диаграмме (b) — данные [45]; ромбики на диаграмме (b) — данные [46]

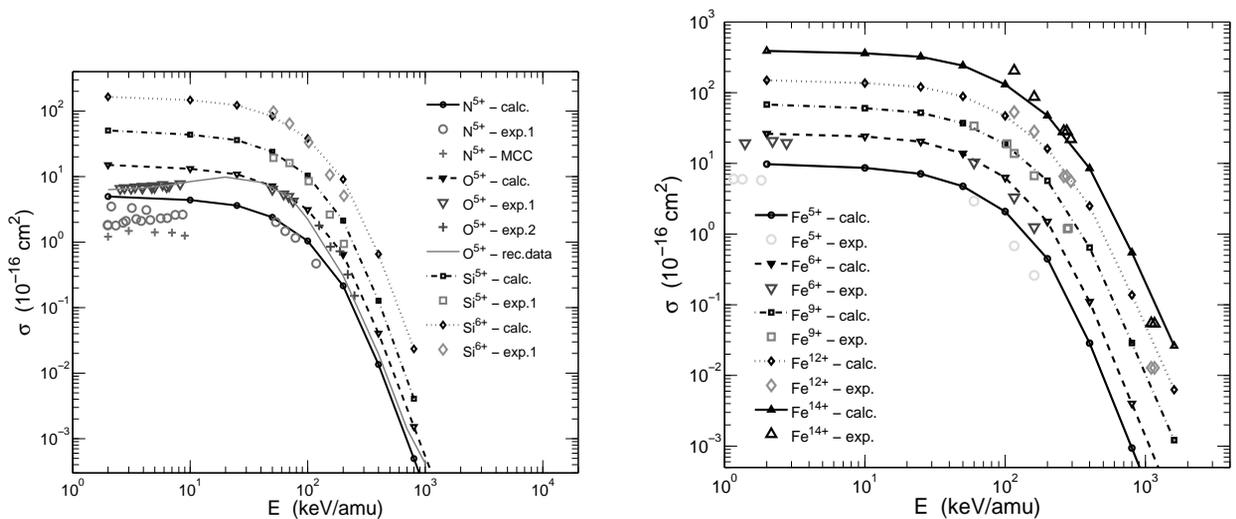


Рис. 6. Полные сечения одноэлектронной перезарядки в столкновениях  $X^{q+} + H_2$  для ионов  $X^{q+} = \{N^{5+}, O^{5+}, Si^{5+}, Si^{6+}\}$  (на левой диаграмме) и  $X^{q+} = \{Fe^{5+}, Fe^{6+}, Fe^{9+}, Fe^{12+}, Fe^{14+}\}$  (на правой диаграмме). Представленные данные для сечений масштабированы следующим образом:  $N^{5+} \times 0.1$ ,  $O^{5+} \times 0.3$ ,  $Si^{6+} \times 3$ ,  $Fe^{5+} \times 0.2$ ,  $Fe^{6+} \times 0.5$ ,  $Fe^{12+} \times 2$ ,  $Fe^{14+} \times 5$ . Расчеты: результаты настоящей работы обозначены как «calc.»; зеленые крестики на левой диаграмме — метод молекулярной сильной связи (MCC — molecular close-coupling) [48] для иона  $N^{5+}$ ; сплошная красная кривая на левой диаграмме — рекомендованные данные [44] для иона  $O^{5+}$ . Эксперимент: данные, обозначенные как «exp.1» на левой диаграмме и «exp.» на правой, из работы [36]; данные, обозначенные как «exp.2», из работы [49] для иона  $O^{5+}$ . Для упрощения зрительного восприятия кривые с результатами расчетов обозначаются теми же значками, что и соответствующие экспериментальные данные

(см., например, [47]) для конечных состояний иона. В таблице приведено сравнение настоящих расчетов с данными [15]. Значения полных сечений из работы [15] приблизительно в 3 раза превышают значения, полученные в настоящей работе. Это различие связано главным образом с асимптотикой сечений перезарядки при больших энергиях, так как в [15] не учитывалась поправка, связанная со вторым порядком борновского приближения (см. разд. 2.3).

### 3.4. Полные сечения перезарядки: многозарядные ионы

Результаты расчетов полных сечений одноэлектронной перезарядки для нескольких многозарядных ионов, относящихся к элементам N, O, Si и Fe, представлены на рис. 6. Вычисленные сечения перезарядки для всех ионов сравниваются с экспериментальными данными из [36]. Дополнительно, для целей сравнения приводятся также расчеты методом молекулярной сильной связи (МСС — molecular close-coupling) [48] при низких энергиях для иона  $N^{5+}$ , а также экспериментальные [49] и рекомендованные данные [44] для иона  $O^{5+}$ . В случае ионов  $N^{5+}$ ,  $O^{5+}$ ,  $Si^{5+}$  и  $Si^{6+}$  захват электрона происходит в состоянии с  $n \geq 2$ , а для рассматриваемых ионов элемента Fe в состоянии с  $n \geq 3$ .

На рис. 6 видно, что настоящие расчеты для ионов  $N^{5+}$  и  $O^{5+}$  при низких энергиях 2–10 кэВ/нуклон завышены в сравнении с измерениями в среднем приблизительно в 2 раза, а МСС расчеты для иона  $O^{5+}$  недооценивают эксперимент примерно на 50%. Результаты настоящей работы для иона  $N^{5+}$  при средних энергиях 50–120 кэВ/нуклон согласуются с экспериментальными данными [36] в пределах 50%. Согласие с экспериментальными данными [36] при энергиях 50–80 кэВ/нуклон для иона  $O^{5+}$  очень хорошее в пределах 15%, тогда как согласие с экспериментом [49] в области энергий 125–250 кэВ/нуклон лучше при более низких энергиях в пределах примерно 30% и становится хуже для более высоких энергий около 50–80%. Измерения для ионов  $Si^{5+}$  и  $Si^{6+}$  представлены областью энергий 50–200 кэВ/нуклон. Для этих ионов вычисленные полные сечения перезарядки согласуются с экспериментом при  $E \lesssim 100$  кэВ/нуклон в пределах 20%, а для энергий  $> 100$  кэВ/нуклон различие составляет приблизительно 1.5–2 раза.

Экспериментальные данные на рис. 6 для ионов  $Fe^{5+}$  и  $Fe^{6+}$  представлены низкими энергиями при-

мерно 2 кэВ/нуклон и областью средних энергий 60–160 кэВ/нуклон. При низких энергиях рассчитанные полные сечения переоценивают эксперимент приблизительно на 70% для иона  $Fe^{5+}$  и 20% для иона  $Fe^{6+}$ . Для энергий 60–160 кэВ/нуклон вычисленные полные сечения начинают превышать эксперимент с ростом энергии от примерно 30% до 2–2.5 раз. Измерения для иона  $Fe^{9+}$  покрывают область энергий 60–300 кэВ/нуклон: при энергиях около 60–200 кэВ/нуклон расчеты и эксперимент согласуются хорошо в пределах 30%, тогда как при  $E > 200$  кэВ/нуклон вычисленные полные сечения превышают эксперимент примерно в 1.5 раза. Наконец, экспериментальные данные для ионов  $Fe^{12+}$  и  $Fe^{14+}$  представлены областью энергий 116–1160 кэВ/нуклон. Для энергий  $E \lesssim 300$  кэВ/нуклон расчет и измерения имеют хорошее согласие в пределах примерно 30% (за исключением энергии 116 кэВ/нуклон в случае иона  $Fe^{14+}$ , где отличие составляет примерно 50%). При больших энергиях около 1100 кэВ/нуклон рассчитанные полные сечения превышают измерения примерно в 2–2.5 раза.

Сравнение показывает в целом хорошее согласие между расчетами и экспериментом для многозарядных ионов в области средних энергий столкновения, что достигается благодаря процедуре нормировки для вероятностей перезарядки (см. разд. 2.3). Заметные различия при более высоких энергиях могут быть предположительно вызваны учетом поправки, связанной со вторым порядком борновского приближения, в вероятностях перезарядки. Этот вопрос следует прояснить и уточнить в случае электронного захвата в ионные состояния с  $n > 1$ . Эта проблема выходит за рамки данной работы и является предметом отдельного рассмотрения.

## 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе рассмотрен процесс одноэлектронной перезарядки при столкновениях быстрых ионов с молекулярным водородом. Модельный подход, ранее использованный при рассмотрении ион-атомных столкновений в [21, 22], разработан и расширен на ион-молекулярные столкновения. Теоретический метод для расчета сечений одноэлектронной перезарядки, соответствующей процессу (1), сформулирован в представлении параметра удара с использованием БК-приближения для амплитуды перезарядки. Чтобы в задаче рассеяния учесть нарушение условия унитарности в области низких и

средних энергий столкновения, применяется процедура многоканальной нормировки вероятностей захвата, которые затем используются для вычисления сечений одноэлектронной перезарядки.

Разработанный метод позволяет исследовать как ориентационные эффекты при столкновениях быстрых ионов с молекулярными мишенями, так и вычислять сечения одноэлектронной перезарядки. В целом, получено хорошее согласие с измерениями и другими расчетами в области средних и высоких энергий столкновения молекулы  $\text{H}_2$  как с голыми ядрами, так и с многозарядными ионами. Расчеты полных сечений перезарядки в настоящей работе очень хорошо согласуются с измерениями в случае голых ядер, и это согласие составляет в среднем около 20–50%. В случае многозарядных ионов, рассмотренных в работе, наблюдается хорошее согласие, около 30%, между расчетами и измерениями в области средних энергий. Для высоких энергий столкновения различия в случае многозарядных ионов достигают фактора 1.5–2.5, что предположительно связано с тем, что захват для этих ионов происходит в состоянии с  $n > 1$ . В этом случае требуется уточнение поправки, связанной с учетом второго борновского приближения. Другая причина этих различий может быть связана с тем, что данные измерений для многозарядных ионов, связанные с процессом (1), немногочисленны (особенно для высоких энергий), и для надежных выводов о точности расчетов требуется больше экспериментальной информации.

Результаты настоящей работы могут быть использованы в разных приложениях, таких как физика плазмы, физика ускорителей, ядерная физика и др. Разработанный и использованный в этой работе метод для водородной молекулярной мишени может быть расширен и применен к более сложным двухатомным гомоядерным молекулам, таким как  $\text{N}_2$ ,  $\text{O}_2$ , и др. Дальнейшая работа по развитию представленного метода связана с включением в настоящую модель первого порядка борновского приближения с корректными граничными условиями (В1В), который был рассмотрен в [35, 40] при столкновениях ионов  $\text{H}^+$  и  $\text{He}^{2+}$  с мишенью  $\text{H}_2$ .

**Благодарности.** Автор хотел бы поблагодарить В.П. Шевелько (ФИАН) за полезные дискуссии и поддержку этой работы.

## ЛИТЕРАТУРА

1. H. Knudsen, H. K. Haugen, and P. Hvelplund, *Phys. Rev. A* **24**, 2287 (1981).
2. I. Tolstikhina, M. Imai, N. Winckler, and V. Shevelko, *Basic Atomic Interactions of Accelerated Heavy Ions in Matter*, Springer Series on Atomic, Optical, and Plasma Physics, Vol. 98, Springer-Verlag GmbH (2018).
3. V. P. Shevelko, P. Scharrer, C. E. Düllmann et al., *NIMB* **428**, 56 (2018).
4. P. Scharrer, C. E. Düllmann, W. Barth et al., *Phys. Rev. Acceler. Beams* **20**, 043503 (2017).
5. Y. T. Oganessian, V. K. Utyonkov, Y. V. Lobanov, et al., *Phys. Rev. C* **64**, 064309 (2001).
6. Y. T. Oganessian and V. K. Utyonkov, *Rep. Progr. Phys.* **78**, 036301 (2015).
7. J. Khuyagbaatar, V. P. Shevelko, A. Borschevsky, et al., *Phys. Rev. A* **88**, 042703 (2013).
8. T. F. Tuan and E. Gerjuoy, *Phys. Rev.* **117**, 756 (1960).
9. P. P. Ray and B. C. Saha, *Phys. Lett. A* **71**, 415 (1979).
10. P. P. Ray and B. C. Saha, *Phys. Rev. A* **23**, 1807 (1981).
11. N. C. Deb, A. Jain, J. H. McGuire, *Phys. Rev. A* **38**, 3769 (1988).
12. E. G. Adivi, *J. Phys. B* **42**, 095207 (2009).
13. R. Shingal, C. D. Lin, *Phys. Rev. A* **40**, 1302 (1989).
14. Y. D. Wang, J. H. McGuire, R. D. Rivarola, *Phys. Rev. A* **40**, 3673 (1989).
15. Y. D. Wang and J. H. McGuire, *Phys. Rev. A* **44**, 367 (1991).
16. L. Meng, C. O. Reinhold, R. E. Olson, *Phys. Rev. A* **40**, 3637 (1989).
17. L. Meng, C. O. Reinhold, R. E. Olson, *Phys. Rev. A* **42**, 5286 (1990).
18. C. Illescas and A. Riera, *Phys. Rev. A* **60**, 4546 (1999).
19. H.F. Busnengo, S.E. Corchs, R.D. Rivarola, *Phys. Rev. A* **57**, 2701 (1998).
20. S. Halder, S. Samaddar, K. Purkait, et al., *Indian J. Phys.* **94**, 151 (2020).

21. V. P. Shevelko, *J. Phys. B* **13**, L319 (1980).
22. V. P. Shevel'ko, *J. Tech. Phys.* **46**, 1225 (2001).
23. <http://cdfe.sinp.msu.ru/services/cccs/HTM/main.htm>.
24. D. R. Bates and R. McCarroll, *Proc. Royal Soc. London A* **245**, 175 (1958).
25. D. R. Bates, *Proc. Royal Soc. London A* **247**, 294 (1958).
26. R.M. May, *Phys. Rev.* **136**, 669 (1964).
27. R. M. Drisko, Ph.D. thesis, Carnegie-Mellon University (1955).
28. A. M. Brodskii, V. S. Potapov, V. V. Tolmachev, *Soviet JETP* **31**, 144 (1970).
29. V. S. Potapov, *Soviet JETP* **36**, 228 (1973).
30. S. C. Wang, *Phys. Rev.* **31**, 579 (1928).
31. S. Weinbaum, *J. Chem. Phys.* **1**, 593 (1933).
32. K. Støchkel, O. Eidem, H. Cederquist, et al., *Phys. Rev. A* **72**, 050703 (2005).
33. D. Fischer, M. Gudmundsson, K. Støchkel, et al., *J. Phys. Conf. Series*, Vol. 88, 012021 (2007).
34. M. B. Shah, P. McCallion, H. B. Gilbody, *J. Phys. B* **22**, 3983 (1989).
35. S.E. Corchs, R.D. Rivarola, J.H. McGuire, et al., *Phys. Rev. A* **47**, 201 (1993).
36. H. Tawara, T. Kato, and Y. Nakai, *At. Data Nucl. Data Tables* **32**, 235 (1985).
37. W. Schwab, G. B. Baptista, E. Justiniano, et al., *J. Phys. B* **20**, 2825 (1987).
38. C. F. Barnett, H. T. Hunter, M. I. Fitzpatrick, et al., *Atomic data for fusion*, Vol. 1 (1990).
39. W. Fritsch, *Phys. Rev. A* **46**, 3910 (1992).
40. S. E. Corchs, R. D. Rivarola, J. H. McGuire, et al., *Physica Scripta* **50**, 469 (1994).
41. M. E. Rudd, T. V. Goffe, A. Itoh, *Phys. Rev. A* **32**, 2128 (1985).
42. M. M. Sant'anna, W. S. Melo, A. C. Santos, et al., *Phys. Rev. A* **61**, 052717 (2000).
43. I. S. Dmitriev, Y. A. Teplova, Y. A. Belkova, et al., *Soviet JETP* **98**, 918 (2004).
44. R. Phaneuf, R. Janev, and M. Pindzola, *Atomic data for fusion*, Vol. 5 (1987).
45. W. G. Graham, K. H. Berkner, R. V. Pyle, et al., *Phys. Rev. A* **30**, 722 (1984).
46. R. Anholt, X. Y. Xu, C. Stoller, et al., *Phys. Rev. A* **37**, 1105 (1988).
47. J. Eichler and F.T. Chan, *Phys. Rev. A* **20**, 104 (1979).
48. L. F. Errea, L. Fernández, A. Macías, et al., *Phys. Rev. A* **69**, 012705 (2004).
49. E. C. Montenegro, G. M. Sigaud, and W. E. Meyerhof, *Phys. Rev. A* **45**, 1575 (1992).

# О МЕТОДИКАХ ОЦЕНКИ ДЕПОЛЯРИЗАЦИОННЫХ ПОТЕРЬ УЛЬТРАХОЛОДНЫХ НЕЙТРОНОВ В МАГНИТНЫХ ЛОВУШКАХ

*Г. Н. Ключников\**, *А. П. Серебров*

*НИЦ «Курчатовский институт» —  
Петербургский институт ядерной физики имени Б.П. Константинова  
188300, Гатчина, Ленинградская обл., Россия*

Поступила в редакцию 14 февраля 2022 г.,  
после переработки 19 апреля 2023 г.  
Принята к публикации 3 мая 2023 г.

Задача о нахождении деполяризационных потерь нейтронов возникает в связи с необходимостью определения систематической погрешности экспериментов с магнитным удержанием ультрахолодных нейтронов в ловушках. В настоящей работе рассматриваются три методики оценки вероятности деполяризации нейтронов: классическая, квантовомеханическая и приближенная. Разработанные методики применяются к оценке вероятности деполяризации ультрахолодных нейтронов в двух магнитных ловушках: ловушке коллаборации Лос-Аламосской национальной лаборатории США (LANL) и ловушке, проектируемой в лаборатории физики нейтрона «НИЦ Курчатовский институт»–ПИЯФ. Показано, что все три методики могут успешно применяться для количественной оценки деполяризации. Это имеет особое значение для сравнения теоретических предсказаний с результатами измерений в экспериментах по определению времени жизни нейтрона.

DOI: 10.31857/S0044451023090055

EDN: KСIVPF

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Задача об определении потерь нейтронов вследствие деполяризации возникает при решении многих задач фундаментальной физики на реакторах: измерения времени жизни нейтрона [1–6], определения коэффициента асимметрии  $A$ , а также при решении технических задач, например, при оценке эффективности поляризаторов ультрахолодных нейтронов (УХН) в областях с сильным магнитным полем [7, 8].

Идея о возможности отражения нейтронов от магнитного барьера в статическом магнитном поле была впервые высказана В. Паулем в 1951 г. Эти представления впоследствии были развиты и использованы для создания экспериментальной установки по измерению времени жизни нейтрона — секступольной магнитной ловушки, изогнутой в виде тора [9]. В СССР на принципиальную возможность

хранения холодных нейтронов в ограниченной вакуумной полости за счет отталкивания нейтронов от областей с сильным магнитным полем указал В. В. Владимирский в 1960 г. В своей работе [2] он рассмотрел условия, необходимые для сохранения ориентации спина относительно магнитного поля и дал конкретные примеры магнитных полей, обеспечивающих хранение нейтронов. Тема магнитного хранения получила развитие в исследованиях, проведенных экспериментаторами из Курчатовского института (КИ) и Научно-исследовательского института ядерных реакторов (НИИАР) [3]. Впоследствии этой группой ученых было получено первое значение времени жизни нейтрона методом удержания УХН в полости. Позже в Институте теоретической и экспериментальной физики (ИТЭФ) была создана ловушка для УХН с электромагнитами, позволяющая удерживать нейтроны со временем хранения больше 700 с в простой односвязной области под действием гравитационного и неоднородного магнитного полей [4].

Магнитная ловушка на постоянных магнитах была спроектирована и изготовлена в ПИЯФ РАН в 2001 г. [5]. Ловушка была сделана из постоянных

\* E-mail: klyushnikov\_gn@npni.nrcki.ru

магнитов и представляла собой расположенную вертикально цилиндрическую двадцатиполусную магнитную систему с конической нижней частью. Ее конструкция предусматривала возможность регистрации потерь нейтронов в процессе хранения [6].

Первые эксперименты по определению времени жизни нейтрона были осуществлены в 50-е годы XX века при помощи пучкового метода определения вероятности распада нейтрона [10]. В экспериментах этого направления измерялась скорость распада нейтрона внутри выделенной области нейтронного пучка благодаря регистрации протонов в распадной области [11, 12]. Методом, основанным на хранении УХН в гравитационных или магнитных ловушках, экспериментаторы начали пользоваться в 80-х гг. и с тех пор постоянно повышают точность своих измерений [13]. Когда проявилось расхождение в результатах измерения времени жизни нейтрона, полученных с одной стороны в пучковых экспериментах и с другой стороны в экспериментах с хранением УХН в магнитно-гравитационных ловушках [1, 14, 15], возникла необходимость детального анализа экспериментов обеих групп, тщательного поиска в них систематических ошибок и путей дальнейшего увеличения точности измерений [16, 17]. Одним из возможных важнейших источников систематических ошибок в экспериментах с хранением в магнитно-гравитационных ловушках являются деполяризационные потери, возникающие вследствие переворота спина нейтронов в областях с сильными градиентами магнитного поля.

Основоположителем теоретического изучения деполяризации нейтронов в неоднородном статическом магнитном поле является итальянский физик Э. Майорана [18]. В применении к анализу экспериментов по измерению времени жизни нейтрона первые оценки деполяризационных потерь УХН были сделаны в [19]. Вычисления в [19] были проделаны для ловушки, использовавшейся в эксперименте по определению времени жизни нейтрона в Лос-Аламосской национальной лаборатории США (LANL). Авторы использовали для оценки амплитуды переворота спина полуклассический метод и приближение Вентцеля–Крамерса–Бриллюэна (ВКБ-приближение). В полуклассическом методе отыскивалась амплитуда переворота спина в нижней точке поворота, затем вероятность деполяризации на одном отскоке от поверхности записывалась в виде квадрата этой амплитуды. В ВКБ-приближении коэффициенты разложения спинора  $\chi$

по спинорам Паули находились как решения обыкновенных дифференциальных уравнений, получающихся из стационарного уравнения Шредингера со спинором  $\chi$ . При этом рассматривались только вертикальные перемещения нейтронов. В результате в [19] вероятность деполяризации на одном отскоке оценена значениями от  $2.6 \cdot 10^{-23}$  в полуклассическом подходе до  $10^{-20}$  в ВКБ-приближении.

Анализ деполяризационных потерь в эксперименте LANL был продолжен в [20], где основное внимание было уделено рассмотрению перемещений нейтрона с ненулевой горизонтальной составляющей скорости. Именно такие перемещения, как показано в [20], являются основной причиной деполяризационных потерь в объеме магнитного хранения. К решению задачи были применены три подхода: квантовомеханический, математический и полуклассический. В квантовомеханическом подходе искались функции-коэффициенты разложения спинора  $\chi$  по базисным спинорам. В математическом подходе амплитуда деполяризации была получена как решение обыкновенного дифференциального уравнения в предположении об асимптотическом представлении функции Эри. В полуклассическом подходе так же, как и в квантовомеханическом, рассматривалось разложение волновой функции по собственным состояниям, однако собственные функции и коэффициенты разложения предполагались зависящими от времени  $t$ , а не от пространственных переменных. В результате анализа, проведенного в [20], получена вероятность деполяризации на одном отскоке порядка  $10^{-10}$  для ведущего магнитного поля 0.05 Тл и горизонтальной составляющей скорости нейтрона 3 м/с.

Помимо деполяризации, происходящей при движении нейтронов в объеме хранения, возможна деполяризация за счет некогерентного квазиупругого рассеяния нейтронов на протонах молекул стенки ловушки, а также за счет изменения траекторий нейтронов при отражении от стенки. Теоретическому исследованию этих механизмов деполяризации УХН посвящена работа [21]. В настоящей статье мы ограничимся рассмотрением деполяризации, происходящей при движении нейтронов в объеме хранения, и не будем учитывать деполяризацию при отражении от стенок. Также мы будем пренебрегать затуханием колебаний магнитного момента.

## 2. МЕТОДЫ ОЦЕНКИ ВЕРОЯТНОСТИ ДЕПОЛЯРИЗАЦИИ

### 2.1. Классический подход. Уравнения Блоха

Рассмотрим ультрахолодный (следовательно, нерелятивистский) нейтрон с массой  $m$  и средним значением магнитного момента  $\boldsymbol{\mu}$ , движущийся в суперпозиции магнитного поля с индукцией  $\mathbf{B}$  и гравитационного поля  $m\mathbf{g}$ . Уравнения движения такого нейтрона в декартовой системе координат  $Oxyz$  будут

$$m \frac{d\mathbf{v}}{dt} = \nabla(\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{B}) + m\mathbf{g}. \quad (1)$$

Динамика среднего значения магнитного момента в магнитном поле будет описываться уравнениями Блоха

$$\frac{d\boldsymbol{\mu}}{dt} = \gamma_m \boldsymbol{\mu} \times \mathbf{B}, \quad (2)$$

где постоянная  $\gamma_m = -1.83 \cdot 10^8 / (\text{Тл} \cdot \text{с})$  — гиромагнитное отношение для нейтрона. (2) аналогично по форме уравнению Гейзенберга для ожидаемых значений элементов матрицы Паули, приведенных в [22] для случая постоянного по модулю магнитного поля, вращающегося вокруг одной из осей координат с постоянной угловой скоростью.

В дальнейших рассуждениях будем называть  $\boldsymbol{\mu}$  магнитным моментом, всегда имея в виду его среднее значение.

Будем предполагать, что справедливы соотношения для частных производных

$$\frac{d}{dt} \left( \frac{\partial \mu_i}{\partial x_j} \right) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \frac{d\mu_i}{dt} \right). \quad (3)$$

Условия (3) будут выполнены, если члены с компонентами ускорения нейтрона  $w_j$ , возникающие в правой части (3), меньше членов с компонентами скорости нейтрона  $v_j$ .

Тогда система дифференциальных уравнений (1), (2) примет вид

$$\begin{aligned} \frac{dx}{dt} &= v_x, \\ m \frac{dv_x}{dt} &= \frac{\partial \mu_x}{\partial x} B_x + \frac{\partial \mu_y}{\partial x} B_y + \frac{\partial \mu_z}{\partial x} B_z + \\ &\quad + \mu_x \frac{\partial B_x}{\partial x} + \mu_y \frac{\partial B_y}{\partial x} + \mu_z \frac{\partial B_z}{\partial x}, \\ \frac{dy}{dt} &= v_y, \\ m \frac{dv_y}{dt} &= \frac{\partial \mu_x}{\partial y} B_x + \frac{\partial \mu_y}{\partial y} B_y + \frac{\partial \mu_z}{\partial y} B_z + \\ &\quad + \mu_x \frac{\partial B_x}{\partial y} + \mu_y \frac{\partial B_y}{\partial y} + \mu_z \frac{\partial B_z}{\partial y}, \\ \frac{dz}{dt} &= v_z, \\ m \frac{dv_z}{dt} &= \frac{\partial \mu_x}{\partial z} B_x + \frac{\partial \mu_y}{\partial z} B_y + \frac{\partial \mu_z}{\partial z} B_z + \\ &\quad + \mu_x \frac{\partial B_x}{\partial z} + \mu_y \frac{\partial B_y}{\partial z} + \mu_z \frac{\partial B_z}{\partial z} - m\mathbf{g}, \\ \frac{d\mu_x}{dt} &= \gamma_n (\mu_y B_z - \mu_z B_y), \\ \frac{d\mu_y}{dt} &= \gamma_n (\mu_z B_x - \mu_x B_z), \\ \frac{d\mu_z}{dt} &= \gamma_n (\mu_x B_y - \mu_y B_x), \\ \frac{d}{dt} \left( \frac{\partial \mu_x}{\partial x} \right) &= \gamma_n \left( \frac{\partial \mu_y}{\partial x} B_z + \mu_y \frac{\partial B_z}{\partial x} - \frac{\partial \mu_z}{\partial x} B_y - \mu_z \frac{\partial B_y}{\partial x} \right), \\ \frac{d}{dt} \left( \frac{\partial \mu_x}{\partial y} \right) &= \gamma_n \left( \frac{\partial \mu_y}{\partial y} B_z + \mu_y \frac{\partial B_z}{\partial y} - \frac{\partial \mu_z}{\partial y} B_y - \mu_z \frac{\partial B_y}{\partial y} \right), \\ \frac{d}{dt} \left( \frac{\partial \mu_x}{\partial z} \right) &= \gamma_n \left( \frac{\partial \mu_y}{\partial z} B_z + \mu_y \frac{\partial B_z}{\partial z} - \frac{\partial \mu_z}{\partial z} B_y - \mu_z \frac{\partial B_y}{\partial z} \right), \\ \frac{d}{dt} \left( \frac{\partial \mu_y}{\partial x} \right) &= \gamma_n \left( \frac{\partial \mu_z}{\partial x} B_x + \mu_z \frac{\partial B_x}{\partial x} - \frac{\partial \mu_x}{\partial x} B_z - \mu_x \frac{\partial B_z}{\partial x} \right), \\ \frac{d}{dt} \left( \frac{\partial \mu_y}{\partial y} \right) &= \gamma_n \left( \frac{\partial \mu_z}{\partial y} B_x + \mu_z \frac{\partial B_x}{\partial y} - \frac{\partial \mu_x}{\partial y} B_z - \mu_x \frac{\partial B_z}{\partial y} \right), \\ \frac{d}{dt} \left( \frac{\partial \mu_y}{\partial z} \right) &= \gamma_n \left( \frac{\partial \mu_z}{\partial z} B_x + \mu_z \frac{\partial B_x}{\partial z} - \frac{\partial \mu_x}{\partial z} B_z - \mu_x \frac{\partial B_z}{\partial z} \right), \\ \frac{d}{dt} \left( \frac{\partial \mu_z}{\partial x} \right) &= \gamma_n \left( \frac{\partial \mu_x}{\partial x} B_y + \mu_x \frac{\partial B_y}{\partial x} - \frac{\partial \mu_y}{\partial x} B_x - \mu_y \frac{\partial B_x}{\partial x} \right), \\ \frac{d}{dt} \left( \frac{\partial \mu_z}{\partial y} \right) &= \gamma_n \left( \frac{\partial \mu_x}{\partial y} B_y + \mu_x \frac{\partial B_y}{\partial y} - \frac{\partial \mu_y}{\partial y} B_x - \mu_y \frac{\partial B_x}{\partial y} \right), \\ \frac{d}{dt} \left( \frac{\partial \mu_z}{\partial z} \right) &= \gamma_n \left( \frac{\partial \mu_x}{\partial z} B_y + \mu_x \frac{\partial B_y}{\partial z} - \frac{\partial \mu_y}{\partial z} B_x - \mu_y \frac{\partial B_x}{\partial z} \right). \end{aligned} \quad (4)$$

Система (4) должна быть дополнена начальными условиями для координат  $x, y, z$ , компонент скорости  $v_x, v_y, v_z$ , компонент магнитного момента  $\mu_x, \mu_y, \mu_z$  и производных компонент магнитного момента по координатам  $\partial \mu_i / \partial x_j$ .

Если в равенствах

$$\frac{\partial(\mu_i B_i)}{\partial x_j} = \frac{\partial \mu_i}{\partial x_j} B_i + \mu_i \frac{\partial B_i}{\partial x_j} \quad (5)$$

пренебречь членами с производными  $\partial \mu_i / \partial x_j$ , то (4) сведется к системе уравнений

$$\begin{aligned} \frac{dx}{dt} &= v_x, \\ m \frac{dv_x}{dt} &= \mu_x \frac{\partial B_x}{\partial x} + \mu_y \frac{\partial B_y}{\partial x} + \mu_z \frac{\partial B_z}{\partial x}, \\ \frac{dy}{dt} &= v_y, \\ m \frac{dv_y}{dt} &= \mu_x \frac{\partial B_x}{\partial y} + \mu_y \frac{\partial B_y}{\partial y} + \mu_z \frac{\partial B_z}{\partial y}, \\ \frac{dz}{dt} &= v_z, \\ m \frac{dv_z}{dt} &= \mu_x \frac{\partial B_x}{\partial z} + \mu_y \frac{\partial B_y}{\partial z} + \mu_z \frac{\partial B_z}{\partial z} - mg, \\ \frac{d\mu_x}{dt} &= \gamma_n (\mu_y B_z - \mu_z B_y), \\ \frac{d\mu_y}{dt} &= \gamma_n (\mu_z B_x - \mu_x B_z), \\ \frac{d\mu_z}{dt} &= \gamma_n (\mu_x B_y - \mu_y B_x). \end{aligned} \quad (6)$$

Систему обыкновенных дифференциальных уравнений (6) также следует дополнить начальными условиями.

Будем считать, что в начальный момент времени магнитный момент нейтрона  $\mu_0$  направлен противоположно индукции магнитного поля в точке пуска  $\mathbf{B}_0$ :

$$\mu_0 \uparrow \downarrow \mathbf{B}_0, \quad (7)$$

т. е. угол  $\theta$  между средним значением спина нейтрона  $\sigma$  и  $\mathbf{B}$  равен 0 при  $t = 0$ . Модуль вектора  $\mu$  равен

$$\mu = 1.913 \mu_{nucl}, \quad (8)$$

где  $\mu_{nucl}$  — ядерный магнетон.

Для системы (4) помимо начальных значений координат и скоростей, а также условия (7) будем задавать производные  $\frac{\partial \mu_i}{\partial x_j}$  равными нулю при  $t = 0$ .

Система (4) является более точной, чем (6), поэтому в общем случае следует пользоваться ей. Однако на практике разница в решениях (4) и (6) проявляется только на достаточно больших временах наблюдения.

При таком рассмотрении характеристикой деполаризации, как будет показано далее, является величина

$$\frac{1}{2} \Delta \cos \theta = \frac{1 - \cos \theta}{2} = \sin^2 \frac{\theta}{2}.$$

Дадим теперь два определения, которые потребуются в дальнейшем. Пусть  $\mathbf{B}(t)$  — индукция поля в момент времени  $t$ ,  $\mathbf{B}(t + \Delta t)$  — индукция поля через малый промежуток времени  $\Delta t$ . Примем за  $\alpha$  угол между векторами  $\mathbf{B}(t)$  и  $\mathbf{B}(t + \Delta t)$  и рассмотрим предел

$$\nu = \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{\alpha}{\Delta t}. \quad (9)$$

Величина  $\nu$  будет угловой скоростью вращения вектора  $\mathbf{B}$ .

Вторая важная характеристика магнитного поля  $\omega$  — частота обращения спина вокруг поля  $\mathbf{B}$ , или ларморова частота прецессии спина.

### 2.2. Приближенный способ оценки вероятности деполаризации через квадрат отношения частот

Задачу вычисления вероятности неадиабатических переходов решал немецкий физик В. Гюттингер. В 1931 г. он получил уравнения для нахождения коэффициентов разложения волновой функции частицы со спином в магнитном поле в одном частном случае. Дж. Швингер получил более общие уравнения для коэффициентов разложения волновой функции и решил эти уравнения для нескольких практически важных примеров, в том числе для магнитного поля, постоянного по модулю и вращающегося с постоянной угловой скоростью [23].

В работе [23] использовался угол  $\alpha$ , через который были записаны вероятность системы остаться в том же квантовом состоянии

$$P\left(\frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2}\right) = P\left(-\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}\right) = \cos^2 \frac{\alpha}{2} \quad (10)$$

и вероятность перехода в состояние с противоположным спином

$$P\left(\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}\right) = \sin^2 \frac{\alpha}{2}. \quad (11)$$

И. Раби также рассмотрел задачу о вероятности переворота спина нейтрона в магнитном поле, вращающемся с постоянной угловой скоростью. Задача изначально решалась в неподвижной системе координат. В работе [24] получено выражение для вероятности обнаружить нейтрон в состоянии со спином  $(-1/2)$  через угловую скорость поворота поля и ларморову частоту прецессии спина.

В 1954 г. И. Раби с соавторами решил задачу о вероятности обнаружить нейтрон в квантовом состоянии со спином  $(-1/2)$  в системе координат, движущейся вместе с нейтроном [25]. Предполагалось,

что вектор магнитной индукции вращается с постоянной угловой скоростью вокруг некоторой оси в пространстве. Были найдены вероятности  $P_{(1/2)}$  и  $P_{(-1/2)}$ , где  $(1/2)$  и  $(-1/2)$  — проекции спина нейтрона на направления  $\mathbf{B}$  и  $-\mathbf{B}$ . Вероятность  $P_{(-1/2)}$  определялась по формуле

$$P_{(-1/2)} = \frac{1 - \cos \theta}{2}, \quad (12)$$

где  $\theta$  — угол между вектором  $\mathbf{B}$  в неподвижной системе координат и магнитным моментом нейтрона.

В работе [26] рассмотрена задача о нахождении вероятностей  $P_{(1/2)}$  и  $P_{(-1/2)}$  в системе координат, связанной с нейтроном, в предположении, что магнитное поле в подвижной системе координат вращается с произвольной угловой частотой  $\nu(t)$ . Сделан вывод о том, что в общем случае для определения компонент волновой функции  $\psi_+$  и  $\psi_-$  нужно решить интегро-дифференциальное уравнение с неизвестной функцией  $\Delta(t)$ . Однако, как подчеркивается в [26], в большинстве практически интересных случаев для оценки вероятности нахождения системы в состоянии  $(-1/2)$

$$P_{(-1/2)} = \|\psi_-\|^2 \quad (13)$$

достаточно воспользоваться простым выражением для волновой функции

$$\psi_- = i \frac{\nu_x}{n} \sin \frac{nt}{2}, \quad (14)$$

где  $n = \sqrt{(\omega - \nu_z)^2 + \nu_x^2}$ ,  $\boldsymbol{\nu}$  — вектор угловой скорости поворота поля.

Будем предполагать, что  $|\mathbf{B}(t)|$  и  $\nu(t)$  — функции, меняющиеся настолько медленно, что выполняются условия

$$\mathbf{v} \nabla B / (\gamma B^2) \ll 1, \quad \nu / \omega \ll 1. \quad (15)$$

Первое из условий (15) означает, что поле  $\mathbf{B}$  меняется медленно по модулю, второе — медленно по направлению. Тогда выражение (12) и квадрат волновой функции (14) могут служить локальными оценками вероятности деполяризации. Если мы будем возводить в квадрат не локальную, а среднюю величину отношения частот, то получим из (13) и (14) формулу

$$P_{(-1/2)} = \frac{1}{2} \left\langle \frac{\nu}{\omega} \right\rangle^2, \quad (16)$$

где угловыми скобками в (16) обозначено усреднение по координатам и скоростям нейтронов.

Таким образом, (16) может служить приближенной формулой для оценки вероятности деполяризации на одном отскоке. Использование формулы

(12) для вероятности деполяризации на одном отскоке ограничено, поскольку вычисление  $\cos \theta$  является затратным по времени вычисления для практически интересных магнитных систем.

### 2.3. Квантовомеханическая оценка вероятности деполяризации

В работе [20] оценка вероятности деполяризации за счет переворота спина нейтронов сделана для магнитного поля, удовлетворяющего следующим условиям (система координат та же, что в [20]):

- 1) модуль магнитного поля  $|\mathbf{B}|$  зависит только от вертикальной координаты  $y$ ;
- 2) угол  $\phi$ , определяемый через соотношение  $\operatorname{tg} \phi = B_y / B_x$ , зависит только от горизонтальной координаты  $x$ ;
- 3) угол  $\theta$ , определяемый через соотношение  $\cos \theta = B_z / B$ , зависит только от вертикальной координаты  $y$ .

Первое предположение означает, что градиент  $\nabla |\mathbf{B}|$  имеет только одну ненулевую компоненту. Второе и третье предположения накладывают ограничения на геометрию магнитного поля  $\mathbf{B}$ .

При сделанных предположениях вероятность деполяризации на одном отскоке можно записать так:

$$p(t) = \frac{\dot{\theta}^2 + (K \nu_x \sin \theta)^2}{4\omega_L^2}, \quad (17)$$

где  $K = 2\pi/L$ ,  $L$  — постоянная магнитной структуры,  $\omega_L$  — ларморова частота прецессии спина.

### 3. ВЫЧИСЛЕНИЕ МАГНИТНЫХ ПОЛЕЙ

Применим теперь методики оценки деполяризации, основанные на трех описанных выше методах, к двум магнитным ловушкам: ловушке эксперимента LANL и магнитной ловушке, проект которой разрабатывается в настоящее время в лаборатории физики нейтрона НИЦ «Курчатовский институт» — ПИЯФ.

Перед выполнением деполяризационных расчетов мы проведем независимое вычисление магнитных полей. Для ловушки LANL это необходимо, чтобы проверить, насколько сильно аналитическое магнитное поле, использованное в [20], отличается от реального поля, и как возможное отличие влияет на итоговую оценку деполяризации нейтронов. Будем использовать геометрию магнитной системы, заданную в [27].

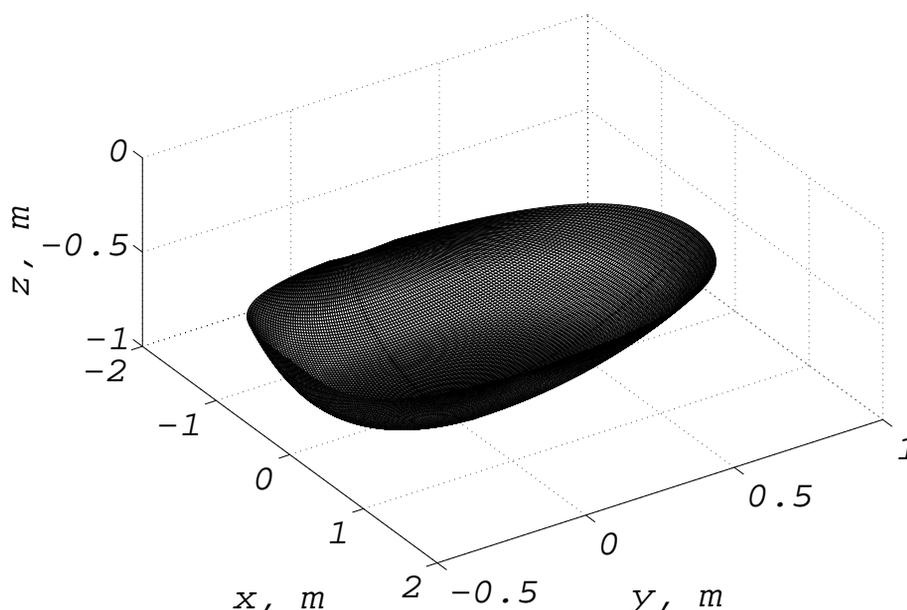


Рис. 1. Линии, вдоль которых вычислялась индукция внутреннего магнитного поля (показаны черным цветом)

### 3.1. Магнитное поле ловушки эксперимента LANL

Решение задачи о нахождении магнитного поля ловушки эксперимента LANL осуществлялось по следующему плану.

1. Расчет основного (внутреннего) магнитного поля магнитной ловушки эксперимента LANL — поля, создаваемого основной магнитной поверхностью:

- 1) параметризация магнитной поверхности,
- 2) разбиение поверхности на элементарные ячейки–магниты, задание полярности каждой ячейки,
- 3) нахождение поля одной магнитной полосы для четырех различных ориентаций полос,
- 4) вычисление поля от всей магнитной поверхности. Создание калькулятора внутреннего магнитного поля.

2. Расчет внешнего (ведущего) магнитного поля — тороидального поля, создаваемого витками соленоидов:

- 1) нахождение поля одного (центрального) витка прямоугольной формы,

- 2) скругление краев контура, вычисление поля одного витка в форме прямоугольника со скругленными краями,

- 3) нахождение поля девяти витков путем применения преобразования поворота поля от одного витка на заданный угол. Создание калькулятора внешнего магнитного поля.

3. Определение результирующего поля магнитной системы как суперпозиции внутреннего и внешнего магнитных полей.

#### Расчет основного магнитного поля

Будем использовать декартову систему координат  $Oxyz$  с осью  $z$ , направленной вертикально вверх. В этой системе координат самой нижней точкой магнитной поверхности будет  $(0, 0, -1)$  м.

Поверхность, на которой располагаются магниты, создающие основное магнитное поле, вместе с контрольными линиями представлена на рис. 1. Поверхность составлена из элементарных магнитов в виде равномерно намагниченных прямоугольных параллелепипедов размера  $5.08 \times 1.27 \times 2.54$  см. Таким образом, период магнитной структуры составляет 5.08 см, основное изменение ориентации магнитного поля будет происходить вдоль оси  $y$ .

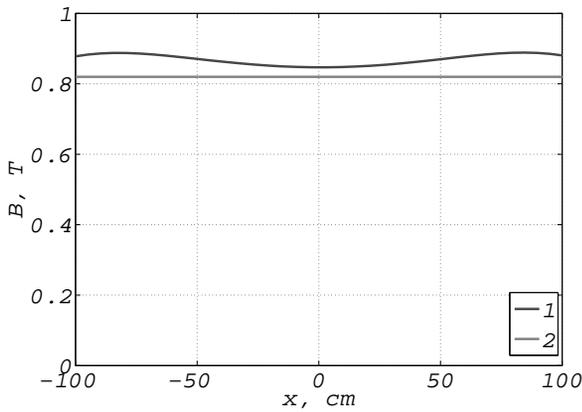


Рис. 2. Зависимость  $|\mathbf{B}(x)|$  в  $y$ -слое. 1 — поле задано численно, 2 — поле задано аналитически

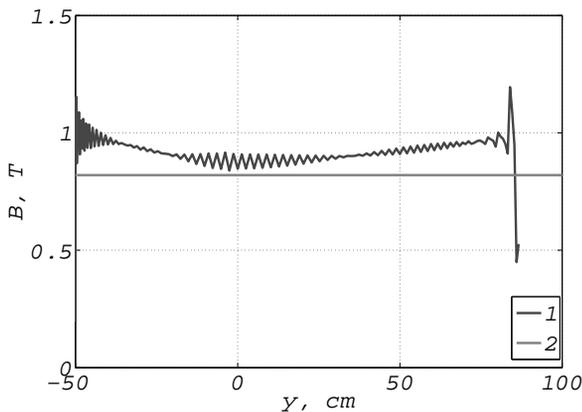


Рис. 3. Зависимость  $|\mathbf{B}(y)|$  в  $x$ -слое. 1 — поле задано численно, 2 — поле задано аналитически

Для вычисления поля магнитной поверхности была разработана и записана в виде программного кода процедура из следующих действий.

1. Вычисление координат  $z$  торцов элементарных магнитов с помощью уравнения поверхности  $z(x, y)$ .
2. Создание матрицы с координатами базиса Френе в каждой точке разбиения.
3. Определение координат центра текущего магнита.
4. Выбор одной из четырех возможных ориентаций текущего магнита.
5. Нахождение координат вектора относительно положения точки наблюдения  $\mathbf{r} - \mathbf{r}_c$  в локальной системе координат с использованием матриц  $A$  и  $C$ . В матрице  $A$  записаны координаты базиса Френе в рассматриваемой точке,  $C$  представляет собой матрицу поворота.

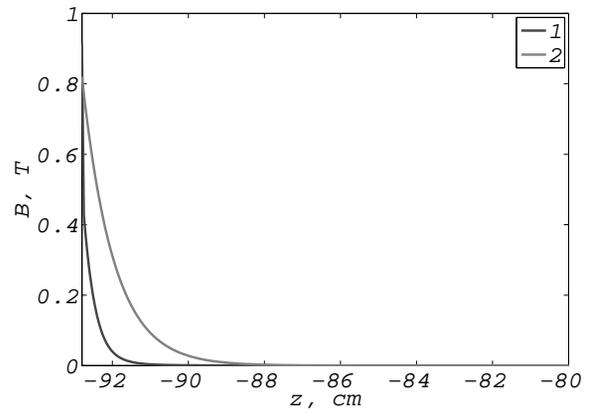


Рис. 4. Зависимость  $|\mathbf{B}(z)|$  вдоль вертикальной прямой для двух полей — расчетного (кривая 1) и аналитического (кривая 2)

6. Вычисление компонент поля  $\mathbf{B}'(\mathbf{r} - \mathbf{r}_c)$  в локальной системе координат.

7. Пересчет компонент поля  $\mathbf{B}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_c)$  в неподвижной системе координат, суммирование.

Результаты расчета внутреннего магнитного поля представлены на рис. 2–4. На рис. 1 показаны линии, вдоль которых вычислялось магнитное поле для рис. 2 и рис. 3.

На рис. 2 показано изменение модуля магнитной индукции  $|\mathbf{B}|$  от координаты  $x$  в одном из сечений поверхности плоскостью  $y = const$  (будем называть такое сечение  $y$ -слоем). Для аналитического магнитного поля из [20] модуль  $|\mathbf{B}|$  постоянен в плоскости  $z = const$ . Для криволинейной поверхности аналогом плоскости  $z = const$  является поверхность, параллельная поверхности магнитов. Зависимость  $|\mathbf{B}(x)|$  на рис. 2 дана для основной плоскости (высота над магнитами нулевая). Видно отклонение графика от горизонтальной прямой, соответствующей аналитически заданному полю.

На рис. 3 приведен график зависимости  $|\mathbf{B}|$  от координаты  $y$  в  $x$ -слое. Видны колебания модуля индукции, отражающие влияние магнитной структуры, создаваемой отдельными прямоугольными параллелепипедами. Однако такие отклонения по абсолютной величине не превышают 0.2 Тл в области без влияния краевых эффектов.

Для исследования зависимости внутреннего магнитного поля от вертикальной координаты  $z$  были построены графики функций  $|\mathbf{B}|(z)$  для фиксированных значений координат  $x$  и  $y$ . Один из таких графиков дан на рис. 4 вместе с графиком функции

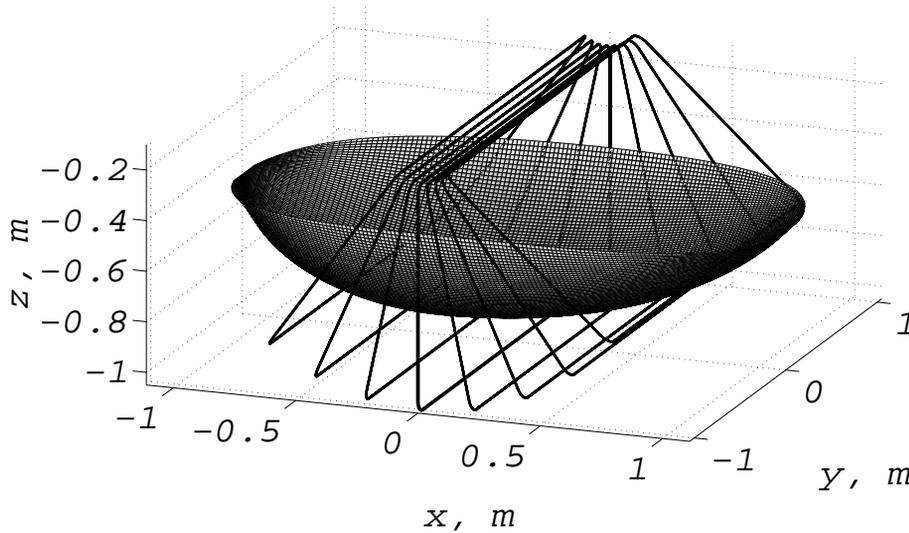


Рис. 5. Полная геометрия магнитной системы массива Хальбаха (витки, создающие ведущее поле, показаны черным цветом)

$$B = B_0 e^{-1.21(z-z_0)}, \tag{18}$$

где  $B_0 = 0.82$  Тл — модуль поля на поверхности,  $z_0$  — координата нижней точки поверхности магнитов в см. График функции (18) показан на рис. 3 красным цветом.

Из рис. 4 становится заметным более быстрое спадание магнитного поля в действительности по сравнению с теоретической моделью. Рассмотрение  $|\mathbf{B}|(z)$  при других  $x$  и  $y$  показало, что изменение реального магнитного поля с ростом координаты  $z$  неравномерное и существенно зависит от выбора точки  $(x, y)$ .

**Расчет внешнего магнитного поля**

Для задания геометрии внешнего (ведущего) магнитного поля в плоскости  $Oyz$  был построен прямоугольник размеров  $220 \times 90$  см со скругленными углами, радиус скругления был взят равным 5 см. Центр прямоугольника был смещен относительно начала координат по оси  $z$  вниз на 80 см.

Остальные прямоугольники были получены из основного поворотом на угол  $\arccos(2/3)/4$  вокруг оси  $y$ .

На рис. 5 показана полная геометрия магнитной системы массива Хальбаха вместе с системой девяти колец, создающей внешнее магнитное поле.

Поле одного кольца с током было вычислено по закону Био–Савара–Лапласа

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \frac{\mu_0}{4\pi} \int \frac{\mathbf{j} \times (\mathbf{r} - \mathbf{r}') dV}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^3}, \tag{19}$$

где интегрирование производилось по всем элементам тока  $\mathbf{j}$ .

Вычисленное внешнее магнитное поле оказалось отличным от однородного и от ведущего поля, использованного в [20]. Указанное отличие от однородного поля объясняется тем, что, во-первых, между соседними витками есть ненулевое расстояние, а во-вторых, витки повернуты друг относительно друга, а не параллельны одной плоскости. Так, например,  $x$ -компонента магнитной индукции будет равна 0 в центре только того витка, который лежит в плоскости  $Oyz$ .

На рис. 6 показан график зависимости модуля индукции магнитного поля, вычисленный вдоль дуги окружности, в нижней точке касающейся магнитной поверхности массива Хальбаха. Максимальное значение  $|\mathbf{B}|$  не превышает 50 Гс.

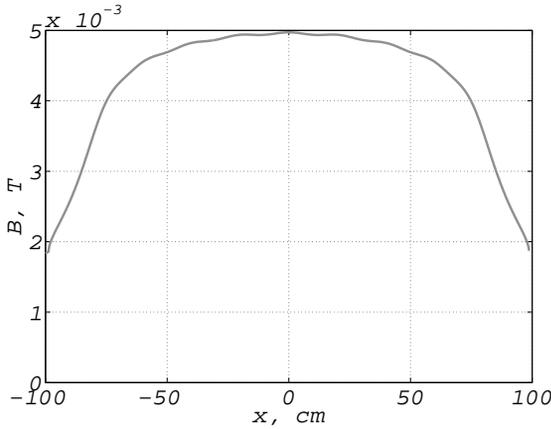


Рис. 6. Зависимость  $|B(x)|$  для внешнего магнитного поля. Поле вычислено вдоль дуги окружности, касающейся в нижней точке магнитной плоскости

### 3.2. Магнитное поле новой ловушки ультрахолодных нейтронов проекта ПИЯФ

Магнитная система новой ловушки УХН, разработанной в лаборатории физики нейтрона НИЦ «Курчатовский институт»–ПИЯФ, представляет собой совокупность пяти магнитных граней в виде усеченной пирамиды и магнита, создающего ведущее магнитное поле (см. рис. 7). Из пяти граней одна является горизонтальной, четыре остальные грани наклонены к ней под углом  $60^\circ$  каждая. Магнит, создающий ведущее поле, представляет собой равномерно намагниченный в направлении оси  $Ox$  прямоугольный параллелепипед. Грани составлены из вплотную прилегающих друг к другу малых магнитов размерами  $4 \times 3 \times 2$  см. Магнитный момент каждого магнита перпендикулярен плоскости грани, в которой он лежит. На горизонтальной грани полярность магнитного момента меняется вместе с координатой  $y$  (магнитный момент сонаправлен или противоположно направлен оси  $z$ ) и не меняется для фиксированного значения  $y$  при изменении  $x$ . Магнитные моменты магнитов боковых граней ориентированы согласованно с моментами магнитов горизонтальной грани. Период магнитной структуры по координате  $y$  на боковых гранях увеличен в 2 раза по сравнению с периодом магнитной структуры в горизонтальной магнитной плоскости, равным 6 см.

На рис. 8 показаны различия в полярности магнитов массива Хальбаха и новой магнитной ловушки ПИЯФ, лежащих в одном сечении. Как следует из геометрии ловушки, представленной на рис. 7, и из правила расположения магнитов, показанного на рис. 8, технологическим преимуществом рассматриваемой ловушки по сравнению с ловушкой экспери-

мента LANL является ее конструкционная простота и удобство сборки.

Зависимость модуля индукции магнитного поля  $B$  от координаты  $y$  для  $z = 1.05$  см (высота над поверхностью магнитов 0.5 мм) приведена на рис. 9. Локальные максимумы магнитного поля достигаются на стыках между соседними магнитами, минимумы — в серединах магнитов.

На рис. 10 показана зависимость  $B(x, y)$  для точек  $(x, y)$ , удаленных на 1 мм от плоскости ведущего магнита. Целью введения ведущего магнита является увеличение абсолютного минимума поля в объеме ловушки и уменьшение пространственной неоднородности магнитного поля.

## 4. РЕЗУЛЬТАТЫ ПРИМЕНЕНИЯ МЕТОДИК ОЦЕНКИ ВЕРОЯТНОСТИ ДЕПОЛЯРИЗАЦИИ

### 4.1. Оценка вероятности деполяризации в магнитном поле массива Хальбаха

Для получения оценки вероятности деполяризации в магнитной ловушке был применен алгоритм вычисления среднего. Оценка проводилась по формуле (16). Опишем кратко алгоритм вычисления среднего.

Разыгрывается координата  $z$  в соответствии с зависимостью плотности нейтронов от высоты. Далее разыгрываются координаты  $x$  и  $y$  внутри поверхности массива Хальбаха с равномерным распределением в  $z$ -слое. В каждой точке рассматривается множество из 1000 различных направлений начальной скорости нейтрона. Модуль скорости в расчетах принимается равным 3 м/с. Распределение начальных скоростей по направлениям вылета считается изотропным.

Для каждого элементарного события — пуска в выбранном направлении из точки  $(x, y, z)$  определяется отношение частот  $\nu/\omega$ .

После расчета отношения частот  $\nu/\omega$  для каждого события находится величина  $P_{(-1/2)}$  по формуле (16).

В результате проделанных вычислений было получено, что вероятность деполяризации, оцененная по квадрату отношения частот, составляет  $4.4 \cdot 10^{-9}$ .

Также для магнитного поля эксперимента LANL было проведено численное решение системы уравнений (4) с начальными данными (2.1)–(8) для различных начальных координат и скоростей нейтронов. Для контроля вычислений производился пересчет траекторий по системе (6). В результате расчетов

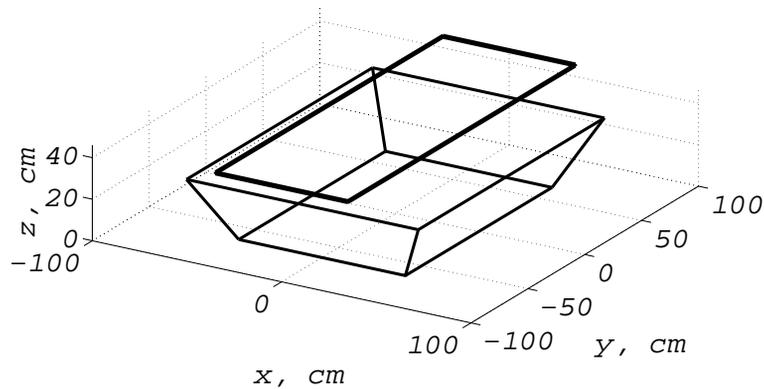


Рис. 7. Схема магнитной ловушки УХН, разработанной в лаборатории физики нейтрона НИЦ «Курчатовский институт»–ПИЯФ: четыре магнитные грани, соединенные в виде усеченной пирамиды, и ведущий магнит

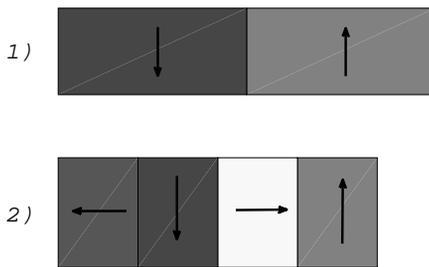


Рис. 8. Сравнение двух магнитных схем: 1) схема новой магнитной ловушки ПИЯФ, 2) схема ловушки эксперимента LANL. Стрелками показаны ориентации магнитов на длине, равной периоду магнитной структуры

было найдено, что среднее значение отклонения косинуса угла  $\theta$  составляет  $0.5\langle 1 - \cos\theta \rangle = 2.3 \cdot 10^{-8}$ . В [20] проделано вычисление функции  $p(t)$  по формуле (17). Максимальное значение  $\max(p)$  функции  $p(t)$ , соответствующее вероятности деполяризации на одном отскоке, для ведущего поля 5 мТл составило  $10^{-8}$ . Эти значения вместе с рассчитанными в настоящей работе объединены в Табл. 1.

Полученная оценка  $P_{-1/2} = 4.4 \cdot 10^{-9}$  хорошо согласуется со средним значением функции  $p$ . Это означает, что для оценки вероятности деполяризации в рассматриваемой магнитной ловушке мож-

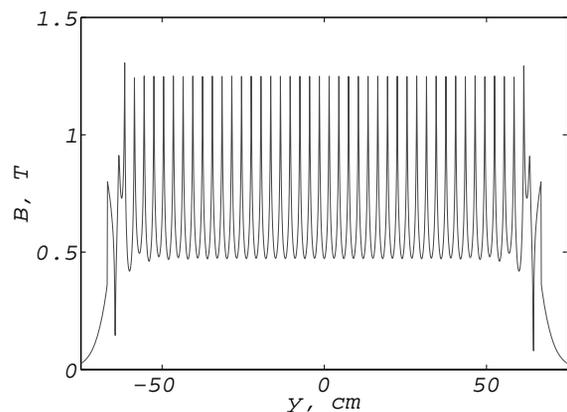


Рис. 9. Зависимость модуля индукции магнитного поля от координаты  $y$  при  $x = 0$  и  $h = 0.5$  мм

Таблица 1. сравнение разных методик оценки вероятности деполяризации для эксперимента LANL

$0.5\langle 1 - \cos\theta \rangle$	$\max(p)$	$0.5\langle \nu/\omega \rangle^2$
$2.3 \cdot 10^{-8}$	$10^{-8}$	$4.4 \cdot 10^{-9}$

но использовать величину  $0.5\langle \nu/\omega \rangle^2$ . Отличие значения вероятности  $p$  от среднего отклонения косинуса  $0.5\langle 1 - \cos\theta \rangle$  можно объяснить недостаточным для достоверного определения среднего количеством статистических испытаний.

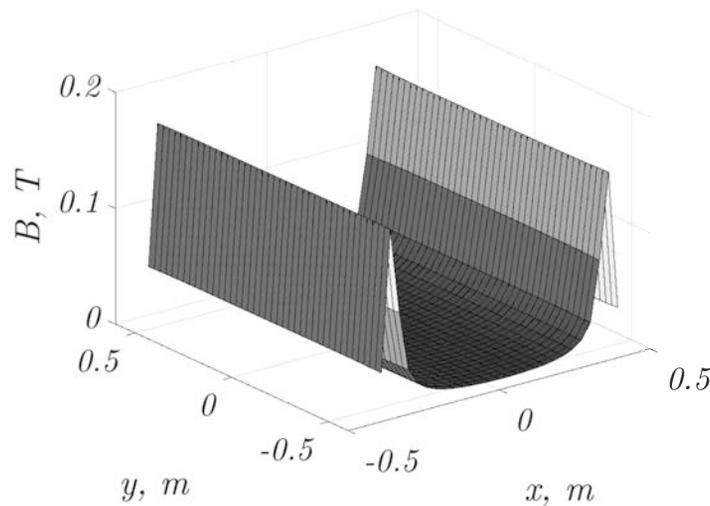


Рис. 10. Зависимость модуля индукции магнитного поля от координат  $x$  и  $y$  на расстоянии 1 мм от поверхности ведущего магнита

#### 4.2. Сравнение классического и квантовомеханического подхода на примере новой магнитной ловушки проекта ПИЯФ

Условия, накладываемые на магнитное поле в [20], оказываются выполненными для новой магнитной ловушки ПИЯФ с хорошей точностью для  $z > 11$  см, т. е. в той области, где преобладающим является ведущее магнитное поле. Было проведено сравнение вероятностей, вычисленных по изменению  $\cos \theta$  из (4), и с помощью квантовомеханического подхода по формуле (17). Компоненты начальной скорости нейтрона были взяты равными  $v_{x0} = 0.2$  м/с,  $v_{z0} = -3$  м/с. Результаты сравнения приведены на рис. 11. На рисунке синим цветом показан график величины  $0.5(1 - \cos \theta)$ , красным — график функции  $p(t)$ , определяемой по формуле (17). Нейтрон начал свое движение на высоте  $h = 15$  см, закончил движение на высоте  $h = 10$  см. Вероятность обнаружения нейтрона в состоянии с перевернутым спином оказалась величиной порядка  $10^{-10}$  и росла во время движения, что объясняется перемещением нейтрона за время наблюдения в область с более слабым магнитным полем. Из рис. 11 видно, что функции  $p(t)$  и  $(1 - \cos \theta)/2$  возрастают и имеют близкие средние значения в конечный момент времени. Следовательно, в области  $z > 11$  см в новой магнитной ловушке проекта ПИЯФ для оценки вероятности деполаризации на одном отскоке применима формула (12).

Предварительные расчеты показывают, что функции  $p(t)$  и  $(1 - \cos \theta)/2$  имеют максимумы в

одни и те же моменты времени. Таким образом, в области высот  $h \geq 10$  см к описанию динамики нейтрона и его спина применим квантовомеханический подход, изложенный в [20]. Оценки вероятности деполаризации, даваемые классической и квантовомеханической методиками, в этой области дают результаты, близкие по порядку величины и по точкам экстремума функций.

#### 4.3. Оценка вероятности деполаризации для ловушки проекта ПИЯФ по приближенной методике

С использованием описанного выше алгоритма было найдено среднее значение отношения частот для поля магнитной ловушки проекта ПИЯФ, показанной на рис. 7. Вычисления проводились для двух моделей ловушки. В первой модели не учитывалось влияние углов сочленения наклонных граней и магнитной подложки. Для такой конфигурации поля среднее значение отношения частот оказалось равным

$$\langle \nu/\omega \rangle = 1.4 \cdot 10^{-5}, \quad (20)$$

вероятность деполаризации на одном отскоке составила, таким образом,  $10^{-10}$ .

#### Учет влияния углов сочленения наклонных плоскостей и подложки

Поясним более подробно разницу в использованных моделях магнитного поля. В упрощенном ва-

рианте поля рассматривались не все магниты наклонных магнитных плоскостей, а только магниты в форме прямоугольных параллелепипедов заданного размера  $4 \times 3 \times 2$  см. Магниты предполагались выполненными из сплава NdFeB. В плоскости  $z = const$  всегда находилось целое число магнитных параллелепипедов, те магниты, которые выходили за линию пересечения двух соседних наклонных плоскостей, не учитывались. Во втором, более точном варианте область пространства в окрестности линии пересечения плоскостей заполнялась магнитами сплошь. После целого числа магнитов-параллелепипедов в каждом  $z$ -слое располагались магниты той формы и размеров, которые требовались для полного задания всех наклонных магнитных плоскостей. Ориентация таких дополнительных магнитов задавалась согласованно с ориентацией остальных магнитов плоскости. Также было учтено поле магнитной подложки из стали марки АРМКО. Предполагалась, что подложка имеет толщину 1 см и находится строго под каждой из магнитных плоскостей. При этом все магниты горизонтальной магнитной плоскости задавались одинаково в первом и во втором случае.

Более точное вычисление магнитного поля, произведенное описанным выше способом, повысило сделанную оценку вероятности деполяризации на одном отскоке до  $7.2 \cdot 10^{-10}$ . Это значение получается меньше аналогичной величины для эксперимента LANL  $4.4 \cdot 10^{-9}$ .

Рассмотрим среднюю скорость деполяризации

$$\langle \tau_{dep}^{-1} \rangle, \quad (21)$$

где  $\tau_{dep}$  — характерное время деполяризации, угловые скобки означают усреднение. Связь между вероятностью деполяризации  $p$  и средней скоростью деполяризации  $\tau_{dep}^{-1}$  дается формулой

$$p = T \langle \tau_{dep}^{-1} \rangle,$$

где  $T$  — период вертикальных колебаний нейтрона.

Величина  $\tau_{dep}$  входит в формулу для вычисления скорости потерь

$$\tau^{-1} = \tau_n^{-1} + \tau_{dep}^{-1}, \quad (22)$$

где общая скорость потерь  $\tau^{-1}$  складывается из потерь нейтронов вследствие  $\beta$ -распада  $\tau_n^{-1}$  и потерь нейтронов из-за деполяризации  $\tau_{dep}^{-1}$ . Если домножить обе части (22) на время жизни нейтрона  $\tau_n$ , то можно получить, что относительная ошибка измерения времени жизни будет  $\sim \tau_n / \tau_{dep}$ .

Поэтому если, например, средняя скорость деполяризации (21) меньше  $10^{-6}$ , то относительная ошибка измерения  $\tau_n$  будет не превосходить

$8.8 \cdot 10^{-4}$ . Поскольку максимальное отношение  $(\tau_n / \tau_{dep})_{max}$  на практике обычно примерно в 4 раза превосходит среднее  $\tau_n / \langle \tau_{dep} \rangle$ , то относительная ошибка измерения  $\tau_n$  будет меньше  $2.2 \cdot 10^{-4}$  при  $(\tau_n / \tau_{dep})_{max} < 10^{-6}$ .

Таким образом, проведенные расчеты дают основание полагать, что в эксперименте ПИЯФ с новой магнитной ловушкой будет обеспечена приемлемая систематическая погрешность, связанная с деполяризационными потерями УХН.

#### 4.4. Примеры магнитных систем с большой деполяризацией

Приведем теперь два примера, когда вероятность деполяризации нейтронов в ловушках будет значительно выше, чем в рассмотренных примерах.

Пусть магнитное поле обладает той же конфигурацией, как в проекте новой магнитной ловушки ПИЯФ (усеченная пирамида вместе с ведущим магнитом), но в 10 раз слабее этого поля по модулю. Тогда направление поля в каждой точке будет тем же, что и ранее, а модуль магнитной индукции уменьшится в каждой точке магнитного хранения в 10 раз. Если прежде максимум индукции на высоте 0.5 мм над поверхностью горизонтальных магнитов был равен  $B_{max} = 1.2$  Тл, то теперь он будет 0.12 Тл. Ослабление поля повлечет уменьшение средней скорости нейтронов примерно в 3.2 раза. Исходя из этого задаваемая в расчете на деполяризацию скорость нейтронов была уменьшена с 1.5 до 0.5 м/с. Результат оценки вероятности деполяризации по приближенной методике дал в этом случае величину  $10^{-9}$ . Таким образом, ослабление магнитного поля в 10 раз дало увеличение деполяризации в 10 раз.

В качестве второго примера было рассмотрено аналитически заданное магнитное поле ловушки LANL с плоской системой магнитов

$$\mathbf{B} = \mathbf{B}_H + \mathbf{B}_1, \quad (23)$$

где

$$\mathbf{B}_H = B_0 e^{-Kz} (\cos(Kx), 0, -\sin(Kx))$$

— магнитное поле массива Хальбаха,

$$\mathbf{B}_1 = (0, B_{10} \rho / (\rho - z), 0)$$

— ведущее магнитное поле,  $B_0 = 0.82$  Тл — индукция поля на поверхности магнитов,  $K = 121 \text{ м}^{-1}$ ,  $B_{10} < 0.1$  Тл — параметр ведущего магнитного поля, равный магнитной индукции ведущего поля на поверхности магнитов,  $\rho = 1.5$  м [20]. В расчете нижняя граница  $B_{10}$  была принята равной  $4 \cdot 10^{-5}$  Тл.

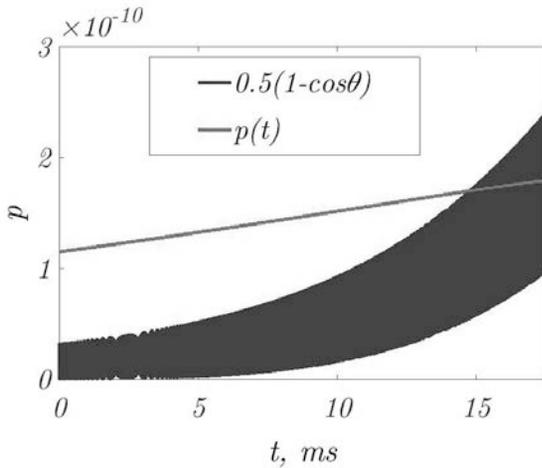


Рис. 11. Сравнение вероятностей деполаризации, вычисленных по формуле (17) и через  $\cos \theta$  из уравнений (4)

Известно, что деполаризация нейтронов в такой ловушке уменьшается с усилением ведущего поля  $B_{10}$ . Это утверждение было проверено с помощью разработанной приближенной методики оценки деполаризации.

Для этого была исследована зависимость величины, равной половине квадрата максимального отношения частот

$$\frac{1}{2} \left( \frac{\nu}{\omega} \right)_{max}^2, \tag{24}$$

от параметра ведущего поля  $B_{10}$ . (24) отличается от оценки вероятности деполаризации

$$\frac{1}{2} \left\langle \frac{\nu}{\omega} \right\rangle^2 \tag{25}$$

тем, что расчет отношения частот для нее производится не для всех  $z$ , а для фиксированного значения  $z = 4$  см. Выбор  $z$  объясняется тем, что при  $z = 4$  см для  $B_{10} = 50$  Гс наблюдается максимальная деполаризация. Модуль начальной скорости нейтронов полагается равным 3 м/с, пуск производится в наиболее опасном для деполаризации направлении оси  $x$ .

Результаты вычислений представлены на рис. 12. Из рисунка видно, что деполаризация нейтронов в поле (23) убывает с усилением ведущего поля. При  $B_{10} = 50$  Гс значение выражения (24) получается равным  $1.8 \cdot 10^{-8}$ .

Подставляя в (14)  $p_{max} = 1.67 \cdot 10^{-8}$ ,  $T = 0.29$  с, мы получаем, что относительная погрешность измерения времени жизни меньше  $5 \cdot 10^{-5}$ . При  $B_{10} = 4 \cdot 10^{-5}$  Тл получается  $p_{max} = 4.7 \cdot 10^{-8}$  и погрешность менее  $1.38 \cdot 10^{-4}$ . Такой результат может свидетельствовать об излишне оптимистичной

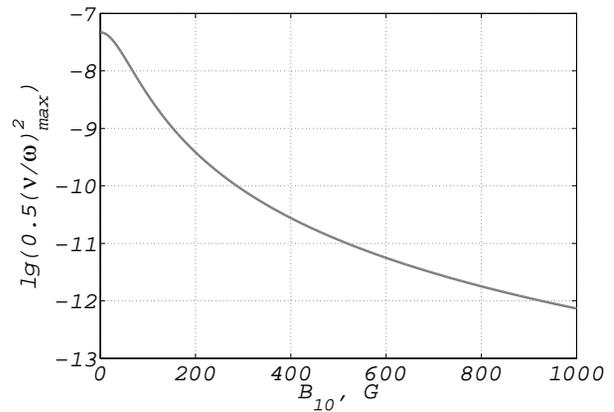


Рис. 12. Зависимость десятичного логарифма максимальной вероятности деполаризации от параметра ведущего магнитного поля для модели «аналитическое поле массива Хальбаха+ведущее магнитное поле, плоская система магнитов»

оценке при малых значениях  $B_{10}$ . Как видно из графика на рис. 12, при  $B_{10} \rightarrow 0$  увеличение квадрата отношения (24) замедляется. В этой области значений  $B_{10}$  уменьшается минимум магнитного поля и перестает с хорошей точностью выполняться второе из условий (15) — условие медленного поворота поля  $\mathbf{V}$ .

#### 4.5. Сравнение областей применимости разработанных методик

Как уже отмечалось ранее, квантовомеханическая методика оценки вероятности деполаризации может использоваться только в том случае, когда магнитное поле удовлетворяет определенным требованиям. Для произвольного неоднородного магнитного поля эта оценка, вообще говоря, не применима. Классическая методика работает хорошо, когда угловая скорость вращения вектора поля  $\mathbf{V}$  в системе координат, движущейся вместе с нейтроном, может считаться постоянной по модулю и по направлению. Это будет иметь место при выполнении условий (15). Поэтому различие в результатах применения квантовомеханической и классической методик, обнаруживаемое на рис. 11, имеет две возможные причины:

- 1) нарушение требований, накладываемых на магнитное поле (для расчета берется реальное поле, а не аналитическое (23));
- 2) нарушение условий адиабатичности вследствие движения в области со слабым магнитным полем.

Вместе с тем, как показали расчеты, квантовомеханическая и классическая методики дают очень близкие результаты в аналитически заданном поле (23), где строго выполняются условия, накладываемые на поле, плавно изменяются все динамические характеристики и с высокой точностью выполняются условия (15).

Возможным путем развития классической методики оценки деполяризации может быть усреднение величины (12) по траекториям, полученным в результате анализа множественной динамики нейтронов на основе уравнений (4). Решение системы дифференциальных уравнений следует проводить для всех возможных значений начальных координат и скоростей. Если выбрать время наблюдения за одной частицей небольшим (несколько мкс), можно получить значение  $\cos\theta$ , близкое к мгновенному в рассматриваемой точке. Затем усреднение  $\langle 1 - \cos\theta \rangle$  нужно провести по найденным таким образом значениям.

Для применимости приближенной оценки вероятности деполяризации достаточно выполнения только второго условия (15), поскольку в этом случае важно лишь, чтобы магнитное поле вращалось медленнее, чем спин нейтрона вращается вокруг магнитного поля. Вследствие схожих условий применимости классическая и приближенная методики дают близкие результаты даже при существенной неоднородности поля **B**.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе дано обоснование трем методикам численной оценки вероятности деполяризации нейтронов на одном отскоке в объеме хранения магнитной ловушки. Классическая методика заключается в численном решении расширенной системы дифференциальных уравнений Блоха для различных начальных данных и вычислении среднего значения величины  $\sin^2(\theta/2)$ . Приближенная методика состоит в расчете среднего значения отношения частоты поворота магнитного поля к ларморовой частоте прецессии спина и взятии половины квадрата этого значения. Квантовомеханическая методика заключается в вычислении функции  $p(t)$ , соответствующей вероятности деполяризации на одном отскоке, в той области, где магнитное поле удовлетворяет определенным условиям.

Для применения разработанных методик произведен независимый расчет магнитного поля экспериментальной установки по измерению времени

жизни нейтрона в магнитной ловушке LANL. Обнаружены значительные отклонения действительного магнитного поля от аналитического, использовавшегося в [20]. Однако, как показал расчет, эти отклонения не оказывают существенного влияния на вероятность деполяризации. Для определения доли деполяризованных нейтронов в магнитных ловушках можно использовать оценку через квадрат отношения частот (16). Вероятно, оценка через  $\sin^2(\theta/2)$  также применима, но для ее использования необходим множественный расчет, который очень затратен по времени, и специальная процедура усреднения.

Выполнен расчет магнитного поля магнитной ловушки УХН, проект которой разработан в лаборатории физики нейтрона Петербургского института ядерной физики им. Б. П. Константинова. Для найденного поля была проделана оценка вероятности деполяризации на одном отскоке. Оценка дала значение  $7.2 \cdot 10^{-10}$ , что обеспечивает относительную ошибку измерения времени жизни нейтрона менее  $10^{-4}$ . Это означает, что применение новой ловушки в эксперименте по определению времени жизни нейтрона является принципиально возможным, а также более выгодным по характеристикам ловушки и простоте ее монтажа.

**Благодарности.** Авторы выражают благодарность А. Н. Мурашкину, Э. А. Коломенскому, С. Н. Иванову и А. К. Фомину за полезное обсуждение во время работы над статьей.

**Финансирование.** Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда, грант № 23-22-00169, <https://rscf.ru/project/23-22-00169/>.

## ЛИТЕРАТУРА

1. С. Patrignani et al., Particle Data Group. *Chin. Phys. C*, **40**, 100001 (2017).
2. Владимирский В. В., *ЖЭТФ*, **4**, 39, 1062 (1960).
3. Ю. Ю. Косвинцев, Ю. А. Кушнир, В. И. Морозов и др., *Письма в ЖЭТФ*, **70**, 27 (1978).
4. Ю. Г. Абов, В. В. Васильев, В. В. Владимирский и др., *Письма в ЖЭТФ*, **369**, 44 (1986).
5. В.Ф. Ежов и др., *Письма в ЖТФ*, **24**, 64. (2001).
6. В. Ф. Ежов, В. Л. Рябов, *Письма в ЖЭТФ*, **117**, 93 (2023).

7. Ю.А. Мостовой, К.Н. Мухин, О.О. Патаракин, *Нейтрон вчера, сегодня, завтра*, УФН **166**, 987 (1996).
8. F. Wietfeldt and G.L. Greene, *The Neutron Lifetime*, Rev. of Mod. Phys. **83**, 1173 (2011).
9. W. Paul and F. Anton, Z. Phys. C Particles and Fields **45**, 25 (1989).
10. J. M. Robson, Phys.Rev. **83**, 349 (1951).
11. P. E. Spivak et al., JETP Lett. **67**, 1735 (1988).
12. A. T. Yue, M. S. Dewey, D. M. Gilliam et al., Phys. Rev. Lett. **111**, 222501 (2013).
13. R. W. Jr. Pattie, N. B. Callahan, C. Cude-Woods et al., Science **11**; 360 (6389):627 (2018); DOI: 10.1126/science.aan8895. Epub 2018 May 6. PMID: 29731449.
14. A. P. Serebrov et al., Phys. Lett. B **605**, 72 (2005).
15. A. P. Serebrov and A. K. Fomin, Phys. Proc. **199**, 17 (2011).
16. А.П. Серебров, УФН **185**, 1179 (2015).
17. А. П. Серебров, УФН **189**, 635 (2019).
18. E. Majorana, Il Nuovo Cimento **9**, 43 (1932).
19. P. L. Walstrom et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **82**, 599 (2009).
20. A. Steyerl et al., Phys. Rev. C **86**, 065501 (2012).
21. Yu. N. Pokotilovski, JETP Lett. **76**, 131 (2002); **78**, 422(E) (2003).
22. H. Kuwabara, Y. Yamauchi, and A. Pratt, J. of the Kor. Phys. Soc. **62**, 1286 (2013).
23. J. Schwinger, Phys. Rev. **51**, 648 (1937).
24. I. I. Rabi, Phys. Rev. **51**, 652 (1937).
25. I. I. Rabi, N. F. Ramsey, and J. Schwinger, Rev. Mod. Phys. **26**, 167 (1954).
26. И. М. Маторы, Ядерная физика **16**, 624 (1972).
27. A. Saunders, D. Salvat, E. Adamek et al., *UCN $\tau$ : Study of Lifetime Measurement in a Magneto-Gravitational Trap/Next Generation Experiments to Measure the Neutron Lifetime*, (2014) p. 135.

# О ПРОВЕРКЕ Т-ИНВАРИАНТНОСТИ В ПОЛНОМ СЕЧЕНИИ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ НЕЙТРОНОВ С НЕПОЛЯРИЗОВАННЫМИ ЯДРАМИ С ПРИМЕНЕНИЕМ ТЕОРЕМЫ ПОЛЯРИЗАЦИЯ–АСИММЕТРИЯ

В. Р. Ской<sup>\*</sup>

Лаборатория нейтронной физики им. И. М. Франка,  
Объединенный институт ядерных исследований  
141980, Дубна, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 28 ноября 2023 г.,  
после переработки 24 апреля 2023 г.  
Принята к публикации 30 апреля 2023 г.

К настоящему времени нарушение Т-инвариантности (ТИ) экспериментально установлено для распадов [J.H. Christenson et al., Phys. Rev. Lett. **13**, 138 (1964)] и осцилляций [A. Angelopoulos et al., Phys. Lett. B **444**, 43 (1998)] нейтральных каонов. Феноменологически, нарушение ТИ в системе нейтральных каонов связано с отличием от нуля (или  $\pi$ ) фазы Кобаяши–Маскавы в Стандартной модели электрослабого взаимодействия. Для нуклон-ядерных взаимодействий эта фаза оказывается очень малой [P. Herszeg, in *Symmetries and Fundamental Interactions in Nuclei*, World Scientific, Singapore (1995), p.89]. Оценки величины нуклон-нуклонного матричного элемента, соответствующего нарушению ТИ в рамках различных моделей, приведены в работе [V. Gudkov, in *Fundamental Physics with Pulsed Neutron Beams*, World Scientific, Singapore (2001), p.117]. Все они малы и имеют большой разброс. Поэтому проверка ТИ в ядерных процессах является по существу поиском иных механизмов ее нарушения. Ниже приводится описание методики эксперимента по проверке ТИ в полных сечениях взаимодействия резонансных нейтронов низких энергий с неполяризованными ядрами с применением теоремы Поляризация–Асимметрия.

DOI: 10.31857/S0044451023090067  
EDN: KCJRGY

взаимодействия нейтрона, движущегося вдоль оси  $z$  с ядром мишени имеет вид

$$H = \frac{2\pi\hbar}{m} n_t (a s_0 + b \sigma_z) = \frac{2\pi\hbar}{m} n_t a s_0 + b' \sigma_z. \quad (1)$$

## 1. ПА-ТЕОРЕМА В ТРАНСМИССИИ НЕЙТРОНОВ

Теорема Поляризация–Асимметрия (ПА-теорема) сформулирована в работах [1, 2]: если имеет место Т-инвариантность (ТИ), то для неполяризованного падающего пучка частиц со спином 1/2 поляризация  $P$  рассеянных частиц равна асимметрии  $A$  при рассеянии полностью поляризованного пучка.

Рассмотрим трансмиссию нейтронов через неполяризованную мишень с учетом нарушения Р-четности. Феноменологический гамильтониан

Здесь  $m$  — масса нейтрона,  $a$  — амплитуда сильного,  $b$  — слабого Р-нечетного взаимодействия,  $n_t$  — плотность ядер мишени,  $s_0$  — единичная матрица,  $\sigma_z$  — матрица Паули. Амплитуда  $b$  имеет размерность длины,  $b'$  — частоты. Включение слабого Р-нечетного взаимодействия связано с выполнением условий ПА-теоремы поскольку должно быть взаимодействие, обеспечивающее появление асимметрии и поляризации. Сильное взаимодействие эти условия не обеспечивает, поскольку ядра мишени не поляризованы.

Эволюция спиновой матрицы плотности нейтронного пучка при прохождении мишени за время  $t$  определяется оператором

$$U = e^{iHt} = \eta [\cos(b't) s_0 + i \sin(b't) \sigma_z], \quad (2)$$

\* E-mail: skoy@nf.jinr.ru

где

$$\eta = \exp(-2\pi i \lambda a n_t d),$$

$d = vt$  — толщина мишени,  $\lambda = \hbar/mv$  — длина волны и  $v$  — скорость нейтрона.

Теперь добавим спиновый фильтр, селекционирующий спины нейтронов вдоль направления пучка с эффективностью  $p$ . Рассмотрим две схемы измерения. В первой мишень расположена после спинового фильтра (поляризатора). В этом случае спиновая матрица плотности нейтронов на входе мишени имеет вид

$$\rho_{p\pm} = \frac{1}{2}(s_0 \pm p\sigma_z). \quad (3)$$

Во второй схеме мишень находится перед спиновым фильтром, который теперь выполняет роль анализатора поляризации нейтронов, после их прохождения через мишень. Теперь спиновая матрица на входе мишени соответствует неполяризованному пучку:

$$\rho_{p\pm} = \frac{1}{2}s_0. \quad (4)$$

С помощью первой схемы измеряется разность (асимметрия)  $A$  величин трансмиссии нейтронов через мишень  $T_{p\pm}$  при изменении направления поляризации нейтронов на входе:

$$T_{p\pm} = \text{Tr}(U\rho_{p\pm}U^+),$$

$$A = \frac{T_{p+} - T_{p-}}{T_{p+} + T_{p-}}. \quad (5)$$

С помощью второй схемы измеряется поляризация  $P$ , которая возникает в нейтронном пучке при его прохождении через мишень:

$$\rho'_0 = U\rho_0U^+,$$

$$P = \frac{\text{Tr}(\rho'_0 p\sigma_z)}{\text{Tr}(\rho'_0)}. \quad (6)$$

Асимметрия  $A$  и поляризация  $P$  возникают за счет Р-нечетного слабого взаимодействия. Непосредственные вычисления приводят к выражениям

$$A = P = \frac{2p \text{Im} [\sin(b't)^* \cos(b't)]}{|\sin(b't)|^2 + |\cos(b't)|^2} =$$

$$= -p \text{th}(2 \text{Im} b't). \quad (7)$$

Или, с учетом оптической теоремы и связи между  $b'$  и  $b$ , получаем

$$A = P = p \text{th}(4\pi\lambda \text{Im} b n_t d)$$

$$= p \text{th}(\sigma_P n_t d), \quad (8)$$

где  $\sigma_P$  — часть полного сечения, связанная с Р-нечетным взаимодействием. Таким образом из (7) следует, что в трансмиссии нейтронов при наличии Р-нечетного эффекта ПА-теорема выполняется. Если в (7) величины  $\text{Im} b'$  для  $A$  и  $P$ , как для взаимно обратных во времени процессов будут разными, то это означает нарушение ТИ. Ниже такое нарушение ТИ будет рассмотрено на примере модели двухуровневого приближения.

## 2. НАРУШЕНИЕ Т-ИНВАРИАНТНОСТИ

Взаимодействие нейтронов с ядрами рассматривается в рамках S-матричного подхода:

$$S = 1 + iT,$$

где  $T$  — матрица перехода, элементы которой определяются между начальным и конечным состояниями реакции. В нашем случае  $T \sim v_P$  соответствует Р-нечетному слабому взаимодействию. При обращении времени в первом порядке по  $v_P$  ее элементы преобразуются как [3]

$$\langle f|T|i\rangle \rightarrow \langle f|T|i\rangle^+ = \langle i|T|f\rangle^* = \langle f|T^+|i\rangle. \quad (9)$$

Если слабое взаимодействие нарушает только Р-четность и  $v_P$  — вещественно, то ТИ имеет место, т.е.  $T$  является эрмитовой. Вещественность  $v_P$  следует из энергетической зависимости Р-нечетных эффектов, например в полных сечениях взаимодействия нейтронов с ядрами [4, 5]. С учетом (9) и положив  $v_P \rightarrow v_P + iv_T$ , представим амплитуды  $b$  в виде

$$b_+ = \langle f|v_P + iv_T|i\rangle = (v_P + iv_T)\varphi_f\varphi_i,$$

$$b_+ \rightarrow b_- = \langle f|v_P - iv_T|i\rangle = (v_P - iv_T)\varphi_f\varphi_i, \quad (10)$$

где  $\varphi_i, \varphi_f$  — скалярные функции состояний ядра, явный вид которых будет рассмотрен в следующем разделе. Приняв указанные допущения, получим

$$\text{Im} b_+ = v_P \text{Im}(\varphi_i\varphi_f) + v_T \text{Re}(\varphi_i\varphi_f),$$

$$\text{Im} b_- = v_P \text{Im}(\varphi_i\varphi_f) - v_T \text{Re}(\varphi_i\varphi_f). \quad (11)$$

Видно, что мнимые части  $b_{\pm}$  отличаются по величине, если  $v_T \neq 0$ . Поскольку эксперименты по измерению  $A$  и  $P$  являются взаимно обратными во времени, то подставив в выражение для одной из этих величин (любой)  $b \rightarrow b_+$ , а для другой  $b \rightarrow b_-$ , получим с учетом (10)

$$A - P = -p \text{th}(2\lambda \text{Im} b_+ n_t d) +$$

$$+p \operatorname{th}(2\lambda \operatorname{Im} b_{-n_t} d). \quad (12)$$

Учитывая малость эффекта как для  $v_P$  так и для  $v_T$ , а значит и аргумента тангенса:

$$\begin{aligned} A - P &\approx -2p\lambda n_t d (\operatorname{Im} b_+ - \operatorname{Im} b_-) = \\ &= -4p\lambda n_t d v_T \operatorname{Re}(\varphi_i \varphi_f). \end{aligned} \quad (13)$$

Значит, мнимую часть  $v_T$  можно интерпретировать как величину матричного элемента взаимодействия, нарушающего ТИ. Таким образом, в рамках ПА-теоремы найдено достаточное условие нарушения ТИ для трансмиссии нейтронов: различие амплитуд слабого Р-нечетного взаимодействия для прямого и обратного процессов. Поляризация ядер мишени не потребовалось.

### 3. S-МАТРИЧНАЯ СТРУКТУРА АМПЛИТУДЫ $b$

Нарушение Р-четности в трансмиссии в рамках двухуровневого приближения описывается элементами S-матрицы  $S(l_1, j_1, l_2, j_2)$ , где  $l$  — орбитальный и  $j$  — полный момент нейтрона в начальном и конечном состояниях. Для трансмиссии нейтронов низких энергий эти элементы соответствуют смешиванию слабым взаимодействием уровней составного ядра с противоположными четностями ( $s$ - и  $p$ -резонансов) [3, 6]. Диаграммы, соответствующие этим процессам показаны на рис.1. Здесь  $v_P$  — матричный элемент Р-нечетного взаимодействия, индексы  $s$  и  $p$  относятся к резонансам составного ядра со спином  $J$ , с энергиями и полными ширинами  $E_{s,p}$ , и  $\Gamma_{s,p}$ , соответственно,  $g_J$  — спиновый коэффициент. Величины  $\gamma_s$  и  $\gamma_{p\frac{1}{2}}$  — амплитуды нейтронных ширин  $s$ -резонанса и  $p$ -резонанса с полным моментом  $j = 1/2$ . Поскольку вклад этих процессов в нарушение Р-четности равновероятен, то

$$b_P \sim S\left(0, \frac{1}{2}, 1, \frac{1}{2}\right) + S\left(1, \frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2}\right). \quad (14)$$

С другой стороны, эти диаграммы можно рассматривать как взаимно обращенные во времени. Значит амплитуда, связанная с нарушением ТИ должна иметь структуру

$$b_T \sim S\left(0, \frac{1}{2}, 1, \frac{1}{2}\right) - S\left(1, \frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2}\right). \quad (15)$$

Что означает различие вероятностей прямого и обратного во времени процессов. Перемножение слева направо величин, указанных на рис.1 с заменой

в первой диаграмме  $v_P \rightarrow v_P + iv_T$ , а во второй  $v_P \rightarrow v_P - iv_T$  (или наоборот) приводит к явным выражениям для амплитуд (14) и (15):

$$\begin{aligned} S\left(0, \frac{1}{2}, 1, \frac{1}{2}\right) &= -i\frac{\lambda}{2} g_J \frac{\gamma_s \gamma_{p\frac{1}{2}}}{\Delta E_s \Delta E_p} (v_P + iv_T), \\ S\left(1, \frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2}\right) &= -i\frac{\lambda}{2} g_J \frac{\gamma_s \gamma_{p\frac{1}{2}}}{\Delta E_s \Delta E_p} (v_P - iv_T), \\ b_P &= i \left[ S\left(0, \frac{1}{2}, 1, \frac{1}{2}\right) + S\left(1, \frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2}\right) \right], \\ b_T &= S\left(0, \frac{1}{2}, 1, \frac{1}{2}\right) - S\left(1, \frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2}\right), \end{aligned} \quad (16)$$

где  $v_T$  — матричный элемент взаимодействия, нарушающего ТИ и  $\Delta E_{s,p}$  — знаменатели, приведенные на рис.1. Отсутствие мнимой единицы в выражении для  $b_T$  связано с тем, что сам матричный элемент мнимый. Поскольку для рассмотренных S-матричных структур было доказано существование факторов динамического и резонансного усиления эффектов нарушения Р-четности и ТИ [7, 8], то эти факторы действуют и в рассматриваемом случае проверки ПА-теоремы.

Модельное приближение, описанное в предыдущем разделе означает, что функциям состояний  $\varphi_i$  и  $\varphi_f$  отвечают выражения слева и справа от кружка, который на диаграммах соответствует слабому взаимодействию. По условию модели, нарушение ТИ затрагивает только сам кружок, приводя к замене  $iv_T$  на  $-iv_T$ , но не приводит к комплексному сопряжению Брайт-Вигнеровских амплитуд, которые определяются сильным взаимодействием (величины  $\gamma_s$  и  $\gamma_{p\frac{1}{2}}$ ) и являются Т-инвариантными.

Применяя оптическую теорему к амплитудам  $b_P$  и  $b_T$  можно перейти к полным сечениям и построить необходимый набор величин для определения измеряемых  $A$  и  $P$ :

$$\begin{aligned} A &= p \operatorname{th}[(\sigma_P + \sigma_T) n_t d], \\ P &= p \operatorname{th}[(\sigma_P - \sigma_T) n_t d]. \end{aligned} \quad (17)$$

В силу малости аргумента тангенса, имеем

$$A - P \sim 2p\sigma_T n_t d. \quad (18)$$

Здесь сечение  $\sigma_T$  соответствует амплитуде  $b_T$  в (16):

$$\begin{aligned} \sigma_T &= \frac{\pi \lambda^2 g_J \gamma_s \gamma_{p\frac{1}{2}} v_T}{\left[ (E - E_s)^2 + \Gamma_s^2/4 \right] \left[ (E - E_p)^2 + \Gamma_p^2/4 \right]} \times \\ &\times \left[ (E_s - E) \Gamma_p + (E_p - E) \Gamma_s \right]. \end{aligned} \quad (19)$$

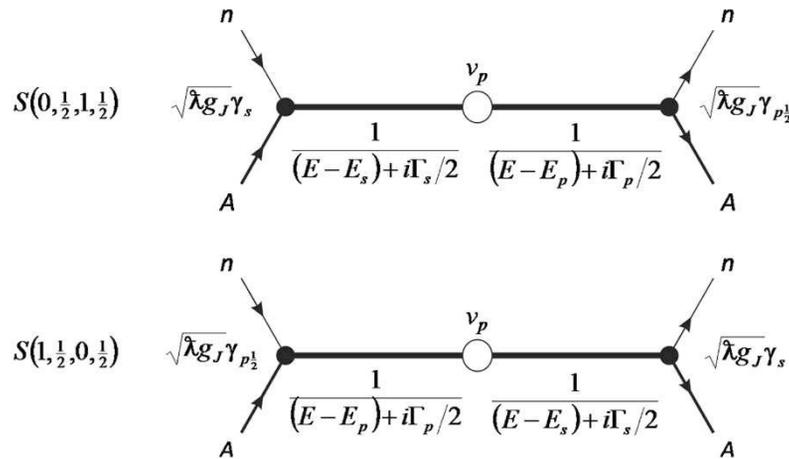


Рис. 1. Диаграммы процессов, соответствующих нарушению Р-четности

На рис.2 показана расчетная зависимость эффекта  $|A - P|$  для мишени на основе  $^{139}\text{La}$  в  $p$ -резонансе 0.734 эВ, где был обнаружен значительный Р-нечетный эффект в трансмиссии [5]. При расчетах полагалось  $p = 1$ ,  $v_p = 4.2 \cdot 10^{-3}$  эВ, что соответствует наблюдаемой величине Р-нечетного эффекта. Величина  $v_T = 10^{-3}v_p$  была выбрана, поскольку согласно существующим оценкам измерить эффект на меньшем уровне за разумное время 1–2 года даже на самых мощных нейтронных источниках проблематично.

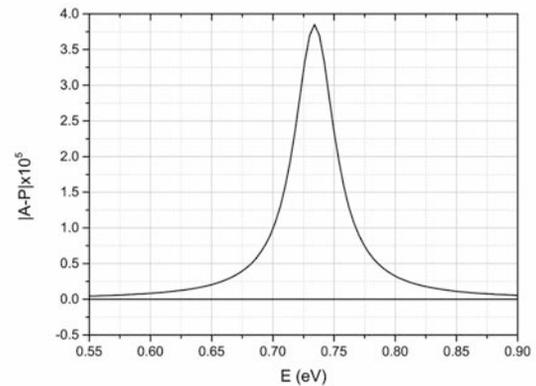


Рис. 2. Расчетный эффект  $|A - P|$  для мишени  $^{139}\text{LaAlO}_3$  толщиной 3 см в  $p$ -резонансе 0.734 эВ. Эффективность спинового фильтра  $p = 1$

#### 4. МАТРИЧНЫЙ ЭЛЕМЕНТ ЧИСТО МНИМЫЙ

В этом случае Р-четность сохраняется и  $v_p = 0$ . Это возможно, если  $p$ -резонанс формируется исключительно нейтронами с полным моментом  $j = 3/2$  и смешивания с  $s$ -резонансом нет. Возникновение поляризации в проходящем неполяризованном пучке и асимметрии в поляризованном, связано только с взаимодействием, нарушающим ТИ, но сохраняющим Р-четность:

$$b_T \sim S\left(l, \frac{1}{2}, l, \frac{3}{2}\right) - S\left(l, \frac{3}{2}, l, \frac{1}{2}\right), \quad (20)$$

где матричные элементы соответствуют переходам между состояниями с одинаковыми орбитальными  $l$ , но разными полными моментами  $j$  нейтрона. В двухуровневом приближении это соответствует двум  $p$ -резонансам. Поляризация и асимметрия в этом слу-

чае равны по величине, но имеют противоположные знаки. При этом в принципе нет необходимости проверять ПА-теорему. Достаточно наблюдения дихроизма (разности полных сечений) для поляризованных нейтронов или появления поляризации в пучке — просто по принципу исключения других причин, поскольку ядра мишени не поляризованы. Однако для этого нужна гарантия полного отсутствия Р-нечетных эффектов в рассматриваемых  $p$ -резонансах. Экспериментальная оценка величины нарушения ТИ при  $v_p = 0$  была получена в [9].

## 5. ПОПЕРЕЧНАЯ ПОЛЯРИЗАЦИЯ НЕЙТРОНОВ

ПА-теорема формулирует минимальные условия для проверки ТИ: частицы должны быть поляризованы. Но она ничего не говорит о направлении поляризации. Это направление определяется физикой процесса. Однако двухуровневое приближение также ничего не говорит о направлении поляризации. Поэтому возможна проверка ПА-теоремы не только для рассмотренной продольной относительно импульса поляризации нейтронов (спиральности), но и для поперечной. При этом  $P$ -нечетный эффект отсутствует, но в отличие от рассмотренного случая  $v_P = 0$ , двухуровневое приближение по-прежнему соответствует смешиванию состояний с противоположными (15), а не одинаковыми (20) четностями. При поперечной поляризации мы «выключаем»  $P$ -нечетное взаимодействие, но из двухуровневого приближения не следует, что нарушающее ТИ взаимодействие также выключается.

## 6. СИСТЕМАТИЧЕСКИЕ ОШИБКИ

Очевидными источниками систематических ошибок являются следующие.

1. Различие условий на детекторе нейтронов до и после перестановки или поворота мишени вокруг спинового фильтра.

2. Наличие магнитного поля, которое может повернуть спин нейтрона на пути между мишенью и спиновым фильтром.

3. При использовании магнитного канала транспортировки (соленоида), на спин может оказывать влияние несоосность пучка и поля в соленоиде.

Первая проблема в принципе решается по результатам измерений вне  $p$ -резонанса, поскольку эффект там намного меньше, чем в резонансе, а влияние окружения детектора то же самое. Можно выполнить измерение на неполяризованном пучке (спиновый фильтр присутствует, но его ядра не поляризованы,  $p = 0$ ). Решение второй проблемы, помимо чисто технической стороны требует изучения измеряемых величин при заданных параметрах магнитного поля. Например, если поле  $M$  лежит в плоскости  $YZ$  и составляет с осью  $Z$  угол  $\theta$ , то в гамильтониан (1) помимо амплитуд  $a$  и  $b$  нужно включить еще слагаемое

$$c = \sigma_y (\mu_n M / \hbar) \sin \theta, \quad (21)$$

где  $\mu_n$  — магнитный момент нейтрона.

## 7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Приведенные в (15), (16) и (20) модели двухуровневого приближения с комплексным матричным элементом обычно применяются для описания нарушения ТИ при взаимодействии поляризованных нейтронов с поляризованными или выстроенными ядрами. Проведенный анализ показывает, что эти же модели приводят и к нарушению ПА-теоремы, проверка которой однако не требует поляризованных или выстроенных мишеней.

Задачу можно было решать и в обратном порядке. Используя двухуровневое приближение с комплексным матричным элементом, получить амплитуду  $b$  в виде (16). Затем подставить ее в гамильтониан (1) и рассчитать величины  $A$  и  $P$  с учетом того, что для одной из них нужно заменить  $b_+$  на  $b_-$ , поскольку процессы измерения  $A$  и  $P$  взаимно обратные во времени. Таким образом снова получим результат в форме (18).

Для экспериментов по проверке ПА-теоремы необходим лишь спиновый фильтр (поляризатор/анализатор). Если нейтронный источник обеспечивает достаточно высокое энергетическое разрешение, то преимущество имеет «всеволновой» фильтр на основе поляризованной протонной мишени, который эффективен для нейтронов с энергий до 20 кэВ. Для  $p$ -волновых резонансов с энергией порядка 1–2 эВ возможно применение фильтра на основе поляризованных ядер  ${}^3\text{He}$ . Систематические ошибки (ложные эффекты) предлагаемой методики преодолимы в значительно большей степени, чем в методиках с поляризованной [10–13] и выстроенной [14] мишенью.

Данная работа является по сути логическим завершением [12], где ПА-теорема предлагалась для устранения ложных эффектов, возникающих из-за поляризации мишени. Однако того, что применение ПА-теоремы делает поляризацию мишени вообще не нужной, тогда никем понято не было, в том числе автором.

## ЛИТЕРАТУРА

1. R. H. Dalitz, Proc. Phys. Soc. A **65**, 175 (1952).
2. Р. Блин-Стойл, *Фундаментальные взаимодействия и атомное ядро*, Мир, Москва (1976).
3. В. Е. Бунаков, ЭЧАЯ **26**, 285 (1995).

4. В. П. Алфименков, УФН **144**, 361 (1984).
5. В. П. Алфименков и др., Письма ЖЭТФ **35**, 42 (1982).
6. V. E. Bunakov, L.V. Pikelner, Prog. Part. Nucl. Phys. **39**, 337 (1997).
7. О. П. Сушков, В. В. Фламбаум, Письма ЖЭТФ **32**, 377 (1980).
8. V. E. Bunakov, V.P. Gudkov, Z. Phys. A **303**, 285 (1981).
9. A. L. Barabanov et al., Phys. Rev. Lett. **70**, 1216 (1993).
10. L. Stodolsky, Phys. Lett. B **172**, 5 (1986).
11. А. П. Серебров, Письма ЖЭТФ **58**, 15 (1993).
12. V. R. Skoy, Phys. Rev. D **53**, 4070 (1996).
13. Y. Masuda, Nucl. Instr. Meth. A **440**, 632 (2000).
14. А. Г. Беда, В.Р. Ской, ЭЧАЯ **38**, 1477 (2007).

# ПЕРИОДИЧЕСКИЕ ВАРИАЦИИ КОНЦЕНТРАЦИИ РАДОНА В ПОДЗЕМНОЙ ЛАБОРАТОРИИ ГРАН САССО, ИЗМЕРЕННЫЕ С ПОМОЩЬЮ LVD

*Н. Ю. Агафонова<sup>a\*</sup>, Е. А. Добрынина<sup>a\*\*</sup>, Н. А. Филимонова<sup>a,b\*\*\*</sup>, И. Р. Шакирьянова<sup>a</sup>,  
от имени Коллаборации LVD*

<sup>a</sup> *Институт ядерных исследований Российской академии наук  
117312, Москва, Россия*

<sup>b</sup> *Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет)  
141701, Долгопрудный, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 4 марта 2023 г.,  
после переработки 17 марта 2023 г.  
Принята к публикации 17 марта 2023 г.

Представлен анализ временных рядов гамма-квантов от естественной радиоактивности в подземной лаборатории LNGS (Италия), измеренных с помощью детектора большого объема (LVD). Установка предназначена для регистрации нейтрино от гравитационных коллапсов звездных ядер в Галактике. Фоном эксперимента являются нейтроны и гамма-кванты от распада дочерних ядер урана и тория. Анализ периодических изменений числа гамма-квантов, обусловленных содержанием радона в подземной лаборатории, показал наличие суточной, недельной, лунно-месячной и годовой модуляций. В работе приводятся данные с 2004 по 2021 гг., включая период пандемии — время низкой активности работ в зале LNGS.

DOI: 10.31857/S0044451023090079  
EDN: KCOFRK

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Учет фона в экспериментах, проводимых в подземных лабораториях, представляет собой сложную задачу. Источники фона под землей можно разделить на следующие четыре составляющие:

а) радиоактивность окружающих горных пород, включая нейтроны от естественного деления и  $(\alpha, n)$ -реакции;

б) присутствие радиоактивных примесей в материале детекторов и их защиты;

в) содержащийся в воздухе и воде газ радон  $^{222}\text{Rn}$  и продукты его распада;

г) мюоны космических лучей и их вторичные частицы.

Постоянные составляющие а) и б) можно оценить и определить на этапе создания экспериментов. Содержание радиоактивных элементов (рядов урана, тория и радиоактивного изотопа калия) оценены для разных пород грунта и могут быть измерены различными методами [1, 2].

Составляющая г) известна с достаточно большой точностью [3]. Недавно получены вариации мюонов за 24 года наблюдений и измерен поток мюонов с высокой точностью на глубине 3600 м в.э. [4]. Но несмотря на известный поток мюонов под землей, вторичные частицы, а именно нейтроны, генерированные мюонами, еще не до конца изучены. Измерения сезонных вариаций нейтронов от мюонов под землей получены только в работе [5]. Численного моделирования не проводилось, оценки потока нейтронов от мюонов как фона под землей были сделаны в [6]. Вето-защита, которую обычно используют от мюонов, срабатывает только при попадании мюонов в детектор, а нейтроны, генерированные мюонами, прошедшими в грунте рядом с детектором, могут свободно проникать в детектор. Однако же энер-

\* E-mail: agafonova@inr.ru

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

\*\*\* E-mail: filimonova.na@phystech.edu

гетические спектры нейтронов, генерированные мюонами, полученные в экспериментах KARMEN [7], LVD [8] и в подземной лаборатории Soudan [9], имеют пределы до 80 МэВ, 500 МэВ и 70 МэВ соответственно. Способность нейтронов уходить от мюонного трека — поперечное распределение — была измерена в экспериментах LVD [10–12], KamLand [13], Bogexino [14], Daya Bay [15]. Максимальное расстояние, которое нейтроны могут пройти, получено в LVD (мишень  $C_nH_{2n}$  и Fe) и составило приблизительно 14 м [12].

Фон от радона в атмосфере помещений (составляющая в) тяжело измерить, так как подвижность и хорошая растворимость в воде этого газа мешает проводить точные измерения. Также известно о существовании в земной коре радон-нейтронных приливных вариаций, связанных с лунными периодами и имеющих гравитационное происхождение [16, 17]. В работе [17] получены суточные и месячные приливные вариации концентрации радона в земной коре. На концентрацию радона влияют многие факторы: изменение температуры, влажности, давления, вибрация грунта. В работе [18] были обнаружены спорадические увеличения потока тепловых нейтронов, которые объясняются адвекцией грунтовых газов (эффект барометрической откачки радона).

В Лаборатории Гран Сассо (LNGS, Италия) на средней глубине 3600 м в. э. проводятся подземные низкофоновые эксперименты, температура и влажность в залах изменяются мало. Низкое содержание урана и тория в горных породах [19] создает условия для изучения редких событий, предсказываемых теорий в физике частиц и астрофизике. Работа приточной вентиляции и близость загруженного транспортного туннеля вызывают колебания концентрации радона в течении суток. В зале А лаборатории LNGS находится детектор LVD [20], способный не только выполнять свою основную задачу — регистрацию нейтрино, но и контролировать уровень фона и исследовать его вариации. Цель данной работы — показать возможности детектора LVD для изучения вариаций концентрации радона в подземном помещении. За время работы установки набран большой объем данных и можно выделить суточные, недельные и годовые вариации радона.

## 2. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА LVD В LNGS И МЕТОДИКИ РЕГИСТРАЦИИ

Детектор большого объема LVD — эксперимент для поиска нейтринного излучения от вспышек

сверхновых в нашей Галактике. Основной реакцией взаимодействия нейтрино является обратный бета-распад:

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n, \quad n + p \rightarrow d + \gamma.$$

В режиме непрерывного поиска нейтрино детектор работает с 1992 г., с 2004 г. входит в систему раннего предупреждения о вспышках сверхновых — SNEWS [21]. В силу своих конструктивных особенностей детектор также располагает широкими возможностями для изучения мюонов космических лучей и продуктов их взаимодействия под землей. Методика регистрации нейтринного сигнала и мюонов, а также последние результаты эксперимента опубликованы в [22, 23].

Установка LVD содержит около 1000 т жидкостного сцинтиллятора ( $C_nH_{2n}$ ,  $\bar{n} = 9.6$ ) и около 1000 т железа [20]. Сцинтиллятор залит в 840 счетчиков. Счетчики имеют форму параллелепипеда ( $100 \times 100 \times 150$  см<sup>3</sup>) и сделаны из нержавеющей стали толщиной 4 мм. На верхней грани каждого счетчика установлены три фотоумножителя (ФЭУ-49Б), включенные на совпадение. Счетчики помещены по 8 штук в металлические модули-контейнеры (толщина стенок 20 мм), из которых набираются вертикальные колонны. Пять колонн объединены в башню. Установка состоит из трех башен, в каждой по 280 счетчиков. Геометрически мы разделяем счетчики на внешние и внутренние.

Установка имеет два порога регистрации: верхний (HET) для позитрона от реакции обратного бета-распада,  $E_{HET} > 5$  МэВ, и нижний (LET) для гамма-квантов от захвата нейтрона,  $E_{LET} > 0.5$  МэВ.

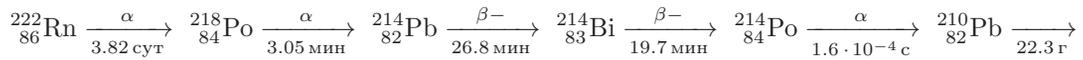
Основными источниками фона по низкому порогу на установке LVD являются естественная радиоактивность грунта и радон, который образуется в грунте в результате деления и распадов элементов уранового и ториевого рядов. Радон выходит в атмосферу подземного помещения через множественные микротрещины в породе, хорошо растворяется в воде и переносится подземными водами.

Таким образом, фоновый темп счета LVD можно разделить на две составляющие: постоянную, связанную с радиоактивностью материалов установки и окружающей среды (в основном скальной породы), и переменную, связанную с изменением концентрации радона в подземных помещениях. С помощью дополнительных измерений, проведенных альфа-частичным радиометром радона (радонометром), было найдено, что количество отсчетов установки, обусловленных радоном, составляет  $\sim 10\%$

от полного темпа счета по нижнему порогу, что соответствует концентрации радона  $\sim 25$  Бк/м<sup>3</sup>.

Гамма-кванты, регистрируемые LVD, это гамма-кванты от захватов нейтронов протонами сцинтиллятора и ядрами железа и гам-

ма-кванты от распадов дочерних ядер радона, период полураспада которого 3.8 сут. Наиболее вероятная цепочка радиоактивных распадов:



Гамма-излучение создается в основном ядрами висмута  ${}^{214}\text{Bi}$ , за счет  $\beta$ -распада превращающимися в полоний с характерным временем 19.7 мин. Энергетический спектр гамма-излучения охватывает диапазон от 0.6 до 2.5 МэВ. Поскольку порог регистрации энерговыделений во внутренних счетчиках 0.5 МэВ, установка способна регистрировать весь диапазон [24].

Ввиду невысоких энергий гамма-кванты проникают в счетчик главным образом через верхнюю грань счетчика, толщина металла которой 4 мм. Боковые и нижняя грани счетчика экранированы дополнительными 20 мм металла.

При обработке данных отбираются наиболее стабильно работающие внутренние счетчики в течение длительного времени. Число включаемых в обработку счетчиков варьируется от 60 до 76 из 80 внутренних счетчиков одной башни. Суммарный темп счета нормируется на один счетчик в герцах. Количество отсчетов, обусловленных радоном, для 70 счетчиков составляет около 3150 за 10 с. Это задает чувствительность метода 5% на уровне  $3\sigma$ , т. е. за 10-секундный интервал измерений установка фиксирует 5-процентное отклонение концентрации с достоверностью  $\sim 99.7\%$ .

Для исследования фона низкоэнергетичных импульсов  $E_{\text{NET}} > 0.5$  МэВ данные формируются следующим образом: каждые 10 мин все сцинтилляционные счетчики башни запускаются импульсом от генератора на регистрацию в течение 10 с. Таким образом формируются временные ряды событий  $C_{\text{Rn}}(t)$ , которые группируются в часовые данные, приведенные на секунду и нормированные на 1 счетчик.

Особенность метода регистрации позволяет выделить временные характеристики аномальных вариаций величины  $C_{\text{Rn}}$ : время возрастания (фронт) от 3 до 10 ч и экспоненциальное уменьшение длительностью до  $\sim 14$  ч с показателем экспоненты  $\tau \sim 3$  ч. Вариации такого вида мы называем «радоновыми пиками». Как видим, полученные величины гораздо меньше времени жизни радона

( $\tau_{\text{Rn}} = 5.5$  сут), следовательно, форма пика обусловлена инъекцией радона в атмосферу зала и его выдувом вентиляцией. Можно показать, что убывание концентрации радона в зале неплохо согласуется с расчетным законом:  $C_{\text{Rn}}(t) = C_0 \exp(-t/\tau_{\text{ven}})$ , где  $\tau_{\text{ven}} = V/F = 2.75$  ч,  $V = 22000$  м<sup>3</sup> — объем зала А без оборудования,  $F = 8000$  м<sup>3</sup> · ч<sup>-1</sup> — мощность вентиляции [25].

По окончании пика величина  $C_{\text{Rn}}$  принимает постоянное, равновесное (между эманацией из грунта и воды, с одной стороны, и вентиляцией — с другой) значение.

Радоновые пики бывают разной высоты и длительности. Наша задача — попытаться разделить пики на «техногенные», обусловленные деятельностью человека и техники под землей, и «аномальные», связанные с сейсмической активностью; а также выделить плавные изменения концентрации радона, возникающие из-за гравитационно-приливных и сезонных эффектов.

Идентификации аномальных возрастных темпа счета установки как «радоновых пиков» было посвящено несколько измерений, которые дали возможность однозначно ассоциировать пики именно с инъекцией радона [24, 26, 27].

### 3. ПЕРИОДИЧЕСКИЕ ВАРИАЦИИ

В анализе периодических вариаций величины  $C_{\text{Rn}}(t)$  мы использовали данные за 18 лет работы детектора с 01.01.2004 по 31.12.2021. Временной ряд  $C_{\text{Rn}}(t)$  первой башни LVD представлен на рис. 1.

С 2004 до 2008 гг. (период I) [28] в лаборатории работала система вентиляции, отличная от «обычной» 1992–2003 гг. и 2009–2021 гг. (период II). В период I велось активное строительство детектора Gerda, который находится рядом с LVD (в 10 м). В подтверждение действия вентиляции мы исследовали поведение суточных и недельных данных  $C_{\text{Rn}}(t)$ , в которых видно разную форму пиков во

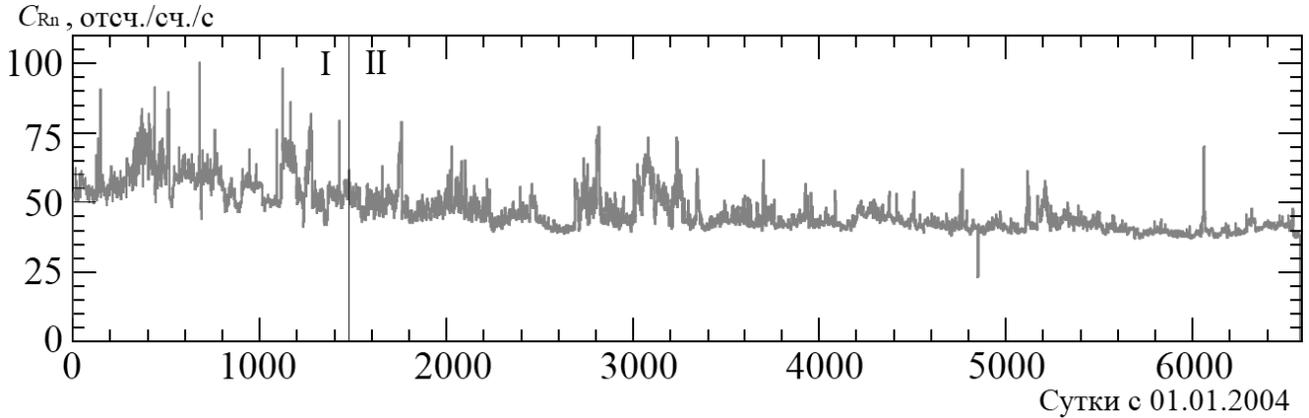


Рис. 1. Временной ряд суточных данных LVD башни Т1 с 2004 по 2022 гг. Цифрами I и II показаны разные периоды работы вентиляции

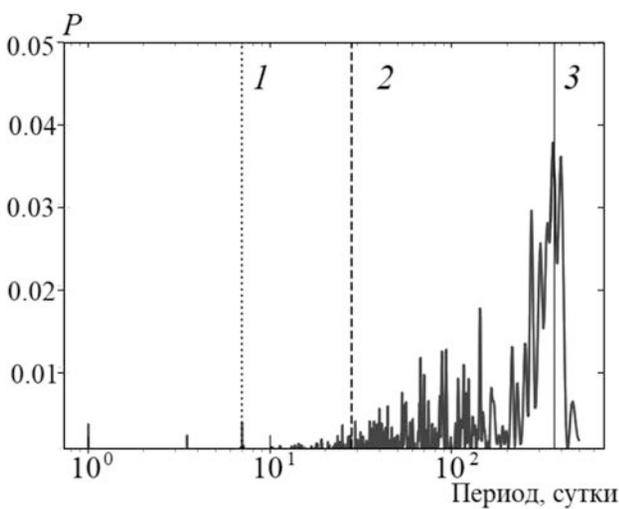


Рис. 2. Периодограмма анализа Ломба–Скаргла часовых данных с 2008 по 2022 гг. Цифрами около линий показаны периоды 1 — неделя, 2 — месяц, 3 — год

временных рядах (см. разд. 3.3), вызванную изменением режима вентиляции.

Для поиска периодических сигналов в скорости счета мы применили анализ Ломба–Скаргла к временным рядам  $C_{Rn}(t)$  (рис. 2). Этот метод во многом аналогичен более знакомой спектральной плотности мощности Фурье, но применяется для поиска периодичности в данных с нерегулярной выборкой. Анализ Ломба–Скаргла не показал значимых периодов (кроме годового). Мы предполагаем, что это связано с природой исследуемых явлений, на которые влияют погодные, сейсмические условия и т. д., различающиеся год от года.

Чтобы детально исследовать характеристики вариаций, мы применили метод наложения эпох. Этот метод заключается в наложении (суммировании) друг на друга данных, разбитых на равные бины

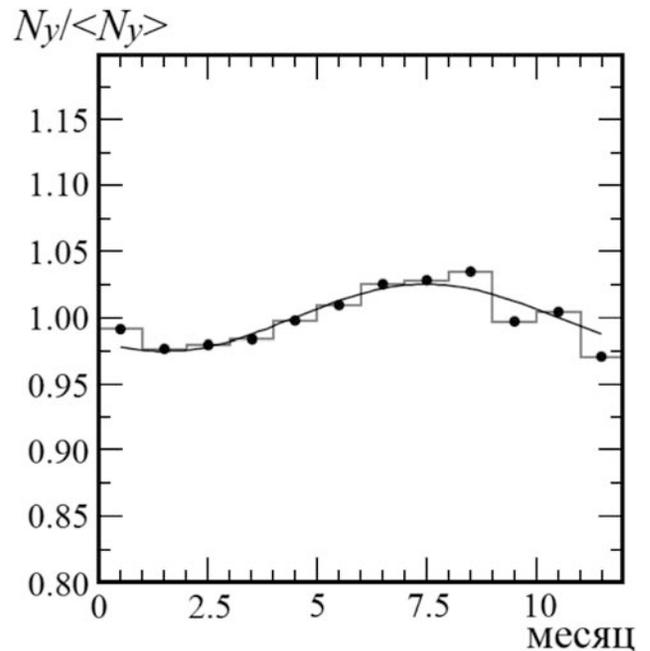


Рис. 3. Годовые вариации темпа счета  $C_{Rn}$  в относительных величинах  $N_y / \langle N_y \rangle$ , полученные методом наложения эпох. Кривая — аппроксимация гармонической функцией (см. пояснение в тексте)

временного ряда, при фиксированном периоде (эпохе). Здесь и далее мы будем использовать данные первой башни (Т1) LVD, так как она работала наиболее стабильно, отличие скоростей счета только в коэффициенте 1.06 и 1.49 для второй (Т2) и третьей (Т3) башни соответственно. Скорость счета гамма-квантов Т3 больше, чем у других башен из-за геометрического расположения в зале: Т3 «открыта» с одной стороны; остальные башни окружены скальными породами и бетоном (Т1 — с трех сторон, Т2 — с двух сторон, Т2 находится между Т1 и Т3).

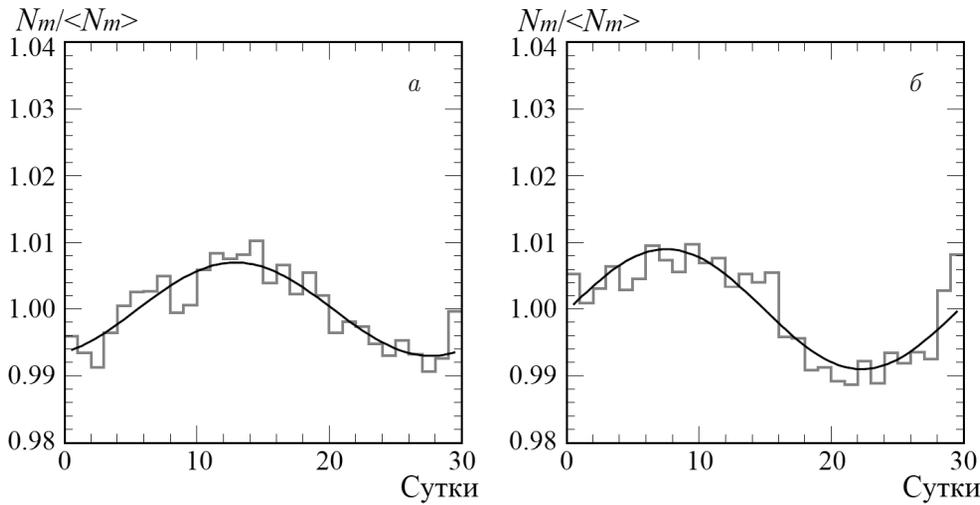


Рис. 4. Лунно-месячные вариации  $C_{Rn}$ . а — за весь период 2004–2021 гг. (полнолуние приходится на 7 сутки); б — период II с 2009 по 2019 гг. (полнолуние приходится на 11 сутки). Кривая — аппроксимация гармонической функцией (см. пояснение в тексте)

### 3.1. Годовые вариации концентрации радона

С целью выделения долговременной составляющей вариаций концентрации радона был проведен анализ данных с 2009 по 2021 гг. (период II). Использовались нормированные на среднее в год данные  $C_{Rn}(t)$ , чтобы привести к единице.

Амплитуда модуляции колебаний темпа счета  $\delta N_y / \langle N_y \rangle$  и фаза  $\phi_y$  с достаточной точностью были установлены методом наложения эпох за 13 лет наблюдений с периодом 1 год (рис. 3). Эти результаты хорошо обеспечены статистически: измерения проводятся каждые 10 мин, а затем усредняются по большому объему данных. Каждый бин гистограммы рис. 3 содержит порядка  $3 \cdot 10^7$  отсчетов, что дает ошибку измерений порядка 0.002%.

С помощью аппроксимации временного распределения законом

$$N_y(t) = 1 + \delta N_y / \langle N_y \rangle \cos(2\pi(t - \phi_y) / T)$$

с бином 1 мес. при  $T = 12$  мес. были получены значения величин модуляции

$$\delta N_y / \langle N_y \rangle = (3.0 \pm 1.1)\%$$

и фаза

$$\phi_y = (7.5 \pm 0.5) \text{ мес.}$$

Ошибка определения величины  $\delta N_y / \langle N_y \rangle$  связана с колебанием физических условий год от года, количеством осадков, атмосферными и сейсмическими явлениями в регионе.

Максимум вариаций находится в августе. Радон переносится подземными водами, и его максимальная концентрация достигается во время максимального насыщения скалы водой.

### 3.2. Лунно-месячные вариации концентрации радона

Синодический лунно-месячный период (промежуток между одинаковыми фазами луны) составляет 29.53 земных суток. Другие лунные периоды (аномалистический, сидерический, драконический), имеющие длительность 27.21–27.55 сут вносят искажения в поиск вариаций, связанных с максимальными приливными эффектами. Поэтому метод наложения эпох будет давать приблизительный результат. Мы приняли эпоху равную 708 ч, или  $708/24 = 29.5$  сут. Таким образом, за 13 лет у нас будет около 160 периодов.

Результат метода наложения лунно-месячных эпох показан на рис. 4. В каждом бине усреднены данные за 5260 ч. С помощью аппроксимации временного распределения законом

$$N_m(t) = 1 + \delta N_m / \langle N_m \rangle \cos(2\pi(t - \phi_m) / T)$$

с бином 1 сут при  $T = 29.5$  сут были получены значения величин модуляции  $\delta N_m / \langle N_m \rangle = (0.8 \pm 0.15)\%$  и фаза  $\phi_m$  (максимум кривой), которая соответствует дню полнолуний. Фаза лунно-месячных вариаций — полнолуние — получается одинаковой для любого периода наблюдений: 2004–2008 гг. (полнолуние приходится на 7 сутки) рис. 4а, 2009–2019 гг. (полнолуние приходится на 11 сутки) рис. 4б.

### 3.3. Недельные вариации концентрации радона

На рис. 5 приведены вариации  $C_{Rn}(t)$  в течение одной недели (с понедельника по воскресенье). Гра-

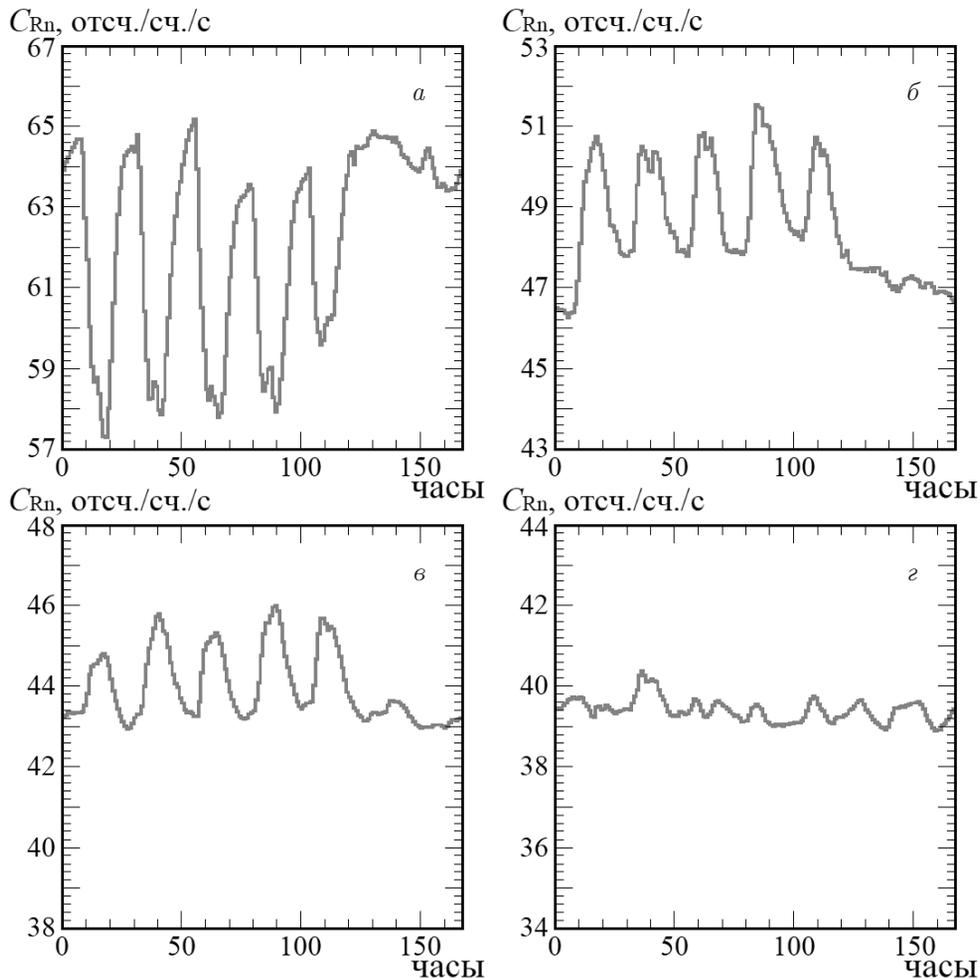


Рис. 5. Недельные вариации  $C_{Rn}$  за 2005 (а), 2009 (б), 2013 (в) и 2020 (г) гг., полученные методом наложения эпох (эпоха — 1 неделя = 168 ч)

фики получены методом наложения эпох: просуммированы соответствующие день недели и час в течение года и усреднены. На рисунке приведены характерные примеры за 2005, 2009, 2013 и 2020 гг.

На рис. 5а показан режим работы вентиляции в период I. Можно заметить, что в ночные часы концентрация радона растет, в течении рабочего дня уменьшается, вечером опять начинает расти; в выходные дни концентрация остается на высоком «ночном» уровне.

Режим работы вентиляции периода II показан на рис. 5б, в. На гистограммах видны дневные увеличения концентрации и уменьшение к ночи; в выходные дни низкая концентрация на уровне «ночных» значений.

На рис. 5г представлен 2020 г. — год пандемии. Из-за ограничений, связанных с Ковидом-19, были запрещены работы на экспериментах в подземной лаборатории, кроме обязательных мероприятий. Отличие средних значений темпов счета в

дневные и ночные часы в 2020 г. меньше обычной:  $\delta N_{week}(2020) \cong 2\%$ , в то время как в 2009 и 2013 гг. — около 7% и 5% соответственно.

На изменение концентрации  $C_{Rn}(t)$ , кроме работы приточной вентиляции, также влияют следующие факторы:

- 1) открывание и закрывание дверей на длительное время  $\sim 1-3$  ч, для работы техники (подвоз оборудования и материалов);
- 2) движение транспорта в туннеле рядом с лабораторией, так как в выходные дни почти нет движения большегрузных машин. Подобные эффекты в туннелях и подземных залах были описаны в работах [29] и [30, 31].

#### 3.4. Суточные вариации концентрации радона

Суточные вариации  $C_{Rn}(t)$  за 24 ч получены методом наложения эпох для рабочих дней с понедельника на пятницу и для выходных дней (суббота,

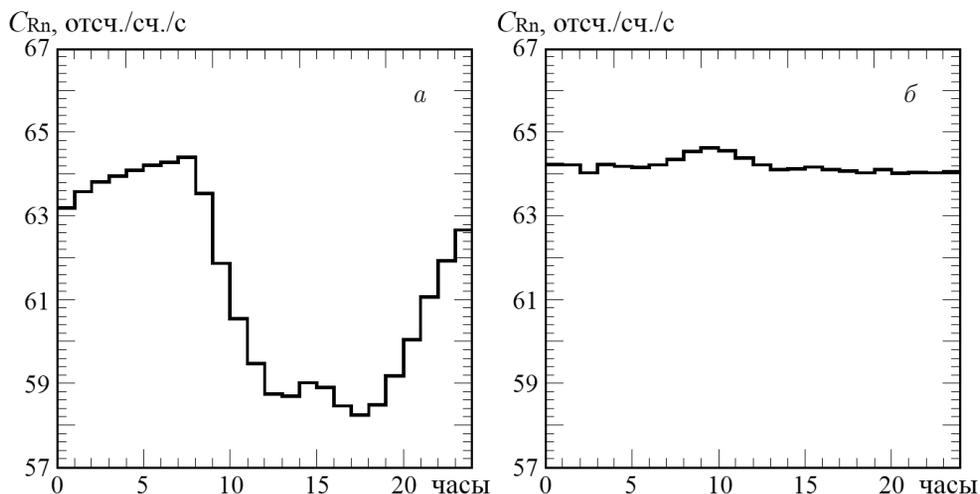


Рис. 6. Суточные вариации  $C_{Rn}(t)$  2005 г., полученные методом наложения эпох, где эпоха 24 ч, (а — для рабочих дней, б — для выходных)

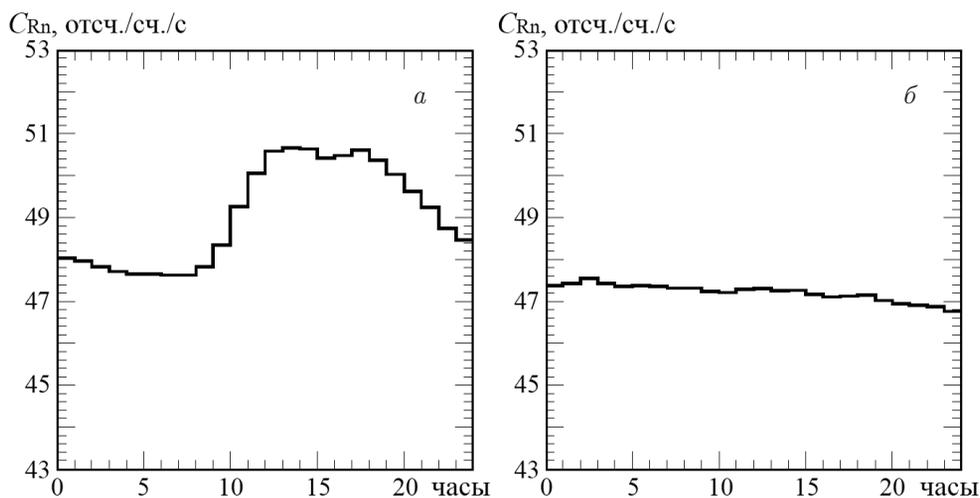


Рис. 7. Суточные вариации  $C_{Rn}(t)$  2009 г., полученные методом наложения эпох, где эпоха 24 ч, (а — для рабочих дней, б — для выходных)

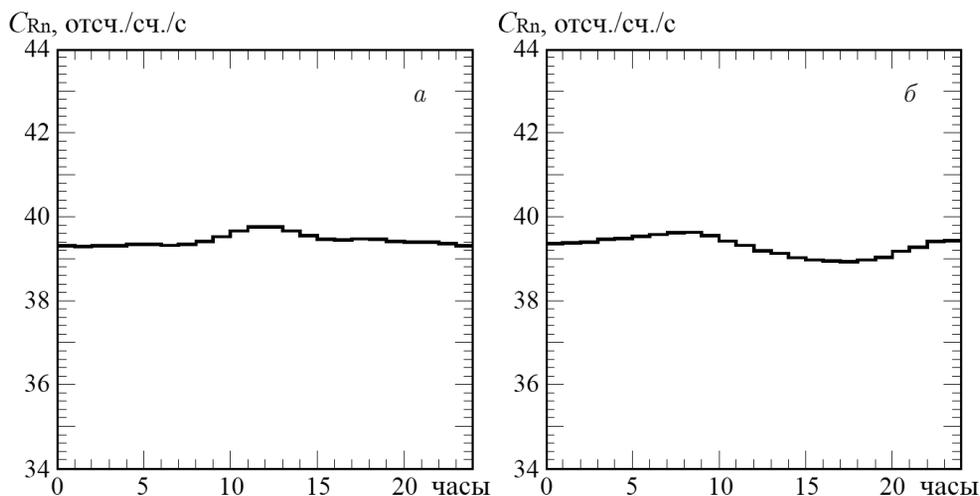


Рис. 8. Суточные вариации  $C_{Rn}(t)$  2020 г., полученные методом наложения эпох, где эпоха 24 ч, (а — для рабочих дней, б — для выходных)

воскресенье). На рис. 6–8 показаны примеры для 2005 г. (относится к периоду I), 2009 г. (период II) и 2020 г. (период пандемии) соответственно.

Временной ход темпа счета в 2005 г. в рабочие дни имеет два минимума, которые расположены на временной шкале около 12 и 16 ч. В районе 14 ч наблюдается повышение темпа счета (рис. 6а).

Временной ход темпа счета в 2009 г. в рабочие дни имеет два максимума, которые расположены на временной шкале около 12 и 16 ч. В районе 14 ч наблюдается снижение темпа счета (рис. 7а). Максимум вариации составляет 6.7%.

В выходные дни (суббота и воскресенье) для всех годов темп счета фоновых событий имеет другой вид: отсутствуют выраженные максимумы и не наблюдается увеличения темпа счета в рабочее время (рис. 6б, 7б).

Заметим, что в пандемийные годы, 2020 и 2021 гг. (рис. 8 — пример 2020 г.), суточного хода вариаций  $C_{Rn}(t)$  почти нет ( $< 1\%$ ).

Поведение суточного хода (период II) объясняется корреляциями с человеческой деятельностью в рабочее время: открыванием и закрыванием ворот в зал эксперимента. Благодаря хорошей изоляции помещения и действию приточной вентиляции, при закрытых воротах концентрация радона в зале достаточно низкая и составляет  $\sim 25$  Бк/м<sup>3</sup>. В прилегающих коридорах она больше в несколько раз. Ночью приточная вентиляция при закрытых воротах создает избыток давления, который уменьшает выход радона из скалы. Днем в рабочее время открываются ворота, что приводит к увеличению концентрации радона в зале LVD. Во-первых, начинает поступать воздух из соседних помещений с повышенной концентрацией радона, во-вторых, давление в зале уменьшается и радон выходит из скалы в атмосферу зала интенсивнее.

Впервые на этот эффект, наблюдаемый в данных LVD, было указано нами в работе [24]. В работе [32] в данных 2016 г. также был обнаружен часовой сдвиг между распределениями «летних» и «зимних» периодов данных, что объясняется часовой разницей «летнего» и «зимнего» рабочего времени (часы установки всегда показывают «зимнее» время).

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Изучение вариаций радиоактивного фона под землей имеет важное значение для низкофоновых лабораторий. Помимо измерения постоянной составляющей фона, необходимо исследовать периодические и стохастические выбросы в среднем фоно-

вом уровне экспериментов. Нами исследован низкоэнергетический фон эксперимента LVD, связанный с распространением гамма-квантов от дочерних ядер радона в лаборатории LNGS.

Выбросы во временных рядах событий детектора связаны с инъекцией радона в атмосферу подземного помещения из микротрещин в грунте. На изменение концентрации радона в зале влияет техническая деятельность в лаборатории LNGS, интенсивное движение в автотранспортном туннеле, сейсмическая активность и приливные силы. Нами были обнаружены суточные, недельные, лунно-месячные и годовые вариации фона, связанные с изменением концентрации радона в подземном помещении. Недельные и суточные вариации обусловлены открыванием дверей в зал эксперимента для проведения технических работ, вследствие чего из соседних коридоров проникает воздух, более насыщенный радоном. Суточным вариациям также может способствовать микросейсмика, возникающая при движении грузового автотранспорта по туннелю. Техногенное происхождение этих вариаций хорошо демонстрируют представленные данные с установки LVD за 2020 г. (так как в период пандемии человеческая деятельность была минимальна). Впервые в данных LVD выявлены вариации, связанные с лунными циклами. Годовые вариации носят сезонный характер и связаны с изменением количества подземных вод, что влияет на распространение радона.

Изучая характер вариаций скорости счета фоновых импульсов по амплитуде и длительности, можно разделить составляющие фона и выделить различные эффекты, связанные с его изменением.

Целью дальнейших исследований является выявление характеристик вариаций концентрации радона под землей, коррелирующих с различными геофизическими и метеоэффектами.

**Финансирование.** Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант 23-22-00048), <https://rscf.ru/project/23-22-00048/>.

#### LVD Collaboration: Authors and Affiliations

N. Yu. Agafonova<sup>1</sup>, M. Aglietta<sup>2,3</sup>, P. Antonioli<sup>4</sup>,  
V. V. Ashikhmin<sup>1</sup>, G. Bari<sup>4</sup>, G. Bruno<sup>5,6</sup>,  
E. A. Dobrynina<sup>1</sup>, R. I. Enikeev<sup>1</sup>, W. Fulgione<sup>3,5</sup>,  
P. Galeotti<sup>2,3</sup>, M. Garbini<sup>4,7</sup>, P. L. Ghia<sup>8</sup>, P. Giusti<sup>4</sup>,  
E. Kemp<sup>9</sup>, A. S. Malgin<sup>1</sup>, A. Molinaro<sup>5,10</sup>,  
R. Persiani<sup>4</sup>, I. A. Pless<sup>11</sup>, O. G. Ryazhskaya<sup>1</sup>,  
G. Sartorelli<sup>4</sup>, I. R. Shakiryanova<sup>1</sup>, M. Selvi<sup>4</sup>,  
G. C. Trincherо<sup>2,3</sup>, C. F. Vigorito<sup>2</sup>, V. F. Yakushev<sup>1</sup>,  
and A. Zichichi<sup>4,7</sup>

<sup>1</sup> Institute for Nuclear Research  
of the Russian Academy of Sciences  
117312, Moscow, Russia

<sup>2</sup> Department of Physic,  
University of Turin and INFN  
10125, Turin, Italy

<sup>3</sup> INAF, Osservatorio Astrofisico di Torino  
10025, Turin, Italy

<sup>4</sup> University of Bologna and INFN  
40127, Bologna, Italy

<sup>5</sup> INFN, Laboratori Nazionali del Gran Sasso  
67100, Assergi, L'Aquila, Italy

<sup>6</sup> New York University Abu Dhabi, NYUAD  
129188, Abu Dhabi, United Arab Emirates

<sup>7</sup> Centro Enrico Fermi  
00184, Roma, Italy

<sup>8</sup> Laboratoire de Physique  
des 2 Infinis Irène Joliot Curie, CNRS  
91406, Orsay, France

<sup>9</sup> University of Campinas  
13083, Campinas, Brazil

<sup>10</sup> Gran Sasso Science Institute  
67100, L'Aquila, Italy

<sup>11</sup> Massachusetts Institute of Technology  
02139, Cambridge, USA

В. Ф. Якушев (Коллаборация LVD), Н. М. Со-  
болевский, Изв. РАН, сер. физ. **73**, 666 (2009)  
[Bull. Russ. Acad. Sci., Physics **73**, 628 (2009)].

9. C. Zhang and D.-M. Mei, Phys. Rev. D **90**, 122003 (2014).

10. M. Aglietta et al., in *Proc. of the XXVI ICRC*, Salt Lake City, **2** (1999), p. 44, hep-ex/9905047.

11. H. Menghetti on behalf of the LVD Collaboration, Nuovo Cim. C **29**, 345 (2006).

12. А. С. Мальгин, Дисс. ... докт. физ.-матем. наук, ИЯИ РАН, Москва (2018).

13. S. Abe et al., Phys. Rev. C **81**, 025807 (2010).

14. J. Bellini et al. (the Borexino Collaboration), JCAP **08**, 049 (2013).

15. E. P. An et al., Phys. Rev. D **97**, 052009 (2018).

16. В. В. Алексеенко, Д. Д. Джаппуев, В. А. Козыри-  
вский и др., Изв. РАН, сер. физ. **71**, 1075 (2007)  
[V. V. Alekseenko, D. D. Dzhabpuev, V. A. Kozyariv-  
sky et al., Bull. Russ. Acad. Sci., Physics **71**, 1047  
(2007)].

17. В. В. Алексеенко, Ю. М. Гаврилюк, Д. М. Громуш-  
кин и др., Физика Земли **45**(8), 91 (2009)  
[V. V. Alekseenko, Yu. M. Gavriilyuk, D. D. Dzhap-  
puev et al., Izv. Phys. Solid Earth **45**(8), 709 (2009)].

18. Ю. В. Стенькин, В. В. Алексеенко, Д. М. Громуш-  
кин и др., ЖЭТФ **151**, 845 (2017) [Yu. V. Stenkin,  
V. V. Alekseenko, and D. M. Gromushkin, JETP **124**,  
718 (2017)].

19. H. Wulandari, J. Jochum, W. Rau, and F. von Fei-  
litzsch, Astropart. Phys. **22**, 313 (2004).

20. G. Bari, M. Basile, G. Bruni, G. Cara Romeo,  
A. Castelvetti, L. Cifarelli, A. Contin, C. Del Papa,  
P. Giusti, G. Iacobucci, G. Maccarrone, T. Massam,  
R. Nania, V. O'Shea, F. Palmonari et al., Nucl.  
Instr. Meth. Phys. Res. A **264**, 5 (1988).

21. P. Antonioli, R. T. Fienberg, F. Fleurot, Y. Fukuda,  
W. Fulgione, A. Habig, J. Heise, A. B. McDonald,  
C. Mills, T. Namba, L. J. Robinson, K. Scholberg,  
M. Schwendener, R. W. Sinnott, B. Stacey, Y. Suzuki  
et al., New J. Phys. **6**, 114 (2004).

22. N. Yu. Agafonova et al. (LVD Collaboration),  
Astrophys. J. **802**, 47 (2015).

23. Н. Ю. Агафонова, О. Г. Ряжская, от имени колла-  
борации LVD, ЯФ **85**, 70 (2022) [N. Yu. Agafonova  
and O. G. Ryazhskaya, Phys. Atom. Nuclei **85**, 79  
(2022)].

## ЛИТЕРАТУРА

1. Н. П. Лаверов, М. В. Шумилин, И. В. Мельников, И. А. Лучин, *Справочник геолога по поискам и разведке месторождений урана*, Недра, Москва (1989).
2. В. И. Баранов, Н. А. Титаева, *Радиогеология*, Изд-во Московского университета (1973).
3. E. V. Bugaev, A. Misaki, V. A. Naumov, T. S. Sinegovskaya, S. I. Sinegovsky, and N. Takahashi, Phys. Rev. D **58**, 054001 (1998).
4. N. Agafonova et al. (LVD Collaboration), Phys. Rev. D **100**, 062002 (2019).
5. N. Yu. Agafonova (on behalf of the LVD Collaboration), arXiv:1701.04620; *XXV ECRS 2016 Proceedings — eConf C16-09-04.3*.
6. J. Klinger and V. A. Kudryavtsev, Phys. Rev. Lett. **114**, 151301 (2015).
7. B. Armbruster et al. (KARMEN Collaboration), Phys. Rev. D **65**, 112001 (2002).
8. Н. Ю. Агафонова, В. В. Бояркин, В. Л. Дадькин, Е. А. Добрынина, Р. И. Еникеев, В. В. Кузнецов, А. С. Мальгин, О. Г. Ряжская, В. Г. Рясный,

24. Н. Ю. Агафонова, В. А. Алексеев, Е. А. Добрынина, В. В. Кузнецов, А. С. Мальгин, О. Г. Рязжская, В. Ф. Якушев, Препринт №1071/2001 ИЯИ РАН, Москва (2001).
25. Е. А. Добрынина, Дипломная работа, МГУ им. М. В. Ломоносова, физ. фак., каф. космических лучей и физики космоса, Москва (2001).
26. Н. Ю. Агафонова, В. В. Ашихмин, Е. А. Добрынина, Р. И. Еникеев, А. С. Мальгин, О. Г. Рязжская, Н. А. Филимонова, И. Р. Шакирьянова, В. Ф. Якушев, коллаборация LVD, Изв. РАН., сер. физ. **85**, 1661 (2021) [N. Yu. Agafonova, V. V. Ashikhmin, E. A. Dobrynina, R. I. Enikeev, A. S. Malgin, O. G. Ryazhskaya, N. A. Filimonova, I. R. Shakyrianova, V. F. Yakushev, and the LVD Collaboration, Bull. Russ. Acad. Sci., Physics **85**, 1320 (2021)].
27. Н. Ю. Агафонова, Е. А. Добрынина, Н. А. Филимонова, от имени коллаборации LVD, Вестник Московского Университета, сер. 3, физика, астрономия **78** (1), 2310202 (2023).
28. G. Bruno, PhD Thesis Univ. Degli Studi di L'Aquila, L'Aquila (2012).
29. P. Richon, F. Perrier, E. Pili, and J. Sabroux, Geophys. J. Int. **176**, 683 (2009).
30. A. Eff-Darwich, C. Martín, M. Quesada, J. de la Nuez, and J. Coello, Geophys. Res. Lett. **29**, 2069 (2002).
31. A. Eff-Darwich, R. Vinas, V. Soler, J. de la Nuez, and M. L. Quesada, Radiat. Meas. **43**, 1429 (2009).
32. Н. Ю. Агафонова, В. В. Ашихмин, Е. А. Добрынина, Р. И. Еникеев, А. С. Мальгин, К. Р. Рудаков, О. Г. Рязжская, И. Р. Шакирьянова, В. Ф. Якушев, Изв. РАН, сер. физ. **83**, 673 (2019) [N. Y. Agafonova, V. V. Ashikhmin, E. A. Dobrynina, R. I. Enikeev, A. S. Malgin, K. R. Rudakov, O. G. Ryazhskaya, I. R. Shakiryanova, and V. F. Yakushev, Bull. Russ. Acad. Sci., Physics **83**, 614 (2019)].

# ПЛАНАРНЫЕ ДЕФЕКТЫ В КРЕМНИИ КАК СПОСОБ ОПИСАНИЯ ЯВНОГО АНГАРМОНИЗМА ЕГО ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫХ ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИХ СВОЙСТВ

*М. В. Кондрин<sup>a\*</sup>, Ю. Б. Лебедь<sup>b</sup>, В. В. Бражский<sup>a</sup>*

<sup>a</sup> *Институт физики высоких давлений Российской академии наук  
108840, Троицк, Москва, Россия*

<sup>b</sup> *Институт ядерных исследований Российской академии наук  
117312, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 1 февраля 2023 г.,  
после переработки 11 апреля 2023 г.  
Принята к публикации 11 апреля 2023 г.

Кремний незаменим в полупроводниковой промышленности. Понимание его высокотемпературных термодинамических свойств важно как для теории, так и для приложений. Однако первопринципное описание высокотемпературных термодинамических свойств кремния (коэффициента теплового расширения и удельной теплоемкости) все еще является неполным. Сильное отклонение его удельной теплоемкости при высоких температурах от закона Дюлонга–Пти предполагает существенный вклад эффектов ангармонизма. Показано, что ангармонизм в основном обусловлен двумя поперечными фононными модами, распространяющимися в направлениях (111) и (100), и может быть количественно описан в предположении образования определенного типа наноструктурированных плоских дефектов кристаллической структуры. Приведен расчет энергии образования этих дефектов и определен их вклад в удельную теплоемкость и коэффициент теплового расширения. Этот вклад оказывается значительно большим, чем тот, который рассчитан в квазигармоническом приближении.

DOI: 10.31857/S0044451023090080  
EDN: KCTUCX

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Кремний — широко используемый полупроводник, играющий огромную роль в промышленности. Понимание его высокотемпературных термодинамических свойств необходимо как для теории, так и для приложений. Кроме того, благодаря своей архетипической алмазной структуре кремний является одним из пробных камней для проверки новых теорий. Тем не менее в его первом принципиальном описании есть белые пятна, в частности, касающиеся описания его высокотемпературных термодинамических свойств. В значительной степени это обусловлено тем, что высокотемпературные свойства связаны с эффектами ангармонизма, которые трудно описать одними только первопринципными методами.

В полностью гармоническом приближении как изохорная удельная теплоемкость  $c_V$ , так и изобарный коэффициент теплового расширения  $\alpha_V$  в твердых телах в пределе высоких температур должны сходиться к постоянному значению [1]. Для  $c_V$  это результат классического закона Дюлонга–Пти. В последнем случае постоянное значение  $\alpha_V$  при высокой температуре является результатом квазигармонического приближения, где свободная энергия, взятая как сумма потенциальной энергии атомов, находящихся в поле гармонического потенциала, и фононов минимизируется при определенной температуре по отношению к объему. Это приводит к уравнению [1]

$$\alpha_V = \frac{\gamma c_V}{B_0 V}. \quad (1)$$

Здесь

$$\gamma = -\frac{V}{\Theta} \frac{d\Theta}{dV}$$

— параметр Грюнайзена, который в нулевом при-

\* E-mail: mkondrin@hppi.troitsk.ru

ближении является константой, независящей от температуры,  $V$  — удельный объем и

$$B_0 = -V \frac{dP}{dV}$$

— модуль сжатия при нулевом давлении.  $\Theta$  в формуле для параметра Грюнайзена может быть определена как характеристическая температура фононного спектра, например, в качестве таковой может быть взята температура Дебая. Нужно иметь в виду, что это сильное упрощение, потому что  $\gamma$  может различаться для различных фононных мод (даже быть отрицательной для определенных поперечных фононных мод в кремнии и германии, что при достаточно низких температурах приводит к отрицательному термическому расширению [2]), так что параметр  $\gamma$  приобретает температурную зависимость. Тем не менее при температурах выше частоты самой высокоэнергетической фононной моды  $\gamma$  стремится к постоянному значению и, следовательно, с коэффициентом теплового расширения происходит то же самое.

В квазигармоническом приближении  $c_V$  при высокой температуре приближается к значению  $3R$ , а удельная теплоемкость при постоянном давлении  $c_P$  (которая в отличие от  $c_V$  обычно измеряется в экспериментах) связана с  $c_V$  термодинамическим тождеством

$$c_P - c_V = \alpha_V^2 B_0 V T, \quad (2)$$

где  $T$  — температура.

В твердых телах из-за сравнительно низкого значения  $\alpha_V$  разница между  $c_P$  и  $c_V$  при температуре плавления обычно не превышает нескольких процентов и поэтому ей можно пренебречь. Однако в реальных твердых материалах как коэффициенты высокотемпературного расширения, так и изохорная теплоемкость отклоняются от констант в результате явных эффектов ангармонизма [3–5]. Точные значения этих отклонений в кремнии, предписанные квазигармоническим приближением, точно неизвестны, поскольку при различных измерениях высокотемпературной удельной теплоемкости [6–8] и коэффициентов расширения [2, 9–13] полученные значения отличаются друг от друга примерно на 10%, но все они определенно не постоянны. Возможную причину этого разброса мы обсудим позже.

*Ab initio* вычисление ангармонических эффектов при конечных температурах требует либо ресурсоемкого моделирования методами молекулярной динамики (см., например, вычисление термодинами-

ческих параметров алюминия [14]), либо при некоторых упрощающих допущениях, которые позволяют исследовать поверхность потенциальной энергии материала вблизи точки равновесия, применения исключительно первопринципных методов при нулевой температуре (так называемый стохастически инициализированный зависящий от температуры эффективный потенциал/метод s-TDEP [15]). Последний подход был недавно применен для описания коэффициента теплового расширения кремния [15]. Тем не менее в данном случае мы не согласны с замечанием авторов о том, что «простая физическая модель аномального теплового расширения кремния маловероятна, поскольку различные эффекты способствуют тепловому расширению. В частности, ангармонизм и ядерные квантовые эффекты трудно сформулировать в виде простой 3D-модели» [15]. Мы можем продемонстрировать, что большая часть высокотемпературного ангармонизма в кремнии связана с его несколькими (а именно двумя) ангармоническими модами, которые приводят к образованию метастабильного состояния (планарного дефекта) с относительно низкой энергией.

Эта аналогия между дефектом и ангармоническим колебанием фонона была предложена в ряде наших недавних работ [16–18] и успешно применена для устранения расхождений в экспериментальных термодинамических свойствах графита вблизи температуры плавления [17, 19–21]. Вкратце, эта аналогия связывает сильную ангармоничность с конечным смещением атомных слоев, вызванным сдвигами фононными модами, и последующей реконструкцией межатомных связей. Именно эта реконструкция приводит к резкому снижению потенциальной энергии при определенных значениях смещения атомов и может быть эффективно описана как ангармонизм межатомного потенциала. С другой стороны, реконструкцию межатомных связей можно рассматривать как появление протяженного планарного дефекта, и его термодинамические свойства могут быть рассчитаны с использованием значения энергии образования этого дефекта. Этот подход имеет свои сильные стороны, поскольку его можно применить, используя лишь *ab initio* методы при нулевой температуре, и требуется описание лишь нескольких дефектов с наименьшей энергией, которые в основном и влияют на термодинамические свойства материала. Мы покажем, что в кремнии необходимо учитывать только две фононные моды, чтобы успешно описать его высокотемпературные термодинамические свойства (как тепловое расширение, так и удельную теплоемкость).

## 2. ЯВНЫЙ АНГАРМОНИЗМ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ

Следует отметить, что в целом коэффициент расширения кремния считается малым при температурах ниже 1000 К, поэтому кремний был предложен в качестве стандарта коэффициента теплового расширения [2, 10]. Тем не менее при высоких температурах он увеличивается из-за явного ангармонизма [3–5]. Рассматривая эффекты ангармонизма, уместно различать два типа ангармонизма — всесторонний (который мы называем объемным ангармонизмом) и поперечный, который обусловлен реконструкцией связей, вызванных упомянутыми выше поперечными фоновыми модами. Объемный ангармонизм обусловлен смягчением упругой постоянной при высоких температурах. Хотя в некоторых работах этот вклад называется квазигармоническим, он сильно зависит от ангармонизма модуля упругости при изменении давления (объема), поэтому включает чисто ангармонический вклад. Этот эффект в кремнии наблюдается в экспериментальных измерениях модулей Юнга [22] и скоростей звука в разных направлениях [23]. Тем не менее в квазигармоническом приближении этот эффект может быть описан заменой члена  $B_0V$  в уравнении (1) на его температурно-зависимый аналог. Таким образом, объемный модуль при конечных температурах может быть заменен соотношением

$$B = B_0 + B' \Delta P = B_0 - B' B_0 \Delta V / V = B_0 - B' B_0 \int_0^T \alpha_V dT.$$

Здесь  $B'$  — производная объемного модуля от давления, которая также может быть получена путем первопринципных расчетов при нулевой температуре. Очевидно, что в этом приближении  $V$  следует заменить на  $V + V \int_0^T \alpha_v^0(T) dT$ . Таким образом, вклад в коэффициент теплового расширения из-за изотропного размягчения объемного модуля может быть описан итерационной процедурой, т. е. следующая итерация коэффициента расширения приводит к соотношению ( $\alpha_V^0$  — результат квазигармонического приближения, описываемый уравнением (1)):

$$\alpha_V^1 = \alpha_V^0 \left( 1 + (B' - 1) \int_0^T \alpha_v^0(T) dT \right). \quad (3)$$

Разница между объемным и поперечным ангармонизмом может быть связана с различием между квазигармонизмом и явным ангармонизмом. Пред-

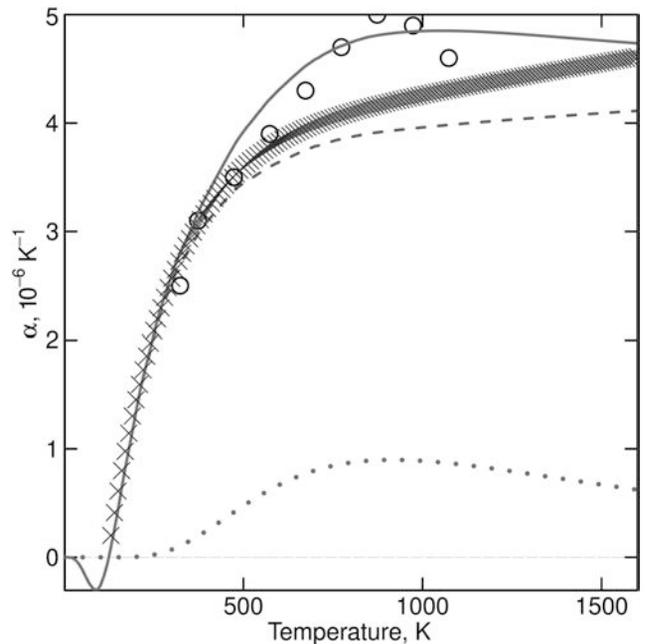


Рис. 1. Различные теоретические и экспериментальные данные коэффициента линейного расширения кремния. Красная штриховая кривая — коэффициент равномерно расширения в квазигармоническом приближении, заданный уравнением (3). Кресты (×) — экспериментальные данные Окады и др. [12], измеренные рентгеновским методом. Кружки — экспериментальные данные Майсселя [9], измеренные оптическим методом. Фиолетовая пунктирная кривая — теоретический вклад от планарных дефектов (111). Зеленая сплошная кривая — сумма двух вкладов для коэффициента линейного расширения: первый от объемного расширения и второй — от расширения, вызванного планарными дефектами (111). Отметим, что сплошная кривая не является подгонкой экспериментальных данных, поскольку она не содержит варьируемых параметров, а скорее представляет собой сравнение теоретических и экспериментальных результатов. Последнее замечание относится и к рис. 2–5

полагается, что последний приводит к температурной зависимости фоновых мод при постоянном объеме. Тем не менее мы должны отметить, что поперечный ангармонизм проявляется также в стохастическом расщеплении фоновых мод и, как следствие, — в уширении кривых дисперсии фононов. Этот эффект наблюдается в эксперименте [24].

Если мы возьмем значение зависящего от температуры параметра Грюнейзена из первопринципного расчета для чистого кремния, выполненного ранее [25], и значения  $B' \approx 4$  и  $B_0 \approx 90$  [26], то значение  $\alpha_V^1(T)$  при высокой температуре будет не слишком отклоняться от константы вплоть до точки плавления (см. рис. 1). Его значение даже ниже, чем

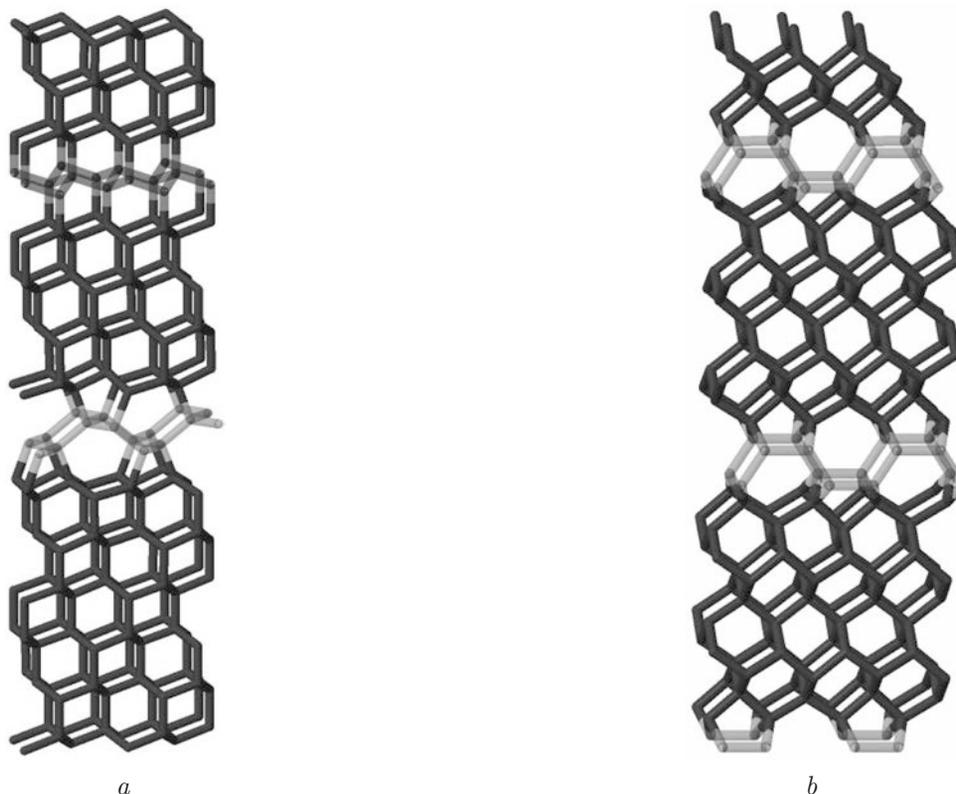


Рис. 2. Кремниевые (111) (*a*) и (100) (*b*) планарные дефекты. Атомы исходных кремниевых плоскостей показаны зеленым цветом, а атомы дефектного слоя — полупрозрачным цветом. Для структуры (111) два разных слоя интерфейсных плоскостей показаны разным цветом

коэффициент расширения, полученный с помощью рентгеновских измерений Окадой и др. [12]. Следовательно, нам следует поискать другой вклад в коэффициент расширения кремния. По нашему мнению, этот ранее незамеченный вклад в коэффициент теплового расширения кремния может быть описан с учетом только двух плоских дефектов.

Эти две предложенные ранее дефектные структуры [16] изображены на рис. 2. Их можно рассматривать как два «смятых» моноатомных слоя, ориентированных вдоль направлений (111) и (100) (поэтому они были названы (111) и (100) дефектными структурами соответственно), разделенных слоями исходного кристалла. Эти структуры связаны с M-carbon [27, 28] и S-carbon [29] аллотропными модификациями углерода. Последняя (100) структура планарного дефекта в алмазе рассматривалась ранее [30]. Компьютерное моделирование аморфного углерода и его последующее разложение в «базовые» кристаллические структуры показали, что комбинация смятых слоев с 5-, 7-членными циклами (аналогичных дефектам, рассмотренным в данной статье) и немодифицированных алмазных слоев из алмаза/лонсдейлита имеет наименьшую энер-

гию [31]. В нашем подходе важно иметь в виду, что сам дефект (слои кристалла, расположенные между двумя интерфейсными плоскостями, показанными на рис. 2 полупрозрачным цветом) смещен относительно окружающего кристалла. С другой стороны, немодифицированные кристаллические слои, разделенные дефектом, не должны смещаться относительно друг друга, поэтому их положение остается таким же, как в исходном чистом кристалле. Другими словами, тонкий плоский дефект (состоящий из нескольких атомных слоев) можно создать конечным поперечным сдвигом в объеме бесконечно толстого кристалла, не нарушая относительного положения атомных слоев в исходном кристалле. Это требование позволяет создавать бесконечно малое количество тонких дефектов в пределах низких температур, когда концентрация дефектов невелика. Другим важным замечанием является то, что два интерфейсных листа идентичны в случае дефекта (100) и различаются в случае дефекта (111). Это наблюдение связано с различной кристаллической симметрией соответствующих дефектных структур — она моноклинная в случае дефекта (111) и орторомбическая в случае дефекта (100).

Как было продемонстрировано в работе [18], концентрация интерфейсных плоскостей описывается формулой

$$x = \left( \exp \left( \frac{\Delta E_1 + \Delta E_2}{k_B T} \right) + 1 \right)^{-1}, \quad (4)$$

где  $\Delta E_i$  — энергия образования одной из интерфейсных плоскостей, поделенная на количество атомов в плоскости. Обратим внимание, что концентрация интерфейсных слоев в пределе бесконечно высокой температуры сходится к 0.5, т. е. к равномерно перемешанным слоям исходного кристаллического кремния, разделенных интерфейсными атомными слоями.

Исходя из концентрации дефектов, мы можем рассчитать их вклад в различные термодинамические свойства дефектного кристалла:

$$\Delta c_P = (\Delta E_1 + \Delta E_2) \frac{dx}{dT}, \quad (5)$$

$$\Delta \alpha_V = \frac{\Delta V_1 + \Delta V_2}{V} \frac{dx}{dT}. \quad (6)$$

Для этого нам нужно знать только энергию образования дефекта  $\Delta E_i$  и его влияние на удельный объем кристалла  $\Delta V_i$ . Мы должны еще раз подчеркнуть, что эти плоские дефекты являются чисто виртуальными и могут рассматриваться как еще один способ учета явного ангармонизма кристалла. Таким образом, ангармонический вклад в термодинамические свойства приобретает наглядное представление как изменение энергии и объема кристалла, вызванное дефектами. Следует отметить, что для расчета этих свойств ничего не требуется, кроме первопринципных расчетов при нулевой температуре.

Интересно отметить, что заранее мы не знаем, какой тип ангармонизма (объемный или поперечный) доминирует в термодинамических свойствах конкретного кристалла. По всей видимости, в металлах преобладает объемный вклад. Например, в работе [14] было продемонстрировано, что высокотемпературная удельная теплоемкость и коэффициент расширения в алюминии в основном описываются объемным ангармонизмом. С другой стороны, в ковалентно связанных материалах ситуация, видимо, противоположная, и большая часть присутствующего в них ангармонизма обусловлена поперечным вкладом (как в германии [18]). Более полувека назад была дискуссия о «микроскопическом и макроскопическом» расширении твердых тел, измеренном различными методами (с помощью макроскопической дилатометрии и микроскопической рентгеновской дифракции, см., например, [11]). Невольно мы

собираемся предоставить еще одно (термодинамическое) «измерение» для этого обсуждения, такое как разница между объемным и поперечным ангармонизмами.

### 3. МЕТОДИКА

Для расчета энергии образования дефектной структуры кремния мы использовали программный пакет Quantum ESPRESSO [32]. Для подготовки входных файлов мы широко применяли программу cif2cell [33].

Для расчета энергии образования планарного дефекта методом функционала плотности энергии мы использовали обменно-корреляционный функционал Пердью – Берка – Эрнцхофа (Perdew – Burke – Ernzerhof) с сохраняющими норму псевдопотенциалами с энергией обрезания 70 Ry. Плоские дефекты были смоделированы в 48-атомных суперъячейках (показанных на рис. 2). Для интегрирования по зоне Бриллюэна использовалась несмещенная  $4 \times 8 \times 1$  сетка Монкхорста – Пака (Monkhorst – Pack). При этом количество узлов было примерно обратно пропорционально длине в соответствующем направлении. Кристаллические решетки и положения атомов при фиксированном внешнем давлении были полностью отрелаксированы, пока остаточное усилие на каждый атом не превысило 0.001 Ry/Бор, а дополнительное механическое напряжение 0.5 кбар. Расчетная погрешность сходимости метода не превышает 2 мэВ/атом. Энергия образования дефекта была рассчитана по разности энергий между дефектной структурой ( $E$ ) и бездефектной решеткой кремния ( $E_{host}$ ) аналогичных размеров:

$$\Delta E = E - E_{host} n / n_{host}, \quad (7)$$

где  $n$  и  $n_{host}$  — количество атомов в дефектном и чистом кремнии. Следует отметить, что для плоских дефектов физический смысл имеет не энергия образования, определенная таким образом, а скорее ее нормированное значение (по площади поверхности интерфейсных слоев или количеству атомов, составляющих эти интерфейсные слои). Мы будем называть такую энергию удельной энергией образования.

### 4. РЕЗУЛЬТАТЫ

Удельная энергия образования  $\Delta E_1 + \Delta E_2$  равна 190 мэВ/атом ( $29 \text{ мэВ}/\text{Å}^2$ ) для дефекта (111) и 355 мэВ/атом ( $48 \text{ мэВ}/\text{Å}^2$ ) для дефекта (100). Интересно отметить, что, несмотря на столь сильное различие между соответствующими энергиями на

атом границы раздела, из-за асимметрии дефекта (111) все равно «верхний предел температуры плавления» (энергетический барьер, который необходимо преодолеть сдвиговым смещением атомных слоев относительно друг друга [16]) для двух типов планарных дефектов примерно одинаков. Один из интерфейсных листов дефекта (111) состоит из межатомных связей чисто лонсдейлитового типа (см. рис. 2), энергия которых близка к энергии кубического кремния, следовательно, почти вся дополнительная энергия в этот дефект вносится ровно половиной атомов границы раздела. Таким образом, этот верхний предел ( $190 \text{ мэВ/атом} \approx 2190 \text{ К/атом}$ ) не слишком сильно превышает экспериментально наблюдаемую температуру плавления ( $1690 \text{ К}$ ).

Дополнительный объем, вносимый дефектами, требует несколько более тщательных расчетов. Дефекты с концентрацией граничных слоев, равной  $x = 1/6$ , изображенные на рис. 2, имеют относительное объемное расширение  $\Delta V/xV$  (которое должно быть подставлено в уравнение (6)), равное  $0.03642$  для дефекта (111) и  $0.08439$  для дефекта (100). Однако в этом расчете неявно предполагалось, что все дефекты ориентированы вдоль единственного кристаллографического направления и два типа дефектов образуются независимо друг от друга. Следовательно, мы должны разделить относительное объемное расширение на количество эквивалентных кристаллографических направлений для соответствующего типа дефекта (4 для дефекта (111) и 3 для дефекта (100)). Чтобы учесть разницу между дефектами, мы предполагаем, что они независимо занимают объем кристалла, таким образом, объем равномерно распределен по двум типам дефектов (соответствующий «коэффициент заполнения» равен  $0.5$  для обоих дефектов). Для простоты мы также предполагаем, что изменение объема вызвано изменением длины в направлении, нормальном к интерфейсным слоям. Это можно объяснить тем, что в пределе низких температур (низкие концентрации дефектов) площадь вдоль плоскостей дефектов определяется площадью довольно толстых слоев кубического кремния, который более или менее сохраняет геометрию исходного кристалла, и все изменения объема ограничены направлением, нормальным к плоскости дефектов. Это наблюдение подтверждается проверкой относительного изменения кристаллической решетки в дефекте (111) с концентрацией  $1/6$ . Принимая во внимание все эти соображения, мы можем записать окончательное уравнение для линейного теплового расширения вдоль единственного (111) направления (значение  $1100$  в формуле

$\approx 2196/2$ ):

$$\frac{\Delta l}{l(111)} = 0.5 \frac{0.036 \cdot 1100}{\frac{2}{4} T^2 \operatorname{ch}\left(\frac{1100}{T}\right)^2}. \quad (8)$$

Аналогичное уравнение с очевидными поправками может быть применено к линейному расширению вдоль направления (100).

Зависимость, описываемая уравнением (8), изображена на рис. 1 в виде жирной зеленой сплошной кривой. Для построения этой линии мы также включаем равномерный объемный вклад от размягчения межатомных связей (показано красной штриховой кривой на рис. 1). Мы сравнили эту теоретическую зависимость с экспериментальными данными Майселя [9], где коэффициент линейного расширения монокристалла кремния вдоль направления (111) был измерен оптическими методами. Следует отметить хорошее совпадение амплитуд расчетного и измеренного коэффициентов расширения, и особенно соответствие положения максимума коэффициента расширения (при  $\approx 900 \text{ К}$ ), наблюдаемое для экспериментальных и теоретических кривых. В то же время наблюдается различие между значениями линейного расширения, измеренными оптическим dilatометром и рентгеновским методом. По нашему мнению, рентгеновский метод измеряет только всестороннее расширение, вызванное объемной ангармоничностью, хотя и несколько ее недооценивает. С другой стороны, прямые оптические методы измеряют «истинное» расширение, которое (помимо объемного вклада) также включает вклад поперечных ангармонических мод. Разница между этими двумя методами очевидна, если нарисовать рентгенограммы дифракции чистого кремния и кремния с планарными дефектами (111) с концентрацией  $x = 1/6$  (см. рис. 3). На основании этого рисунка можно легко сделать вывод, что накопление плоских дефектов приводит к расщеплению рентгеновских пиков и в конечном итоге к их уширению, а не смещению. Отметим также, что определение точных значений расщепления и относительных амплитуд отдельных пиков является довольно сложной проблемой, поскольку они сильно зависят от точного положения интерфейсных слоев, поэтому в данном случае имеет смысл только относительное уширение рефлексов, которое учитывает близлежащие группы пиков. Из-за некогерентного характера дифракции от плоских дефектов, случайным образом распределенных по объему кристалла, их можно сравнить с дефектами упаковки и двойниками [34], приводящими к расширению не всего брэгговского пика, а только его «пьедестала». На этот «пьедестал» накла-

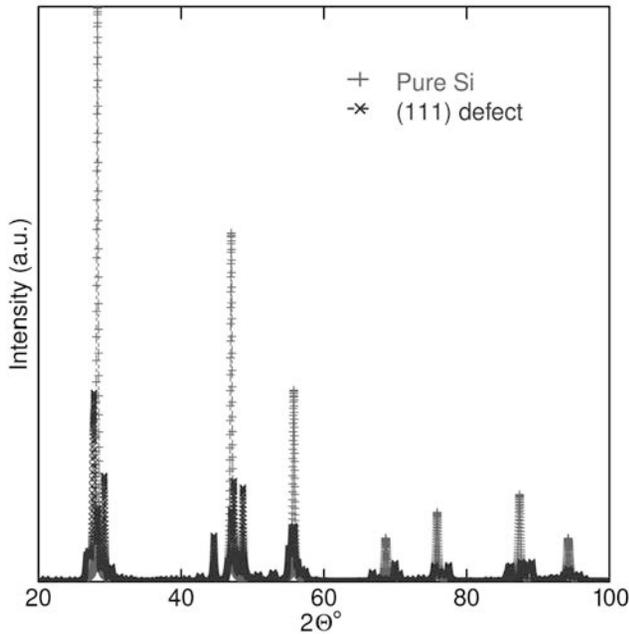


Рис. 3. Профили дифракции рентгеновских лучей для чистого кремния (красные символы +) и кремния с плоскими дефектами (111) с концентрацией  $x = 1/6$  (синие символы x). Предполагается, что длина волны рентгеновского излучения соответствует  $K\text{Cu}_\alpha$

дывается сравнительно узкое когерентное отражение. Следует также напомнить, что ранее в экспериментах было зарегистрировано значительное уширение ветвей рассеяния оптических фононов, измеренных методом неупругого рассеяния нейтронов [24], а также оптически активных мод комбинационного рассеяния света [35]. Следовательно, мы полагаем, что именно относительное уширение рентгеновских пиков, а не изменение их положения, позволяет определить термическое расширение, обусловленное ангармонизмом поперечных фононных мод. Следует учитывать, что концентрация граничных слоев вдоль одного направления, используемого для моделирования рентгеновской дифракции (рис. 3), соответствует очень высокой температуре, превышающей экспериментальную температуру плавления кремния.

Аналогичным образом можно рассматривать тепловое расширение вдоль направления (100) (см. рис. 4). В данном случае для сравнения мы выбрали наиболее свежие оптические данные Ватанабе с соавторами [10]. Из рис. 4 видно, что наша теоретическая кривая значительно превышает экспериментальный коэффициент расширения, особенно в области высоких температур. Тем не менее для принятия окончательного решения о достоверности нашей теории и ее соответствии

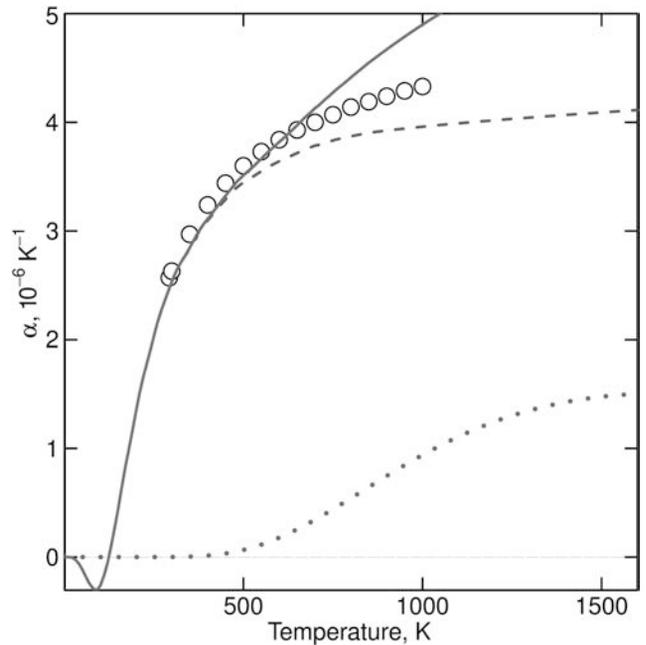


Рис. 4. Различные теоретические и экспериментальные данные коэффициента линейного расширения кремния вдоль направления (100). Красная штриховая кривая — коэффициент всестороннего расширения в квазигармоническом приближении, заданный уравнением (3). Кружки — экспериментальные данные Ватанабэ и др. [10], измеренные оптическим методом. Фиолетовая пунктирная кривая — теоретический вклад (100), вызванный планарными дефектами. Зеленая сплошная кривая — сумма двух вкладов для коэффициента линейного расширения от всестороннего расширения и расширения, вызванного планарными дефектами (100)

эксперименту необходимы еще более высокотемпературные экспериментальные данные, выше 1000 К. До настоящего времени, насколько нам известно, не существует оптических измерений коэффициента расширения кремния до температур, достигающих до точки плавления.

Используя относительную концентрацию дефектов (111) и (100) и их соответствующую удельную энергию образования, мы также можем оценить изобарную удельную теплоемкость (см. рис. 5). Помимо ангармонического вклада, мы добавили гармонический вклад, описываемый уравнением Дебая с  $T_D = 640 \text{ K}$ . Для сравнения мы использовали рекомендуемые экспериментальные данные Desai [7]. Экспериментальная зависимость более или менее воспроизводится теоретической зависимостью, за исключением высокотемпературного диапазона, где расчетные данные ниже экспериментальных. Разница между данными при высокой температуре может быть качественно объяснена наличием небольшой концентрации еще более высокоэнергетических

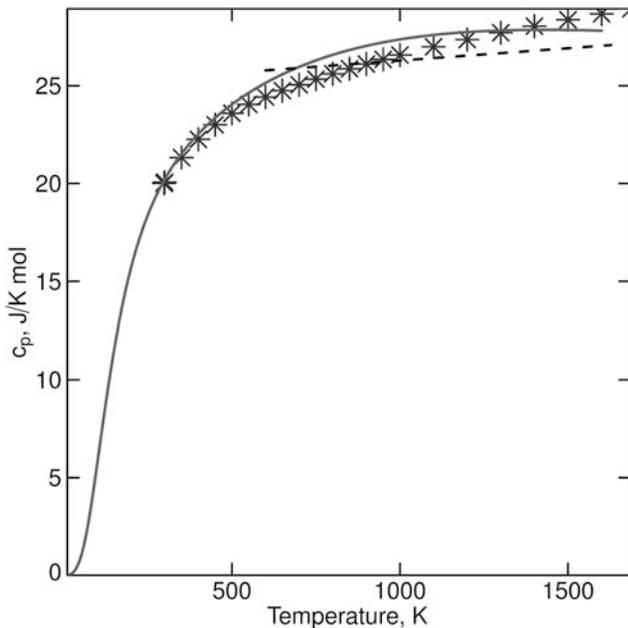


Рис. 5. Изобарная теплоемкость кремния. Звездочки (\*) — рекомендуемые экспериментальные данные Desai [7]. Красная сплошная кривая — теоретический результат, включающий вклад Дебая (при  $T_D = 640$  K) и ангармонический вклад от двух типов плоских дефектов (111) и (100). Штриховая черная линия — расчет с использованием потенциала Морзе по Триведи и др. [36]

планарных дефектов, а именно (110) [16] с удельной энергией образования в полтора раза выше, чем у дефекта (100). Также следует упомянуть, что новые данные об удельной теплоемкости, полученные методом «падающего» калориметра [8], дают существенно более низкие значения удельной теплоемкости. Ранее мы объясняли эту недооценку высокотемпературной теплоемкости, измеряемой «падающими» калориметрами, эффектом закалки планарных дефектов при охлаждении [18]. Наиболее надежным методом определения удельной теплоемкости было бы «однократное измерение», типа импульсного нагрева [19–21].

## 5. ОБСУЖДЕНИЕ

Мы хотели бы кратко обсудить сходства и различия нашего подхода и метода s-TDEP, использованного ранее для определения теплового расширения кремния [15]. Оба метода реализуемы при нулевой температуре первопринципными методами. Разница между ними заключается в том, что в методе s-TDEP использовались стохастическая выборка  $3N$  скоординированной (где  $N$  — количество атомов в расчетной суперячейке) потенциальной поверхно-

сти и последующая подгонка полученной потенциальной энергетической поверхности полиномом третьего порядка. Мы считаем, что, хотя этот метод сам по себе надежен, в процедуре его подбора есть некоторые неявные допущения. Эта процедура учитывает только двухфононные взаимодействия и пренебрегает взаимодействиями более высокого порядка. Тем не менее с помощью этой подгонки и последующих вычислений методом теории возмущений очень трудно получить ангармонический вклад в удельную теплоемкость. Более того, как указано в работе [5], вклады разного порядка в удельную теплоемкость имеют большую амплитуду, но разные знаки, что требует учета многих членов разложения. Таким образом, ряд сходится медленно.

В качестве дополнительного замечания интересно вспомнить довольно старое исследование Триведи и др. [36]. Они рассчитывают высокотемпературный ангармонический вклад в удельную теплоемкость элементов со структурой алмаза, принимая во внимание только члены до четвертого порядка, но с искусственно выбранным межатомным потенциалом (а именно потенциалом Морзе). Результат их расчета показан на рис. 5. Очевидно, что их расчеты сильно недооценивают рост высокотемпературной теплоемкости, наблюдаемый в экспериментах. Мы полагаем, что это несоответствие связано с тем, что потенциал Морзе значительно недооценивает ангармонизм, присутствующий в реальном кремнии.

С другой стороны, наш подход не является пертурбативным и учитывает только моды, создающие метастабильные локальные минимумы при конечном смещении атомных плоскостей и приводящие к сравнительно низким энергиям локальных минимумов. Другими словами, мы предполагаем, что самый сильный вклад в ангармонические термодинамические свойства обусловлен «топологически» различными модами (имеющими разное количество максимумов/минимумов по сравнению с гармоническим потенциалом). Более подробно это обсуждалось в работе [18]. Несмотря на не очень строгую формулировку метода, эти локальные минимумы могут быть найдены как понижение энергии, вызванное реконструированием связей, при сдвигах атомных слоев. Принимая во внимание большой успех, достигнутый в последнее время различными методами поиска новых кристаллических структур первопринципными расчетами, этот подход (как мы полагаем) можно легко компьютеризировать. Можно привести в пример уже цитированную работу [31], где два плоских дефекта в алмазах, подобных рассматриваемым в данной статье, были обнаружены исключительно

компьютерной процедурой. Это убеждает нас в приемлемости и реализуемости такого подхода.

Любопытно отметить в этой связи, что подобная реконструкция связей в кубическом алмазе при непрерывном сдвиге алмазных (111) плоскостей приводит к появлению локального минимума энергии. Это наблюдалось *in silico* в недавней работе Грешнякова [37]. Реконструированная структура представляла из себя М-углерод, который можно рассматривать как предельный случай накопления дефектов (111) в алмазе (с 50-процентной концентрацией). Таким образом, прямым моделированием было показано, что сдвиговые напряжения в алмазной структуре могут обладать сильным ангармонизмом. То, что энергия образования соответствующих дефектов оказывается сравнительно низкой, является фактором, приводящим к их образованию в количестве, достаточно большом, чтобы повлиять на термодинамические свойства материала (удельную теплоемкость, коэффициент теплового расширения) при температурах ниже температуры плавления.

В некоторой степени этот подход можно сравнить с тем, который был предпринят ранее [35, 38, 39], где температурная зависимость ширины линии рамановской моды в кремнии интерпретировалась в терминах ангармонического распада оптического фонона  $\Gamma$  на два акустических фонона с противоположными волновыми векторами. Ранее было показано путем измерения комбинационного рассеяния второго порядка при высоких температурах [40, 41] и ультразвуковых измерений размягчения фононных мод при высоком давлении [23], что именно на поперечную акустическую фононную моду на краю зоны Бриллюэна в точке X больше всего влияют ангармонические эффекты. Этот ангармонизм каким-то образом передается оптическим фононам, которые распадаются в этом (поперечном акустическом) канале.

С более философской точки зрения двойственность ангармонизм/планарный дефект можно рассматривать как расширение двойственности волна/частица де Бройля на фононы. Как и в случае с элементарными частицами, у фононов реализуются свойства частиц, когда возникает межфононное взаимодействие (т. е. ангармонизм), который, в свою очередь, приводит к образованию дефектов кристалла. Это подобно электрону, который приобретает определенную координату только при взаимодействии с материалом детектора. Хотя мы не можем сделать прямых выводов из такой двойственности, но, возможно, будет интересно углубиться в эту аналогию.

## 6. ВЫВОДЫ

Используя аналогию между фононной ангармоничностью и дефектами кристалла и результат довольно нетребовательных к ресурсам первопринципных расчетов при нулевой температуре, мы можем описать высокотемпературный коэффициент теплового расширения и изобарическую теплоемкость кремния. Мы показали, что ангармонизм только двух поперечных фононных мод (распространяющихся вдоль направлений (111) и (100)) дает основной вклад в термодинамические свойства при высоких температурах. Эти расчеты удовлетворительно описывают отклонение экспериментально измеренных термодинамических свойств вблизи точки плавления кремния более чем на 10% от значений, полученных методом квазиангармонической аппроксимации.

**Финансирование.** Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант 19-12-00111).

## ЛИТЕРАТУРА

1. L. Landau, L. Pitaevskii, and E. Lifshitz, *Statistical Physics, Course of Theoretical Physics*, Pergamon Press, Oxford (1980).
2. C. A. Swenson, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **12**, 179 (1983).
3. M. Born and E. Brody, *Z. Physik* **6**, 132 (1921).
4. D. C. Wallace, *Phys. Rev.* **139**, A877 (1965).
5. R. A. Cowley, *Rep. Progr. Phys.* **31**, 123 (1968).
6. D. Gerlich, B. Abeles, and R. E. Miller, *J. Appl. Phys.* **36**, 76 (1965).
7. P. D. Desai, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **15**, 967 (1986).
8. K. Yamaguchi and K. Itagaki, *J. Therm. Anal. Calorimetry* **69**, 1059 (2002).
9. L. Maissel, *J. Appl. Phys.* **31**, 211 (1960).
10. H. Watanabe, N. Yamada, and M. Okaji, *Int. J. Thermophys.* **25**, 221 (2004).
11. B. N. Dutta, *Phys. Stat. Sol. (b)* **2**, 984 (1962).
12. Y. Okada and Y. Tokumaru, *J. Appl. Phys.* **56**, 314 (1984).
13. R. B. Roberts, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **14**, L163 (1981).

14. B. Grabowski, L. Ismer, T. Hickel et al., *Phys. Rev. B* **79**, 134106 (2009).
15. D. S. Kim, O. Hellman, J. Herriman et al., *Proc. Nat. Acad. Sci.* **115**, 1992 (2018).
16. M. Kondrin, Y. Lebed, and V. Brazhkin, *Diamond Relat. Mater.* **110**, 108114 (2020).
17. M. V. Kondrin, Y. B. Lebed, and V. V. Brazhkin, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 165501 (2021).
18. M. Kondrin, Y. Lebed, and V. Brazhkin, *Phys. Stat. Sol. (b)* **259**, 2100463 (2022).
19. А. И. Савватимский, С. В. Онуфриев, *УФН* **190**, 1085 (2020) [A. I. Savvatimskii and S. V. Onufriev, *Phys. Usp.* **63**, 1015 (2020)].
20. A. Savvatimskiy, S. Onufriev, and A. Kondratyev, *Carbon* **98**, 534 (2016).
21. A. M. Kondratyev and A. D. Rakhel, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 175702 (2019).
22. J. Vanhellefont, A. K. Swarnakar, and O. V. der Biest, *ECS Transactions* **64**, 283 (2014).
23. В. А. Гончарова, Е. В. Чернышева, Ф. Ф. Воронов, *ФТТ* **25**, 3680 (1983).
24. D. S. Kim, H. L. Smith, J. L. Niedziela et al., *Phys. Rev. B* **91**, 014307 (2015).
25. S. Wei, C. Li, and M. Y. Chou, *Phys. Rev. B* **50**, 14587 (1994).
26. C. Wang, J. Gu, X. Kuang et al., *Z. Naturforschung A* **70** (2015); <https://dx.doi.org/10.1515/zna-2015-0027>.
27. A. R. Oganov and C. W. Glass, *J. Chem. Phys.* **124**, 244704 (2006).
28. Q. Li, Y. Ma, A. R. Oganov et al., *Phys. Rev. Lett.* **102**, 175506 (2009).
29. C. He, L. Sun, C. Zhang et al., *Sol. St. Commun.* **152**, 1560 (2012).
30. J. P. Goss, P. R. Briddon, R. Jones et al., *Phys. Rev. B* **73**, 115204 (2006).
31. V. L. Deringer, G. Csányi, and D. M. Proserpio, *Chem. Phys. Chem.* **18**, 873 (2017).
32. P. Giannozzi, O. Andreussi, T. Brumme et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **29**, 465901 (2017).
33. T. Björkman, *Comp. Phys. Commun.* **182**, 1183 (2011).
34. L. Balogh, G. Ribárik, and T. Ungár, *J. Appl. Phys.* **100**, 023512 (2006).
35. T. R. Hart, R. L. Aggarwal, and B. Lax, *Phys. Rev. B* **1**, 638 (1970).
36. P. C. Trivedi, H. O. Sharma, and L. S. Kothari, *J. Phys. C: Sol. St. Phys.* **10**, 3487 (1977).
37. В. А. Грешняков, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 306 (2023) [V. A. Greshnyakov, *JETP Lett.* **117**, 306 (2023)].
38. J. Menéndez and M. Cardona, *Phys. Rev. B* **29**, 2051 (1984).
39. A. Debernardi, S. Baroni, and E. Molinari, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1819 (1995).
40. S. Klotz, J. M. Besson, M. Braden et al., *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1313 (1997).
41. В. В. Бражкин, С. Г. Ляпин, И. А. Троян и др., *Письма в ЖЭТФ* **72**, 279 (2000) [V. V. Brazhkin, S. G. Lyapin, I. A. Trojan et al., *JETP Lett.* **72**, 195 (2000)].

# МАГНИТНЫЙ ОТКЛИК ЭЛЕКТРОНОВ ПРОВОДИМОСТИ В НЕМАГНИТНЫХ ГЕКСАБОРИДАХ $\text{Yb}_6$ , $\text{LaV}_6$ И $\text{YbV}_6$ С ЭЛЕКТРОННОЙ И СТРУКТУРНОЙ НЕУСТОЙЧИВОСТЬЮ

*Н. Е. Случанко*<sup>a\*</sup>, *А. В. Кузнецов*<sup>b</sup>, *А. Н. Азаревич*<sup>a</sup>, *А. В. Богач*<sup>a</sup>, *Н. Ю. Шицевалова*<sup>c</sup>,  
*С. Е. Половец*<sup>c</sup>, *В. Б. Филипов*<sup>c</sup>, *А. Ю. Цветков*<sup>d</sup>, *С. Ю. Гаврилкин*<sup>d</sup>

<sup>a</sup> *Институт общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук  
119991, Москва, Россия*

<sup>b</sup> *Национальный исследовательский ядерный университет (МИФИ)  
115409, Москва, Россия*

<sup>c</sup> *Институт проблем материаловедения им. И. Н. Францевича, Национальной академии наук Украины  
03142, Киев, Украина*

<sup>d</sup> *Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук  
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 14 марта 2023 г.,  
после переработки 28 марта 2023 г.  
Принята к публикации 28 марта 2023 г.

Выполнены детальные исследования и предложена процедура разделения вкладов в намагниченность монокристаллов немагнитных гексаборидов  $\text{Yb}_6$ ,  $\text{LaV}_6$  и  $\text{YbV}_6$ . Показано, что малые отрицательные значения электронной восприимчивости  $\chi_e(T)$  в металлах  $\text{Yb}_6$ ,  $\text{LaV}_6$  определяются, по-видимому, малым значением эффективной массы зонных носителей  $m^* \sim 0.5m_0$ , что приводит к взаимной компенсации паулиевской компоненты и диамагнетизма Ландау. Обнаружены изменения  $\chi_e(T)$  в интервалах  $T < T^* \sim 50$  К и  $T > 150$  К, которые связываются с переходом порядок–беспорядок ниже  $T^*$  и вкладом носителей, обусловленным ян-теллеровской структурной неустойчивостью борного каркаса.

DOI: 10.31857/S0044451023090092  
EDN: KCWOAN

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Исследование магнитных свойств электронов проводимости в металлах и полупроводниках представляет значительный интерес, поскольку позволяет получить необходимую информацию о плотности электронных состояний  $g(\varepsilon_F)$  на уровне Ферми  $\varepsilon_F$ , перенормировке  $g(\varepsilon_F)$  вследствие электрон-электронных взаимодействий различной природы [1, 2], разупорядочении [3, 4], особенностях перехода в сверхпроводящее состояние в традиционных и нетрадиционных сверхпроводниках [5–7], характере перехода металл–изолятор в квазиодномерных и двумерных проводниках [8–11] и др. Одним из интересных и малоизученных вопросов является влияние динамической структурной неустойчивости на магнитный отклик электронов

проводимости. Недавно было обнаружено, что в гексаборидах  $\text{Gd}_x\text{La}_{1-x}\text{V}_6$  и  $\text{Yb}_6$  с редкоземельными (РЗ) и переходными ионами развитие ян-теллеровской (ЯТ) неустойчивости в кластерах  $\text{V}_6$  приводит к появлению коллективных возбуждений в инфракрасном (ИК) диапазоне спектра проводимости [12–14]. Эти коллективные ЯТ-моды в интервале  $200\text{--}1500\text{ см}^{-1}$ , в свою очередь, обуславливают возникновение квазилокальных колебаний РЗ-ионов на частотах порядка  $100\text{--}200\text{ см}^{-1}$ , приводя к периодическому изменению гибридизации состояний  $4d/5d$  (переходный/РЗ-ион) и  $2p$  (бор), формирующих зону проводимости [15], и в результате к модуляции  $g(\varepsilon_F)$  [16]. Было показано, что в коллективные возбуждения в спектрах оптической проводимости гексаборидов  $\text{RB}_6$  включена значительная часть зонных носителей (более 70% в  $\text{LaV}_6$  [12, 13] и до 90% в  $\text{Yb}_6$  [14]). Кроме того, в гексабориде  $\text{Yb}_6$  при  $T^* \sim 50$  К в [17] был обнаружен переход порядок–беспорядок в фазу

\* E-mail: nes@lt.gpi.ru

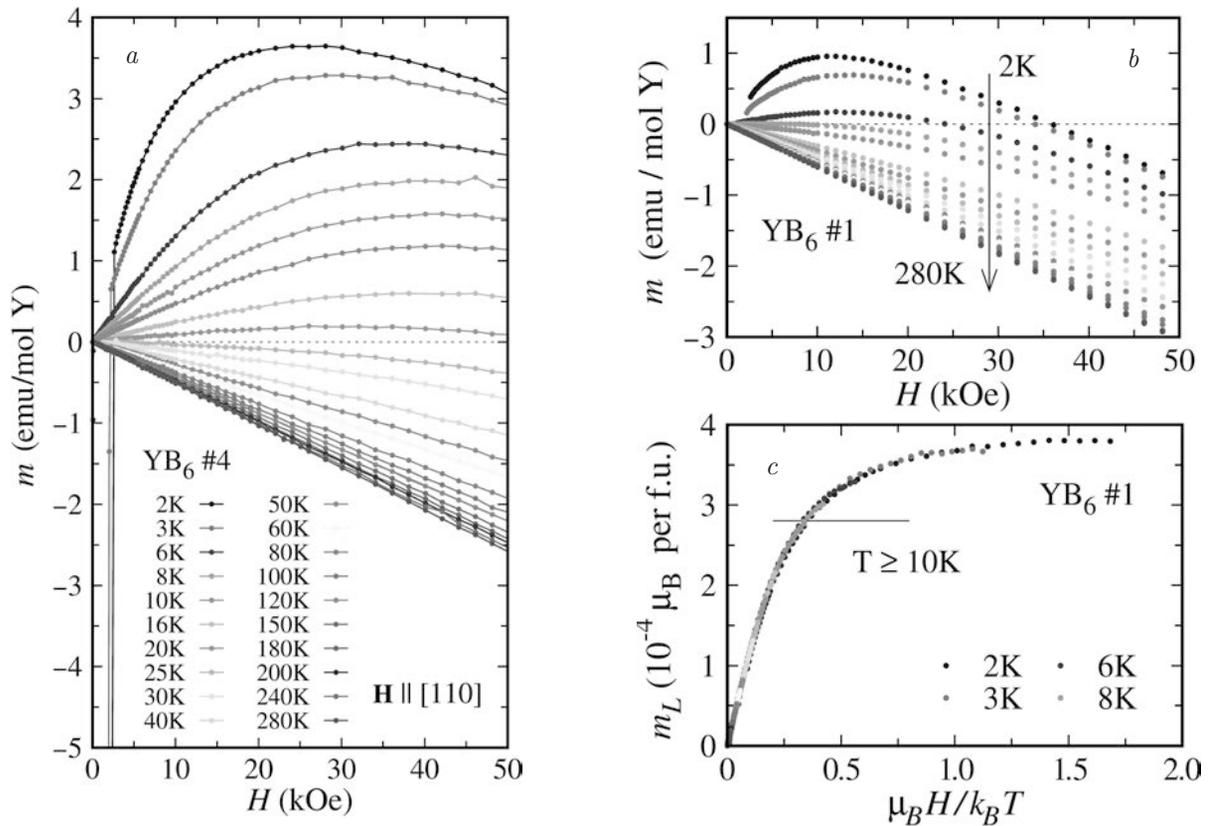


Рис. 1. Полевые зависимости намагниченности образцов  $\text{YB}_6$  #4 (a) и  $\text{YB}_6$  #1 (b), измеренные при разных температурах. (c) Скейлинг намагниченности образца  $\text{YB}_6$  #1  $m_L = m(H, T) - \chi_0(T)H$ . Кривые, расположенные на панели c ниже горизонтальной линии, отвечают интервалу  $T \geq 10\text{ K}$

каркасного стекла. Насколько нам известно, магнитный вклад электронов проводимости в металлах со структурной ян-теллеровской неустойчивостью и коллективными оптическими модами к настоящему времени практически не исследовался. Результаты недавних ЯМР-измерений  $\text{YB}_6$  свидетельствуют об отсутствии сдвига Найта  $K_S$  на ядрах бора  $^{11}\text{B}$  и сравнительно небольшой величине  $K_S \sim -200\text{ ppm}$  на ядрах иттрия  $^{89}\text{Y}$  [18]. Поскольку обычно в металлах между  $K_S$  и спиновой восприимчивостью носителей существует линейная связь, отсутствие магнитного отклика от  $2p$ -компоненты электронов проводимости, составляющих около 40% зонных состояний, гибридованных с  $4d$ -состояниями ионов  $\text{Y}^{3+}$  [15], представляется необычным. Результаты предварительных измерений статической восприимчивости, выполненных нами на порошковых образцах  $\text{YB}_6$  [18], оставляют вопросы в силу большого количества сложных для анализа магнитных вкладов, включая ферромагнитную компоненту от поверхности гексаборидов, наблюдавшуюся ранее в [19, 20]. Учитывая изложенное выше, представляет интерес исследовать магнитную восприимчивость и провести анализ магнитных

вкладов на монокристаллах немагнитного гексаборида  $\text{YB}_6$ , различающихся (i) изотоп-составом по бору, (ii) концентрацией вакансий в подрешетках бора и иттрия и (iii) разупорядочением подрешеток металла и бора, индуцированным примесями замещения циркония и углерода соответственно. Дополнительную информацию может дать сопоставление результатов, полученных для этого металла, находящегося на границе структурной неустойчивости ряда  $\text{RB}_6$  [17, 21], с магнитными свойствами других немагнитных металлов ( $\text{LaB}_6$ ) и полупроводников ( $\text{YbB}_6$ ) в семействе гексаборидов.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДЫ

В работе исследовались высококачественные монокристаллы  $\text{YB}_6$  с природным (18.9%  $^{10}\text{B}$  и 81.1%  $^{11}\text{B}$ ) и изотопически чистым (99.5%  $^{11}\text{B}$ ) бором с различной концентрацией вакансий Y и B (образцы #1, #3 и #4 с температурой сверхпроводящего перехода  $T_c \simeq 7.4\text{ K}$ ,  $6.2\text{ K}$  и  $4.2\text{ K}$  соответственно, см. [17]), а также твердые растворы замещения  $\text{Y}_{0.99}\text{Zr}_{0.01}\text{B}_6$  и  $\text{YB}_{5.95}\text{C}_{0.05}$ , выращенные методом вертикальной бестигельной индукционной зон-

ной плавки в атмосфере аргона [21, 22]. Для сравнения были измерены монокристаллы металла  $\text{LaB}_6$  и немагнитного полупроводника  $\text{YbB}_6$ . Характеризация кристаллов проводилась с использованием рентгеноструктурного, оптического спектрального анализа и микроанализа, а также при измерениях сопротивления и эффекта Холла. Магнитные измерения были выполнены в ИОФРАН и ЦКП ФИАН на установках MPMS-5 (Quantum Design) в интервале температур 2–400 К в магнитном поле до 50 кЭ.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1 представлены полевые зависимости намагниченности образцов  $\text{YbB}_6$  #1 и  $\text{YbB}_6$  #4 (см. [17]), измеренные при температурах в интервале 2–280 К в поле, приложенном вдоль кристаллического направления  $\langle 110 \rangle$ . Вертикальные линии на рис. 1а соответствуют переходу в сверхпроводящее состояние, наблюдающемуся в  $\text{YbB}_6$  при низких температурах в малых полях [17]. На рис. 1b аналогичные переходы не показаны, чтобы не загромождать его несущественной информацией. Как видно на рис. 1, экспериментальные кривые  $m(H, T)$  нелинейны и при низких температурах в полях до 50 кЭ далеки от насыщения, причем вид кривых указывает на наличие нескольких магнитных вкладов различных знаков. Нелинейное поведение намагниченности, а также кюри-вейссовская температурная зависимость парамагнитного вклада (см. рис. 3 ниже) обусловлены присутствием локальных магнитных моментов (ЛММ), которые, согласно анализу [17], следует связать с комплексами вакансий бора в матрице гексаборидов. Полученные из эксперимента в [17] оценки величины магнитных моментов  $\mu_{\text{eff}} = 2.8\text{--}4.3 \mu_B$  ( $\mu_B$  — магнетон Бора), находятся в хорошем согласии с результатом расчетов  $\mu_{\text{eff}} = 2.36 \mu_B$  для кластеров, содержащих вакансии бора в матрице  $\text{RB}_6$  [23].

Для разделения магнитных вкладов в настоящей работе был выполнен скейлинг намагниченности  $m_L = m - \chi_0 H$ , где  $m_L(\mu_B H/k_B T)$  — намагниченность локальных магнитных моментов,  $k_B$  — постоянная Больцмана, а  $\chi_0(T) = \chi_e + \chi_i$  — не связанная с ЛММ восприимчивость, состоящая из диамагнитного вклада ионов решетки  $\chi_i = \text{const}$  и искомой магнитной восприимчивости электронов проводимости  $\chi_e(T)$ . Полагая величину ЛММ не зависящей от температуры и принимая аргументом отношение  $\mu_B H/k_B T$ , мы использовали  $\chi_0(T)$  в качестве подгоночного параметра и построили кривую  $m_L(\mu_B H/k_B T)$  (см. рис. 1с). Аналогичный скей-

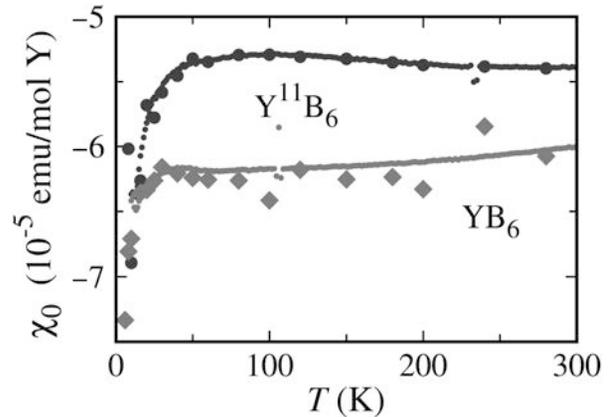


Рис. 2. Температурные зависимости магнитной восприимчивости  $\chi_0(T)$  образцов  $\text{YbB}_6$  #1 и  $\text{YbB}_6$  #4, полученные из полевых (крупные символы) и температурных (мелкие символы) зависимостей намагниченности, измеренных в полях  $H = 2$  кЭ и 50 кЭ

линг намагниченности был выполнен для образца  $\text{YbB}_6$  #4. Полученные зависимости  $\chi_0(T)$  для кристаллов  $\text{YbB}_6$  #1 и  $\text{YbB}_6$  #4 показаны крупными символами на рис. 2.

С целью выяснения вида кривых электронной восприимчивости  $\chi_e(T)$  для всех исследованных монокристаллов  $\text{YbB}_6$  в полях  $H = 2$  кЭ и 50 кЭ и интервале температур 2–400 К измерялись температурные зависимости намагниченности  $m(T)$ . Для сопоставления в работе были измерены также зависимости  $m(T)$  монокристаллов  $\text{LaB}_6$  и  $\text{YbB}_6$ . По сравнению с другими гексаборидами парамагнитный вклад в намагниченность  $m(T)$  соединения  $\text{Yb}^{2+}\text{B}_6$  имеет кюри-вейссовский вид с очень малой парамагнитной температурой  $\Theta_p \sim -0.5$  К и характеризуется существенно большей амплитудой, что объясняется присутствием в образцах малой концентрации магнитных ионов  $\text{Yb}^{3+}$  [24]. Для примера на рис. 3а показано семейство кривых  $m(T)/H$ , полученное в поле  $H = 50$  кЭ.

С учетом слабой нелинейности кривых  $m_L(\mu_B H/k_B T)$  в интервале температур  $T \geq 10$  К (см., например, рис. 1с) анализ намагниченности проводился с использованием разложения в ряд по степеням  $H/T$  с сохранением ввиду нечетности функции  $m_L(H) = -m_L(-H)$  лишь членов с нечетными степенями. Оставляя первые два члена разложения, имеем  $m_L = C \cdot H/T + a \cdot (H/T)^3$ . В используемом приближении, как и при анализе полевых кривых, мы полагаем, что ЛММ не меняются с температурой, т. е.  $C = N_A \mu^2 / 3k_B = \text{const}$  ( $N_A$  — число Авогадро). При этом для полной намагниченности в фиксированном магнитном поле выполняется соотношение  $m = C \cdot H/T + a \cdot (H/T)^3 + \chi_0 H$ , и в

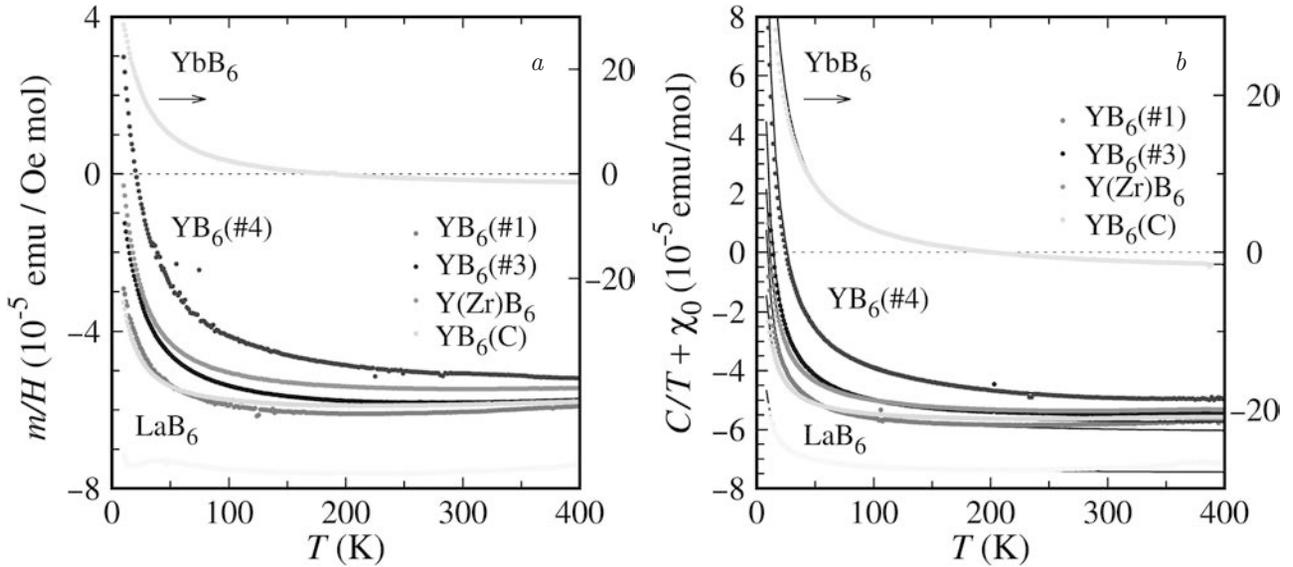


Рис. 3. Температурные зависимости восприимчивости  $m(T)/H$ , измеренные в поле  $H = 50$  кЭ (a) и кривые  $\chi = \chi_0(T) + C/T$ , построенные из анализа в рамках соотношения (1) двух зависимостей  $m(T)/H$ , измеренных в полях  $H = 50$  кЭ и 2 кЭ (b). Тонкими черными линиями на панели (b) показана аппроксимация кривых  $\chi(T)$  функцией  $C/T + \chi_0^*$

результате из экспериментальной кривой можно выделить температурную зависимость суммы вкладов  $\chi_0 + C/T = m(T)/H - aH^2/T^3$ . Используя две температурные кривые намагниченности, измеренные в полях 2 кЭ и 50 кЭ, и выражая параметр  $a/T^3$  из соотношения  $m_1/H_1 - (a/T^3)H_1^2 = m_2/H_2 - (a/T^3)H_2^2$ , получим искомую температурную зависимость в виде

$$\chi_0 + \frac{C}{T} = \frac{\frac{m_1(T)}{H_1} - \frac{m_2(T)}{H_2} \left(\frac{H_1}{H_2}\right)^2}{1 - (H_1/H_2)^2}. \quad (1)$$

Вычитая из правой и левой частей (1) зависимость Кюри и известный диамагнитный вклад ионов решетки  $\chi_i = \text{const}$  (см. таблицу и работу [25]), получим магнитную восприимчивость электронов проводимости:

$$\chi_e = \frac{m_1(T) - m_2(T)(H_1/H_2)^3}{H_1[1 - (H_1/H_2)^2]} - \frac{C}{T} - \chi_i. \quad (2)$$

Зависимости  $\chi_0 + C/T$  и  $\chi_e(T)$ , построенные для  $YB_6$ ,  $YbB_6$  и  $LaB_6$ , показаны на рис. 3b и 4 соответственно. Как видно на рис. 4a, электронные вклады в магнитную восприимчивость исследованных в настоящей работе кристаллов различаются, поэтому для удобства их сравнения между собой на рис. 4b показаны также кривые приведенной электронной восприимчивости  $\chi_e(T)/\chi_e(100\text{ K})$ .

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ

Как видно на рис. 4a, общим свойством всех исследуемых в работе соединений  $RB_6$  является

Таблица 1. Параметры магнитных вкладов в  $RB_6$

Samples	$\chi_0^* \cdot 10^5$ , emu/mol	$\chi_i \cdot 10^5$ , emu/mol	$\mu \cdot 10^3$ , $\mu_B$ per f.u.
$YbB_6$	-3.0	-2.12	15.5
$LaB_6$	-7.5	-2.12	0.61
$YB_6(\#1)$	-6.17	-1.32	1.5
$YB_6(\#3)$	-5.82	-1.32	2.2
$YB_6(\#4)$	-5.35	-1.32	3.7
$Y(Zr)B_6$	-5.64	-1.32	1.7
$YB(C)_6$	-5.83	-1.32	0.95

очень слабая температурная зависимость электронной восприимчивости  $\chi_e$  в интервале 50–150 К. При этом компонента  $\chi_e(T)$ , состоящая из паулиевского парамагнитного вклада и диамагнитной восприимчивости Ландау, в приближении эффективной массы может быть представлена в виде

$$\chi_e = g(\varepsilon_F)\mu_B^2(1 - (1/3)(m_0/m^*)^2), \quad (3)$$

где  $m_0$  — масса электрона и  $m^*$  — эффективная масса зонных носителей заряда. Представленные на рис. 3 и в таблице большие отрицательные значения  $\chi_0(T)$  и  $\chi_0^*$  свидетельствуют о том, что во всех исследованных в работе немагнитных гексаборидах для зонных носителей выполняется условие  $m^* < 0.58m_0$ , что согласуется как с оценкой  $m^* \sim 0.5m_0$  для  $YB_6$  [14] и  $LaB_6$  [26], так и с результатами  $m^* \sim 0.2m_0$  ARPES [27] и  $m^* \sim 0.27m_0$  оптических исследований [14], полученными для полупроводника  $YbB_6$ . В случае  $YbB_6$  большой отри-

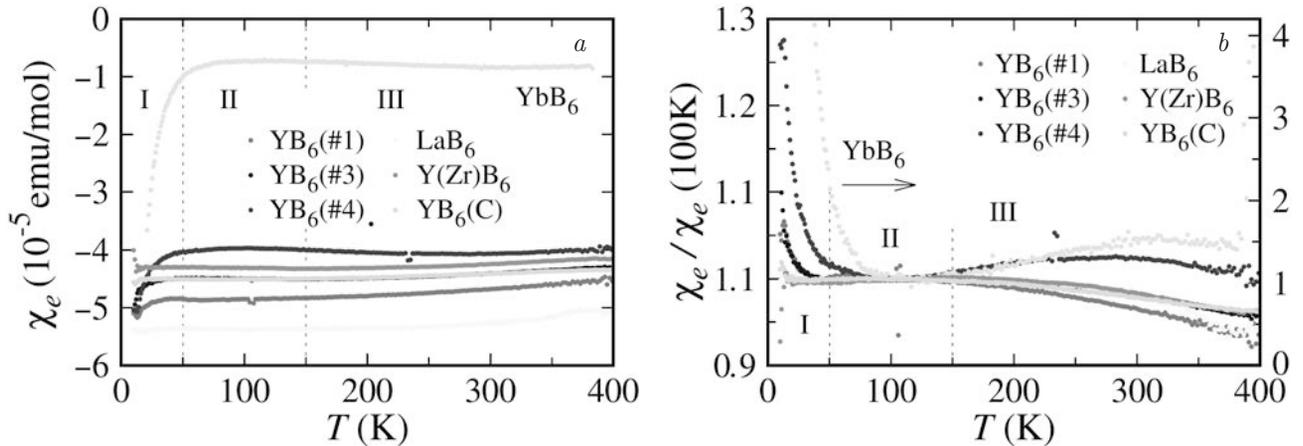


Рис. 4. Температурные зависимости электронной восприимчивости:  $\chi_e(T)$  (a) и  $\chi_e(T)/\chi_e(100\text{ K})$  (b) различных монокристаллов  $\text{YB}_6$ ,  $\text{YbB}_6$  и  $\text{LaB}_6$

пательный множитель в (3) компенсируется малыми значениями плотности состояний  $g(\varepsilon_F)$  в этом легированном полупроводнике с низкой концентрацией носителей заряда [14].

Во всех исследованных гексаборидах в интервале  $T > 150\text{ K}$  (III) регистрируется небольшая перенормировка  $\chi_e(T)$ , которую, по-видимому, следует связать с коллективными ян-теллеровскими возбуждениями. В соответствии с [12–14] в коллективные ян-теллеровские моды с энергией  $E_{JT} \sim 25\text{--}200\text{ мэВ}$  ( $\sim 200\text{--}1500\text{ см}^{-1}$ ) вовлечены от 25% в  $\text{YbB}_6$  до 90% в  $\text{Y}^{11}\text{B}_6$  носителей заряда, и это, по-видимому, изменяет их свойства по сравнению с остальными зонными электронами. Можно предположить, что для этих носителей заряда сильное электрон-фононное рассеяние в ян-теллеровской моде приводит к изменению эффективной массы до значений  $m^* \sim m_0$  вследствие малой длины свободного пробега и очень низкой холловской подвижности (в монокристаллах  $\text{YB}_6$   $\mu_H \sim 10\text{--}12\text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$  [14]). Как видно на рис. 4b, при повышении температуры по мере приближения к энергиям коллективных мод в спектрах оптической проводимости  $\sigma(\omega)$  величина  $\chi_e$  уменьшается, причем для образца  $\text{Y}^{11}\text{B}_6$ , для которого низкочастотный пик L1 в  $\sigma(\omega)$  регистрируется вблизи  $200\text{ см}^{-1}$  [14], зависимость  $\chi_e(T)/\chi_e(100\text{ K})$  проходит через максимум вблизи 300 K. Отметим, что подобные относительные изменения электронной восприимчивости с максимумом вблизи 300 K наблюдаются также в легированном полупроводнике  $\text{YbB}_6$  с шириной зоны около 150 мэВ (см. рис. 4b), у которого коллективные моды обнаружены в низкочастотном интервале  $100\text{--}700\text{ см}^{-1}$ , а пику L1 соответствует частота примерно  $180\text{ см}^{-1}$  [14]. С учетом изложенного выше нам представляется, что изменения  $\chi_e$  в интервале (III) (рис. 4) являются свойством

электронной компоненты, обусловленным развитием ян-теллеровской структурной неустойчивости в  $\text{RB}_6$  и ее влиянием на систему делокализованных электронов.

Отметим, что при условии  $m^* \sim m_0$  для носителей, вовлеченных в коллективные ян-теллеровские возбуждения, в рамках соотношения (3) следует ожидать парамагнитную паулиевскую восприимчивость электронов проводимости, которая не наблюдается в эксперименте (см. рис. 4a). Среди возможных механизмов, приводящих к формированию немагнитного состояния носителей, участвующих в коллективной моде, отметим так называемый квази-кондо-эффект, который был предсказан для металлов с сильным электрон-фононным взаимодействием с квазилокальными модами [28,29], а также с динамическим эффектом Яна–Теллера [30]. В высших бориды  $\text{RB}_6$  с динамическим кооперативным ЯТ-эффектом и квазилокальными колебаниями R-ионов в двумном потенциале [12–15, 31], по-видимому, следует ожидать такой квази-кондо-эффект, приводящий в рамках указанных выше сценариев к квази-кондо-компенсации. В этой связи следует отметить результат Легетта с соавторами [32], показывающий, что анизотропный кондо-гамильтониан является частным случаем спин-бозонной модели с диссипацией, в которой колебания в двумном потенциале играют роль возбуждений спиновой плотности в модели Кондо.

Заметное изменение  $\chi_e(T)$  ниже  $T^* \sim 50\text{ K}$  (интервал I) в  $\text{YB}_6$ , по-видимому, обусловлено переходом порядок–беспорядок [17], в результате которого в фазе каркасного стекла возникают случайные смещения тяжелых ионов из centrosymmetric positions в полостях  $\text{B}_{24}$ . Подобное влияние беспорядка на спиновую восприимчивость в металле было

предсказано ранее в [3, 4]. При этом в твердых растворах замещения  $Y_{0.99}Zr_{0.01}B_6$  и  $YB_{5.95}C_{0.05}$  уже присутствующий беспорядок, связанный со случайным расположением ионов Y–Zr или B–C, приводит к практически полному подавлению изменений  $\chi_e(T)$  в интервале (I) (см. рис. 4). Отметим, что, напротив, в  $LaB_6$  в пределах экспериментальной точности в интервале  $T < T^* \sim 50$  К изменений электронной восприимчивости не наблюдается.

В заключение следует подчеркнуть, что в отличие от аномалий в спектрах оптической проводимости высших боридов  $RB_6$  и  $RB_{12}$ , для описания которых совсем недавно была предложена модель, основанная на дипольном характере воздействия согласованных колебаний решетки на электронный транспорт [33], обнаруженные в работе особенности электронной восприимчивости этих немагнитных металлов и полупроводников к настоящему времени не получили подходящего объяснения.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В интервале температур 2–400 К в магнитном поле до 50 кЭ выполнены детальные измерения намагнитченности монокристаллических образцов немагнитных гексаборидов  $YB_6$ ,  $LaB_6$  и  $YbB_6$ . Предложена процедура разделения вкладов, позволяющая выделить электронную восприимчивость  $\chi_e(T)$ . Показано, что малые отрицательные значения  $\chi_e(T)$  в металлах  $YB_6$ ,  $LaB_6$ , по-видимому, определяются малым значением эффективной массы  $m^* \sim 0.5m_0$ , при котором наблюдается взаимная компенсация паулиевской восприимчивости и диамагнетизма Ландау от зонных электронов. В интервалах  $T < T^* \sim 50$  К (I) и  $T > 150$  К (III) для исследованных гексаборидов обнаружены изменения электронной восприимчивости, которые могут быть связаны с переходом в разупорядоченную фазу каркасного стекла ниже  $T^*$  и с ян-теллеровской структурной неустойчивостью при высоких температурах соответственно. Обсуждается механизм квази-кондо-компенсации, приводящий к изменению магнитного состояния носителей, участвующих в коллективных ян-теллеровских возбуждениях.

**Благодарности.** Авторы признательны П. И. Арсееву, В. В. Глушкову и С. В. Демишеву за полезные дискуссии.

**Финансирование.** Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда в рамках проекта № 23-22-00297 с использованием оборудования ЦКП ФИАН им. П. Н. Лебедева.

## ЛИТЕРАТУРА

1. А. А. Абрикосов, *Основы теории металлов*, Наука, Москва (1987).
2. D. Pines, P. Nozieres, *The theory of quantum liquids*, Benjamin, New York (1996).
3. P. Fulde and A. Luther, *Phys. Rev.* **170**, 170 (1968).
4. B. S. Shastry, E. Abrahams, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 1933 (1994).
5. M. Sigrist and K. Ueda, *Rev. Mod. Phys.* **63**, 239 (1991).
6. V. P. Mineev and K. V. Samokhin, *Introduction to Unconventional Superconductivity*, Gordon and Breach, London (1999).
7. K. V. Samokhin, *Phys. Rev. B* **103**, 174505 (2021).
8. A. Camjayi, K. Haule, V. Dobrosavljevic, and G. Kotliar, *Nat. Phys.* **4**, 932 (2008).
9. M. M. Radonjic, D. Tanaskovic, V. Dobrosavljevic, K. Haule, and G. Kotliar, *Phys. Rev. B* **85**, 085133 (2012).
10. V. M. Pudalov et al., *Phys. Rev. B* **98**, 155109 (2018).
11. В. М. Пудалов, *УФН* **191**, 3 (2021).
12. E. S. Zhukova, B. P. Gorshunov, G. A. Komandin, L. N. Alyabyeva, A. V. Muratov, Yu. A. Aleshchenko, M. A. Anisimov, N. Yu. Shitsevalova, S. E. Polovets, V. B. Filipov, and N. E. Sluchanko, *JETP Lett.* **110**, 79 (2019).
13. E. S. Zhukova, B. P. Gorshunov, G. A. Komandin, L. N. Alyabyeva, A. V. Muratov, Yu. A. Aleshchenko, M. A. Anisimov, N. Yu. Shitsevalova, S. E. Polovets, V. B. Filipov, V. V. Voronov, and N. E. Sluchanko, *Phys. Rev. B* **100**, 104302 (2019).
14. Н. Е. Случанко, Е. С. Жукова, Л. Н. Алябьева, Б. П. Горшунов, А. В. Муратов, Ю. А. Алещенко, А. Н. Азаревич, М. А. Анисимов, Н. Ю. Шицева-лова, С. Е. Половец, В. Б. Филипов, *ЖЭТФ* **163**, 172 (2023).
15. J. A. Alarco, P. C. Talbot, and I. D. R. Mackinnon, *Modeling and Numerical Simulation of Material Science* **4**, 53 (2014).
16. A. P. Dudka, O. N. Khrykina, N. B. Bolotina, N. Yu. Shitsevalova, V. B. Filipov, M. A. Anisimov, S. Gabani, K. Flachbart, and N. E. Sluchanko, *Phys. Rev. B* **100**, 205103 (2019).

17. N. Sluchanko, V. Glushkov, S. Demishev, A. Azarevich, M. Anisimov, A. Bogach, V. Voronov, S. Gavrilkin, K. Mitsen, A. Kuznetsov, I. Sannikov, N. Shitsevalova, V. Filipov, M. Kondrin, S. Gabáni, and K. Flachbart, *Phys. Rev. B* **96**, 144501 (2017).
18. O. M. Vyaselev, N. E. Sluchanko, A. V. Bogach, N. Y. Shitsevalova, V. B. Filipov, and A. A. Gippius, *J. Alloys and Compounds* **921**, 165627 (2022).
19. D. Young, D. Hall, M. Torelli, et al., *Nature* **397**, 412 (1999).
20. K. Matsubayashi, M. Maki, T. Tsuzuki, et al., *Nature* **420**, 143 (2002).
21. N. Shitsevalova, *Crystal chemistry and crystal growth of rare-earth borides*, in *Rare-Earth Borides*, ed. by D. S. Inosov, Jenny Stanford Publishing, Singapore (2021), Chap. 1, p. 1.
22. H. Werheit, V. Filipov, N. Shitsevalova, M. Armbruster and U. Schwarz, *J. Phys.: Condens. Matter* **24**, 385405 (2012).
23. R. Monnier and B. Delley, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 157204 (2001).
24. V. V. Glushkov, A. D. Bozhko, A. V. Bogach, S. V. Demishev, A. V. Dukhnenko, V. B. Filipov, M. V. Kondrin, A. V. Kuznetsov, I. I. Sannikov, A. V. Semeno, N. Yu. Shitsevalova, V. V. Voronov, and N. E. Sluchanko, *Phys. Stat. Sol. RRL* **10**, 320 (2016).
25. П. Селвуд, *Магнетохимия*, Издательство иностранной литературы, Москва (1958).
26. Y. Ishizawa, T. Tanaka, E. Bannai, and S. Kawai, *J. Phys. Soc. Jpn.* **42**, 112 (1977).
27. M. Xia, J. Jiang, Z. R. Ye, Y. H. Wang, Y. Zhang, S. D. Chen, X. H. Niu, D. F. Xu, F. Chen, X. H. Chen, B. P. Xie, T. Zhang, and D. L. Feng, *Sci. Rep.* **4**, 5999 (2014).
28. S. Yotsuhashi, M. Kojima, H. Kusunose and K. Miyake, *J. Phys. Soc. Jpn* **74**, 49 (2005).
29. H. Kusunose and K. Miyake, *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 3032 (1996).
30. T. Hotta, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 197201 (2006).
31. K. Iwasa, R. Igarashi, K. Saito, C. Laulhé, T. Orihara, S. Kunii, K. Kuwahara, H. Nakao, Y. Murakami, F. Iga, M. Sera, S. Tsutsui, H. Uchiyama, and A. Q. R. Baron, *Phys. Rev. B* **84**, 214308 (2011).
32. A. J. Leggett, S. Chakravarty, A. T. Dorsey, M. P. A. Fisher, A. Garg, and W. Zwerger, *Rev. Mod. Phys.* **59**, 1 (1987).
33. М. А. Макрушин, П. И. Арсеев, К. М. Красиков, Л. С. Кадыров, Е. С. Жукова, Н. Е. Случанко, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 450 (2023).

# ПИННИНГ МАГНИТНОГО ПОТОКА В ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ВТСП $YBa_2Cu_3O_{6.92}$ ПРИ ОХЛАЖДЕНИИ В СЛАБОМ МАГНИТНОМ ПОЛЕ

Н. Г. Трусевич<sup>a\*</sup>, С. Ю. Гаврилкин<sup>b</sup>, Л. И. Трахтенберг<sup>a,c</sup>

<sup>a</sup> Федеральный исследовательский центр химической физики им. Н. Н. Семёнова Российской академии наук  
119991, Москва, Россия

<sup>b</sup> Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук  
119991, Москва, Россия

<sup>c</sup> Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова  
119991, Москва, Россия

Поступила в редакцию 16 марта 2023 г.,  
после переработки 26 апреля 2023 г.  
Принята к публикации 27 апреля 2023 г.

Исследовано поведение мелкокристаллических ВТСП  $YBa_2Cu_3O_{6.92}$  при охлаждении в слабом магнитном поле. Проведен детальный анализ намагниченности образцов с размерами кристаллитов, сравнимыми с глубиной проникновения магнитного поля, в области ниже температуры сверхпроводящего перехода. Показано, что в случае, когда размер кристаллитов оказывается меньшим 0.5 мкм, не происходит фиксации вихрей на центрах пиннинга и зависимость намагниченности от температуры целиком определяется экранированием кристаллитов и температурой возникновения межкристаллитных сверхпроводящих токов.

DOI: 10.31857/S0044451023090109  
EDN: KDUYAY

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Как известно, один из наиболее известных признаков сверхпроводящего состояния, эффект Мейснера – Оксенфельда, наблюдается для всех сверхпроводников. Это обстоятельство указывает на возможность использовать данный эффект для определения величины  $T_c$  и оценки количества «сверхпроводящей фазы» в случаях фазовой неоднородности образцов. Уже на начальных этапах исследования высокотемпературных сверхпроводников стало понятно, что величина намагниченности образцов при охлаждении ниже температуры сверхпроводящего перехода в присутствии постоянного магнитного поля заметно отличается от ожидаемой величины, соответствующей полной экранировке образца [1]. Эти различия обусловлены такими трудно контролируемые явлениями, как пиннинг вихрей [2, 3] в сверхпроводниках второго рода, анизотропия и наличие дефектов [4, 5].

Задача усложняется в случае поликристаллических образцов, когда важной оказывается соизмеримость размеров кристаллитов и глубины проникновения магнитного поля  $\lambda$  [6, 7]. Кроме того, определяющую роль в величине и форме наблюдаемых зависимостей могут играть состояние контактов между кристаллитами и транспортный критический ток [8]. Все эти обстоятельства усложняют интерпретацию поведения намагниченности ( $M_{fc}$ ) при охлаждении в магнитном поле.

Однако использование поликристаллических образцов с достаточно малыми размерами кристаллитов позволяет исключить часть осложняющих факторов и выделить влияние наиболее важных. В работах [9, 10] показано, что размер кристаллитов сказывается на зависимостях намагниченности поликристаллических образцов от магнитного поля. Особенно сильно это проявляется при повышенных температурах вблизи температуры сверхпроводящего перехода  $T_c$ , когда величина  $\lambda$  велика и превышает средний размер кристаллитов. Следует ожидать влияния размеров кристаллитов на эффекты, связанные с пиннингом вихрей в кристаллитах. Представляет интерес на основе анализа зависимостей

\* E-mail: trousevich@gmail.com

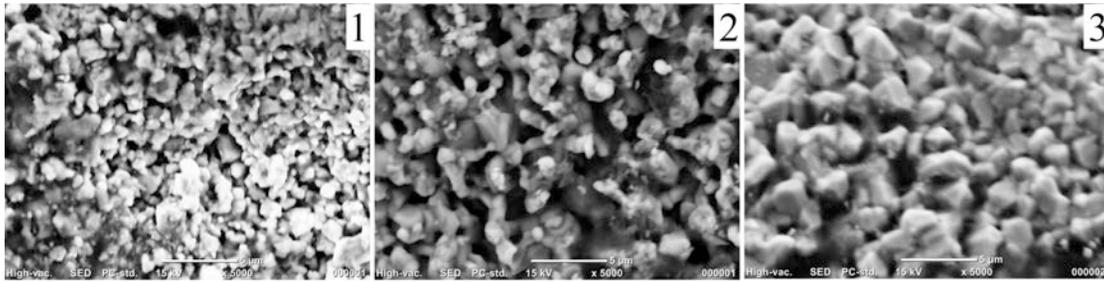


Рис. 1. Микрофотографии исследованных образцов. Цифры на фотографиях соответствуют номерам образцов

намагниченности от поля для образцов с различными размерами кристаллитов объяснить наблюдающиеся особенности поведения температурных зависимостей  $M_{fc}$  при охлаждении в магнитном поле.

В частности, будет показано, что, если величина  $\lambda$  существенно превышает размер кристаллитов, можно не учитывать вклад в величину  $M_{fc}$ , связанный с пиннингом вихрей, который в образцах с более крупными кристаллитами, а также монокристаллах, является определяющим.

## 2. ПРИГОТОВЛЕНИЕ ОБРАЗЦОВ

Исследования проводились на трех поликристаллических образцах состава  $YBa_2Cu_3O_{6.92}$  [11, 12]. Образцы были приготовлены методом твердофазного синтеза с использованием приемов механохимии. В результате механической активации смеси исходных оксидов достигается не только высокая однородность шихты, но и существенно снижается температура синтеза, что позволило получить однородные по составу образцы с малыми размерами кристаллитов и имеющие практически одинаковые значения  $T_c \approx 92$  К.

Образцы отжигались при температурах 840 °С, 900 °С и 930 °С. Чем меньше была температура отжига  $T_{an}$ , тем меньшими оказывались размеры кристаллитов:  $\langle D \rangle = 0.4$  мкм (обр. 1); 1 мкм (обр. 2) и 2 мкм (обр. 3). Микрофотографии образцов представлены на рис. 1.

Насыщение образцов кислородом осуществлялось одинаковым образом. По данным йодометрического титрования для всех трех образцов были реализованы одинаковые значения кислородного индекса ( $y = 6.92 \pm 0.02$ ). Рентгенографические и нейтронографические исследования этих образцов показали отсутствие заметного количества каких-либо примесных фаз [13].

Плотность полученных образцов была оценена, как 4.1 г/см<sup>3</sup>, 4.8 г/см<sup>3</sup> и 5.7 г/см<sup>3</sup> для образцов 1, 2 и 3 соответственно. Эти значения составляют 64%, 75% и 89% от значения 6.36 г/см<sup>3</sup> — величины, по-

лученной из расчетов на основе параметров элементарной ячейки.

Для магнитных измерений были использованы образцы с размерами  $1.6 \times 2.3 \times 4.0$  мм<sup>3</sup> — образец 1,  $1.9 \times 2.5 \times 5.0$  мм<sup>3</sup> — образец 2,  $1.6 \times 2.1 \times 4.1$  мм<sup>3</sup> — образец 3. Магнитное поле направлялось вдоль длинной стороны.

Исследование магнитных свойств образцов проводилось методом «Весов Фарадея» на установке «Oxford Instruments», а также на установке PPMS фирмы Quantum Design в Центре коллективного пользования (ФИАН).

Микрофотографии были получены на сканирующем электронном микроскопе Jeol JCM 6000 plus в Институте кристаллографии им. А. В. Шубникова РАН.

## 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 2 приведены результаты измерения намагниченности  $M_{fc}$  трех представленных выше об-

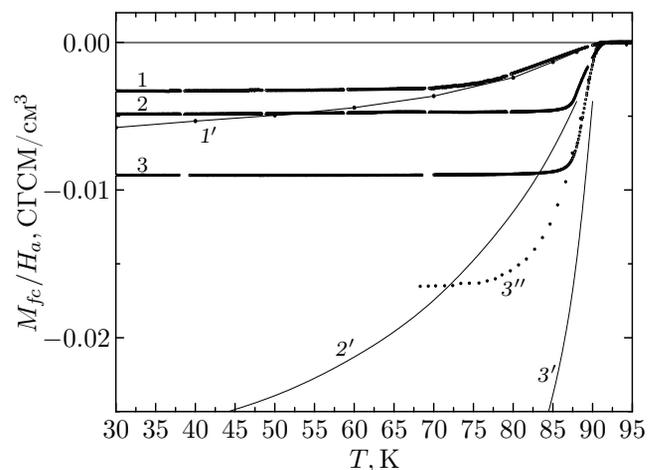


Рис. 2. Зависимость намагниченности  $M_{fc}$  от температуры при охлаждении в постоянном магнитном поле  $H_a = 10$  Э образцов 1, 2, 3 (расчет с учетом рентгеновской плотности). Цифры — номера образцов. Кривая 1' — расчет по квазилинейному участку  $M(H)$  для образца 1, Кривые 2' и 3' — расчет по данным [11], 3'' — экспериментальная зависимость  $M_{fc}$  в поле  $H_a = 53.3$  Э

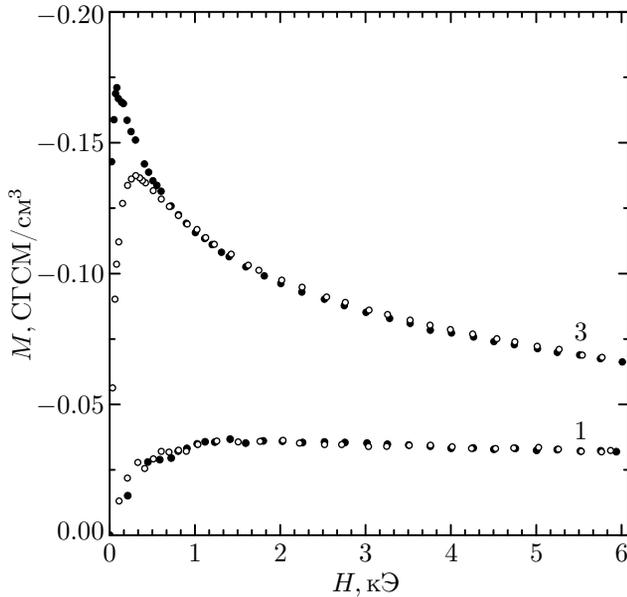


Рис. 3. Зависимости намагниченности образцов 1 и 3 от магнитного поля при температуре 90 К. Закрытые символы — увеличение магнитного поля, открытые — его уменьшение. Цифры — номера образцов

разцов  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.92}$  при охлаждении от 100 К до 10 К в поле 10 Э. Видно, что все три образца имеют температуру сверхпроводящего перехода  $T_c \approx 92$  К. Ниже 85 К намагниченность  $M_{fc}$  образцов 2 и 3 не зависит от температуры, однако для образца 1, наиболее мелкокристаллического, независимость от температуры возникает лишь ниже 70 К.

Величина  $M_{fc}/H_a$  даже при низкой температуре является весьма небольшой, составляет менее 10% от величины полного экранирования ( $-1/4\pi$ ), и оказывается тем меньше, чем меньше размер кристаллитов и чем более низкой была температура синтеза. Причин для этого, как отмечалось выше, может быть несколько, и одна из важнейших — пиннинг вихрей в сверхпроводниках второго рода. При охлаждении в присутствии хоть и малого, но конечного внешнего магнитного поля всегда существует диапазон температур ниже  $T_c$ , когда внешнее поле превышает первое критическое поле  $H_{c1}$ . При этом происходит образование вихрей и их закрепление на центрах пиннинга, а при дальнейшем охлаждении образца эти вихри остаются в объеме сверхпроводника и уменьшают его диамагнитный отклик [7].

Однако для поликристаллических образцов с размерами кристаллитов, сравнимыми с глубиной проникновения, поля возникновения вихрей в кристаллитах существенно превышают значения  $H_{c1}$  для массивных образцов [9, 10]. Именно такие образцы исследуются в данной работе. Измерения магнитной восприимчивости в постоянных и перемен-

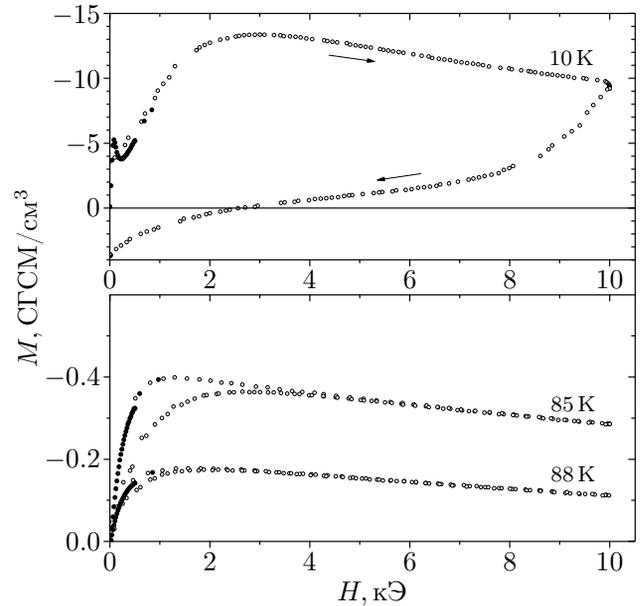


Рис. 4. Зависимость намагниченности образца 1 от магнитного поля при температурах 10, 85 и 88 К. Закрытыми символами приведены начальные участки кривой первого ввода поля

ных магнитных полях показали, что глубина проникновения магнитного поля  $\lambda_{ab}(0)$  (лондоновская глубина проникновения в  $ab$ -плоскости при  $T = 0$ ) составляет 0.164 мкм, 0.144 мкм и 0.135 мкм для образцов 1, 2 и 3 соответственно. Для образца 1 при температуре 88 К эта величина составляет 0.66 мкм и превышает средний размер кристаллитов [11].

На рис. 3 представлены зависимости намагниченности образцов 1 и 3 при температуре 90 К. Положение максимума на кривых соответствует полям возникновения вихрей в кристаллитах. Оно заметно смещено по сравнению с величинами  $H_{c1}$  для массивных образцов в область высоких полей (особенно для обр. 1), т. е. наблюдается рост этих полей с уменьшением размера кристаллитов. Существенным является отсутствие гистерезиса намагниченности при этой температуре для образца 1. Небольшой гистерезис в районе максимума наблюдается для образца 3, наиболее крупнокристаллического.

Отсутствие гистерезиса в образце 1 свидетельствует о том, что в этом образце при температуре 90 К вихри, если и существуют [14], то не закреплены на центрах пиннинга. Возможно, это связано с малостью энергии их взаимодействия с центрами при этой температуре. Возникшие вблизи поверхности малых по сравнению с  $\lambda$  кристаллитов вихри находятся в позициях, определяемых их взаимодействием с поверхностью кристаллита. При этом вклад от взаимодействия с дефектами (центрами пиннинга) должен быть сильно ослаблен. Наличие

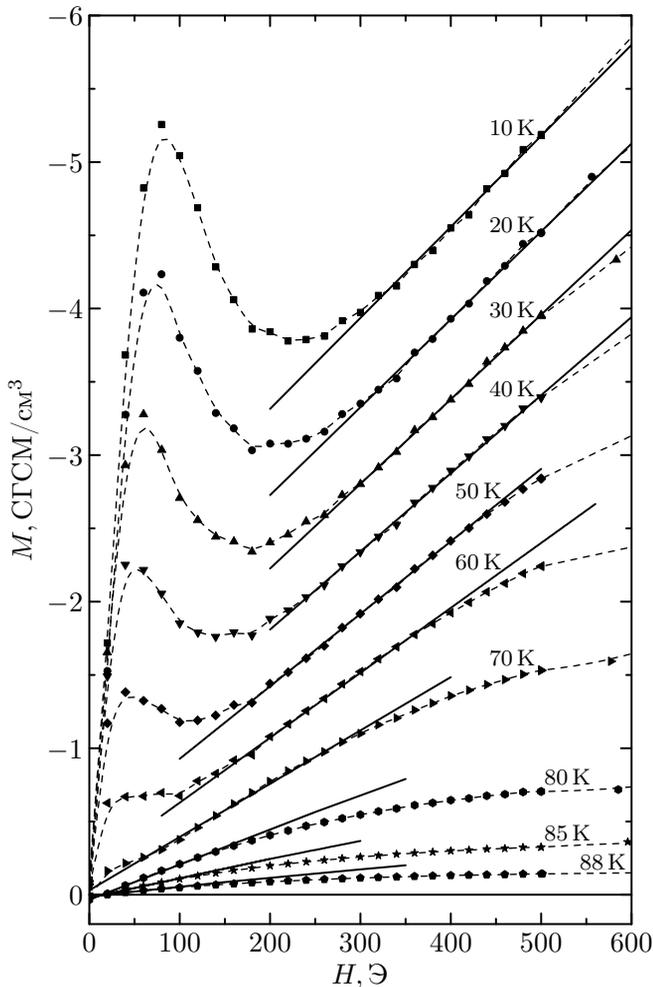


Рис. 5. Начальные участки зависимости  $M(H)$  первого ввода магнитного поля образца 1

гистерезиса при этой же температуре в более крупнокристаллическом образце 3 показывает, что вдали от поверхности в глубине кристаллита фиксация вихрей на центрах пиннинга вполне возможна.

Таким образом, по крайней мере, в образце 1 вихри, закрепленные на центрах пиннинга в процессе охлаждения в поле 10 Э, отсутствуют, и для этого образца вклад от пиннинга вихрей в величину  $M_{fc}$  можно не учитывать во всем диапазоне температур.

Зависимость намагниченности от магнитного поля образца 1 при температурах 10, 85 и 88 К приведена на рис. 4. Видно, что с понижением температуры и уменьшением величины  $\lambda_{ab}$  до величин, приблизительно равных и меньше среднего размера кристаллитов (0.48 мкм при 85 К), в больших магнитных полях возникают гистерезис намагниченности и вихри, закрепленные на центрах пиннинга.

Рассмотрим начальные участки зависимости  $M(H)$  (при первом вводе магнитного поля), которые

отмечены на рис. 4 закрытыми символами. Более подробно эти участки при различных температурах представлены на рис. 5.

В магнитных полях до 200 Э видна аномалия, сохраняющаяся вплоть до температуры 70 К, связанная с существованием межгранулярных сверхпроводящих токов. При этих температурах в диапазоне самых малых полей имеет место полная экранировка объема образца. Квазилинейный участок в полях выше аномалии, но достаточно малых по сравнению с положением максимума при 1500–2000 Э (см. рис. 4) соответствует экранированию объема гранул с учетом соизмеримости их размеров и глубины проникновения магнитного поля  $\lambda$ .

Малый размер гранул и, соответственно, высокие значения полей возникновения вихрей в кристаллитах, а главное, значительная доля объема кристаллитов, занимаемая приповерхностным слоем толщиной  $\lambda$ , позволяет выделить его достаточно точно. Линейная аппроксимация этого участка (рис. 5) не проходит через нуль, что связано с наличием «джозефсоновских вихрей» в межгранулярном пространстве. Полевая зависимость их вклада, по-видимому, невелика, хотя и не является пренебрежимо малой.

Существенно, что при температурах выше 80 К низкополевая аномалия, связанная с межгранулярными сверхпроводящими токами, для образца 1 отсутствует и существует только один начальный линейный участок, отражающий экранирование кристаллитов.

Таким образом, наклоны линейных участков зависимостей  $M(H)$  при первом вводе поля позволяют восстановить температурную зависимость экранирования кристаллитов в отсутствие межгранулярных токов. Она представлена на рис. 2 под номером 1' и совпадает с экспериментальной кривой намагниченности образца в режиме охлаждения в магнитном поле в области температур выше 80 К. Это подтверждает вывод об отсутствии влияния внутригранулярного пиннинга на эту зависимость для подобных образцов.

Следует отметить, что при сопоставлении размеров кристаллитов и величины  $\lambda$ , а также при оценке вклада в намагниченность кристаллитов слоя толщиной  $\lambda$  под величиной  $\lambda$  следует понимать эффективное значение  $\lambda_{eff}$  как результат усреднения по ориентациям хаотично ориентированных кристаллитов в поликристалле. Следуя работе [11], полагаем  $\lambda_{eff}(T) = 1.41\lambda_{ab}(T)$ , что справедливо для достаточно больших значений анизотропии, характерных для  $YBa_2Cu_3O_{6.92}$ .

Таблица. Значения  $\lambda_{ab}$  для образца 1

Температура, К	$\lambda_{ab}$ , мкм	$\lambda_{ab}$ , мкм [11]
80	0.30	0.36
85	0.42	0.48
88	0.61	0.67

Наклон квазилинейного участка зависимости  $M(H)$  (показан сплошными линиями на рис. 5), когда вихри в кристаллитах (а также межкристаллитные токи) отсутствуют, в рамках модели изотропных длинных цилиндров [15] может быть описан простой формулой:

$$\frac{dM}{dH} = -\frac{1}{4\pi} \left( 1 - 2 \frac{\lambda_{eff} I_1(r/\lambda_{eff})}{r I_0(r/\lambda_{eff})} \right), \quad (1)$$

где  $I_0(r/\lambda_{eff})$ ,  $I_1(r/\lambda_{eff})$  — модифицированные функции Бесселя,  $r = \langle D \rangle / 2$  — радиус цилиндров.

Используя выражение (1), по наклону начального участка зависимостей  $M(H)$  или, что то же самое в данном случае, по зависимости  $M_{fc}/H_a$  при охлаждении в поле в диапазоне температур 80–90 К можно рассчитать  $\lambda_{eff}(T)$  и  $\lambda_{ab}(T)$  (величину глубины проникновения  $\lambda$  при направлении поля вдоль  $c$ -оси кристаллита). Полученные на основе кривой  $M_{fc}/H_a$  значения  $\lambda_{ab}(T)$  для образца 1 представлены в таблице. Также в таблице приведены результаты работы [11], которые были получены при исследовании тех же образцов, исходя из расчетов всей обратимой кривой намагниченности в магнитных полях 0–90 кЭ. Видно неплохое согласие полученных величин.

Провести подобный анализ для образцов 2 и 3, имеющих более крупные размеры кристаллитов, представляется затруднительным. Это связано с тем, что значения полей входа вихрей для них заметно меньше и близки к значениям, характерным для массивных образцов. Квазилинейный участок зависимости  $M(H)$ , использованный для анализа образца 1, для образцов 2 и 3 намного короче и имеет наклон, мало отличающийся от начального, определяемого полной экранировкой образца межгранулярными токами. С этим связаны трудности надежного выделения квазилинейного участка для образцов 2 и 3.

Однако, учитывая неплохое согласие результатов анализа для образца 1 и данных работы [11], можно использовать результаты определения  $\lambda_{eff}(T)$  для образцов 2 и 3, полученные в [11]. Используя эти значения и выражение (1), можно рассчитать вклад в намагниченность от экраниро-

вания гранул для образцов 2 и 3. Эти зависимости приведены на рис. 2.

Для образца 2 согласие высокотемпературных участков зависимости  $M_{fc}$  (кривая 2) и расчетной кривой намагниченности  $M(H)$  гранул в малых полях является удовлетворительным, в то время как для образца 3, еще более крупнозернистого, согласия нет. Величина  $M_{fc}$  занижена относительно кривой  $M(H)$ . Таким образом, в образце 3 пиннинг вихрей в гранулах в режиме охлаждения даже в таком малом поле, как 10 Э все же присутствует, хотя размер гранул всего лишь в 5 и в 2 раза превышает размер гранул образцов 1 и 2 соответственно. Гистерезис на зависимостях  $M(H)$  образца 3 при температуре 90 К (см. рис. 3) является тому подтверждением.

Как уже говорилось выше, аномалия на зависимостях  $M(H)$  в полях меньше 200 Э (см. рис. 5) связана с возникновением при охлаждении отличных от нуля межгранулярных сверхпроводящих токов. В образце 1 она возникает при температуре 70 К. В образцах 2 и 3, которые были синтезированы при более высоких температурах, подобные аномалии и, соответственно, межгранулярные токи возникают при более высоких температурах.

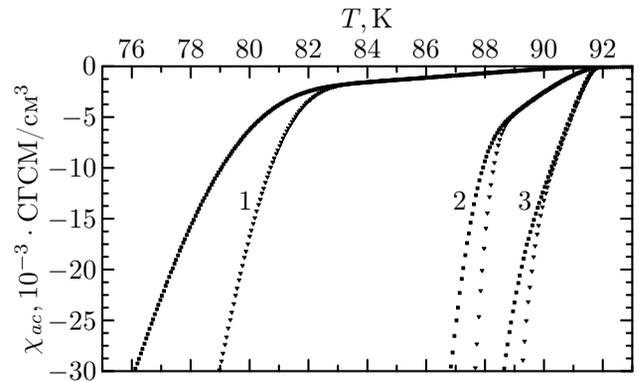


Рис. 6. Зависимости  $\chi_{ac}$  от температуры в переменных магнитных полях образцов 1, 2, 3 по данным [12]

На рис. 6 приведены результаты измерений магнитной восприимчивости  $\chi_{ac}$  в переменных магнитных полях [12].

Зависимости  $\chi_{ac}$  от температуры в переменных магнитных полях  $h_{ac}$  были получены для двух значений амплитуды переменного поля — 1 и 3 Э. Кривые раздваиваются на две ветви, соответствующие амплитудам 1 и 3 Э при температурах возникновения межгранулярных токов. Эти температуры, равные 82.5 К, 88.7 К и 90.1 К соответственно для образцов 1, 2 и 3, оказываются различными для разных образцов и, хотя и несколько превышают, но

согласуются с температурами возникновения аномалий на зависимостях  $M(H)$  в малых полях, вызванных межгранулярными токами. Приблизительно такими же оказываются и температуры, ниже которых величина  $M_{fc}$  при охлаждении в поле перестает изменяться.

Возникновение межгранулярных сверхпроводящих токов порождает широко известный эффект замораживания магнитного момента внутри сверхпроводящего кольца. По этой причине магнитный момент поликристаллического образца перестает меняться при понижении температуры после возникновения кольцевых макроскопических сверхпроводящих токов в режиме охлаждения в поле, как это видно на рис. 2. Уровень, на котором магнитный момент будет заморожен, определяется температурой возникновения межгранулярных токов и крутизной изменения магнитного момента до того, как эта температура будет достигнута.

Известно, что температура, при которой межгранулярные сверхпроводящие токи становятся отличными от нуля, зависит от величины внешнего магнитного поля  $H_a$ . Соответствующая зависимость от поля  $H_a$  должна быть и для температуры возникновения горизонтальных участков на зависимостях  $M_{fc}(T)$ . На рис. 2 приведена зависимость  $M_{fc}(T)$  для образца 3 при охлаждении в поле 53 Э (кривая 3''). Видно, что кривая совпадает с высокотемпературным участком кривой в поле 10 Э (кривая 3), что свидетельствует о том, что количество «запиннигованных» вихрей такое же, как и в случае охлаждения при 10 Э, но температура выхода на константу существенно ниже.

Как следует из изложенного выше, в области высоких температур для образцов с размерами гранул, сравнимыми с величиной  $\lambda$ , скорость изменения величины  $M_{fc}(T)$  и уровень, на который она выходит до возникновения межгранулярных сверхпроводящих токов, определяется отношением  $\langle D \rangle / \lambda$ . Однако, согласно результатам работы [9], рассмотренные образцы обладают существенной структурной неоднородностью, которая тем больше, чем меньше размер кристаллитов. Эта неоднородность приводит к различию в величинах  $\lambda$ , которые также тем больше, чем меньше размер кристаллитов [11, 13]. Это различие в величинах  $\lambda$ , в свою очередь, должно приводить к изменению зависимостей  $M_{fc}(T)$ .

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведен анализ зависимостей намагниченности от магнитного поля в диапазоне температур ниже температуры сверхпроводящего перехода для образ-

цов с размерами кристаллитов, сравнимыми с глубиной проникновения магнитного поля  $\lambda$ . Анализ показал, что при достаточно высокой температуре для кристаллитов с размером меньше  $\lambda$  фиксация вихрей на центрах пиннинга отсутствует. Для поликристаллических образцов с достаточно мелкими кристаллитами эффект пиннинга вихрей на дефектах в кристаллитах практически не оказывает влияния на зависимость намагниченности от температуры при охлаждении в магнитном поле.

Начальный участок зависимостей  $M_{fc}(T)$  мелкокристаллического образца с размерами кристаллитов порядка  $\lambda$  в диапазоне температур от  $T_c$  до температуры возникновения межгранулярных токов, определяется намагниченностью кристаллитов, достаточно небольшой из-за сравнимости величин  $\langle D \rangle$  и  $\lambda_{eff}$ . Значение, которого достигает намагниченность при охлаждении до возникновения межгранулярных токов (температура их возникновения зависит от величины измерительного поля  $H_a$ ), определяет положение не зависящего от температуры участка.

**Благодарности.** Авторы признательны А. А. Вишнёву за синтез образцов и К. С. Пигальскому за полезные обсуждения полученных результатов.

**Финансирование.** Работа поддержана субсидией Минобрнауки, выделенной ФИЦ ХФ РАН на выполнение государственного задания по теме «Наноструктурированные системы нового поколения с уникальными функциональными свойствами» (регистрационный номер № 122040500071-0).

#### ЛИТЕРАТУРА

1. A. P. Malozemoff, L. Krusin-Elbaum, D. C. Cronemeyer, Y. Yeshurun, and F. Holtzberg, *Phys. Rev. B* **38**, 6490 (1988).
2. T. Matsushita, E. S. Otabe, T. Matsuno, M. Murakami, and K. Kitazawa, *Physica C* **170**, 375 (1990).
3. L. Krusin-Elbaum, A. P. Malozemoff, D. C. Cronemeyer, F. Holtzberg, John R. Clem, and Zhi-dong Hao, *J. Appl. Phys.* **67**, 4670 (1990).
4. S. L. Li, H. H. Wen, and Z. X. Zhao, *Physica C* **316**, 293 (1999).
5. M. R. Koblischka, A. Koblischka-Veneva, and M. Murakami, *Physica C* **340**, 235 (2000).
6. T. Nagano, Y. Tomioka, Y. Nakayama, K. Kishio, and K. Kitazawa, *Phys. Rev. B* **48**, 9689 (1993).

7. Y. Tomioka, M. Naito, K. Kishio, and K. Kitazawa, *Physica C* **223**, 347 (1994).
8. D. Wohlleben, G. Michels, and S. Ruppel, *Physica C* **174**, 242 (1991).
9. A. S. Krasilnikov, L. G. Mamsurova, N. G. Trusevich, L. G. Shcherbakova, and K. K. Pukhov, *Supercond. Sci. Technol.* **8**, 1 (1995).
10. А. С. Красильников, Л. Г. Мамсурова, К. К. Пухов, Н. Г. Трусевич, Л. Г. Щербакова, *ЖЭТФ* **109**, 1006 (1996).
11. Л. Г. Мамсурова, К. С. Пигальский, Н. Г. Трусевич, А. А. Вишнев, М. А. Рогова, С. Ю. Гаврилкин, А. Ю. Цветков, *Письма в ЖЭТФ* **102**, 752 (2015).
12. Л. Г. Мамсурова, Н. Г. Трусевич, А. А. Вишнёв, К. С. Пигальский, Л. И. Трахтенберг, *Хим. физика* **39**, 66 (2020).
13. А. М. Балагуров, Л. Г. Мамсурова, И. А. Бобриков, То Тхань Лоан, В. Ю. Помякушин, К. С. Пигальский, Н. Г. Трусевич, А. А. Вишнев, *ЖЭТФ* **141**, 1144 (2012).
14. Г. Ф. Жарков, *УФН* **174**, 1012 (2004).
15. J. R. Clem, *Physica C* **153–155**, 50 (1988).

# ВЛИЯНИЕ ПРИМЕСЕЙ НА АДГЕЗИЮ НА ГРАНИЦЕ РАЗДЕЛА TiAl/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

А. В. Бакулин<sup>a\*</sup>, А. С. Кульков<sup>b</sup>, С. Е. Кулькова<sup>a,b</sup>

<sup>a</sup> Институт физики прочности и материаловедения Сибирского отделения Российской академии наук  
634055, Томск, Россия

<sup>b</sup> Национальный исследовательский Томский государственный университет  
634050, Томск, Россия

Поступила в редакцию 21 марта 2023 г.,  
после переработки 4 мая 2023 г.  
Принята к публикации 4 мая 2023 г.

Методом проекционных присоединенных волн в рамках теории функционала плотности изучено влияние примесей замещения на адгезию на границе раздела TiAl(111)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) с кислородным окончанием оксида. Показано, что переходные металлы и некоторые *s,p*-элементы, замещающие интерфейсный атом титана, приводят к уменьшению адгезии, тогда как элементы VB и VIB групп на Al-подрешетке незначительно усиливают химическую связь на границе раздела. Рассчитанные локальные плотности электронных состояний, распределения зарядовой плотности, заселенности перекрывания для связей интерфейсных атомов и другие электронные характеристики позволили выявить ключевые факторы, влияющие на адгезию на границе раздела сплав–оксид. Установлена корреляция между влиянием примеси на энергию связи на внутренней и внешней границах раздела. Сопоставление результатов с данными для границы раздела с обогащенным титаном сплавом Ti<sub>3</sub>Al показывает, что прочность интерфейса ослабевает с понижением содержания Ti в сплаве.

DOI: 10.31857/S0044451023090110  
EDN: KDVKJB

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Сплавы на основе интерметаллида  $\gamma$ -TiAl широко применяются в аэрокосмической, авиационной, морской, автомобильной, химической промышленности благодаря их хорошим механическим свойствам и, в частности, низкой плотности и высокому сопротивлению ползучести [1, 2]. В то же время недостаточная стойкость к окислению при температурах выше 800°C ограничивает технологическое применение  $\gamma$ -TiAl. Основной причиной, как показано в ряде экспериментальных работ [1–4], является рост смешанных оксидных слоев TiO<sub>2</sub> и Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Для повышения стойкости сплава  $\gamma$ -TiAl к окислению используются разные методики, в том числе легирование одним или даже несколькими элементами. Хотя результаты, полученные в разных работах, являются противоречивыми относительно влияния неко-

торых легирующих элементов, наиболее подходящими для повышения стойкости сплава к окислению считаются Nb, Ta, W и Si [5]. В то же время проблема целенаправленного выбора легирующих добавок или их комбинаций остается до конца не решенной. Отметим, что модификация поверхности сплава, а также защитные покрытия также используются для повышения коррозионной стойкости [6–11]. Например, для сплава  $\gamma$ -TiAl были предложены диффузионные покрытия на основе кремния и обогащенных алюминием слоев [11, 12] и ссылки в них.

Для понимания путей повышения стойкости сплавов TiAl к окислению необходимо изучение механизмов окисления поверхности и диффузии кислорода. Изучение адсорбции кислорода на поверхности сплавов TiAl проводилось в работах [13–21], а диффузия кислорода исследовалась в [22–28] с использованием нескольких подходов (статистического и метода Ландмана) для оценки температурного коэффициента диффузии. Прочность и стабильность интерфейсов TiAl/оксид рассматривалась в работах [29–35]. Например, в работе [29] рассчитывалась адгезия на границе

\* E-mail: bakulin@ispms.tsc.ru

раздела  $\text{TiAl}(110)_{\text{Al}}/\text{TiO}_2(110)_{\text{O}}$  в зависимости от конфигурации контакта. Были получены значения адгезии 0.580–1.644 Дж/м<sup>2</sup> для пяти конфигураций интерфейса. Наименьшие значения были рассчитаны для двух конфигураций границы раздела между оксидом и сплавом, оканчивающимся алюминием. В то же время в случае трех других конфигураций атомы кислорода располагаются ниже интерфейсного слоя алюминия. В этой связи неясно, для какой плоскости разрыва проводились расчеты адгезии в [29]. Кроме того, авторы данной работы продемонстрировали, что Ti-вакансия приводит к ослаблению прочности на интерфейсе, тогда как легирование Nb способствует взаимодействию O–Al, что может улучшить стойкость к окислению. В работе [30] проводилось изучение влияния легирующих элементов на адгезионные свойства границы раздела  $\text{TiAl}(110)_{\text{Ti}}/\text{TiO}_2(110)_{\text{O}}$ . Существенно большее значение, равное 4.996 Дж/м<sup>2</sup>, было получено для данной границы раздела. Авторы [30] установили, что Y, Nb и Pd из всех рассмотренных примесей являются наиболее подходящими для усиления химической связи между оксидом и сплавом TiAl.

Характеристики связи на интерфейсе  $\text{TiAl}(111)/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  изучались в [31]. Полученные результаты показали, что адгезия на интерфейсе между сплавом и оксидом с Al-окончанием значительно ниже (1.05 Дж/м<sup>2</sup>), чем с O-окончанием (4.04 Дж/м<sup>2</sup>). В [31] было указано, что образование ионных связей на границе раздела является ключевым фактором для повышения адгезии. Поскольку легирование может эффективно улучшить химическую связь между  $\text{Al}_2\text{O}_3$  и сплавами TiAl и, следовательно, повысить стойкость последних к окислению, то влияние переходных металлов VB и VIB групп на адгезионные свойства  $\gamma$ -TiAl и  $\alpha_2$ -Ti<sub>3</sub>Al с  $\text{Al}_2\text{O}_3$  было недавно изучено в [32]. Была выявлена тесная связь между стабильностью, адгезией и электронными свойствами границ раздела TiAl/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Авторы [32] установили, что лишь Nb повышает адгезию на TiAl/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, тогда как все VB элементы оказывают одинаковое влияние на адгезию на Ti<sub>3</sub>Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Однако значения адгезии, приведенные в [32] для идеальных границ раздела TiAl/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> с O-окончанием оксида (–0.16 Дж/м<sup>2</sup> (Ti<sub>3</sub>Al) и 3.68 Дж/м<sup>2</sup> (TiAl) [32]), значительно ниже, чем полученные в работах [33, 34], и значений 4.29 Дж/м<sup>2</sup> и 5.01 Дж/м<sup>2</sup>, рассчитанных в [32] для этих же границ раздела с более толстой оксидной пленкой. В то же время значения 11.02 Дж/м<sup>2</sup> (Ti<sub>3</sub>Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)) и

10.43 Дж/м<sup>2</sup> (TiAl/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)) были получены в работах [33, 34]. Таким образом, наблюдается противоположная тенденция в изменении адгезии с понижением содержания титана в сплаве, к тому же отрицательное значение адгезии указывает на нестабильность интерфейса Ti<sub>3</sub>Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001). Необходимо подчеркнуть, что значения 8.75–9.73 Дж/м<sup>2</sup> были получены для Al(111)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) в [36]. В случае интерфейса TiAl/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) предпочтительность fcc-конфигурации металлической пленки на поверхности оксида не изменяется, но повышается прочность границы раздела. Значение адгезии, равное 1.19 Дж/м<sup>2</sup> [34], полученное для TiAl(111)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)<sub>Al</sub>, находится в хорошем согласии со значением порядка 1.05 Дж/м<sup>2</sup> [31]. В целом причина резкого снижения адгезии на TiAl/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)<sub>Al</sub> по сравнению с границей раздела с кислородным окончанием оксида связана с ослаблением связей O–Al, уменьшением числа связей O–Ti и, как следствие, со снижением ионного вклада в химическую связь. Адгезия на границе Ti<sub>3</sub>Al(0001)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)<sub>Al</sub> (1.78 Дж/м<sup>2</sup> [33]) также несколько выше, чем на границе раздела со сплавом TiAl. Кроме того, в [33] показано, что все рассмотренные примеси 4d-периода, занимающие Ti- или Al-подрешетку, в основном приводят к снижению адгезии. Повышение адгезии обнаружено только для элементов групп IVB–VIB на Al-подрешетке, однако последние предпочитают замещать титан. Мы надеемся, что подобное влияние примесей остается справедливым и для интерфейса TiAl(111)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001). Поскольку в работе [32] использовалась структура интерфейса с большим несоответствием параметров поверхностных структур, то необходимы дополнительные расчеты атомной структуры легированного интерфейса в рамках более корректной модели. Таким образом, цель настоящей работы состоит в систематическом изучении влияния примесей на атомную и электронную структуры легированной границы раздела TiAl(111)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) методом *ab initio* в рамках теории функционала плотности (DFT).

## 2. ВЫЧИСЛИТЕЛЬНЫЕ ДЕТАЛИ

Для расчета атомной и электронной структуры интерфейса TiAl(0001)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(111) использовался метод проекционных присоединенных волн (PAW) в плоско-волновом базисе [37, 38] с обобщенным градиентным приближением (GGA–PBE) для обменно–корреляционного функционала [39]. Тео-

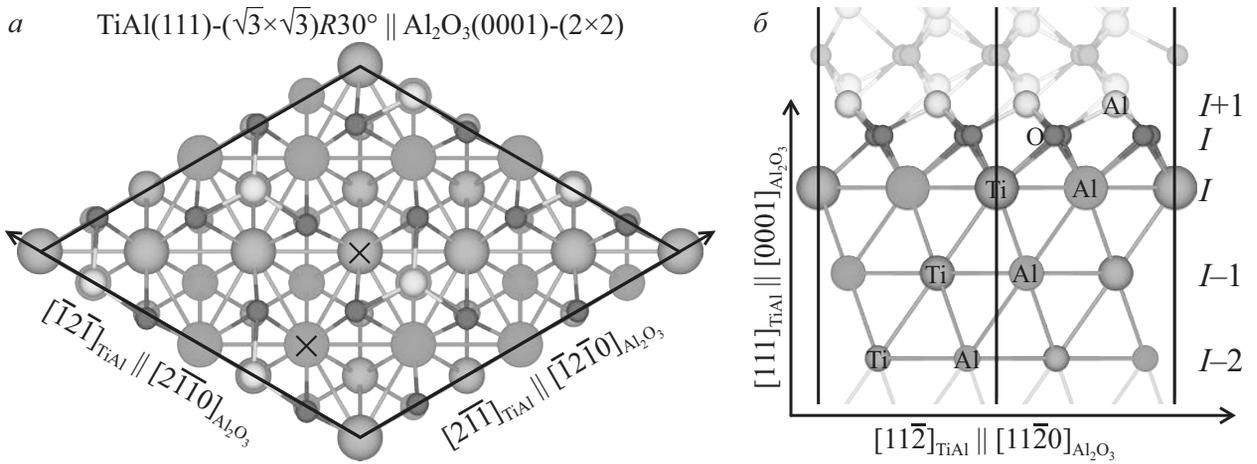


Рис. 1. Атомная структура fcc-конфигурации интерфейса между пленками  $\text{TiAl}(111)-(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$  и  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)-(2 \times 2)$ : вид сверху (а); вид сбоку (б) в плоскости  $(1\bar{1}00)$ . Символы  $I$ ,  $I \pm 1$  и  $I - 2$  означают атомы интерфейсного, второго и третьего от интерфейса слоев. Положения примесных атомов на Ti- и на Al-подрешетке в интерфейсном слое показаны крестиками

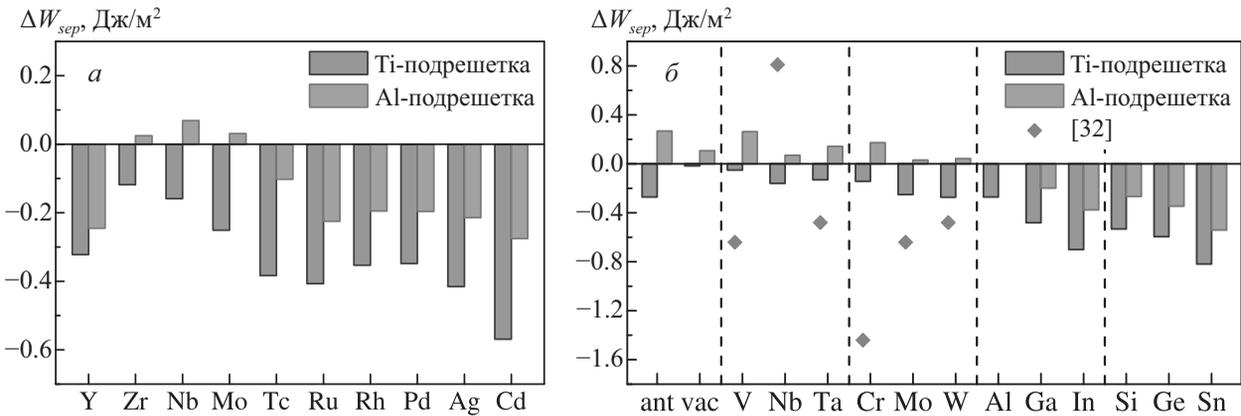


Рис. 2. Изменение работы отрыва для легированного интерфейса  $\text{TiAl}(111)/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)_O$  по сравнению с идеальным в зависимости от типа примеси: 4d-переходные металлы (а); металлические вакансии и антисайты в интерфейсном слое, а также изоэлектронные элементы групп VB и VIB, IIIA и IVA (б)

решеточные параметры решетки  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ( $a = 4.808 \text{ \AA}$ ,  $c = 13.118 \text{ \AA}$ ) и сплава  $\text{TiAl}$  ( $a = 3.977 \text{ \AA}$ ,  $c = 4.081 \text{ \AA}$ ) хорошо согласуются с экспериментальными [40, 41]. Для построения границы раздела совмещались поверхностные ячейки  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)-(2 \times 2)$  и  $\text{TiAl}(111)-(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ , как и в работе [34]. В результате различие параметров поверхностных решеток ( $9.616$  и  $9.826 \text{ \AA}$ ) составляет менее 2.2%. В расчетах использовался параметр решетки оксида, а параметр решетки сплава уменьшался в плоскости границы раздела, но увеличивался в перпендикулярном направлении. Каждый атомный слой пленки сплава имеет стехиометрический состав и образован шестью атомами титана и шестью атомами алюминия. Расчетная ячейка состоит

из 124 атомов в случае кислородного окончания оксида. Структура пленки  $\text{Al}_2\text{O}_3$  была подробно описана в многочисленных работах [32–34, 36]. Интегрирование по зоне Бриллюэна проводилось по  $\Gamma$ -центрированной сетке  $k$ -точек  $3 \times 3 \times 1$ . В разложении электронных волновых функций были взяты плоские волны с кинетическими энергиями до 550 эВ. Сходимость электронной структуры достигалась, когда разница полных энергий между двумя итерациями была менее  $10^{-5}$  эВ. Релаксация положений атомов интерфейсных слоев проводилась до достижения сил на атомах, не превышающих  $0.01 \text{ эВ/\AA}$ . Для получения дополнительной информации об интерфейсных электронных характеристиках, таких как заселенность перекрывания

орбиталей и зарядовые состояния интерфейсных атомов, был использован метод DDEC6 [42–44].

Идеальная энергия адгезии или работа отрыва ( $W_{sep}$ ) на границе раздела сплав–оксид, оценивалась как

$$W_{sep} = [E(\text{TiAl}) + E(\text{Al}_2\text{O}_3) - E(\text{TiAl}/\text{Al}_2\text{O}_3)]/S, \quad (1)$$

где  $E(\text{TiAl}/\text{Al}_2\text{O}_3)$  — полная энергия суперячейки, содержащей пленки оксида и сплава,  $E(\text{TiAl})$  и  $E(\text{Al}_2\text{O}_3)$  — полные энергии той же суперячейки, содержащей одну пленку сплава или оксида соответственно, а  $S$  — площадь интерфейса. Большие положительные значения  $W_{sep}$ , согласно (1), означают более сильную адгезию на границе раздела.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

#### 3.1. Влияние примеси на адгезию

Для интерфейса  $\text{TiAl}(111)/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  в нашей ранней работе [34] рассматривались три конфигурации (top, hcp и fcc) контактов с Al-, Al2- и O-окончанием поверхности  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ . Конфигурация fcc, схематически представленная на рис. 1, является наиболее энергетически предпочтительной для границы раздела сплава с кислородным окончанием оксида алюминия. На рис. 1а крестиками показаны положения примесных атомов, замещающих Ti или Al в интерфейсном слое сплава. Мы будем рассматривать влияние примеси только в случае данной fcc-конфигурации, которая характеризуется наибольшим значением работы отрыва.

Отметим, что примеси рассматривались на обеих подрешетках в интерфейсном слое сплава из-за возможности их сегрегации к границе раздела. На рис. 2а видно, что переходные  $4d$  металлы (ПМ) и элементы IIIA и IVA групп, замещающие титан, приводят к уменьшению работы отрыва, однако уменьшение  $W_{sep}$  менее выражено для Zr, Nb и Mo. Как и в случае границы раздела  $\text{Ti}_3\text{Al}/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)_O$  [33], работа отрыва уменьшается с заполнением  $d$ -зоны примесного элемента  $4d$ -периода. Исключением является Y, для которого уменьшение  $W_{sep}$  больше, чем для Zr, Nb и Mo, но меньше, чем для других элементов  $4d$ -периода. Примеси, замещающие алюминий, влияют на  $W_{sep}$  так же, как и в случае  $\text{Ti}_3\text{Al}/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)_O$  [33] — только Zr, Nb и Mo незначительно повышают прочность интерфейса.

Несколько слов следует сказать о влиянии изоэлектронных металлов групп VB и VIB и антиструк-

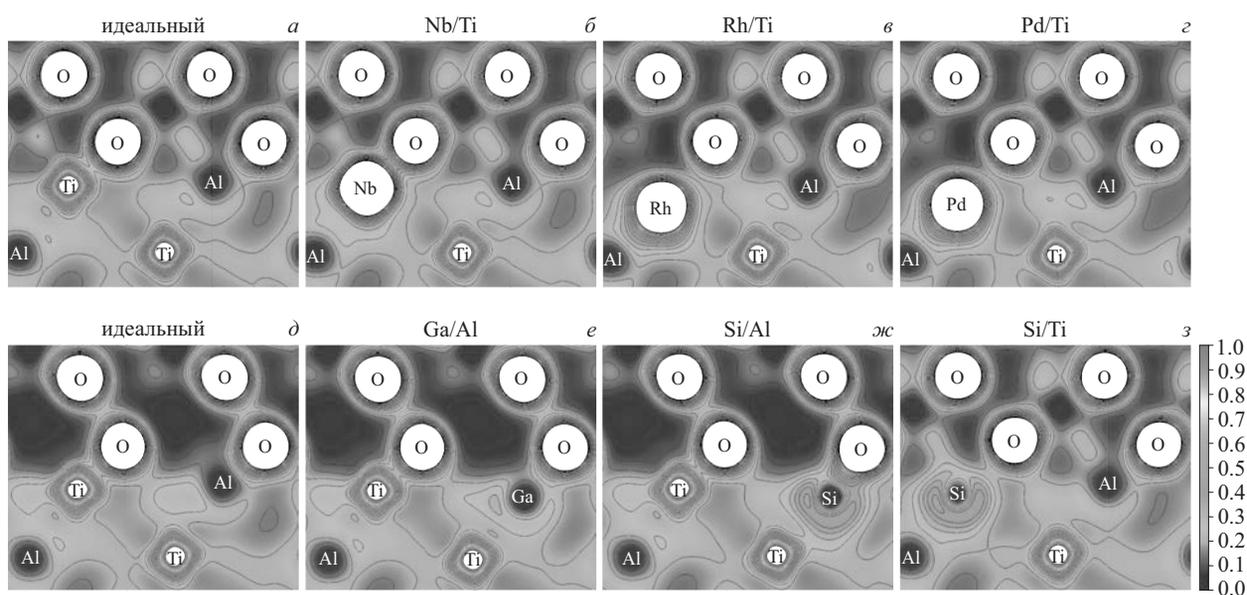
турных дефектов. На рис. 2б видно, что металлы групп VB и VIB и антисайты Ti на Al-подрешетке приводят к увеличению работы отрыва, тогда как антисайты алюминия и элементы групп IIIA и IVA уменьшают ее. Титановые вакансии также приводят к незначительному снижению  $W_{sep}$ , а Al-вакансия, напротив, к увеличению прочности интерфейса на  $0.1 \text{ Дж/м}^2$ . Необходимо подчеркнуть, что настоящие результаты находятся в качественном согласии с результатами работы [32]. Как видно на рис. 2б, рассмотренные в [32] примеси приводят к снижению интерфейсной прочности, за исключением Nb, который увеличивает адгезию примерно на  $0.8 \text{ Дж/м}^2$ . Максимальное понижение адгезии наблюдается для V и Cr в [32], тогда как настоящие расчеты указывают на противоположную тенденцию. Отметим также, что элементы VB группы в случае интерфейса со сплавом  $\text{Ti}_3\text{Al}$  [32] приводят к одинаковому изменению адгезии. Напомним, что для идеальной границы раздела  $\text{TiAl}/\text{Al}_2\text{O}_3$  адгезия равна  $3.68 \text{ Дж/м}^2$  [32], что значительно меньше, чем значения, рассчитанные нами для разных конфигураций металлической пленки ( $9.97$ – $10.43 \text{ Дж/м}^2$  [34]). Таким образом, настоящие расчеты показывают, что Nb и Zr (рис. 2а) являются элементами, влияние которых на адгезионные свойства интерфейса выражено существенно слабее, чем в случае других рассмотренных примесей на Ti-подрешетке. Чтобы понять микроскопический характер влияния примеси на работу отрыва, ниже проведем анализ некоторых электронных характеристик.

#### 3.2. Электронные свойства

Рассмотрим влияние нескольких репрезентативных примесей на ряд электронных характеристик. Результаты расчета заселенности перекрывания связей интерфейсных атомов ( $\theta$ ) и их зарядов ( $Q$ ) приведены в табл. 1. Известно, что заселенность перекрывания связи коррелирует с гибридным вкладом в химическую связь на границе раздела. Из табл. 1 следует, что такие примеси, как Nb, Rh и Pd, увеличивают заселенность перекрывания связей O–Ti на границе раздела, если они замещают Ti-позицию. Взаимодействие O–Al усиливается в ряду Nb–Rh–Pd. Однако в случае Nb заселенность перекрывания ближайшей к примеси O–Al связи меньше, чем в случае идеальной границы раздела. Противоположная тенденция была получена нами для легированного интерфейса  $\text{Ti}_3\text{Al}/\text{Al}_2\text{O}_3$  [33]. Поскольку атом Rh смещается от границы раздела дальше (на  $0.6 \text{ \AA}$ ),

**Таблица 1.** Электронные характеристики, такие как заряд атомов ( $Q$ ), их электроотрицательность ( $\chi$ ) и усредненная заселенность перекрытия для пар атомов на легированной границе раздела  $\text{TiAl}(111)/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)_\text{O}$  в сравнении с идеальной

Подрешетка	Примесь	$Q, e$	$\chi, \text{эВ}^{-1/2}$ [45]	Заселенность перекрытия связей ( $\theta$ ), $e$				
				O–Me	O–Ti	O–Al	Me–Ti	Me–Al
Ti	Ti	+0.40	1.54	0.316	0.316	0.341	0.305	0.273
	Nb	+0.01	1.60	0.389	0.353	0.286	0.403	0.363
	Rh	−0.90	2.28	0.152	0.343	0.361	0.601	0.557
	Pd	−0.40	2.20	0.141	0.350	0.370	0.431	0.468
	Ga	−0.14	1.81	0.251	0.341	0.330	0.410	0.325
	Si	−0.38	1.90	0.301	0.340	0.306	0.455	0.384
Al	Al	+0.62	1.61	0.341	0.316	0.341	0.273	0.171
	Ga	−0.28	1.81	0.238	0.341	0.303	0.348	0.339
	Si	−0.51	1.90	0.295	0.334	0.284	0.414	0.405



**Рис. 3.** Распределение полной зарядовой плотности на легированной границе раздела  $\text{TiAl}(111)/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)_\text{O}$  с Nb, Rh, Pd и Si на Ti-подрешетке и с Ga и Si на Al-подрешетке в сравнении с идеальной границей раздела. Изолинии показаны с интервалом  $0.1 \text{ e}/\text{Å}^3$

чем другие примеси, увеличение заселенности перекрытия связей O–Ti и O–Al связано с компенсацией ослабления взаимодействия O–Rh, что способствует стабилизации интерфейса. Из табл. 1 следует, что взаимодействие O–Me сильно зависит от электронной структуры примесного атома (Me) и возрастает для Nb по сравнению с Ti. Таким образом, гибридационный вклад в интерфейсную прочность увеличивается, если Nb замещает Ti. Однако ионный вклад становится меньше, чем для идеального интерфейса, поскольку перенос

заряда от Nb к O примерно на  $0.4e$  меньше, чем от Ti. Следует отметить, что имеющиеся подходы к оценке заряда дают разные результаты из-за сильной зависимости от выбора сферы или объема, в котором рассчитывается этот заряд. В случае Rh и Pd прочность связи O–Me значительно снижается по сравнению с Nb (табл. 1). Кроме того, элементы второй половины  $d$ -периода отдают меньший заряд кислороду, чем даже Nb. Этим объясняется большее уменьшение работы отрыва в случае данных примесей.

Согласно расчетам, *s,p*-элементы могут занимать разные подрешетки в сплаве TiAl. Как следует из табл. 1, заселенность перекрывания связей Me–Ti и Me–Al увеличивается по сравнению с Ti–Ti и Ti–Al на идеальном интерфейсе. Усиление этих взаимодействий в пленке сплава и приводит к уменьшению работы отрыва на границе раздела. Из табл. 1 следует, что заселенность перекрывания связи O–Si ( $0.295e$ ) выше, чем O–Ga ( $0.238e$ ), если примесные атомы занимают Al-позицию, как и в случае этих примесей на Ti-позиции. Видно, что прочность связи O–Si слабо зависит от положения Si в интерфейсном слое. Заселенность перекрывания связи Si–Ti выше, чем Al–Ti. В результате более сильного взаимодействия с титаном наблюдается смещение Si от границы раздела, что приводит к большему снижению  $W_{sep}$ , чем в случае сплава, легированного Ga. Кроме того, более высокая электроотрицательность Ga и Si по сравнению с Al приводит к накоплению заряда на атомах Ga и Si (табл. 1), что обуславливает кулоновское отталкивание между O и этими *s,p*-элементами. Этот фактор также способствует уменьшению  $W_{sep}$ .

### 3.3. Распределение зарядовой плотности

На рис. 3 приведено распределение полной зарядовой плотности на идеальной и легированной границах раздела. Видно, что в случае Nb на Ti-подрешетке количество изолиний в области между атомами O и Nb увеличивается по сравнению с идеальной границей (рис. 3а,б). В соответствии с анализом заселенности перекрывания связей такое распределение плотности заряда подтверждает увеличение гибридационного вклада в химическую связь O–Nb. В то же время изолинии на связях O–Rh и O–Pd отсутствуют (рис. 3в,г), что также коррелирует с уменьшением заселенности их перекрывания. Рисунок 3в,г демонстрирует также смещение атомов Rh и Pd от границы раздела и область низкой электронной плотности между этими атомами и кислородом. Кроме того, Rh и Pd имеют более высокую электроотрицательность ( $\chi$ ), чем Ti (табл. 1), что указывает на уменьшение ионного вклада в химическую связь. Поскольку атомы Ti расположены в другой плоскости, рис. 3б–г не позволяют увидеть незначительное усиление связей O–Ti, на которое указывает увеличение  $\theta$ . Все эти особенности приводят к большему понижению  $W_{sep}$  в случае примесей второй половины 4*d*-периода по сравнению с Nb.

В случае замещения Al атомом Ga распределение плотности заряда незначительно отличается

от такового для идеального интерфейса (рис. 3д,е). Смещение примесного атома от кислорода приводит к его взаимодействию с титаном. Этот эффект наиболее выражен в случае Si на Al-подрешетке (рис. 3ж). Накопление заряда наблюдается вблизи Si, что коррелирует с увеличением связи между ним и ближайшими атомами в сплавах. Такое поведение остается справедливым, если кремний замещает титан (рис. 3з). Фактически распределение полной зарядовой плотности подтверждает тенденции, установленные на основе анализа заселенности перекрывания связей. Области накопления заряда вблизи как Ga, так и Si указывают на меньший ионный вклад в химическую связь на границе раздела, что и приводит к уменьшению работы отрыва. Кроме того, усиление связей примесей с атомами Ti и Al интерфейсного слоя также является причиной уменьшения  $W_{sep}$ . Из табл. 1 следует, что связи Ti–Me и Al–Me увеличиваются в ряду Al–Ga–Si.

### 3.4. Плотность электронных состояний

На рис. 4а показаны локальные плотности электронных состояний (ПЭС) некоторых атомов интерфейсных слоев в случае Nb на Ti-подрешетке. Видно, что резкий пик ПЭС Nb, показанный стрелкой, сдвинут примерно на 0.2 эВ ниже уровня Ферми ( $E_F$ ) по сравнению с пиком Ti. Это обусловлено большим числом электронов в заполненной части валентной зоны Nb. Пики при той же энергии видны на локальных ПЭС других интерфейсных атомов, что отражает взаимодействие между ними. Низколежащие состояния металла в области от –9.5 до –3.0 эВ индуцируются взаимодействием с 2*p*-зоной кислорода. В случае интерфейсов, легированных Rh и Pd (рис. 4б,в), их валентная зона состоит из нескольких пиков, высота которых увеличивается с увеличением числа электронов в примесной *d*-зоне. На рис. 4б видно, что для легированного Rh интерфейса наблюдается двойной пик O 2*p*-состояний при энергии –2.0 эВ, который значительно выше для интерфейса, легированного Pd (рис. 4в). Кроме того, наблюдается больший сдвиг данного пика под уровень Ферми. В целом тонкая структура примесной 4*d*-зоны хорошо совпадает с положением пиков в 2*p*-зоне O, что отражает их взаимодействие. Смещение примесной зоны в сторону энергий, где расположена 2*p*-зона O, также свидетельствует об увеличении гибридизации *p*-орбиталей O и примесных состояний. Однако, как было показано в работе [21], данные примесные состояния могут иметь разрыхляющий характер, вследствие чего химическая связь на

легированном интерфейсе ослабляется. Поскольку Pd имеет практически заполненную валентную зону, его химическая активность понижается по сравнению с металлами начала  $4d$ -периода. Как следует из табл. 1, заселенность перекрывания связей O–Me действительно свидетельствует об ослаблении связей O–Rh и O–Pd по сравнению с O–Ti и O–Nb. Поскольку перенос заряда с примесных элементов второй половины  $4d$ -периода к кислороду понижается, то и  $W_{sep}$  значительно уменьшается для легированных интерфейсов Rh и Pd.

На рис. 4 (верхняя панель) видно, что число состояний Al в оксиде значительно уменьшается при энергии порядка  $-9$  эВ. Это результат непрямого взаимодействия Al с атомами примеси через кислород. Изменение ПЭС Al в сплаве, показанное на рис. 4а (нижняя панель), в случае Nb выражено в меньшей степени, чем для Rh и Pd (рис. 4б,в). Напомним, что оба элемента увеличивают взаимодействие O–Al в соответствии с оценкой заселенности перекрывания этой связи. Таким образом, изменения локальных ПЭС интерфейсных атомов также подтверждают эти оценки. Мы не показывали ПЭС атомов Ti и Al следующих от интерфейса слоев, поскольку их изменения в результате легирования пренебрежимо малы.

Изменение плотности электронных состояний в случае Ga и Si на Al-позиции представлено на рис. 5а,б. Поскольку валентная зона Ga аналогична валентной зоне Al (различие связано с высотой некоторых характерных пиков), влияние Ga на  $2p$ -зону O менее выражено, чем в случае переходных металлов. Однако заселенность перекрывания связи O–Ga ( $0.238e$ ) ниже, чем связи O–Al ( $0.341e$ ) на идеальной границе раздела. Аналогичная тенденция обнаружена и в случае интерфейса со сплавом  $Ti_3Al$  [33]. Для соответствующих связей были получены значения  $0.233e$  и  $0.343e$ . ПЭС Ti изменяется незначительно по сравнению с идеальной границей раздела при замещении Al примесью Ga (рис. 5а). Небольшой рост состояний титана вблизи уровня Ферми может свидетельствовать о более сильном взаимодействии O–Ti в присутствии Ga. Как следует из табл. 1, заселенность перекрывания связи O–Ti действительно на  $0.025e$  больше, чем для идеального интерфейса. На рис. 5а также видно, что состояния Al из оксида не участвуют во взаимодействии с атомами сплава TiAl.

В случае Si на Al-позиции наблюдается резкий пик  $s$ -состояний примерно при  $-10$  эВ (рис. 5б), который хорошо совпадает с отщепленным пиком  $p$ -состояний O при той же энергии. Кроме того, сдвиг

ПЭС кислорода по сравнению с идеальной границей раздела указывает на более сильное взаимодействие примесь–кислород, чем в предыдущем случае. Действительно, заселенность перекрывания для связи O–Si выше, чем для O–Ga (табл. 1). Кроме того, заселенность перекрывания связи Si–Ti на  $0.141e$  больше, чем связи Al–Ti (табл. 1). В результате кремний сильнее взаимодействует с ближайшими атомами Ti следующего от интерфейса слоя сплава, что видно на нижней панели рис. 5б. Кроме того, ПЭС Al, ближайшего к Si, смещается также в сторону отрицательных энергий. Это подтверждает более сильное взаимодействие Si–Al по сравнению с Ga–Al. В целом для легированного Si интерфейса наблюдается большее уменьшение  $W_{sep}$  по сравнению с интерфейсом, легированным Ga. Для сравнения локальные плотности состояний интерфейсных атомов в случае Si на Ti-подрешетке приведены на рис. 5в. Видно, что имеет место небольшое уменьшение гибридационного вклада (Si–O) в химическую связь по сравнению с идеальной границей раздела. Как и в предыдущем случае, взаимодействие Si–Al сильнее, чем Ti–Al для идеального интерфейса.

### 3.5. Влияние примеси на энергию адсорбции кислорода на поверхности TiAl(111)

Необходимо отметить, что в работе [33] была установлена корреляция между влиянием примеси на энергию адсорбции кислорода на поверхности  $Ti_3Al(0001)$  и на работу отрыва на границе раздела  $Ti_3Al/Al_2O_3(0001)$ . Чтобы продемонстрировать, что аналогичная корреляция имеет место и в данном случае, были рассчитаны энергии адсорбции кислорода на легированной поверхности TiAl(111). Отметим, что адсорбция кислорода на чистой поверхности TiAl(111) изучалась в работах [14, 15], однако влияние примесей ранее не оценивалось. В табл. 2 приведены имеющиеся теоретические результаты для чистой поверхности. Рассматривались четыре позиции адсорбции кислорода над треугольниками, образованными двумя атомами Ti(Al) и одним атомом Al(Ti), как и в [14, 15]. Адсорбционные позиции называются fcc, если O расположен в трехкратно центрированной ямочной позиции над атомами Ti или Al третьего слоя от поверхности, и hcp, если O находится в такой же позиции над соответствующими атомами второго слоя от поверхности. Наиболее предпочтительной позицией для кислорода является fcc (Ti2Al) с энергией  $5.55$  эВ ( $\sim 5.12$  эВ [15]). Различие в абсолютных значениях энергий адсорбции кислорода может быть связано с оценкой

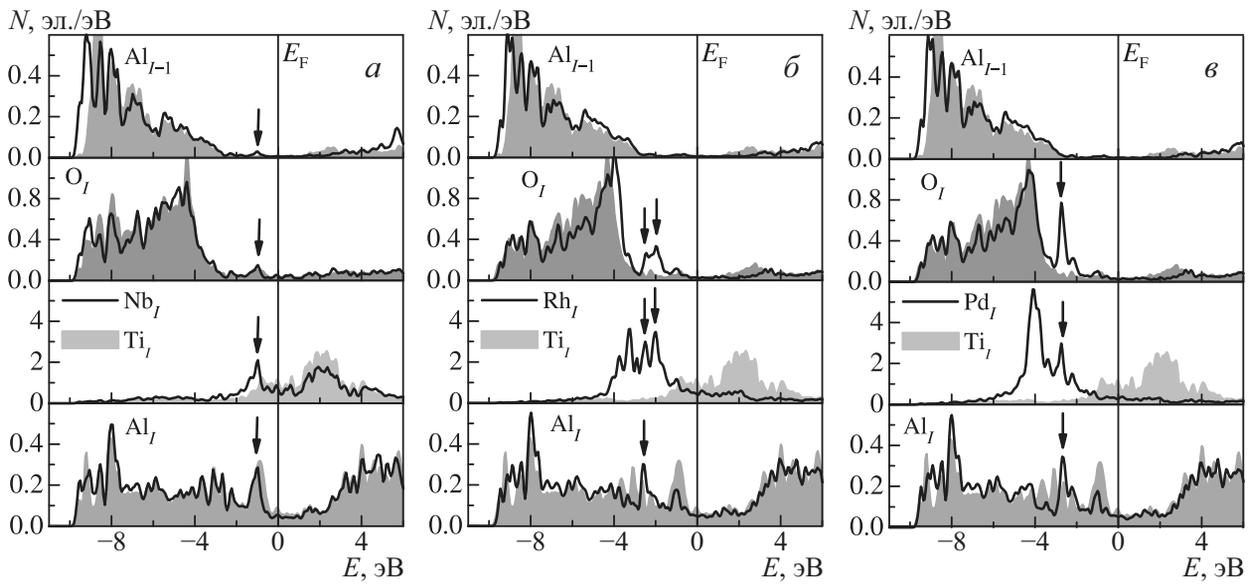


Рис. 4. Плотности электронных состояний интерфейсных атомов для легированной границы раздела  $TiAl(111)/Al_2O_3(0001)_O$ : Nb (а), Rh (б), Pd (в) (примеси на Ti-подрешетке). Локальные ПЭС соответствующих атомов на идеальном интерфейсе показаны заливкой

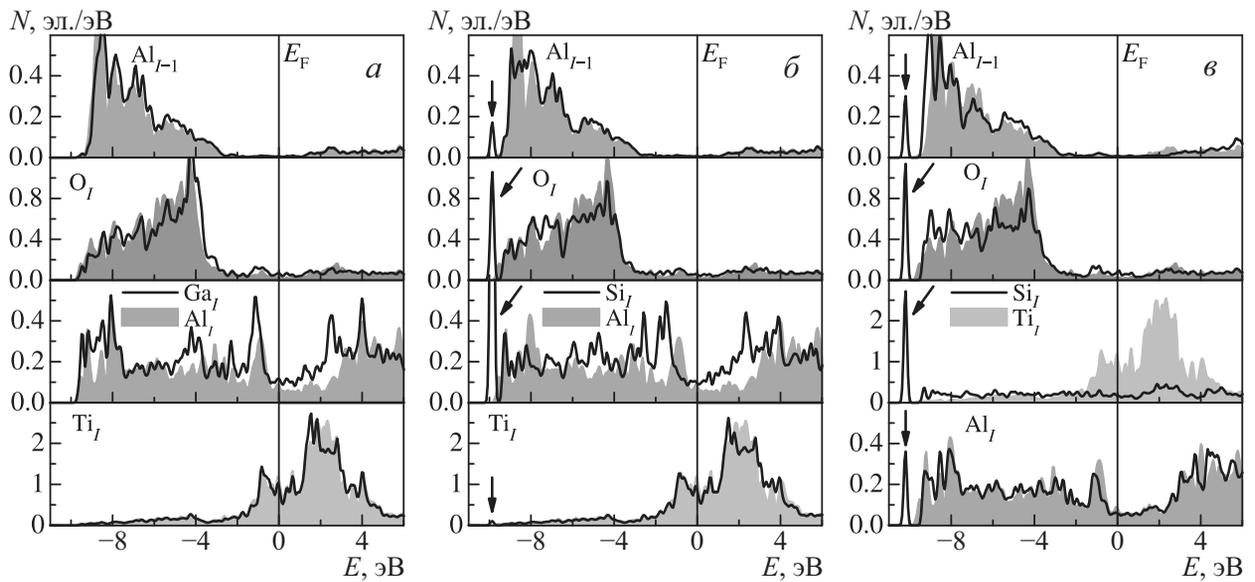


Рис. 5. Локальные плотности электронных состояний интерфейсных атомов для легированной границы раздела  $TiAl(111)/Al_2O_3(0001)_O$ : Ga (а), Si на Al-подрешетке (б), Si на Ti-подрешетке (в). Заливка показывает локальные плотности состояний, соответствующие атомам на идеальном интерфейсе

Таблица 2. Разница (в эВ) в энергии адсорбции кислорода для двух конфигураций на поверхности  $TiAl(111)$

$\Delta E_{ads}$	Настоящие результаты	[14]	[15]
fcc-hcp ( $Ti_2Al$ )	0.06	0.10	0.09
fcc-hcp ( $TiAl_2$ )	0.03	0.06	0.05

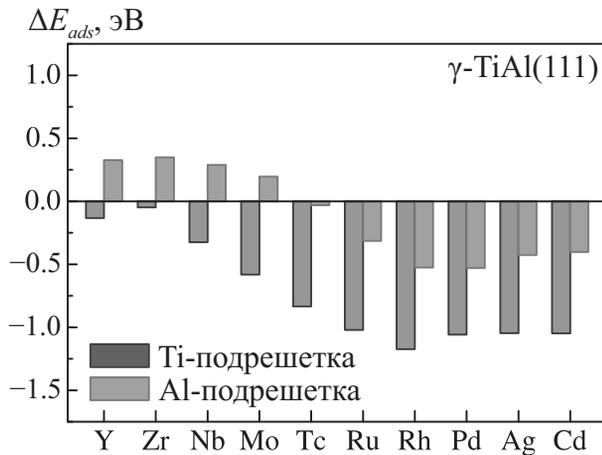


Рис. 6. Энергия адсорбции кислорода в fcc-позиции (Ti2Al) для легированной элементами 4d-периода поверхности TiAl(111) по сравнению с нелегированной

полной энергии молекулы кислорода. Для ее оценки необходим спин-поляризованный расчет, но он не всегда проводится.

Изменение энергии адсорбции кислорода в наиболее предпочтительной fcc-позиции (Ti2Al) вследствие легирования примесями 4d-периода показано на рис. 6. Видно, что все рассмотренные примеси, замещающие Ti в поверхностном слое приводят к уменьшению энергии адсорбции, как это было обнаружено ранее в случае поверхности Ti3Al(0001) [21]. В то же время примеси начала 4d-периода (Y, Zr, Nb, Mo) на Al-подрешетке увеличивают энергию адсорбции на 0.20–0.35 эВ.

На рис. 7 видно, что изменение энергии адгезии на границе раздела TiAl(111)/Al2O3(0001) за счет легирования хорошо согласуется с изменением энергии адсорбции кислорода на контактной поверхности TiAl(111). Прямые линии на рис. 7 были получены методом наименьших квадратов. Коэффициент корреляции равен 0.89 и 0.91 в случае примесей соответственно на Ti- и Al-подрешетках. Таким образом, можно сделать вывод, что микроскопический механизм влияния примеси на характеристики связи на внешней и внутренней границах раздела практически одинаков. Наибольшее отклонение получено для Y, Rh, Cd, In, Sn на Ti-подрешетке и Y, V, Sn на Al-подрешетке, что может быть связано с большей деформацией атомной структуры поверхности или границы раздела этими примесями и, как следствие, с увеличением механического вклада в химическую связь. Например, в случае замещения титана на поверхности TiAl(111) родием кислород существенно смещается от примеси, причем этот сдвиг

составляет примерно 0.5 Å. Отметим, что ковалентный радиус родия (1.25 Å) меньше, чем титана. Напротив, на границе раздела TiAl/Al2O3(0001)O Rh на Ti-подрешетке смещается примерно на 0.6 Å в объем сплава. В целом влияние 4d-примесей на адгезию на границе раздела TiAl/Al2O3(0001)O не превышает 0.6 Дж/м<sup>2</sup> и незначительно больше в случае In и Sn. Уменьшение содержания Ti в сплаве TiAl приводит к снижению интерфейсной прочности, но адгезия на границе раздела остается достаточно высокой.

### 3.6. Влияние концентрации титана в сплаве на адгезию

В заключении кратко обсудим изменение адгезии на интерфейсе TiAl/Al2O3(0001)O в зависимости от концентрации титана в сплаве. Для корректности сопоставления все значения  $W_{sep}$  рассчитывались в рамках одной модели, т.е. число атомных слоев сплава и оксида, площадь контакта сохранялись без изменений, тогда как состав и структура изменялись. На рис. 8 представлены полученные значения адгезии для четырех рассмотренных интерфейсов. Видно, что в случае границы раздела с чистым α-Ti в гексагональной фазе достигает значения 12.01 Дж/м<sup>2</sup>. Отметим, сплав α2-Ti3Al имеет фактически такую же структуру, но часть узлов занята атомами алюминия (три из двенадцати атомов в каждом атомном слое (0001)). Такое изменение состава приводит к понижению адгезии примерно на 1 Дж/м<sup>2</sup>.

Атомная структура сплава γ-TiAl очень близка к гранцентрированной кубической структуре, которую имеет чистый алюминий. Таким образом, при переходе от Ti3Al к TiAl необходимо не только заменить треть атомов титана на алюминий, но и изменить структуру пленки сплава. Расчеты показали, что дальнейшее уменьшение концентрации титана также приводит к понижению  $W_{sep}$  примерно на 0.6 Дж/м<sup>2</sup> (рис. 8). Поскольку сплав TiAl3 имеет тетрагональную структуру с параметром  $c/a \sim 2.2$ , построить границу раздела TiAl3/Al2O3(0001)O в рамках аналогичной модели не представляется возможным. Поэтому возможен только предельный случай, когда все атомы титана заменены на алюминий. Работа отрыва на границе раздела Al(111)/Al2O3(0001)O составляет 9.32 Дж/м<sup>2</sup>, что находится в согласии со значениями 8.75–9.73 Дж/м<sup>2</sup> из ранней работы [36]. Таким образом, становится очевидным, что именно взаимодействие O–Ti является ключевым фактором в

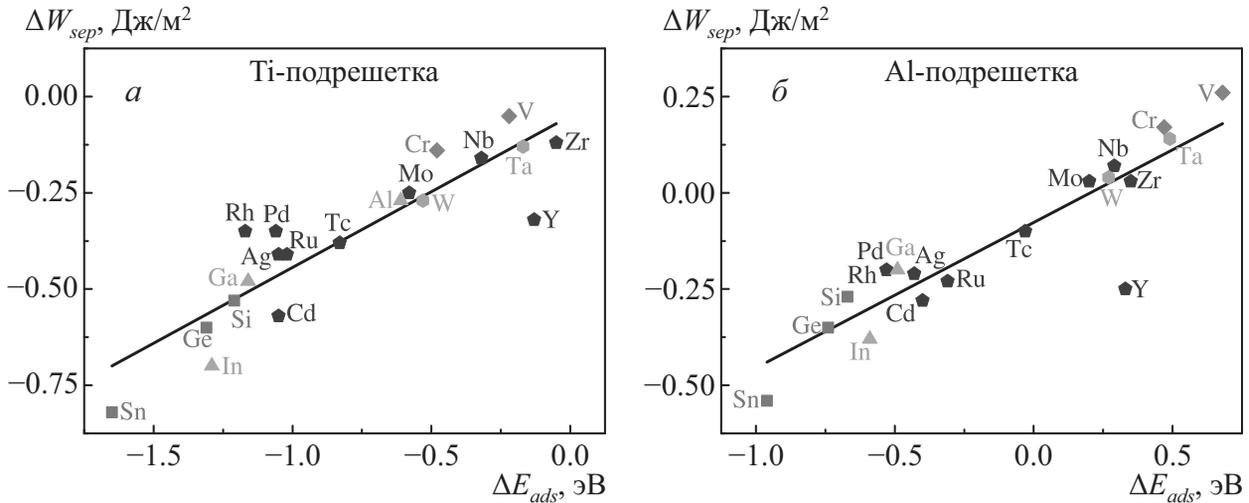


Рис. 7. Работа отрыва на границе раздела  $\text{TiAl}(111)/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)_\text{O}$  в зависимости от энергии адсорбции кислорода на  $\text{TiAl}(111)$  для разных примесей на подрешетках Ti (а) и Al (б)

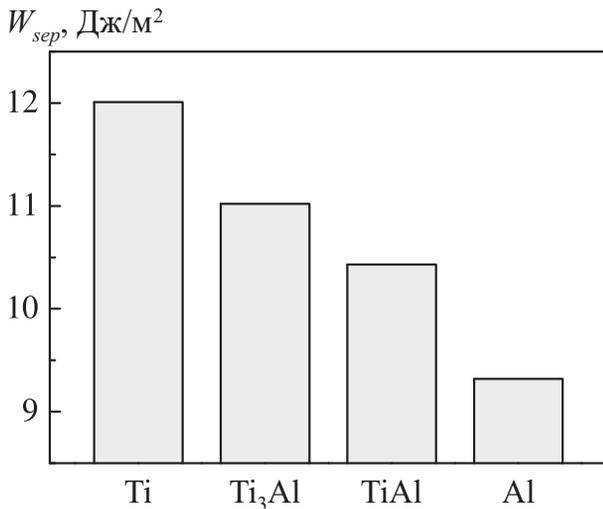


Рис. 8. Работа отрыва на границе раздела  $\text{Ti}_{1-x}\text{Al}_x/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)_\text{O}$  в зависимости от концентрации титана, значение  $x$  изменяется от 0 для чистого титана до 1 в случае алюминия

повышении адгезии на интерфейсе с кислородным окончанием поверхности  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ .

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведено теоретическое исследование атомной и электронной структур легированного интерфейса  $\text{TiAl}(111)/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)_\text{O}$  и его адгезионных свойств методом проекционных присоединенных волн. Установлено, что все рассмотренные  $4d$ -металлы и элементы групп IIIA и IVA, занимающие обе подрешет-

ки сплава, приводят в основном к уменьшению адгезии на легированном интерфейсе. Показано, что только элементы групп IVB–VIB, замещающие Al, лишь незначительно увеличивают адгезию. Выявлены электронные факторы, ответственные за изменение адгезии на легированном интерфейсе. Показано, что перенос заряда к атому кислорода уменьшается с заполнением валентной  $4d$ -зоны, тогда как гибридационный вклад в химическую связь увеличивается. В то же время появление разрыхляющих состояний для некоторых примесей приводит к уменьшению гибридационного вклада и, как следствие, адгезии на легированном интерфейсе. В целом эффект примеси определяется конкуренцией ионного и гибридационного вкладов в химическую связь на интерфейсе. Расчеты указывают, что некоторые примеси, в частности, Rh и Pd, могут способствовать усилению взаимодействия O–Al на границе раздела.

Показано, что примеси, замещающие атом Ti в поверхностном слое  $\text{TiAl}(111)$ , приводят к уменьшению энергии связи кислорода с поверхностью. Имеет место корреляция между адгезией на легированном интерфейсе  $\text{TiAl}(111)/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)_\text{O}$  и энергией адсорбции кислорода на легированной поверхности  $\text{TiAl}(111)$ . Это позволяет сделать вывод, что влияние примесей на характеристики связи на внутренней и внешней границах раздела в случае сплава TiAl качественно одинаково. Таким образом, влияние примесей на адгезионные свойства можно оценить по их влиянию на энергию адсорбции кислорода на контактных поверхностях, что требует

меньших вычислительных затрат. В целом уменьшение содержания Ti в сплавах Ti–Al приводит к снижению интерфейсной прочности примерно на 0.6 Дж/м<sup>2</sup>.

**Финансирование.** Работа выполнена в соответствии с государственным заданием Института физики прочности и материаловедения Сибирского отделения Российской академии наук (проект FWRW-2022-0001). Численные расчеты проводились на суперкомпьютере СКИФ Cyberia в Томском государственном университете.

### ЛИТЕРАТУРА

1. Z. Li and W. Gao, in *Intermetallics Research Progress*, ed. by Y. N. Berdovsky, Nova Sci. Publ., New York (2008), p. 1.
2. J. Dai, J. Zhu, C. Chen et al., *J. Alloys Compd.* **685**, 784 (2016).
3. M. R. Shanabarger, *Appl. Surf. Sci.* **134**, 179 (1998).
4. V. Maurice, G. Despert, S. Zanna et al., *Acta Materialia* **55**, 3315 (2007).
5. T. Izumi, T. Yoshioka, S. Hayashi et al., *Intermetallics* **9**, 547 (2001).
6. L. Y. Kong, J. Z. Qi, B. Lu et al., *Surf. Coat. Technol.* **204**, 2262 (2010).
7. T. Sasaki, T. Yagi, T. Watanabe et al., *Surf. Coat. Technol.* **205**, 3900 (2011).
8. M. Sebastiani and E. Bemporad, *Intermetallics* **37**, 76 (2013).
9. J. Q. Wang, L. Y. Kong, T. F. Li et al., *J. Therm. Spray Technol.* **24**, 467 (2015).
10. J. Q. Wang, L. Y. Kong, T. F. Li et al., *Appl. Surf. Sci.* **361**, 90 (2016).
11. J. Q. Wang, L. Y. Kong, J. Wu et al., *Appl. Surf. Sci.* **356**, 827 (2015).
12. J. Huang, F. Zhao, X. Cui et al., *Appl. Surf. Sci.* **582**, 152444 (2022).
13. H. Li, L. Liu, S. Wang et al., *Acta Metallurgica Sinica* **42**, 897 (2006).
14. S. Y. Liu, J. X. Shang, F. H. Wang et al., *Phys. Rev. B* **79**, 075419 (2009).
15. H. Li, S. Wang, and H. Ye, *J. Mater. Sci. Technol.* **25**, 569 (2009).
16. S. Y. Liu, J. X. Shang, F. H. Wang et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 225005 (2009).
17. Y. Song, J. H. Dai, and R. Yang, *Surf. Sci.* **606**, 852 (2012).
18. S. E. Kulkova, A. V. Bakulin, Q. M. Hu et al., *Comput. Mater. Sci.* **97**, 55 (2015).
19. L. Wang, J. X. Shang, F. H. Wang et al., *Acta Materialia* **61**, 1726 (2013).
20. S. E. Kulkova, A. V. Bakulin, and S. S. Kulkov, *Comput. Mater. Sci.* **170**, 109136 (2019).
21. A. V. Bakulin, S. Hocker, S. Schmauder et al., *Appl. Surf. Sci.* **487**, 898 (2019).
22. Y. Koizumi, M. Kishimoto, Y. Minamino et al., *Philos. Mag. A* **88**, 2991 (2008).
23. А. В. Бакулин, А. М. Латышев, С. Е. Кulkova, *ЖЭТФ* **152**, 164 (2017).
24. S. E. Kulkova, A. V. Bakulin, and S. S. Kulkov, *Latv. J. Phys. Tech. Sci.* **6**, 20 (2018).
25. А. В. Бакулин, С. С. Кульков, С. Е. Кулькова, *ЖЭТФ* **157**, 688 (2020).
26. E. Epifano and G. Hug, *Comput. Mater. Sci.* **174**, 109475 (2020).
27. D. Connétable, A. Prillieux, C. Thenot et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **32**, 175702 (2020).
28. A. V. Bakulin, S. S. Kulkov, and S. E. Kulkova, *Intermetallics* **137**, 107281 (2021).
29. Y. Song, F. J. Xing, J. H. Dai et al., *Intermetallics* **49**, 1 (2014).
30. J. H. Dai, Y. Song, and R. Yang, *Intermetallics* **85**, 80 (2017).
31. B. Wang, J. Dai, X. Wu et al., *Intermetallics* **60**, 58 (2015).
32. Y. Li, J. H. Dai, and Y. Song, *Comput. Mater. Sci.* **181**, 109756 (2020).

33. A. V. Bakulin, S. S. Kulkov, and S. E. Kulkova, *Appl. Surf. Sci.* **536**, 147639 (2021).
34. А. В. Бакулин, С. С. Кульков, С. Е. Кулькова, *Изв. вузов. Физика* **63**, 3 (2020).
35. A. V. Bakulin, S. S. Kulkov, S. E. Kulkova et al., *Metals* **10**, 1298 (2020).
36. D. J. Siegel, L. G. Hector, Jr., and J. B. Adams, *Phys. Rev. B* **65**, 085415 (2002).
37. P. E. Blöchl, *Phys. Rev. B* **50**, 17953 (1994).
38. G. Kresse and J. Joubert, *Phys. Rev. B* **59**, 1758 (1999).
39. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865 (1996).
40. M. Lucht, M. Lerche, H. C. Wille et al., *J. Appl. Cryst.* **36**, 1075 (2003).
41. P. Villars and L. D. Calvert, *Pearson's Handbook of Crystallographic Data for Intermetallic Phases*, ASM, Materials Park, OH (1991).
42. T. A. Manz and N. G. Limas, *RSC Adv.* **6**, 47771 (2016).
43. N. G. Limas and T. A. Manz, *RSC Adv.* **6**, 45727 (2016).
44. T. A. Manz, *RSC Adv.* **7**, 45552 (2017).
45. W. M. Haynes, *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 96th Edition, CRC Press/Taylor and Francis, Boca Raton, FL (2015), p. 9.

# ДИНАМИКА ВИХРЕЙ В СВЕРХПРОВОДЯЩЕЙ ПОЛОСКЕ MoN С БОКОВЫМ РАЗРЕЗОМ

С. С. Уставщиков<sup>a,b\*</sup>, М. Ю. Левичев<sup>a</sup>, И. Ю. Пашенькин<sup>a</sup>, Н. С. Гусев<sup>a</sup>, С. А. Гусев<sup>a</sup>,  
Д. Ю. Водолазов<sup>a</sup>

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

<sup>b</sup> Нижегородский государственный университет им. Н. И. Лобачевского  
603950, Нижний Новгород, Россия

Поступила в редакцию 18 апреля 2023 г.,  
после переработки 24 апреля 2023 г.  
Принята к публикации 24 апреля 2023 г.

Экспериментально и теоретически исследованы транспортные характеристики сверхпроводящих полосок MoN с одиночным разрезом около одного из краев сверхпроводника в нулевом и слабом магнитных полях. Наличие разреза позволяет реализовать режимы с одним или несколькими одновременно движущимися вихрями Абрикосова, число которых контролируется величиной приложенного тока. На вольт-амперной характеристике изменение количества вихрей сопровождается появлением «кинка», хорошо различимого на зависимости дифференциального сопротивления от тока. Это позволяет найти среднюю скорость  $\bar{v}$  вихрей (в том числе и одиночного вихря) и диапазоны токов/напряжений с известным количеством движущихся вихрей. Найденная таким способом скорость вихрей для наших сверхпроводящих полосок оказалась слабо зависящей от тока и близка к максимальному значению  $\bar{v}_{max} \approx 3$  км/с, когда происходит переход сверхпроводника в нормальное состояние. Величина максимальной скорости сравнима с известными значениями для сверхпроводников типа Nb, NbN, YBCO, но в несколько раз меньше, чем в сверхпроводниках типа MoSi, NbC, Pb. Обсуждается, что различие максимальных скоростей вихрей связано с разными временами изменения модуля сверхпроводящего параметра порядка в различных сверхпроводящих материалах.

DOI: 10.31857/S0044451023090122  
EDN: KDXEJW

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В сверхпроводящих тонкопленочных системах исследование динамики вихрей Абрикосова чрезвычайно важно для фундаментального понимания коллективного поведения взаимодействующих вихрей, а также для создания условий, обеспечивающих достижение максимальной скорости движения вихрей [1, 2], которая необходима в некоторых приложениях: детектирование отдельных фотонов [3], генерация акустического черенковского излучения [4–6], генерация спин-поляризованных волн [7, 8], открывающих новые возможности для современной спинтроники [9–12].

Достижение высоких скоростей движения вихрей Абрикосова ограничено возникновением неустойчивости и срывом — скачкообразным необратимым переходом вольт-амперной характеристики (ВАХ) в нормальное состояние при токе  $I^* \ll I_{dep}$  ( $I_{dep}$  — ток распаривания сверхпроводника). Неустойчивость вихревого движения может быть обусловлена как джоулевым нагревом [13, 14], так и альтернативным неравновесным механизмом, связанным с зависящим от времени изменением модуля сверхпроводящего параметра порядка в коре движущегося вихря [15, 16], или их комбинацией [17, 18]. Для достижения большой скорости вихрей необходимо сочетание двух факторов: высокой структурной однородности и большой скорости охлаждения квазичастиц, т.е. малого времени релаксации энергии неравновесных электронов. Высокая скорость релаксации энергии характерна для неупорядоченных сверхпроводников [1, 2, 19, 20],

\* E-mail: sergey@ipmras.ru

однако зачастую объемный пиннинг препятствует достижению высокой скорости вихрей [21–24].

Стандартная методика определения максимальной скорости вихрей  $v_{max}$  заключается в следующем: в магнитном поле с индукцией  $B$  измеряются ВАХ тонкопленочного мостика (полоски), изготовленного из исследуемого сверхпроводящего материала, и определяется напряжение срыва  $V^*(B)$  в нормальное состояние (или в состояние с более высоким сопротивлением). Для нахождения  $v_{max}$  используются соотношение Джозефсона

$$V^* = n\Phi_0 v_{max}/W$$

и выражение для количества вихрей

$$n = BLW/\Phi_0$$

( $\Phi_0$  — квант магнитного потока,  $L$  — длина полоски,  $W$  — ее ширина), приводящее к следующей простой связи:

$$v_{max}(B) = V^*L/B.$$

В слабых полях такой метод дает ошибку (приводит, например, к немонотонной зависимости  $v_{max}(B)$  [25, 26]), связанную с неопределенностью типа 0/0 при  $B \rightarrow 0$  (когда  $V^* \rightarrow 0$ ) и невозможностью определить число вихрей  $n$  в слабых полях  $B < B_s/2 \sim \Phi_0/4\pi\xi W$  ( $B_s/2$  — поле входа первого вихря,  $\xi$  — длина когерентности) в резистивном состоянии, поскольку их число определяется величиной тока и естественными дефектами на краю полоски.

Одним из решений данной проблемы может быть использование сверхпроводящей полоски с искусственным краевым дефектом в виде длинного и узкого бокового разреза. Для физически схожей системы (полоски с двумя разрезами на противоположных краях) Асламазовым и Ларкиным было теоретически предсказано [27], что резистивное состояние в нулевом магнитном поле реализуется в виде движущейся цепочки вихрей/антивихрей, входящих в полоску через противоположные разрезы, причем изменение количества пар вихрей/антивихрей на единицу приводит к особенности на ВАХ в виде «кинка». Наличие кинков связано с отталкиванием между вихрями, когда уже вошедшие вихри препятствуют входу следующих вихрей. В каком-то смысле данный эффект схож с немонотонным изменением намагниченности с ростом магнитного поля в сверхпроводниках малых размеров, когда вошедшие вихри увеличивают энергетический барьер для входа следующих вихрей [28].

Таким образом, измеряя ВАХ сверхпроводящей полоски с боковым разрезом и определяя количе-

ство кинков на ней, можно найти точное количество вихрей и их скорость при токе и напряжении, соответствующих  $n$ -му кинку:

$$\bar{v}_n = w \frac{e}{\pi\hbar} \frac{V_n}{n} = w \frac{1}{\Phi_0} \frac{V_n}{n}, \quad (1)$$

где  $V_n$  — напряжение  $n$ -го кинка, а  $\bar{v}_n$  — средняя скорость для  $n$  вихрей в цепочке,  $w$  — длина цепочки,  $e$  — заряд электрона. В недавних работах [29, 30] эта идея для определения максимальной скорости вихрей была реализована для сверхпроводника MoSi, где боковой разрез был сделан с помощью галиевого FIB (focused ion beam). На ВАХ полоски MoSi с боковым разрезом были обнаружены кинки, предсказанные в работе [27]. При этом найденная максимальная скорость вихрей 12 км/с согласуется с результатом, полученным стандартным методом в слабых полях для аналогичной полоски MoSi без разреза [2].

В нашей работе мы использовали этот метод для исследования динамики вихрей в сильнонеупорядоченном сверхпроводнике MoN с большим нормальным удельным сопротивлением в нулевом и слабом магнитных полях. Исследуемые полоски MoN характеризуются достаточно низкими значениями тока пиннинга и критическим током  $I_c$  в нулевом поле, близким к току распаривания ( $I_c(B=0) \approx 0.5 I_{dep}$ ) [25], что говорит об их достаточно высокой однородности. В этом отношении материал MoN похож на сверхпроводники типа MoSi [2] или NbC [1], где пиннинг также мал и критический ток в нулевом поле близок к току распаривания. Мы обнаружили кинки на ВАХ полосок MoN, определили максимальную скорость вихрей в нулевом магнитном поле,  $v_{max} \approx 3$  км/с, и эволюцию ВАХ в слабых полях. Величина  $v_{max}$  оказалась близкой к значению для таких сверхпроводников, как Nb, NbN [26, 31] или YBCO [32, 33], но значительно меньше, чем для MoSi [2], NbC [1] и Pb [34], где она превышает 10 км/с.

Таким образом, несмотря на схожие параметры полосок MoSi и MoN (близкие критические температуры, удельные сопротивления, геометрические размеры образцов и разрезов), различие в величинах максимальных скоростей вихрей достигает 4 раз при примерно одной и той же температуре. Мы связываем это различие с разницей во временах релаксации энергии неравновесных электронов в этих материалах, приводящей к существенно различным временам изменения модуля сверхпроводящего параметра порядка и различной вязкости движения вихрей.

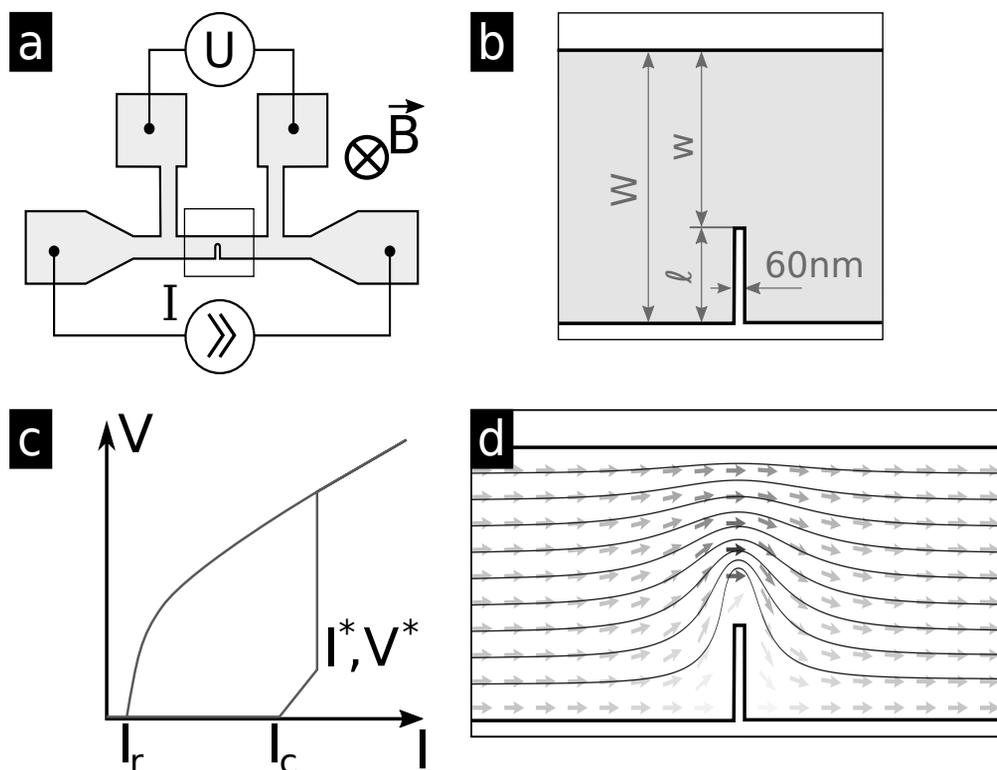


Рис. 1. Схемы исследуемой сверхпроводящей полоски с поперечным разрезом (a) и области разреза (b), общая схема ВАХ образца (c) и распределение плотности тока вблизи разреза (d)

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТ

В работе исследована серия сверхпроводящих полосок (ширина  $W = 2.5$  мкм, длина  $L = 30$  мкм), изготовленных плазмохимическим травлением из тонкой пленки нитрида молибдена MoN с последующим формированием бокового разреза. Пленки были выращены методом магнетронного напыления с базовым уровнем вакуума около  $1.5 \cdot 10^{-7}$  мбар на стандартных кремниевых подложках размером  $10 \times 10$  мм<sup>2</sup> без удаления оксидного слоя. Напыление молибдена осуществлялось в атмосфере смеси газов  $Ar : N_2 = 10 : 1$  при давлении  $1 \cdot 10^{-3}$  мбар при комнатной температуре. Толщина слоя  $d = 20$  нм была измерена методом рентгеновской дифрактометрии. Сверху был напылен защитный слой кремния толщиной 5 нм. Удельное сопротивление при температуре 10 К составило  $\rho = 150$  мкОм·см ( $R_{\square} = 75$  Ом). Критическая температура сверхпроводящего перехода равна 7.2 К, длина когерентности  $\xi \approx 6.4$  нм, лондоновская глубина проникновения  $\lambda \approx 400$  нм, откуда пирловская (эффективная) глубина проникновения  $\Lambda = \lambda^2/d \approx 8$  мкм.

Разрез на краю полоски (рис. 1b) был сформирован с помощью сфокусированного пучка ионов галлия. Ширина разреза составляла 60 нм (измере-

на с помощью электронного микроскопа на полувысоте разреза), длина разреза  $\ell$  равнялась 280 нм и 1300 нм. Критический ток в нулевом поле при температуре жидкого гелия для полоски без разреза равнялся  $I_c(B = 0) = 2$  мА (критическая плотность тока примерно  $4 \cdot 10^6$  А/см<sup>2</sup>). Увеличение длины разреза приводит к уменьшению критического тока до 1 мА при  $\ell = 280$  нм и 0.49 мА при  $\ell = 1300$  нм.

Транспортные измерения проводились стандартным четырехточечным методом в режиме постоянного заданного тока в транспортном гелиевом сосуде Дьюара при нормальном атмосферном давлении. При измерениях в магнитном поле образец был полностью погружен в жидкость (температура кипения 4.2 К). Магнитное поле ориентировано по нормали к поверхности образца. Для подавления высокочастотного шума используется симметричный аналоговый двухкаскадный RC-фильтр с шириной полосы  $\Delta f_{1/2} = 5$  кГц при комнатной температуре.

## 3. КИНКИ НА ВАХ

На рис. 2 приведены резистивные участки ВАХ образцов в нулевом магнитном поле до скачка в нормальное состояние. Резистивное состояние полностью определяется движением вихрей, как было показано на аналогичных образцах в работе [35] по

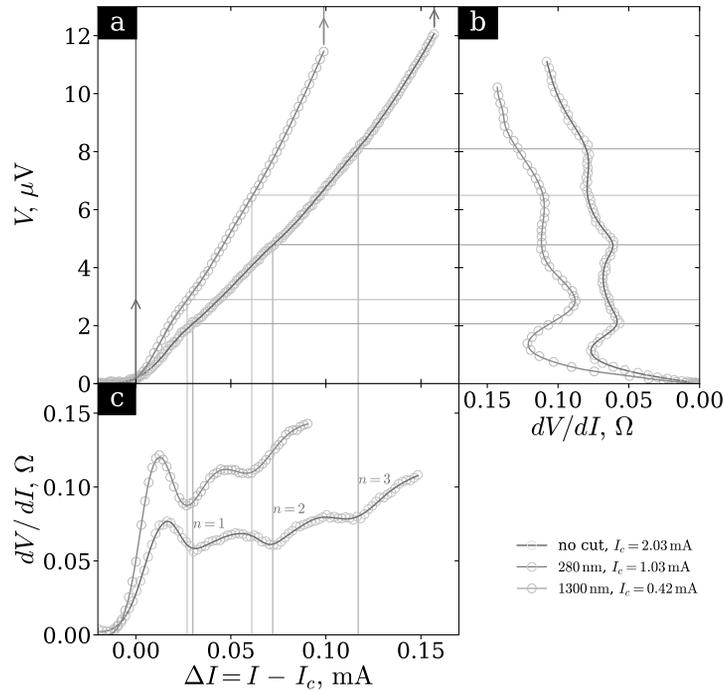


Рис. 2. (В цвете онлайн) ВАХ образцов в области резистивного состояния (a) и дифференциальное сопротивление (b, c)

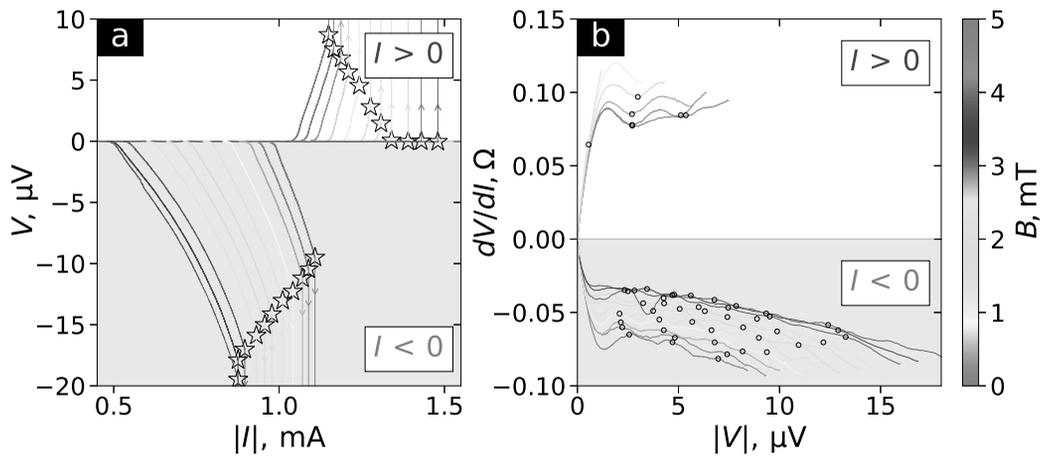


Рис. 3. (В цвете онлайн) Серия ВАХ для полосок с разрезом длиной  $\ell = 280$  нм в перпендикулярном магнитном поле (a) и серия зависимостей дифференциального сопротивления  $dV/dI$  от напряжения (b). Величина магнитного поля отображается цветом линий

результатам микроволновых измерений, где на ВАХ наблюдались ступени Шапиро.

Резистивные участки ВАХ безгистерезисные, пока ток не превышает тока срыва в нормальное состояние ( $I > I^*$  на рис. 1c). На резистивном участке ВАХ наблюдаются особенности типа «кинк», особенно хорошо различимые на дифференциальном сопротивлении  $dV/dI$  (рис. 2b,c). Как показано в работе [27], кинки на ВАХ соответствуют изменению количества вихрей, одновременно находящихся в сверхпроводнике. С ростом тока каждый последующий кинк связан с увеличением числа вихрей

на единицу. В промежутках между кинками в каждый момент времени есть  $n$  или  $n - 1$  вихрь, тогда как при напряжении (токе), соответствующем кинку, есть точно  $n$  вихрей. Численное моделирование показывает (см. разд. 5), что кинки на ВАХ соответствуют минимумам  $dV/dI$  на рис. 2. Дальнейшее увеличение тока приводит к срыву на ВАХ — скачкообразному переходу в нормальное состояние.

На рис. 3 приведена серия ВАХ в магнитном поле, перпендикулярном поверхности образца. В присутствии магнитного поля сверхток складывается из экранирующего, транспортного и вихревого то-

ков. Для положительного направления тока,  $I > 0$ , с ростом магнитного поля суммарная плотность тока вблизи вершины разреза уменьшается, а поперечное распределение плотности тока напротив разреза становится более однородным, что приводит к росту критического тока  $I_c^+$  и одновременному уменьшению тока срыва  $I^{+*}$  (см. рис. 3а,  $V > 0$ ); и наоборот, для отрицательного направления тока  $I^-$ , критический ток  $I_c^-$  уменьшается и возрастает ток срыва  $I^{-*}$  (см. рис. 3а,  $V < 0$ ). Более подробно такая невзаимность по отношению к направлению протекания тока рассмотрена в работе [36] для гибридной структуры MoN/Cu.

В слабых магнитных полях кинки на резистивном участке ВАХ наблюдаются до 2 мТл для положительного направления тока и до 4 мТл для отрицательного. Для положительного направления тока в полях более 2 мТл срыв в нормальное состояние наблюдается сразу по достижении критического тока. Для отрицательного направления тока для полей выше 4 мТл кинки на ВАХ не наблюдаются, что, видимо, связано со входом вихрей в полосу не только в области разреза.

Для всех значений магнитного поля сделаны оценки напряжения  $V_n$  (индекс соответствует номеру минимума, соответствующего числу вихрей в цепочке) для локальных минимумов на зависимости  $dV/dI$  от тока  $I$ , соответствующих кинкам на ВАХ (значения отмечены символами « $\circ$ » на рис. 4 и 3б). Поиск минимумов  $dV/dI$  проведен с использованием вейвлет-преобразования [37]. Как видно на рис. 4, для каждого  $n$  напряжение имеет линейную зависимость от магнитного поля:  $V_n = k_n B + b_n$ . Соответствующие прямые, полученные методом наименьших квадратов, изображены на рис. 4 сплошными линиями. Для направлений поля и токов, соответствующих рис. 3, коэффициенты  $k_n > 0$ , а напряжение  $V_n$  и средняя скорость вихрей  $\bar{v}_n$  возрастают с ростом поля.

На рис. 4 зелеными символами « $\circ$ » обозначены значения напряжений кинков  $V_n(0) < V^*(0)$ , доступные в эксперименте; недоступные значения обозначены символы « $\otimes$ » (фактически это линейная экстраполяция). Видно, что в наших образцах отсутствует эквидистантность напряжений кинков:  $V_n(0) \neq n V_0(0)$ , где  $V_0(0)$  — напряжение первого кинка. На рис. 5 приведены значения средней скорости  $\bar{v}_n(0)$ , полученные по формуле (1) для  $V_n(0)$ . Характерная величина средней скорости около 3 км/с по порядку величины совпадает с величинами, полученными для различных низкотемпературных и высокотемпературных сверхпроводников (примерно

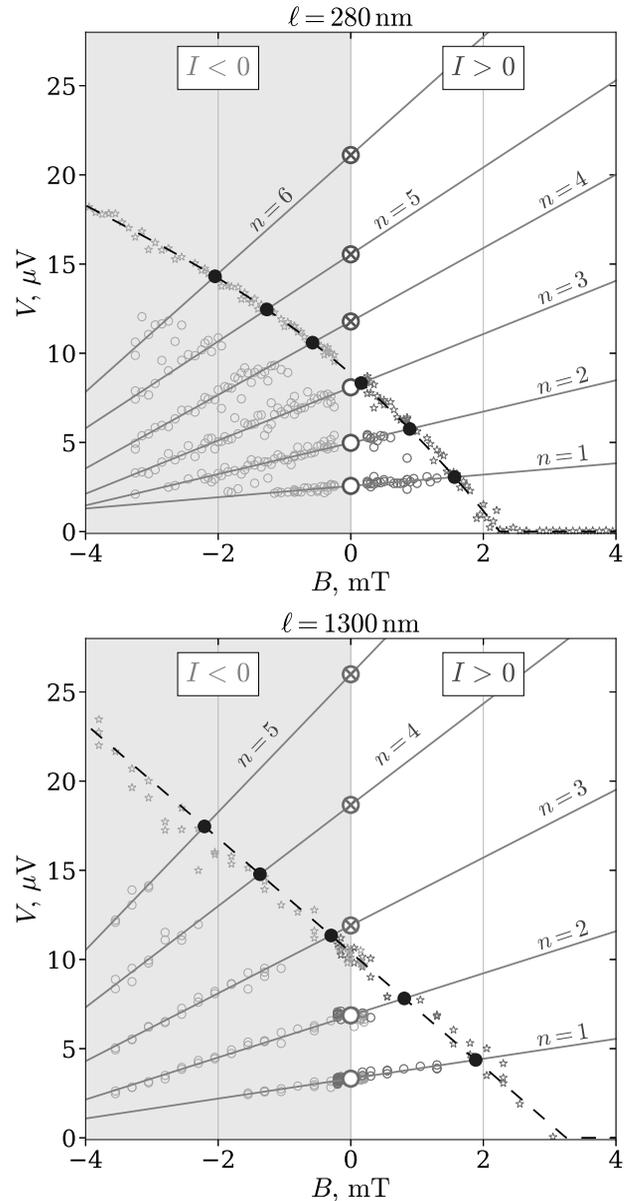


Рис. 4. (В цвете онлайн) Диаграмма напряжения кинков на ВАХ (символы  $\circ$ ), соответствующих заданному числу вихрей в цепочке для заданной величины перпендикулярного магнитного поля. Измерения проводились для одного направления магнитного поля  $B$ : знак поля на рисунке совпадает со знаком измерительного тока. Символами « $\otimes$ » обозначены напряжения срыва ВАХ, характер зависимости обозначен черными штриховыми линиями

2 км/с для Nb, NbN [26,31], MoN [25,38] и 3 км/с для YBCO [32,33])

Оценки скорости на основе реально измеренных и экстраполированных значений напряжения образуют линейную зависимость, за исключением случая, когда в цепочке только один вихрь ( $n = 1$ ). Линейный рост скорости противоречит модели Асламазова – Ларкина (АЛ), в которой оценка скоро-

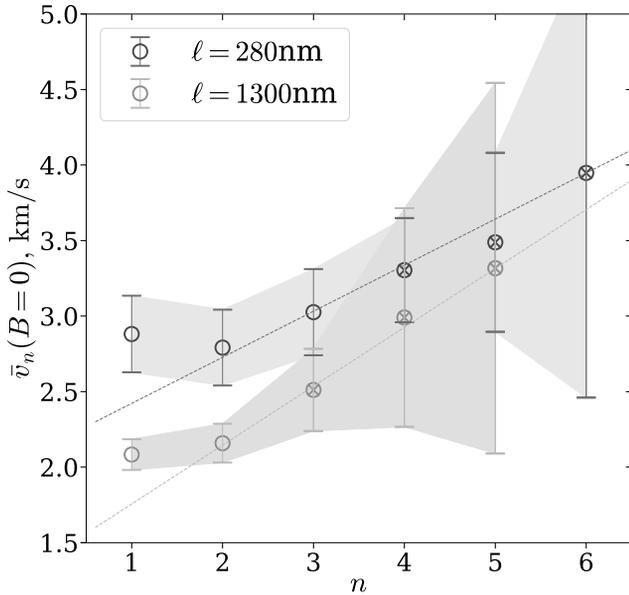


Рис. 5. (В цвете онлайн) Средняя скорость вихрей в нулевом магнитном поле для заданного числа вихрей в цепочке. Символами «○» обозначены измеренные значения, символами «⊗» — значения, не доступные для измерения из-за срыва ВАХ

сти не зависит от числа вихрей,  $\bar{v}_n = \text{const}$ . В то же время линейная зависимость возникает в нестационарной теории Гинзбурга – Ландау (ГЛ), см. работу [30] и разд. 4, а также в рамках модели Лондонов для разреза с конечным углом разворота [32]. В работе [30] похожая линейная зависимость  $\bar{v}_n(0)$  наблюдалась для MoSi, тогда как максимальная величина скорости была значительно больше и достигала 12 км/с.

Качественное различие поведения системы в случае одного вихря проявляется в различии не только средних скоростей, но и в наклоне полевой зависимости напряжения,  $k_1 = dV_1/dB$ . Возможно, причина такого отклонения заключается в неучете конечного времени зарождения вихря. Таким образом, оценка средней скорости вихревого движения по первому кинку может давать завышенный результат, выходящий за пределы общей тенденции.

#### 4. НЕУСТОЙЧИВОСТЬ ВИХРЕВОГО ДВИЖЕНИЯ

Максимально достижимая скорость вихрей фактически ограничена срывом ВАХ вследствие неустойчивости вихревого движения. На рис. 3 и 4 срыв происходит при напряжении  $V^*$  и обозначен символами «\*». Для каждого  $n$  напряжение  $V_n^*$  определяется как пересечение прямых  $V_n(B)$  и кривой  $V^*(B)$  (обозначены на рис. 4 синими символами «○»). Максимальные средние скорости  $\bar{v}_n^*$ ,

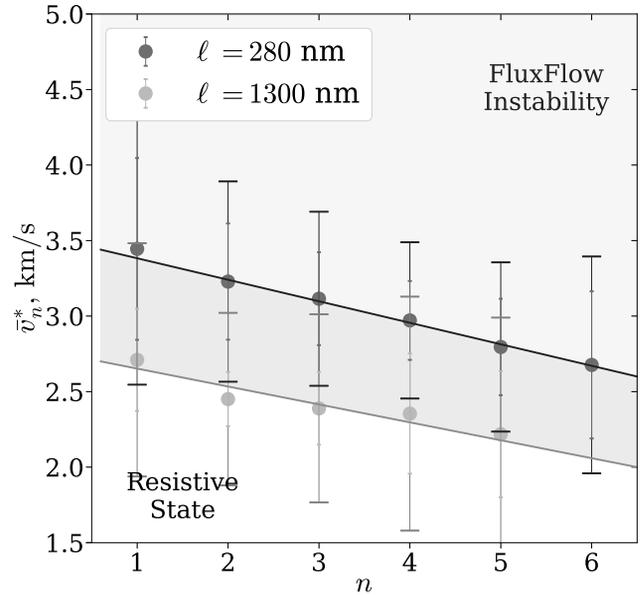


Рис. 6. (В цвете онлайн) Максимальная средняя скорость как функция числа вихрей в последовательности в магнитном поле вблизи неустойчивости потока вихрей

полученные по формуле (1) (рис. 6), имеют практически линейную зависимость от числа вихрей для обоих образцов. Наибольшее значение скорости  $\bar{v}_n^*$  достигается при  $n = 1$  в магнитном поле около 2 мТл.

Транспортные характеристики нашей системы в зависимости от магнитного поля можно условно разделить на три участка (рис. 7). В области I есть резистивный участок на ВАХ, но кинки отсутствуют, что, по-видимому, связано с входом вихрей через естественные дефекты на краю образца за пределами разреза. В области II на ВАХ наблюдаются кинки. Для транспортного тока в диапазоне  $I_c < I < I^*$  есть возможность оценить среднюю скорость вихрей  $\bar{v}^*$  в момент срыва и мощность  $P^*$  (рис. 7c, d), рассеиваемую в виде джоулева тепла. В области III ток срыва совпадает с критическим током,  $I_c = I^*$ , и резистивный участок отсутствует. Иными словами, вход уже первого вихря приводит к развитию неустойчивости и срыву полоски в нормальное состояние. Объяснением для этого эффекта является «выравнивание» распределения плотности тока напротив разреза, что следует из расчетов, приведенных ниже (см. рис. 9b). Из соображений симметрии максимум  $I_c$  соответствует максимально симметричному распределению плотности тока и равновероятному входу пары вихрь–антивихрь (напротив разреза). Дальнейшее увеличение поля приводит к тому, что критический ток начинает определяться входом антивихрей со стороны, противоположной разрезу.

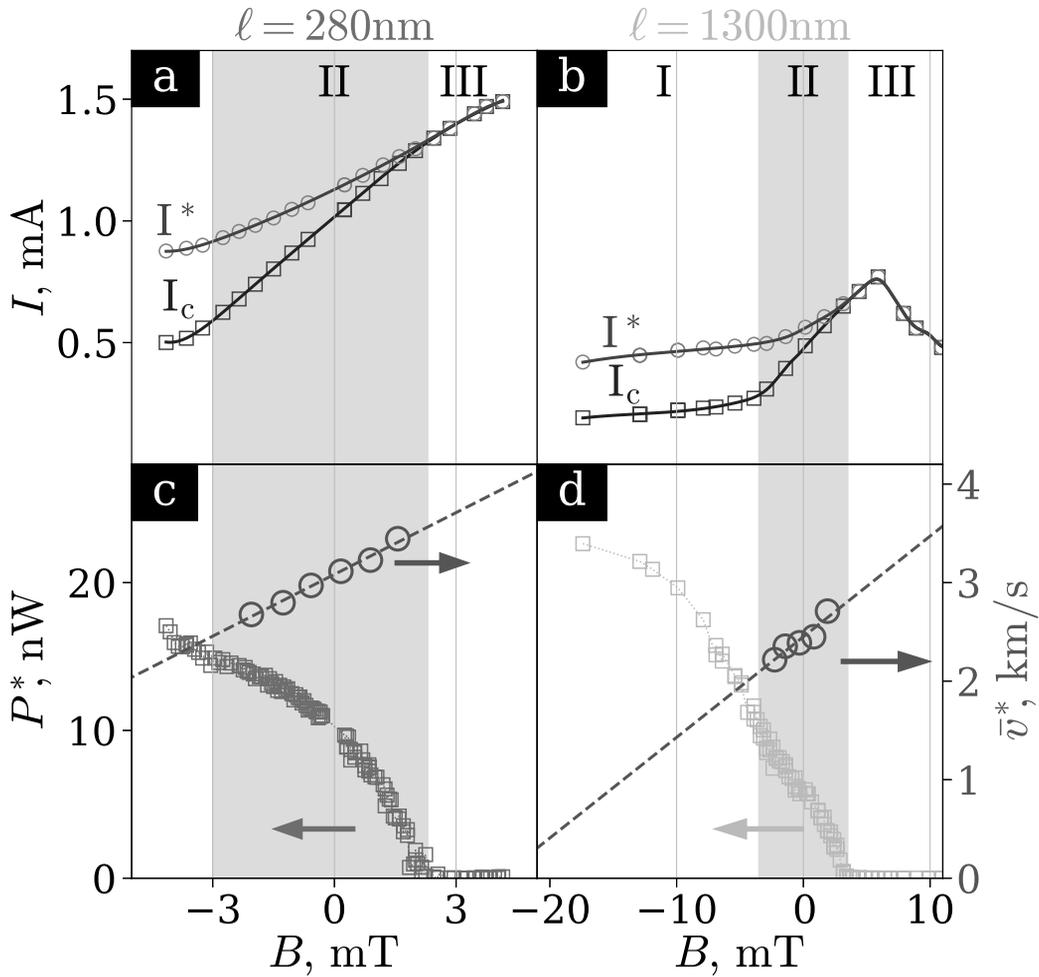


Рис. 7. (В цвете онлайн) Диаграммы полевых зависимостей критического тока  $I_c$  и тока срыва  $I^*$  (a,b), а также рассеиваемой электрической мощности (c,d) для полосок с различной длиной разреза. Скорость в момент срыва ВАХ обозначена зелеными символами « $\circ$ »

Заметим, что мощность  $P^*$ , рассеиваемая в момент срыва, сильно зависит от поля, что может свидетельствовать о не чисто тепловом механизме неустойчивости [39].

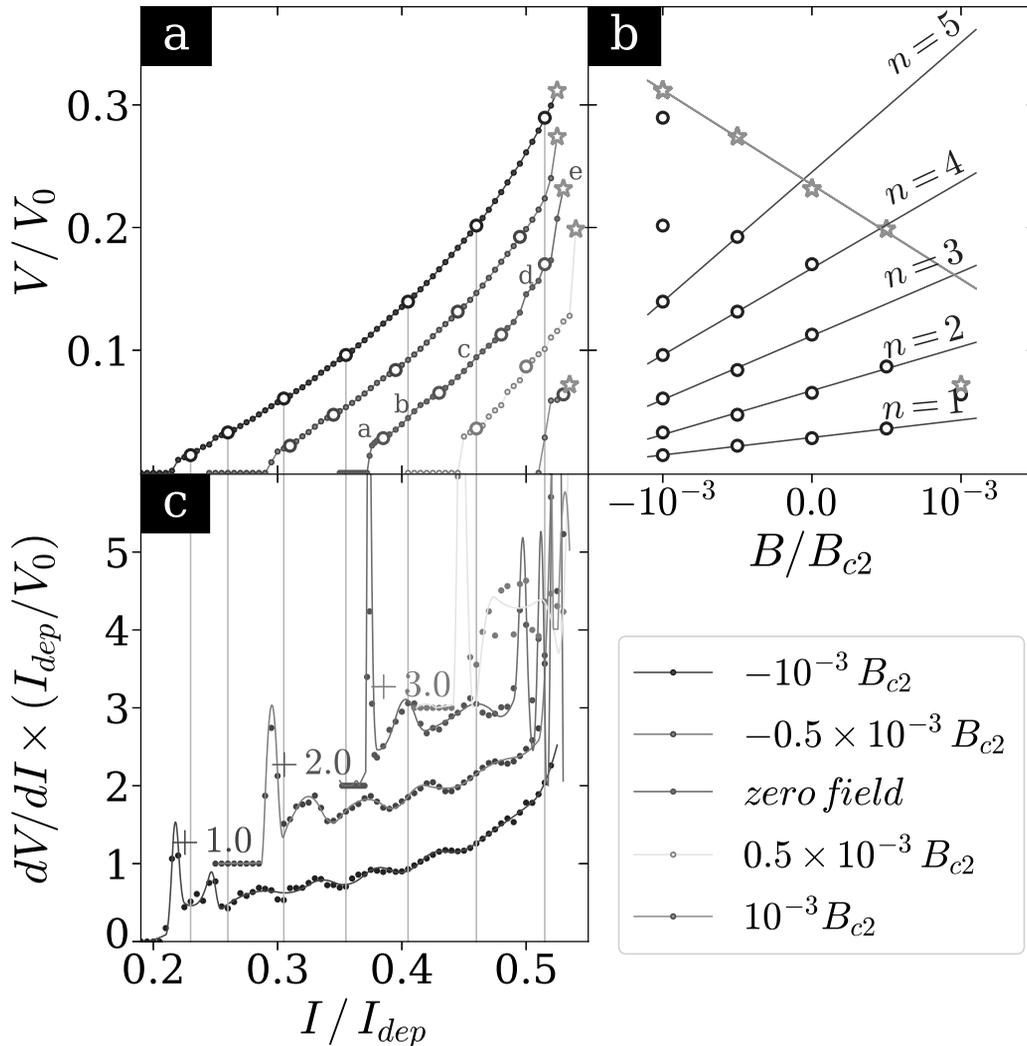
### 5. ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

Мы выполнили численное моделирование динамики вихрей в сверхпроводящей полоске с боковым разрезом, используя двумерное нестационарное уравнение ГЛ [40] и уравнение теплопроводности, описывающее изменение электронной температуры за счет джоулева разогрева (детальное описание модели приведено в работе [35]). Данная модель дает качественное понимание физических процессов в резистивном состоянии, поскольку, строго говоря, она количественно верна только вблизи  $T_c$ .

Использованная модель справедлива при условии малого времени электрон-электронного неупру-

го рассеяния, обеспечивающего быструю термализацию внутри электронной подсистемы и установление электронной температуры  $T_e$ , отличной от фоновой температуры  $T_p$  и температуры подложки  $T_0$  (предполагается, что  $T_p = T_0$  и  $T_e - T_0 \ll T_0$ ). Время релаксации электронной температуры равнялось  $\tau_E = 30\tau_c$  ( $\tau_c = \hbar/k_B T_c$ ), как и в [35]. Необходимо отметить, что в рамках выбранной модели некоторые результаты (наличие кинков, структуры движущегося массива вихрей) слабо зависят от выбора  $\tau_E$ , так как до перехода к токам, близким к току появления «вихревой речки» (линии проскальзывания фазы) и срыва в нормальное состояние, нагрев слаб, и рост/уменьшение  $\tau_E$  приводит просто к уменьшению/росту  $I^*$ .

В расчетах ширина сверхпроводящей полоски была выбрана равной  $W = 200 \xi_c$  (что примерно вдвое меньше экспериментальной при характерном для MoN значении  $\xi_c \simeq 6.2$  нм, где  $\xi_c^2 = \hbar D/k_B T_c$ ,



**Рис. 8.** (В цвете онлайн) Рассчитанные ВАХ (a) и дифференциальное сопротивление (b) для нескольких магнитных полей. На рис. a и b символами «o» обозначены точки с целым числом  $n$  вихрей в цепочке, символами «\*» — точки срыва ВАХ. Зависимости  $dV/dI$  изображены со смещением по оси абсцисс для улучшения визуального восприятия

для MoN коэффициент диффузии  $D \simeq 0.4 \text{ см}^2/\text{с}$  [38, 41]). Выбор длины полоски, равной ее ширине, минимизирует влияние токовых контактов на динамику вихрей вблизи разреза и позволяет уменьшить время вычислений. Длина разреза  $\ell = 50\xi_c$ , а ширина  $6\xi_c$  выбрана из того соображения, что при такой ширине при всех токах в сверхпроводнике реализуется вихревой веер (когда количество вихрей становится больше одного). На границах разреза с вакуумом использовалось граничное условие  $d\Psi/dn = 0$ , где  $\Psi = \Delta \exp(i\phi)$  — комплексный сверхпроводящий параметр порядка,  $\Delta$  и  $\phi$  — его модуль и фаза. Постоянный транспортный ток дается в единицах тока распаривания ГЛ  $I_{dep}$ , напряжение в единицах  $V_0 = k_B T_c / |e|$ , напряженность магнитного поля в единицах  $B_0 = \Phi_0 / 2\pi\xi_c^2$ .

Расчетные ВАХ при постоянном токе и их производные приведены на рис. 8a, c. Напряжения, соответствующие целому числу вихрей (символы «o» на рис. 8) не образуют эквидистантной последовательности, предсказанной в модели АЛ [27], что качественно совпадает с экспериментом. Кроме того, напряжения, соответствующие заданному числу вихрей  $n$ , образуют линейную зависимость от магнитного поля как в численном счете, так и в эксперименте (см. рис. 8b и 4). Скорость вихрей слабо меняется с ростом тока, рост напряжения связан в основном с ростом количества вихрей при увеличении тока, как и в модели АЛ. Резкий рост напряжения при  $I \sim I_c$  объясняется быстрым уменьшением времени входа вихря  $T_{en}(I)$  при увеличении тока, где он вносит большой вклад в общий период  $T_{tot} = T_{en} + T_{fl}$

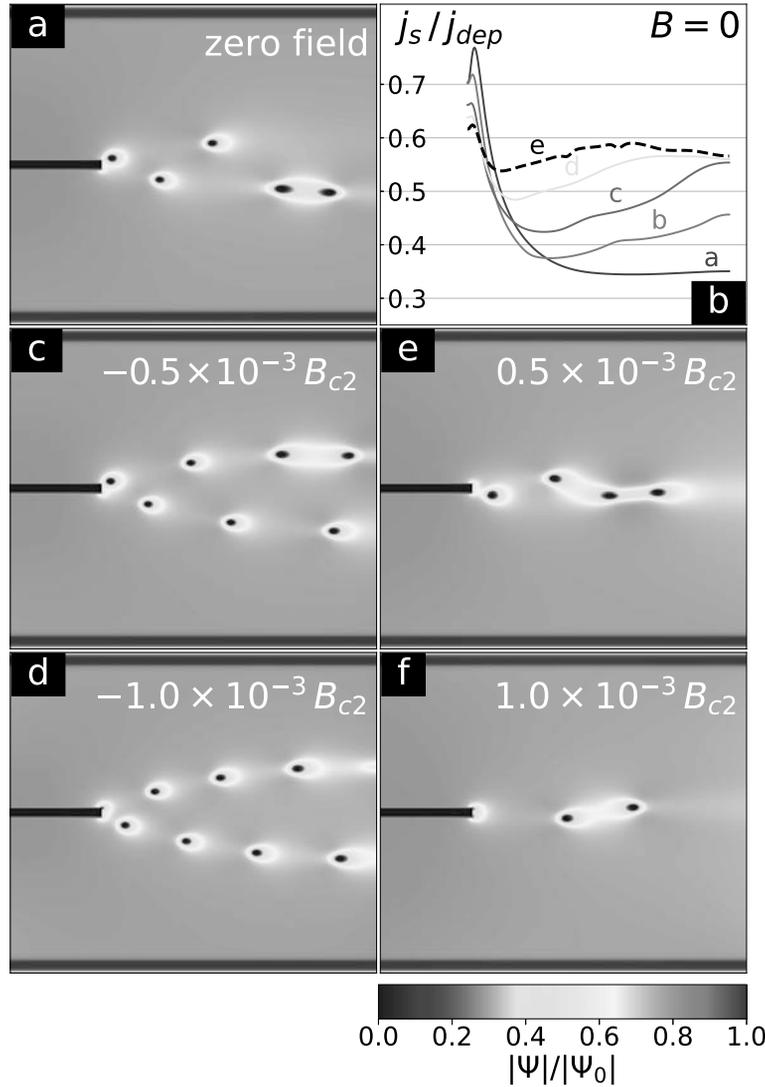


Рис. 9. (В цвете онлайн) Распределение модуля параметра порядка при токе, предшествующем срыву ВАХ

( $T_{fl}$  — время пролета вихря поперек полоски, напряжение при этом  $V = \pi\hbar/|e|T_{tot}$ ). При токах, при которых появляются кинки на ВАХ, имеем  $T_{en} \ll T_{fl}$ , и можно считать, что  $T_{tot} \simeq T_{fl}$ .

При выбранной ширине разреза в полоске всегда реализуется вихревой веер из-за поочередного входа вихрей с разных углов разреза (для узкого разреза с шириной не более  $2\xi_c$  характерно наличие цепочки вихрей в нулевом поле [35], как и в модели АЛ [27]). Причиной возникновения веера является отталкивание между вихрями одного знака, причем угол расходимости веера зависит от числа вихрей, что особенно хорошо заметно вблизи срыва (рис. 9). Заметим, что наличие вихревого веера, а не цепочки не приводит к исчезновению кинков на ВАХ. Действительно, наличие кинков связано со влиянием на вход вихрей вблизи разреза уже вошедших вихрей, а этот эффект остается и в вихревом веере. Неэквиди-

стантность напряжений, обсуждаемая выше, также не связана с наличием веера, так как данный эффект существует и для узкого разреза, когда реализуется цепочка вихрей, а также в модели Лондонов для разреза конечной ширины [32]. Вихревой веер ранее наблюдался экспериментально в работе [42] для полоски MoSi с краевым дефектом, однако кинки на ВАХ обнаружены не были. Возможно, их отсутствие связано с достаточно большой температурой эксперимента, так как кинки также пропадали с ростом температуры [30]. В нашем сверхпроводнике кинки становились экспериментально неразличимыми при  $T \gtrsim 6.5$  К, при этом  $v_{max} \approx 1.3$  км/с, что, вероятно, связано с увеличением роли флуктуаций вблизи  $T_c$ .

На рис. 9b показан профиль усредненной по времени плотности сверхтока  $j_s$  поперек полоски напротив разреза при нескольких значениях тока

$I > I_c$  в нулевом магнитном поле. Виден большой градиент  $\nabla j_s$ , что означает координатно-зависящую скорость вихрей напротив разреза. С увеличением тока, величина  $j_s$  на противоположном от разреза краю полоски увеличивается, что приводит к входу антивихрей при  $I \geq 0.5I_{dep}$  при наших параметрах. Это сопровождается усложнением динамики вихрей, появлением нескольких периодов на временной зависимости  $V(t)$  и приводит к более сильному росту напряжения с увеличением тока, что видно на рис. 8a. Приложение отрицательного магнитного поля увеличивает градиент  $\nabla j_s$  напротив разреза (при этом критический ток уменьшается по сравнению с  $I_c(B = 0)$  и увеличивается диапазон токов, где существует резистивная ветка с движущимися вихрями), тогда как положительное поле его уменьшает, что сопровождается ростом  $I_c$  в слабых полях и уменьшением диапазона токов с вихревой резистивной веткой.

Срыв ВАХ в численном эксперименте происходит при близких значениях транспортного тока для всех представленных значений малых магнитных полей (символы «\*» на рис. 8a). Вблизи тока срыва распределение плотности тока в целом приближается к равномерному, как показано на рис. 9b. Только при достаточно больших полях (здесь не показаны), когда вихри начинают входить в полоску не только через разрез или напротив него, ток  $I^*$  начинает уменьшаться с ростом поля.

На рис. 9a, c–f изображена серия расчетных пространственных распределений параметра порядка вблизи срыва ВАХ в случайный момент времени. Темно-синие области напротив разреза представляют собой нормальные сердцевинки вихрей. Поскольку параметр порядка обладает конечным временем релаксации  $\tau_\Delta$ , при достаточно высокой скорости движения вихрей параметр порядка не успевает восстановиться за время пролета вихря:  $\tau_\Delta \sim w/n\bar{v}$  [43]. В таком случае между сердцевинами вихрей появляются области подавленного параметра порядка (светло-желтые и голубые области на рис. 9). Подавление параметра порядка  $\Delta$  приводит к увеличению скорости движения вихрей, так как вихрю легче двигаться в области с уже подавленным модулем параметра порядка. Дальнейшее повышение тока приводит к смыканию линии подавленного параметра  $\Delta$  и формированию вихревой речки, являющейся аналогом линии проскальзывания фазы [44, 45]. Движение вихрей внутри линии проскальзывания фазы имеет нестабильный характер, их скорость растет со временем, и абрикосовские вихри превращаются в аналог джозефсоновских вихрей, что приводит к

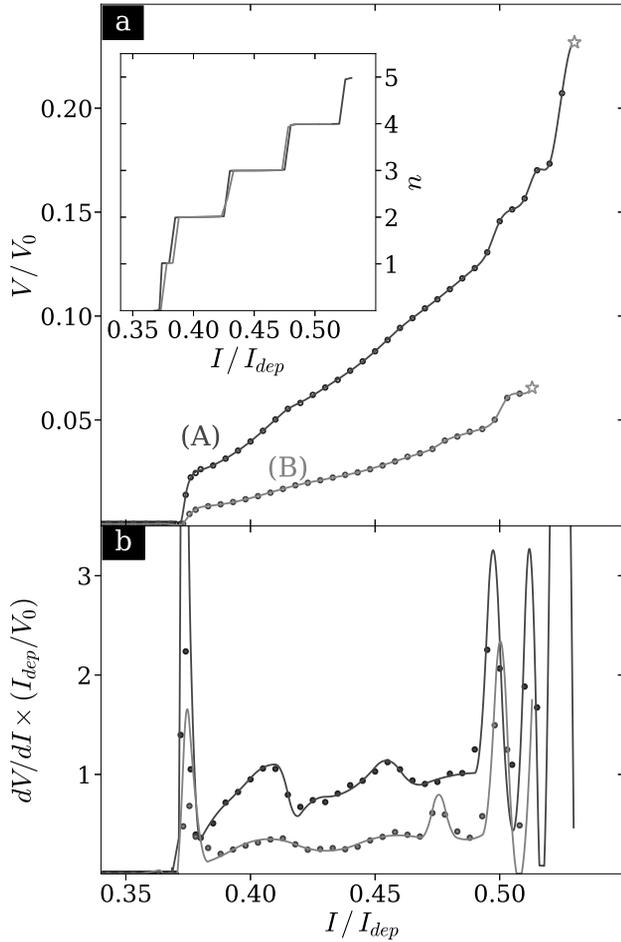
полному подавлению параметра порядка и формированию нормальной перемычки. Джоулев нагрев внутри нормальной перемычки ведет к формированию нормального домена, быстро расширяющегося до размеров всей полоски.

## 6. ОБСУЖДЕНИЕ

Полученное значение максимальной скорости вихрей в полоске MoN с разрезом оказалось близким к значению  $v_{max} \approx 2.5$  км/с, полученному в слабых полях  $B \sim B_s$  стандартным методом [25, 38]. Таким образом, как используемый метод для определения максимальной скорости вихрей, так и стандартный метод дают приблизительно одинаковые результаты (если не идет речь о совсем малых полях  $B \ll B_s$ ).

Сравнение экспериментальных данных с численными показывает, что для полоски MoN с разрезом неустойчивость вихревого движения связана с упорядочением движения вихрей, т. е. с коллективным эффектом, приводящим к появлению вихревой речки линии проскальзывания фазы. Аналогичный вывод можно сделать и для полоски без разреза, во всяком случае в слабых полях, что следует из их близких максимальных скоростей вихрей. По-видимому, то же самое можно сказать и про полоски MoSi, где величины  $\bar{v}^*$  для полосок с разрезом и без разреза также близки [2, 30].

Необходимо отметить четырехкратное различие скоростей  $v_1$  даже одиночных вихрей (при напряжениях, соответствующих первому кинку на ВАХ) для двух схожих (по материальным параметрам — критической температуре, удельному сопротивлению, геометрическим размерам, величине критических токов) сверхпроводников MoN и MoSi. По-видимому такое различие можно объяснить различным влиянием неравновесных эффектов на динамику сверхпроводящего параметра порядка в этих материалах. Действительно, при  $I \sim I_c$  в области напротив разреза плотность тока близка к плотности тока распиривания по всей ширине полоски (см. рис. 8b). Это означает, что на входящий вихрь будет действовать большая сила Лоренца, приводящая к большой скорости вихря уже при  $I \sim I_c$ , а значит, и большому влиянию неравновесных эффектов. Движение вихря сопровождается изменением во времени параметра порядка  $\Delta$  в его коре, что в свою очередь является источником неравновесия электронов/квазичастиц. Одним из таких следствий может являться сильное замедление изменения параметра порядка во времени, что было показано теоретически [46] и продемонстрировано в экспериментах по подавлению сверх-



**Рис. 10.** (В цвете онлайн) Рассчитанные ВАХ для полоски с разрезом в нулевом магнитном поле при различных значениях коэффициента при  $d\Psi/dt$  в нестационарном уравнении ГЛ, отвечающего за время изменения параметра порядка  $\Delta = |\Psi|$ . Синяя кривая *A* соответствует значению коэффициента  $\pi\hbar/8k_B T_c$ , красная *B* —  $4(\pi\hbar/2k_B T_c)$

проводимости импульсом тока [47, 48]. В случае медленного изменения  $\Delta$  (на масштабе времени неупругого электрон-фононного неупругого рассеяния  $\tau_{ep}$ ) это приводит ко времени изменения  $\Delta$ :

$$\tau_{\Delta} \sim \tau_{GL} \tau_{ep} \Delta / \hbar \gg \tau_{GL},$$

где  $\tau_{GL} = \hbar/k_B(T_c - T)$  — время изменения  $\Delta$  без учета неравновесных эффектов. Этот эффект учитывается в модифицированном (обобщенном) временном уравнении ГЛ, где  $\tau_{ep}$  входит в коэффициент при  $d\Delta/dt$  [49]. Качественно этот эффект можно учесть и в обычном временном уравнении ГЛ, меняя величину коэффициента при  $d\Psi/dt$ . Так, на рис. 10 показаны рассчитанные ВАХ при двух значениях этого коэффициента: как в обычном уравнении ГЛ ( $\pi\hbar/8k_B T_c$ ), так и в четыре раза большем значении  $4(\pi\hbar/2k_B T_c)$ . Рост этого коэффициента сильно

изменил величину напряжения, тогда как наличие кинков и вихревого веера осталось без изменения. Увеличение этого коэффициента привело также к появлению линии проскальзывания фазы при меньшем токе что, по-видимому, связано с увеличением  $\tau_{\Delta}$  и более медленному возрастанию  $\Delta$  в области за прошедшим вихрем. Количественное сравнение теории и эксперимента здесь затруднительно, так как предположение о локальном равновесии в эксперименте нарушается. При  $v = 2$  км/с проход вихря на расстояние  $2\xi \approx 12$  нм (размер кора вихря) требует времени  $2\xi/v \approx 6$  пс, что значительно меньше любого характерного времени  $\tau_{ep}$  для любого низкотемпературного сверхпроводника [1, 2, 26, 49]. Однако физические последствия обсуждаемого механизма возникновения неравновесия должны остаться и в этом предельном случае, что частично следует из результатов работы [50], в которой исследовалась динамика параметра порядка  $\Delta$  за пределами применимости локального приближения.

Отметим, что переход при  $I > I^*$  в полоске MoN происходит в нормальное состояние, тогда как полоска MoSi переходит в более резистивное, но не нормальное состояние. Предположительно большая разница в значениях  $\tau_{ep}$  для MoN и MoSi позволяет качественно объяснить и этот эффект.

## 7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В нашей работе экспериментально исследованы транспортные характеристики сверхпроводящих полосок MoN с одиночным разрезом около одного из краев полоски в слабых магнитных полях. На резистивном участке ВАХ обнаружены кинки, которые соответствуют увеличению на единицу числа вихрей в полоске при изменении тока. Идентификация числа вихрей в полоске позволяет оценить их среднюю скорость, которая в нашем случае достигает 3 км/с. Сравнение с теоретическими расчетами позволяет сделать утверждение, что переход сверхпроводника в нормальное состояние происходит из-за преобразования цепочки/веера движущихся вихрей в линию проскальзывания фазы и последующего развития тепловой неустойчивости. Сравнение со сверхпроводником MoSi, имеющим близкие сверхпроводящие параметры, но в четыре раза более высокую скорость вихрей, указывает на различные времена неупругого рассеяния электронов на фононах в этих материалах, что влияет на скорость вихрей даже при  $I \sim I_c$ .

**Финансирование** Работа выполнена в рамках госзадания ИФМ РАН FFUF-2021-0020.

## ЛИТЕРАТУРА

1. O. V. Dobrovolskiy, D. Yu. Vodolazov, F. Porrati, R. Sachser, V. M. Bevz, M. Yu. Mikhailov, A. V. Chumak, and M. Huth, *Ultra-Fast Vortex Motion in a Direct-Write Nb-C Superconductor*, *Nature Comm.* **11**, 3291 (2020).
2. B. Budinska, B. Aichner, D. Yu. Vodolazov, M. Yu. Mikhailov, F. Porrati, M. Huth, A. V. Chumak, W. Lang, and O. V. Dobrovolskiy, *Rising Speed Limits for Fluxons via Edge-Quality Improvement in Wide MoSi Thin Films*, *Phys. Rev. A* **17**, 034072 (2022).
3. D. Y. Vodolazov, *Single-Photon Detection by a Dirty Current-Carrying Superconducting Strip Based on the Kinetic-Equation Approach*, *Phys. Rev. A* **7**, 034014 (2017).
4. B. I. Ivlev, S. Mejia-Rosales, and M. N. Kunchur, *Cherenkov Resonances in Vortex Dissipation in Superconductors*, *Phys. Rev. B* **60**, 12419 (1999).
5. L. N. Bulaevskii and E. M. Chudnovsky, *Sound Generation by the Vortex Flow in Type-II Superconductors*, *Phys. Rev. B* **72**, 094518 (2005).
6. O. V. Dobrovolskiy, Q. Wang, D. Yu. Vodolazov, B. Budinska, R. Sachser, A. V. Chumak, M. Huth, and A. I. Buzdin, *Cherenkov Radiation of Spin Waves by Ultra-Fast Moving Magnetic Flux Quanta*, <http://arxiv.org/abs/2103.10156v1> (2021).
7. A. Shekhter, L. N. Bulaevskii, and C. D. Batista, *Vortex Viscosity in Magnetic Superconductors due to Radiation of Spin Waves*, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 037001 (2011).
8. A. A. Beshpalov, A. S. Melnikov, and A. I. Buzdin, *Magnon Radiation by Moving Abrikosov Vortices in Ferromagnetic Superconductors and Superconductor-Ferromagnet Multilayers*, *Phys. Rev. B* **89**, 054516 (2014).
9. A. V. Chumak, V. I. Vasyuchka, A. A. Serga, and B. Hillebrands, *Magnon Spintronics*, *Nature Phys.* **11**, 453 (2015).
10. D. Bozhko, V. Vasyuchka, A. Chumak, and A. Serga, *Magnon-Phonon Interactions in Magnon Spintronics*, *Low Temp. Phys.* **46**, 462 (2020); <https://doi.org/10.1063/10.0000872>.
11. I. A. Golovchanskiy, N. N. Abramov, V. S. Stolyarov, V. V. Bolginov, V. V. Ryazanov, A. A. Golubov, and A. V. Ustinov, *Ferromagnet/Superconductor Hybridization for Magnonic Applications*, *Adv. Func. Mater.* **28**, 1802375 (2018).
12. O. V. Dobrovolskiy, R. Sachser, T. Brächer, T. Bötcher, V. V. Kruglyak, R. V. Vovk, V. A. Shklovskij, M. Huth, B. Hillebrands, and A. V. Chumak, *Magnon-Fluxon Interaction in a Ferromagnet/Superconductor Heterostructure*, *Nature Phys.* **15**, 477 (2019); <https://doi.org/10.1038/s41567-019-0428-5>.
13. J. Bardeen and M. J. Stephen, *Theory of the Motion of Vortices in Superconductors*, *Phys. Rev.* **140**, A1197 (1965).
14. M. Tinkham, *Introduction to Superconductivity*, McGraw-Hill New York (1996).
15. А. И. Ларкин, Ю. Н. Овчинников, *Нелинейная проводимость сверхпроводников в смешанном состоянии*, *ЖЭТФ* **68**, 1915 (1975).
16. Л. Е. Мусиенко, И. М. Дмитриенко, В. Г. Волоцкая, *О нелинейной проводимости тонких пленок в смешанном состоянии*, *Письма в ЖЭТФ* **31**, 603 (1980).
17. A. I. Bezuglyj and V. A. Shklovskij, *Effect of Self-Heating on Flux Flow Instability in a Superconductor near  $T_c$* , *Physica C* **202**, 234 (1992).
18. D. Yu. Vodolazov, *Flux-Flow Instability in a Strongly Disordered Superconducting Strip with an Edge Barrier for Vortex Entry*, *Supercond. Sci. Technol.* **32**, 115013 (2019).
19. K. S. Ilin, M. Lindgren, M. Currie, A. D. Semenov, G. N. Goltsman, and R. Sobolewski, *Picosecond Hot-Electron Energy Relaxation in NbN Superconducting Photodetectors*, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 2752 (2000).
20. L. Zhang, L. You, X. Yang, J. Wu, C. Lv, Q. Guo, W. Zhang, H. Li, W. Peng, Z. Wang, and X. Xie, *Hotspot Relaxation Time of NbN Superconducting Nanowire Single-Photon Detectors on Various Substrates*, *Sci. Rep.* **8**, 1486 (2018).
21. A. V. Silhanek, A. Leo, G. Grimaldi, G. R. Berdiyurov, M. V. Milosevic, A. Nigro, S. Pace, N. Verellen, W. Gillijns, V. Metlushko, B. Ilic, Xiaobin Zhu, and V. V. Moshchalkov, *Influence of Artificial Pinning on Vortex Lattice Instability in Superconducting Films*, *New J. Phys.* **14**, 053006 (2012).
22. V. A. Shklovskij, A. P. Nazipova, and O. V. Dobrovolskiy, *Pinning Effects on Self-Heating and Flux-Flow Instability in Superconducting Films Near  $T_c$* , *Phys. Rev. B* **95**, 184517 (2017).
23. O. V. Dobrovolskiy, V. A. Shklovskij, M. Hanefeld, M. Zorb, L. Kohs, and M. Huth, *Pinning Effects on Flux-Flow Instability in Epitaxial Nb Thin Films*, *Supercond. Sci. Technol.* **30**, 085002 (2017).
24. A. I. Bezuglyj, V. A. Shklovskij, R. V. Vovk, V. M. Bevz, M. Huth, and O. V. Dobrovolskiy, *Local Flux-Flow Instability in Superconducting Films near  $T_c$* , *Phys. Rev. B* **99**, 174518 (2019).
25. S. S. Ustavshchikov, M. Yu. Levichev, I. Yu. Pashenkin, A. M. Klushin, and D. Yu. Vodolazov, *Approaching Depairing Current in Dirty Superconducting Strip Covered by Low Resistive Normal Metal*, *Supercond. Sci. Technol.* **34**, 015004 (2021).

26. G. Grimaldi, A. Leo, P. Sabatino, G. Carapella, A. Nigro, S. Pace, V. V. Moshchalkov, and A. V. Silhanek *Speed limit to the Abrikosov Lattice in Mesoscopic Superconductors*, Phys. Rev. B **92**, 024513 (2015).
27. Л. Г. Асламазов, А. И. Ларкин, *Эффект Джозефсона в широких сверхпроводящих мостиках*, ЖЭТФ **68**, 766 (1975).
28. A. K. Geim, S. V. Dubonos, J. G. S. Lok, M. Henini, and J. C. Maan, *Paramagnetic Meissner Effect in Small Superconductors*, Nature **396**, 144 (1998).
29. V. M. Bevz, B. Budinska, S. Lamb-Camarena, S. O. Shpilinska, C. Schmid, M. Yu. Mikhailov, W. Lang, and O. V. Dobrovolskiy, *Vortex Chains and Vortex Jets in MoSi Microbridges*, Phys. Status Sol. (RRL) 2200513 (2023), <https://doi.org/10.1002/pssr.202200513>.
30. V. M. Bevz, M. Yu. Mikhailov, B. Budinská, S. Lamb-Camarena, S. O. Shpilinska, A. V. Chumak, M. Urbánek, M. Arndt, W. Lang, and O. V. Dobrovolskiy, *Vortex Counting and Velocimetry for Slitted Superconducting Thin Strips*, Phys. Rev. Appl. **19**, 034098 (2023).
31. A. Leo, G. Grimaldi, R. Citro, A. Nigro, S. Pace, and R. P. Huebener, *Quasiparticle Scattering Time in Niobium Superconducting Films*, Phys. Rev. B **84**, 014536–1–7 (2011).
32. M. J. M. E. de Nivelles, G. J. Gerritsma, H. Rogalla, *Coherent Vortex Motion in YBaCuO Nanobridges Prepared by a Substrate-Etching Technique*, Physica C **233**, 185 (1994).
33. M. V. Pedyash, G. J. Gerritsma, D. H. A. Blank, and H. Rogalla, *Coherent Vortex Motion in Superconducting Nanobridges Based on YBCO Thin Films*, IEEE Trans. Appl. Supercond. **5**, 1387 (1995).
34. L. Embon, Y. Anahory, Z. L. Jelic, E. O. Lachman, Y. Myasoedov, M. E. Huber, G. P. Mikitik, A. V. Silhanek, M. V. Milosevic, A. Gurevich, and E. Zeldov, *Imaging of Super-Fast Dynamics and Flow Instabilities of Superconducting Vortices*, Nature Comm. **8**, 85 (2017).
35. С. С. Уставщиков, М. Ю. Левичев, И. Ю. Пашенькин, Н. С. Гусев, С. А. Гусев, Д. Ю. Водолазов, *Отрицательное дифференциальное сопротивление и ступеньки Шапиро в полоске MoN с разрезом*, Письма в ЖЭТФ **115**, 658 (2022).
36. С. С. Уставщиков, М. Ю. Левичев, И. Ю. Пашенькин, Н. С. Гусев, С. А. Гусев, Д. Ю. Водолазов, *Двухдольный эффект в сверхпроводящей гибридной полоске Cu/MoN с боковым разрезом*, ЖЭТФ **162**, 262 (2022).
37. P. Du, W. A. Kibbe, and S. M. Lin, *Improved Peak Detection in Mass Spectrum by Incorporating Continuous Wavelet Transform-Based Pattern Matching*, Bioinformatics **22**, 2059 (2006).
38. N. Haberkorn, *Thickness Dependence of the Flux-Flow Velocity and the Vortex Instability in Nanocrystalline  $\gamma$ -Mo<sub>2</sub>N Thin Films*, Thin Solid Films **759**, 139475 (2022).
39. Z. L. Xiao, P. Voss-deHaan, G. Jakob, T. Kluge, P. Haibach, H. Adrian, and E. Y. Andrei, *Flux-Flow Instability and its Anisotropy in BSCCO Superconducting Films*, Phys. Rev. B **59**, 1481 (1999).
40. B. I. Ivlev and N. B. Kopnin, *Electric Currents and Resistive States in Thin Superconductors*, Adv. Phys. **33**, 47 (1984).
41. Y. Korneeva, I. Florya, S. Vdovichev, M. Moshkova, N. Simonov, N. Kaurova, A. Korneev, and G. Goltsman, *Comparison of Hot Spot Formation in NbN and MoN Thin Superconducting Films After Photon Absorption*, IEEE Trans. Appl. Supercond. **27**, 2201504 (2017).
42. A. I. Bezuglyj, V. A. Shklovskij, B. Budinska, B. Aichner, V. M. Bevz, M. Yu. Mikhailov, D. Yu. Vodolazov, W. Lang, and O. V. Dobrovolskiy, *Vortex Jets Generated by Edge Defects in Current-Carrying Superconductor Thin Strips*, Phys. Rev. B **105**, 214507 (2022).
43. D. Y. Vodolazov and F. M. Peeters, *Rearrangement of the Vortex Lattice due to Instabilities of Vortex Flow*, Phys. Rev. B **76**, 014521 (2007).
44. Л. Г. Асламазов, С. В. Лемпицкий, *Резистивное состояние в широких сверхпроводящих пленках*, ЖЭТФ **84**, 2216 (1983).
45. С. В. Лемпицкий, *Линии проскальзывания фазы в широких сверхпроводящих пленках*, ЖЭТФ **90**, 793 (1986).
46. M. Tinkham, *Nonequilibrium, Superconductivity, Phonons, and Kapitza Boundaries*, in *Proceedings of NATO Advanced Study Institutes*, Vol. **B65**, ed. by K. E. Gray, Plenum Press, New York (1981), p. 231.
47. J. A. Pals and J. Wolter, Phys. Lett. A **70**, 150 (1979).
48. F. S. Jelila, J. P. Maneval, F. R. Ladan, F. Chibane, A. Marie-de-Ficquelmont, L. Mechin, J. C. Villegier, M. Aprili, and J. Lesueur, Phys. Rev. Lett. **81**, 1933 (1998).
49. R. J. Watts-Tobin, Y. Krahenbuhl, and L. Kramer, *Nonequilibrium Theory of Dirty, Current-Carrying Superconductors: Phase-slip Oscillators in Narrow Filaments near  $T_c$* , J. Low Temp. Phys. **42**, 459 (1981).
50. D. Y. Vodolazov and F. M. Peeters, *Strong Influence of Nonlocal Nonequilibrium Effects on the Dynamics of the Order Parameter in a Phase-Slip Center: Ring Studies*, Phys. Rev. B **81**, 184521 (2010).

# О ТОЧНОМ РЕШЕНИИ ДЛЯ ЖИДКОСТИ ЛАТТИНЖЕРА С ОТТАЛКИВАНИЕМ И ОДНОЙ ТОЧЕЧНОЙ ПРИМЕСЬЮ

*В.В. Афонин*\*, *В.Ю. Петров*

*Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук  
194021, Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 27 февраля 2023 г.,  
после переработки 27 февраля 2023 г.  
Принята к публикации 5 мая 2023 г.

Проанализировано выражение для кондактанса одномерного канала, полученное с помощью хорошо известного точного решения. Показано, что в случае сильного электрон-электронного взаимодействия самая медленная (линейная) по частоте асимптотика кондактанса определяется поведением взаимодействия в области перехода от одномерного движения к трехмерному, реализующемуся вблизи примеси.

DOI: 10.31857/S0044451023090134  
EDN: KEFLBU

Здесь  $M$  — параметр ультрафиолетового обрезания,  
 $\omega$  — частота внешнего поля,

$$v_c = \sqrt{1 + V_0/\pi} > 1$$

## 1. ВВЕДЕНИЕ

История изучения сильновзаимодействующих одномерных электронов насчитывает уже более 50 лет. Первоначально эта задача рассматривалась как простейшая точно решаемая модель, позволяющая вычислить любую  $n$ -частичную функцию Грина в случае сильного фермион-фермионного взаимодействия. После появления технологий по производству одномерных баллистических каналов она стала актуальной и для физики твердого тела, в которой и пролучила название жидкости Латтинжера (LL). Одновременно с этим встал вопрос о влиянии электрон-примесного ( $e-i$ ) рассеяния на свойства LL. Учет  $e-i$ -рассеяния выводил эту задачу (даже в простейшем случае одной упругой примеси) из класса точно решаемых теорий. Сразу после появления пионерских работ [1–4] стало ясно, что упругое рассеяние качественно меняет свойства одномерного канала. К настоящему времени достигнуто достаточно хорошее понимание вопросов, связанных с упругим рассеянием, в случае слабого электрон-электронного ( $e-e$ ) рассеяния:

$$\nu = v_c - 1 \ll 1, \quad \nu \ln \frac{M}{|\omega|} \ll 1. \quad (1)$$

— перенормированная скорость Ферми. (В работе будет обсуждаться простейшая задача: однокомпонентные отталкивающиеся фермионы и точечное  $e-e$ -взаимодействие:

$$V_{e-e} = V_0 \delta(x - y).$$

Все скорости измеряются в единицах скорости Ферми,  $\hbar = 1$ .)

Случай сильного  $e-e$ -взаимодействия (при  $\nu = v_c - 1 \gtrsim 1$ ) обсуждался в ограниченном числе работ. Уже в первых работах [1, 3] было высказано утверждение о том, что аномальную частотную зависимость кондактанса ( $\omega^{2\nu}/M^{2\nu}$ ;  $M$  — параметр ультрафиолетового обрезания), полученную для слабого  $e-e$ -взаимодействия, можно экстраполировать в область сильного взаимодействия. Оно поддерживалось с помощью точного решения, существующего в гамильтониане Кейна–Фишера (КФ) при  $v_c = 2$  и дававшего квадратичную зависимость от частоты. К этому же выводу пришли авторы работ [5, 6], использовавшие для вычислений термодинамический анзац Бете. Противоположное утверждение было выдвинуто в работе [7]. В ней было проанализировано выражение для кондактанса, справедливое при очень слабом  $e-i$ -взаимодействии и любом  $\nu$ . Оно давало ту же частотную зависимость коэффициента отражения при  $\nu < 1/2$ . При

\* E-mail: vasil.afonin@mail.ioffe.ru

$\nu > 1/2$  (область сильного  $e$ - $e$ -взаимодействия) инфракрасная расходимость в ответе для кондактанса пропала, а главный вклад в кондактанс давала ультрафиолетовая область (точнее, область перехода  $\sim 1/M$ ), в которой эффективное  $e$ - $e$ -взаимодействие (учитывающее существование точечной примеси) существенно ослаблялось. В результате частотная зависимость кондактанса становилась равной  $|K_0|^2|\omega|/M$ . (Здесь  $K_0$  — коэффициенты прохождения электронов без учета  $e$ - $e$ -взаимодействия.) Кроме того, отсюда сразу следовало, что в случае сильного  $e$ - $e$ -взаимодействия скейлинговый анализ для нашей задачи оказывается неприменимым. (Он возможен только для инфракрасно-расходящихся задач). Поэтому в случае сильного  $e$ - $e$ -взаимодействия становится принципиально важным правильное описание ультрафиолетовой области в исходном гамильтониане. (В отличие от области слабого взаимодействия, где эффекты, связанные с  $e$ - $e$ -взаимодействием, определяются инфракрасным масштабом  $\sim v_c/|\omega|$  и, следовательно, не требуют пристального внимания к ультрафиолетовой области.)

На сегодняшний день, видимо, единственным надежным источником информации для случая сильного  $e$ - $e$ -взаимодействия в подходе КФ являются точные решения при  $v_c = 2$  (см., например, [1–3] и др.) и при  $v_c = 1/2$  [8], существующие только для гамильтониана КФ. Сравнение полученных с их помощью ответов для наблюдаемых величин с результатами работы [7] позволит понять причины, приводящие к разным частотным зависимостям кондактанса, и, если это окажется возможным, устранить их. Часто это удается сделать за счет правильной схемы ренормировки ультрафиолетовых вкладов.

## 2. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ. КАЧЕСТВЕННОЕ ОБСУЖДЕНИЕ ЭФФЕКТА КЕЙНА–ФИШЕРА

В настоящее время для описания  $e$ - $i$ -рассеяния почти общепринятым является подход КФ. В нем в гамильтониан с линейным спектром и электрон-электронным взаимодействием типа плотность-плотность вводится возможность перехода правого электрона в левый в точке расположения примеси (см. [1–3, 5, 6]):

$$\mathcal{H}_{KF} = \int dx dy [\hat{\Psi}_R^\dagger(x) V_{imp} \delta(x) \delta(x-y) \hat{\Psi}_L(y) + \text{H.c.}], \quad (2)$$

где  $\hat{\Psi}_R^\dagger(0)$  и  $\hat{\Psi}_L^\dagger(0)$  — операторы рождения правого и левого электронов. Он не содержит прошедшей волны. Нетрудно убедиться, что гамильтониан такого типа не может правильно описывать рассеяние на точечной примеси на малых длинах. Для этого достаточно проинтегрировать линеаризованное уравнение Шредингера без взаимодействия по бесконечно малому интервалу вокруг примеси и получить равенство, в котором левая часть нечетна при инверсии, а правая — четна:

$$i[\Psi_R(\epsilon) - \Psi_R(-\epsilon)] = \int_{-\epsilon}^{\epsilon} dy V_{imp} \Psi_L(y) \delta(y).$$

Попытка же исправить такую чисто математическую некорректность с помощью введения плавного одномерного потенциала (такого что правая часть этого выражения была бы равна нулю) означает переход от точечной к дальнедействующей примеси, а ответы этой задачи качественно отличаются от случая точечной примеси. (Под точечной примесью мы понимаем примесь, размер которой  $a_i$  удовлетворяет условию  $p_F a_i \ll 1$ .) В такой некорректности нет большой беды, если длинноволновые эффекты дают вклад, параметрически больший, чем инфракрасная область ( $\nu < 1/2$ ). (С большого расстояния рассеяние на примеси выглядит точечным.) Однако даже в этом случае она приводит к существованию нефизических ультрафиолетовых расходимостей в наблюдаемых величинах (и поэтому соответствующие слагаемые нельзя считать малыми), стартующих уже с точки  $v_c = 1$  (невзаимодействующие электроны). Все вклады в частотно-зависящий кондактанс, существующие даже для невзаимодействующих электронов, являются артефактом не очень корректного в ультрафиолетовой области подхода и должны быть просто опущены. Однако ситуация осложняется, когда речь идет о вкладах в наблюдаемую величину от ультрафиолетовой области, вычисленных с помощью точного решения гамильтониана КФ при одном значении  $v_c$ . Но и в этом случае есть выход: имея аналитическое выражение, нетрудно проверить, как изменится ответ для наблюдаемой величины при исключении из него вклада от области глубокого ультрафиолета (длин волн, много меньших  $1/M$ ). Если окончательный ответ покажет, что вклад от ультрафиолетовой области существен, то такую величину нельзя будет «просто вычислить», имея точное выражение, полученное из гамильтониана (2), потому что сам гамильтониан КФ в области малых длин некорректен. Вопрос о возможности существования вклада от ультрафиолетовой области и

способе его вычисления в этом случае потребует отдельной физической аргументации.

Вначале обсудим вопрос о том, какие физические величины определяют ультрафиолетовое обрезание  $M$ . Прежде всего нам необходимо разделить полную волновую функцию электрона на правую и левую «частицы», т.е. выделить огибающую на фоне быстрых осцилляций в выражении

$$\hat{\Psi}(x, t) = \exp(ip_F x) \hat{\Psi}_R(x, t) + \exp(-ip_F x) \hat{\Psi}_L(x, t).$$

Грубо говоря, нам надо «усреднить» это выражение по масштабам  $\Delta x \gg 1/p_F$ . В нашей задаче это условие позволяет разделить полную волновую функцию электрона на падающую и отраженную волны на расстоянии  $\gtrsim 1/p_F$  от примеси. Кроме того, необходимо вспомнить о конечной толщине канала и заметить, что волновая функция отраженной от точечной примеси частицы будет зависеть от расстояния от примеси, равно  $\sqrt{y^2 + z^2 + x^2}$ , где  $y, z$  — координаты в плоскости перпендикулярного сечения канала, а  $x$  — вдоль его оси. Таким образом, если все три переменные одного порядка, то переменные «не делятся», и провести независимое от продольного движения усреднение трехмерного гамильтониана по волновой функции поперечного размерного квантования в этой области невозможно. Для этого требуется условие  $x \gg d$ , где  $d$  — поперечный размер канала. Таким образом, ультрафиолетовое обрезание в подходах КФ и работы [7], т.е. масштаб, начиная с которого электроны можно считать одномерными, определяется величиной  $\max(1/p_F; d)$ , а глубокий ультрафиолет — это область вблизи примеси, в которой в нашей задаче электроны должны описываться как трехмерные частицы.

Постановка задачи об электрон-примесном рассеянии в работе [7] принципиально отличается от подхода КФ. В качестве первого шага (до вывода длинноволнового гамильтониана) мы учли, что разделение полной волновой функции электрона на волновые функции правого ( $\Psi_R$ ) и левого ( $\Psi_L$ ) электронов вблизи примеси на длинах  $\sim a_i$  невозможно. Для такой задачи стандартным способом решения является учет примесного рассеяния как граничного условия до линеаризации исходного уравнения Шредингера второго порядка. Эта процедура усложняется из-за существования сильного  $e$ - $e$ -взаимодействия. Кратко она изложена в работе [7]. Однако на качественном уровне ответы можно понять, обратившись к хорошо известному ответу гидродинамической задачи: любой поток (а тем более одномерный), встретив препятствие, образует горб перед препятствием и впадину за ним (и на-

ши вычисления приводят к этой же картине). Характерный размер такого двойного слоя — порядка размера примеси. (Кроме того, за препятствием существует еще достаточно протяженный ламинарный след, который уже описывается чисто одномерной теорией с линеаризованным гамильтонианом.) В случае точечной примеси этот эффект означает существование скачка заряда в точке  $x = \pm 0$ . Поэтому единственным вариантом появления конечного заряда вокруг  $\delta$ -функциональной примеси является существование ультрафиолетовых расходимостей в аналитических выражениях для электронной концентрации в точке  $x \rightarrow \pm 0$ , которые должны быть «вычислены» до перехода к длинноволновому гамильтониану. Критерием правильности регуляризации расходящихся выражений для концентрации электронов в нашем случае являлось появление  $\delta$ -функциональных источников, связанных с прямым нарушением киральной симметрии, в аналитическом выражении для адлеровской аномалии при сохранении уравнения неразрывности для полного электрического заряда. (Для того чтобы оба эти требования выполнялись, достаточно потребовать калибровочной инвариантности выражений для электронной плотности [9, 10].) Такие ультрафиолетовые расходимости имеют понятную физическую природу и обязаны существовать при любом способе описания  $e$ - $i$ -рассеяния на короткодействующей примеси. Несмотря на то, что двойной слой заряда локализован вблизи примеси на микроскопическом масштабе, его существование важно для одномерной области, так как он приводит к возникновению в ней полей, искажающих волновую функцию основного состояния системы без примеси. Частотная зависимость кондактанса — это и есть проявление эффектов, связанных с экранировкой одномерными электронами электрических полей, появившихся из-за существования двойного слоя и ламинарного следа. Только после решения граничной задачи можно приступить к выводу длинноволнового гамильтониана.

Из всего это обсуждения следует, что гамильтониан, полученный в [7], и гамильтониан КФ — это разные теории. Они различаются поведением решений в области глубокого ультрафиолета (на масштабах  $\ll 1/M$ ). В первом подходе вклад от этой области в наблюдаемые величины мал и в случае сильного  $e$ - $e$ -взаимодействия. (Отсутствие ультрафиолетовых расходимостей — прямое следствие регуляризации аналитических выражений для скачка заряда.) Поэтому вклад от всей ультрафиолетовой области в наблюдаемые величины, полученный с помощью подхода со шшивкой, определяется верхней границей

переходной области. (Теория сходится в ультрафиолетовой области, а единственный связанный с ней масштаб —  $1/M$ .) Это позволило вычислить частотную зависимость кондактанса, но коэффициент при ней оказался неуниверсальным и зависел от деталей  $e$ - $e$ -взаимодействия на длинах  $\sim 1/M$ . Что касается КФ-подхода, то он нуждается в уточнении, касающемся области глубокого ультрафиолета. Аналогичную некорректность подходов в ультрафиолетовой области часто оказывалось возможным компенсировать схемой ренормировки ультрафиолетовых вкладов. При этом одним из критериев правильности окончательных ответов для нас будет являться дуальность задач с притяжением и отталкиванием<sup>1)</sup>.

Для того чтобы сформулировать правило работы с ультрафиолетовыми вкладами в КФ-подходе, необходимо обсудить вид основного состояния, который, с нашей точки зрения, реализуется в LL с отталкиванием (канал без примеси). Обычная интерпретация основного состояния LL основана на существовании аномалий в корреляторах типа плотность–плотность. Они ассоциировались с пайерлсовской нестабильностью, показывающей (в случае однокомпонентных фермионов) «тенденцию к образованию волны зарядовой плотности» с волновым вектором, равным удвоенному импульсу Ферми [11]. Конечно, такое состояние возможно, однако кулоновское взаимодействие в одномерных системах очень сильное. Поэтому для его реализации требуется достаточно большая энергия. Понятно, что основное состояние, состоящее из электронейтральных комплексов, имело бы меньшую энергию. Электронейтральность означает, что оно должно состоять из электронов и дырок, двигающихся в одном направлении. Единственным кандидатом на такие «экситоноподобные» образования могут быть комплексы, состоящие из киральных пар типа  $\hat{a}_R^\dagger \hat{b}_L^\dagger$  (здесь  $\hat{a}/\hat{b}$  — операторы уничтожения электрона/дырки), представляющие из себя бозе-частицы. Поэтому все они должны «накапливаться» в основном состоянии, образуя конденсат с макроскопически большим (растущим с увеличением объема) числом частиц. Обычным аргументом против такой картины является так называемая теорема Ландау [12], согласно которой фазовый переход второго рода в одно-

мерной системе невозможен. Однако при доказательстве теоремы имелась ввиду бесконечная система. Для нее легко показать, что корреляционная функция двух бозонов уменьшается экспоненциально на длинах больших  $r_c \sim v_c/T$  и степенным образом на длинах меньших  $r_c$ . Но в канале конечной длины экспоненциальная асимптотика может просто «не поместиться» в образце. Это дает возможность оценить температуру такого фазового перехода как  $T_c \sim v_c/L$ . При меньшей температуре в конечном одномерном канале возможен фазовый переход второго рода. (Мы считаем число уровней продольного квантования  $N_e \sim p_F L \gg 1$ . Это позволяет заменить римановские суммы по  $p_n$  интегралами, но в главном порядке по  $1/N_e$  не требует предела  $L \rightarrow \infty$ . Таким образом, мы можем проводить вычисления, как в случае бесконечного образца, но сохранить конечную  $L$  в критериях фазового перехода. Отметим, что предел  $\omega \rightarrow 0$  в определении кондактанса нужно понимать в смысле  $\omega \ll v_c/L$  [8]. Это условие имеет простой физический смысл: внешнее поле должно быть почти постоянным все время пролета квазичастицы через одномерный канал.)

Для того чтобы доказать правильность этих утверждений, нами была вычислена волновая функция основного состояния для LL ( $|\Omega\rangle$ ). Эта задача не является точно решаемой, и аналитическое выражение для нее может быть написано только в пределе бесконечно сильного  $e$ - $e$ -взаимодействия. В этом приближении  $|\Omega\rangle$  представляет из себя волновую функцию, описывающую настоящий киральный конденсат (с ненулевой плотностью) и состоящий из точечных электронейтральных комплексов [13]. Важным свойством таких одномерных фаз, существующим и в  $|\Omega\rangle$ , является появление в теории еще одной характерной температуры,  $T_d = v_F/L$ , — температуры вырождения. Ниже  $T_d$  аномальное среднее  $\langle \Omega | \hat{a}_R^\dagger \hat{b}_L^\dagger | \Omega \rangle = 0$  (несмотря на существование конденсата), а выше — отлично от нуля. Дело в том, что матричный элемент  $\langle \Omega | \hat{a}_R^\dagger \hat{b}_L^\dagger | \Omega \rangle \neq 0$  только в том случае, когда  $|\Omega\rangle$  представляет из себя пакет, состоящий из состояний с разным числом пар  $\hat{a}_R^\dagger \hat{b}_L^\dagger$ , а характерная разность энергий этих состояний порядка  $v_F/L < T_c$ . В этой работе мы предполагаем, что  $T \ll T_d$  (в противном случае при выводе выражения (5) необходимо учитывать аномальные средние). В высокотемпературной области ( $T \gtrsim T_K$ ) аналитическое выражение для  $|\Omega\rangle$  соответствует состоянию, в котором киральные пары коррелированы только на расстоянии  $\sim r_c$ . Таким образом, наше основное состояние не противоречит теореме Ландау. При уменьшении силы  $e$ - $e$ -взаимодействия по-

<sup>1)</sup> В работе [7] было показано, что перенормированный коэффициент отражения для LL с притяжением получается из коэффициента прохождения для LL с отталкиванием заменой  $v_c; K_0 \leftrightarrow v_c^{-1}; R_0$ . Это свойство точное и справедливое при любых виде и силе  $e$ - $e$ -взаимодействия. При доказательстве предполагалась только сходимости (хотя бы асимптотическая) ряда теории возмущений.

лучить аналитическое выражение для  $|\Omega\rangle$  не представляется возможным, но можно показать, что корреляторы типа  $\langle \Omega | \hat{b}_L(x) \hat{a}_R(x) \hat{a}_R^\dagger(y) \hat{b}_L^\dagger(y) | \Omega \rangle$  убывают степенным образом. Это дает возможность оценить число киральных пар в образце [13]:

$$N_{cir} \sim L^\beta, \quad 0 < \beta \leq 1.$$

Таким образом, в реальной ситуации основное состояние LL — это тоже состояние с дальним порядком (фаза БКТ [14]). В свете изложенного выше становится понятным, почему исходные электроны не являются элементарными возбуждениями фермижидкости. Как и в теории сверхпроводимости, ими являются нормальные возбуждения над правильным основным состоянием, определяемые условием  $\hat{a}_\chi |\Omega\rangle = 0$  [15] (а не над сферой Ферми исходных электронов). Волновая функция такой квазичастицы, двигающейся вправо ( $\chi_R$ ), представляет из себя сложный (нелинейный) пакет из правых электронов и левых дырок, ортогональный  $|\Omega\rangle$  и имеющий электрический заряд  $e_0/\sqrt{v_c}$ . Это есть не что иное, как правый квазиэлектрон, двигающийся вместе с поляризационным облаком. Поэтому его заряд не квантуется в единицах заряда свободного электрона,  $e_0$  (ср. с [16]).

Переход к квазичастичному представлению в гамильтониане КФ дает ключ к пониманию физической причины «закрытия» одномерного канала сколь угодно слабым примесным рассеянием. Она реализуется для  $e$ - $e$ -взаимодействия любой силы, но становится очевидной в рассматриваемой задаче. В ней примесная часть гамильтониана рассеяния оказывается пропорциональной полю  $\hat{\chi}$  (т.е. вершины не сохраняют электрический заряд, см. уравнение (7)). Это означает, что процесс рассеяния не сводится к рассеянию квазичастицы на примеси: в нем обязан участвовать конденсат. Появление точечной примеси искажает волновую функцию конденсата. Это делает волновую функцию падающей на примесь квазичастицы неортогональной к новому основному состоянию, что приводит к появлению дополнительного канала «отражения квазичастиц от примеси», аналогичного андреевскому отражению в сверхпроводнике [17]. Обсудим его подробнее. Для этого разделим волновую функцию квазичастицы, двигающейся вправо, на электронную и дырочную части. Тогда из-за неортогональности волновых функций нового основного состояния и квазичастицы и существования флуктуативных процессов образования электрон-дырочных пар левых электронов падающий на примесь правый электрон может «подхватить» левую дырку и уйти в конденсат, а

оставшийся левый электрон уйдет от примеси. Он будет восприниматься как отраженный примесью правый электрон,

$$\hat{a}_R^\dagger; \hat{a}_L^\dagger + \hat{b}_L^\dagger \rightarrow \hat{a}_R^\dagger \hat{b}_L^\dagger; \hat{a}_L^\dagger.$$

Важно, что вероятность этого процесса будет пропорциональна макроскопически большому числу «правых» пар конденсата, а так как сумма вероятностей всех возможных процессов равна единице, то вероятность обычного рассеяния электрона на примеси будет иметь малость  $1/N_{cir}$ . В результате этого в задаче пропадает единственный канал рассеяния, содержащий прошедшую волну. В итоге одномерный проводник и оказывается закрытым для постоянного тока. Таким образом, бесконечно слабое  $e$ - $i$ -рассеяние «разрезает» канал. Эта качественная картина очень хорошо видна в точном решении при  $v_c = 2$ . Согласно выражению (13) «отраженная от примеси» волна (это майоран  $\beta$ ) не входит в выражение для гамильтониана рассеяния (11). Такое может быть только в том случае, когда процесс рассеяния нарушает в подсистеме квазичастичных возбуждений какой-нибудь закон сохранения. В данном случае — электрического заряда (см. выражение (7)). Чтобы этого не произошло во всей системе, и рождается частица  $\beta$ . Обычный канал примесного рассеяния входил бы в гамильтониан как  $\sum_{n,m} V_{n,m} \Phi_n \beta_m$ , но он имел бы малость  $1/\sqrt{N_{cir}}$ .

Для того чтобы понять роль ультрафиолетовой области в процессе  $e$ - $i$ -рассеяния, вспомним, что  $e$ - $e$ -взаимодействие оказывается аномально сильным в одномерном случае, потому что пакеты, созданные из фермионов с линейным спектром, вообще не расплываются. Это приводит к тому, что в LL два взаимодействующих пакета одинаково сильно взаимодействуют все время нахождения в одномерной области. Подходя на расстояние порядка  $1/M$  к примеси, пакеты начинают расплываться, так как в этой области электроны уже не описываются чисто одномерной теорией. Расплываются сначала медленно (начало переходной области), а потом, подходя к трехмерной области глубокого ультрафиолета, быстро. На масштабе  $\ll 1/M$   $e$ - $e$ -взаимодействие становится трехмерным, т.е. слабым по сравнению с одномерным. Таким образом, в случае отталкивания по мере «увеличения размерности» канала пропадает причина неустойчивости основного состояния невзаимодействующих электронов при включении  $e$ - $e$ -взаимодействия. Как следствие этого, в области глубокого ультрафиолета (на расстоянии  $\sim d$  от примеси) пропадает киральный конденсат (по крайней мере в случае точечного  $e$ - $e$ -взаимодействия).

Эта картина качественно отличается от LL с притяжением, потому что в последнем случае сфера Ферми неустойчива относительно бесконечно слабого притяжения в любой размерности. Из-за этого упругая примесь в случае притяжения «не разрезает» канал. (На самом деле, последнее утверждение — это одномерная модификация общей теоремы Андерсона для сверхпроводимости [18].) К сожалению, построить аналитическую теорию для короткодействующей примеси, справедливую во всей ультрафиолетовой области, невозможно. Для этого нужно непрерывным по размерности образом описать переход от одномерной области к трехмерной, решая в переходной области и проблемы калибровочно-инвариантного определения расходящегося произведения двух фермионных операторов, взятых в одной точке (аномалия Адлера [9, 10]). Поэтому при обсуждении вопроса о величине ультрафиолетового вклада в кондактанс нам придется обходиться качественными соображениями.

Учитывая то, что мы рассматриваем точечное  $e$ - $e$ -взаимодействие, нахождение электронов в области глубокого ультрафиолета (трехмерного движения) означает, что они относительно слабо взаимодействуют друг с другом, т.е. не могут образовать и новую киральную пару. А это означает, что область глубокого ультрафиолета не может давать вклад в аномально сильный канал рассеяния, связанный с существованием конденсата. (То есть все, что может давать эта область, должно сводиться к перенормировке затравочной амплитуды  $e$ - $i$ -рассеяния, не зависящей от частоты.) Отсюда следует, что если аналитическое выражение для частотно-зависящего кондактанса, следующее из точного решения в модели КФ, показывает, что небольшое изменение ответа в ультрафиолетовой области не сводится к перенормировке затравочной амплитуды  $e$ - $i$ -рассеяния, то вклад этой области в наблюдаемую величину есть артефакт теории, связанный с некорректностью гамильтониана (2) в области глубокого ультрафиолета. Поэтому он должен быть экстрагирован из выражения для наблюдаемой величины, связанной с изменением числа киральных пар конденсата. Это есть дополнительное условие, позволяющее использовать некорректный в области глубокого ультрафиолета гамильтониан КФ в случае сильно взаимодействующих электронов<sup>2)</sup>. Отсюда следует и то,

что весь ультрафиолетовый вклад в кондактанс может сводиться только к вкладу от переходной области. Но она в лучшем случае будет описываться одномерной теорией только по порядку величины, и то только тогда, когда вклад от области  $\leq 1/M$ , полученный с помощью одномерных формул, будет определяться верхней границей переходной области. Качественно эта картина будет совпадать с той, которая получилась в подходе со сшивкой. Существенное различие будет состоять только в том, что последняя привела к ней «автоматически» (без дополнительных соображений), но для этого потребовалась регуляризация скачка заряда и дальнейшие достаточно трудоемкие (особенно для отталкивания) вычисления. В результате этих вычислений оказалось, что корреляционная функция, получающаяся в подходе со сшивкой и определяющая силу  $e$ - $e$ -взаимодействия, не расходится, а стремится в области глубокого ультрафиолета к константе. Это и привело к тому, что в случае сильного  $e$ - $e$ -взаимодействия вклад в наблюдаемую величину дала только переходная область, а изменение вида эффективного  $e$ - $e$ -взаимодействия в этой области сводилось к перенормировке затравочного  $e$ - $e$ -взаимодействия и не изменяло частотной зависимости кондактанса.

### 3. ВЫЧИСЛЕНИЕ КОНДАКТАНСА

Для вычисления кондактанса одномерного канала удобно воспользоваться ответом, полученным в работе [8] и позволяющим выразить кондактанс через частотно-зависящую  $(\Delta S(\omega) = S(\omega) - S(0))$  часть фейнмановского коррелятора:

$$S(t_1 - t_2) = \langle T\{\hat{s}(t_1), \hat{s}(t_2)\} \rangle, \quad (3)$$

где  $\{..., ..\}$  — антикоммутатор, а  $\hat{s}(t)$  равен

$$\hat{s}(t) = 2i[\hat{\Psi}_L^\dagger(t, x=0)\hat{\Psi}_R(t, x=0) - \hat{\Psi}_R^\dagger(t, x=0)\hat{\Psi}_L(t, x=0)]. \quad (4)$$

Физический смысл оператора  $\hat{s}(t)$  — это киральный заряд, уходящий в конденсат (мы определили киральный заряд как +1 для R-электронов и

Гелл-Манна-Лоу он вводится регуляризацией), начиная с которого область глубокого ультрафиолета не дает вклада в наблюдаемые величины. Все отличие от «обычной», расходящейся на ультрафиолете задачи при  $v_c = 1/2$  [8] состоит в том, что при  $v_c = 2$  выражение для кондактанса, вычисленное с помощью точного решения гамильтониана КФ, сходится.

<sup>2)</sup> Это утверждение фактически совпадает с исходным предположением теории ренормгруппы: наблюдаемые величины, вычисленные с помощью неизвестного нам точного гамильтониана, сходятся. Это означает, что в ультрафиолетовой (не в инфракрасной) области есть масштаб (в подходе

-1 для L-электронов). Вычисление этого коррелятора надо проводить при вещественных частотах, а для перехода к кондактансу (запаздывающий отклик) его фурьял надо продолжить по правилу  $|\omega| \rightarrow +\sqrt{\omega^2 + i\delta}$ <sup>3)</sup>. В итоге кондактанс может быть записан в виде

$$\mathcal{G}(\omega) = \frac{e_0^2}{4v_c^2|\omega|} V_{imp}^2 \text{Re} \Delta \mathcal{S}(|\omega|). \quad (5)$$

Отметим, что в правой части (5) нужно учитывать только зависящий от частоты вклад отношения  $\Delta \mathcal{S}(\omega)/|\omega|$ . Дело в том, что не зависящая от  $\omega$  часть этого отношения фактически не может быть вычислена в рамках данного подхода, так как окончательный ответ для линейного отклика, полученный в [8], содержал еще и произвольное решение однородного уравнения. Коэффициент, с которым это решение входит в ответ, должен определяться физическим условием. В случае отталкивания условие состоит в полном закрытии канала при  $\omega = 0$ . Его всегда можно удовлетворить при любой величине постоянной части  $\Delta \mathcal{S}(\omega)/|\omega|$  за счет решения однородного уравнения.

Как уже отмечалось, причина, по которой взаимодействие одномерных фермионов с линейным спектром оказывается аномально сильным, состоит в том, что в этом случае пакеты, созданные из таких фермионов, не расплываются. Отсюда следует и то, что любое возбужденное состояние с данной энергией может быть представлено в виде большого числа различных пакетов, состоящих как из четного числа фермионов (бозе-частицы), так и из нечетного числа (фермионы). Математически это выражается в существовании соотношений, дающих возможность представить любой одномерный фермион как пакет бозонов (формулы бозонизации). Это дало возможность написать выражение для операторов нормальных возбуждений LL с точечным  $e-i$ -взаимодействием [15]. Учет электрон-примесного рассеяния в гамильтониане (2) при выполнении условия  $2/v_c = m^2$ ,  $m = 1, 2, 3, \dots$ , добавляет к свободному гамильтониану нормальных возбуждений слагаемое

$$\propto \frac{\Delta^{1-1/v_c}}{\sqrt{L}} V_{imp} \times [\hat{\chi}_2(0) \partial_x \hat{\chi}_2(0) \dots \partial_x^{m-1} \hat{\chi}_2(0) + \text{H.c.}]. \quad (6)$$

Здесь  $\hat{\chi}_2$  — квазичастица, рассеивающаяся на примеси, а второе (ортогональное ему) поле  $\chi_1$  не вза-

имодействует с точечной примесью [19] и тоже дает вклад в баллистический ток. Константа связи определяется величиной  $\Delta$ :

$$\ln \Delta = \ln \left( \frac{\mathcal{M}L}{2\pi} \right) + \gamma_E,$$

где  $\mathcal{M}$  — ультрафиолетовое обрезание. Формально оно возникает из-за того, что произведение фермионных операторов, взятых в одной точке, в одномерном случае всегда расходится. Эта расходимость отражает тот факт, что на длинах  $\sim 1/M$  рассеяние становится трехмерным, а одномерные формулы бозонизации — неприменимыми. Отсюда следует, что гамильтониан (6) (как и исходный гамильтониан КФ) неприменим в ультрафиолетовой области (на расстояниях  $\leq 1/M$ ). При  $v_c = 2$  ( $m = 1$ ) он имеет вид

$$\mathcal{H}_\chi = v_c \int dx \hat{\chi}_2^\dagger(x) i \partial_x \hat{\chi}_2(x) + \gamma_2 [\hat{\chi}_2^\dagger(x=0) + \hat{\chi}_2(x=0)], \quad (7)$$

где

$$\gamma_2 = V_{imp} \sqrt{\exp(\gamma_E) \mathcal{M}/2\pi}.$$

Получившаяся вершина рассеяния нормальных квазичастиц на примеси показывает, что электрический заряд в подсистеме нормальных возбуждений не сохраняется. Это означает, что в переходе принимает участие конденсат. Поэтому нам потребуется еще одна динамическая переменная. Ее удобно ввести, используя представление Гинье. Для этого введем пространственно-однородное майорановское поле  $\hat{\zeta}$ , такое что

$$\hat{\zeta}^\dagger = \hat{\zeta}, \quad \hat{\zeta}^2 = 1, \quad \partial_x \hat{\zeta} = 0,$$

которое антикоммутирует со всеми фермионными операторами. С его помощью мы можем представить поле  $\hat{\chi}_2$  в виде

$$\hat{\chi}_2(x=0) = \int_0^\infty (dp) [\hat{\zeta} \hat{a}(p) + \hat{b}^\dagger(p) \hat{\zeta}], \quad (8)$$

так как это не противоречит фермионным коммутационным свойствам. Такое введение квазиэлектронов и квазидырок предпочтительно, когда вершины гамильтониана не сохраняют заряд. Если заряд сохраняется, то независимая переменная  $\hat{\zeta}$  в конце концов «вылетит» из теории. В случае несохранения заряда в подсистеме квазичастичных возбуждений она позволит нам учесть процессы, протекающие в конденсате, но существенные для отражения нормальных квазичастиц от примеси.

<sup>3)</sup> Вопрос, связанный с аналитическим продолжением, подробно обсужден в [8].

Подставляя (8) в (7), мы убедимся, что с примесью взаимодействует только поле

$$\alpha(p) = [a(p) + b(p)]/\sqrt{2},$$

а ортогогальная ему комбинация

$$\beta = [a(p) - b(p)]/\sqrt{2}$$

не войдет в примесную часть гамильтониана, возникшую из (2). Она будет описывать квазиэлектроны или квазидырки, возникновение которых требуется законом сохранения электрического заряда во всей системе (нормальные возбуждения и конденсат). Далее нам будет удобно перейти в майорановское представление

$$\hat{\chi}_2(x) = \frac{\hat{\zeta}}{\sqrt{2}}[\hat{B}(x) + i\hat{\Phi}(x)] \quad (9)$$

и выразить майораны  $\hat{B}(x)$  и  $\hat{\Phi}(x)$  через операторы рождения и уничтожения квазиэлектронов и квазидырок. Сравнивая определения (9) и (8), имеем

$$\begin{aligned} \hat{B}(p) &= \hat{\beta}(p)\theta(p) + \hat{\beta}^\dagger(-p)\theta(-p), \\ \hat{\Phi}(p) &= -i\hat{\alpha}(p)\theta(p) + i\hat{\alpha}^\dagger(-p)\theta(-p). \end{aligned} \quad (10)$$

В результате весь вклад от примесного рассеяния в (7) определяется только полем  $\hat{\Phi}$  и гамильтониан равен

$$\mathcal{H}_{imp} = i\gamma_2\sqrt{2}\hat{\zeta}\frac{1}{L}\sum_{n\neq 0}\hat{\Phi}(p_n). \quad (11)$$

В него не входит майоран  $\hat{B}$ . Эта волна возникает как следствие закона сохранения полного электрического заряда всей системы, и только  $\hat{B}$  входит в выражение для  $\hat{s}$ . (То есть только коррелятор полей  $\hat{B}$  входит в выражение для перенормированного взаимодействием коэффициента отражения электронов от примеси и определяет кондактанс). Заметим, что (4) отличается от гамильтониана (2) общим коэффициентом и относительным знаком слагаемых. Повторяя предыдущие вычисления, имеем

$$\hat{s}(x=0) = -2i\gamma_2^s[\hat{\chi}_2^\dagger(x=0) - \hat{\chi}_2(x=0)], \quad (12)$$

где  $\gamma_2^s = \gamma_2/V_{imp}$ . После подстановки в эту формулу выражения (9) получаем

$$\hat{s}(x=0) = 2i\sqrt{2}\gamma_2^s\hat{\zeta}\int(dp)\hat{B}(p). \quad (13)$$

В отличие от бозонного гамильтониана, линейный по полю член в фермионном гамильтониане (11) не

может быть приведен к квадратичной форме простым сдвигом поля  $\hat{\Phi}_n$  на постоянную величину, так как это будет противоречить правилу антикоммутиции. Однако гамильтониан (11) может быть представлен как квадратичный, если считать переменную  $\hat{\zeta}$  нулевой компонентой поля  $\hat{\Phi}$ :

$$\hat{\Phi}_0 = \hat{\zeta}/\sqrt{2},$$

см. [20]. В результате (11) уже приводится к квадратичной форме с сохранением правил антикоммутиции для полей  $\hat{\Phi}_n$ . Вычисление кондактанса облегчается тем, что коррелятор  $\mathcal{S}(t)$  (уравнение (3)) определяется функцией Грина  $\langle\hat{s}(t,0)\hat{s}(0,0)\rangle$ . Таким образом, вся нетривиальная часть вычислений связана только с полем  $\hat{\zeta}(t)$  в гайзенберговском представлении. После диагонализации (перехода к не взаимодействующим полям  $\hat{\lambda}_n$ ) все сведется к замене

$$\hat{\lambda}_n \rightarrow \hat{\lambda}_n \exp(-i\epsilon_n t).$$

В Приложении В показано, что функция Грина  $\langle\hat{\zeta}(t)\hat{\zeta}(0)\rangle$  выразится через функцию Грина свободных полей  $\hat{\lambda}_n(t)$ :

$$\begin{aligned} \langle\hat{\zeta}(t)\hat{\zeta}(0)\rangle &= -\frac{16\gamma_2^2}{L}\sum_{n\neq 0}\frac{\exp(-i\epsilon_n t)}{\mu^2 + \epsilon_n^2} \times \\ &\times (\theta(t)\theta(n) - \theta(-t)\theta(-n)). \end{aligned} \quad (14)$$

Здесь  $\mu = \gamma_2^2/v_c \sim \mathcal{M}V_{imp}^2$  — параметр ультрафиолетового обрезания этого коррелятора. Дальнейшее вычисление  $\mathcal{S}(t)$  сводится к вычислению произведения  $\langle\hat{\zeta}(t,0)\hat{\zeta}(0,0)\rangle\langle\hat{B}(t,0)\hat{B}(0,0)\rangle$  (здесь  $\hat{B}$  — свободные майораны, «отраженные от примеси», а  $t$  имеет смысл времени, отсчитанного от момента «отражения» квазичастицы от примеси). В Приложении А показано, что в термодинамическом пределе (главный член по параметру  $1/ML \ll 1$ ) спектр квазичастиц  $\lambda(k)$  тоже равен  $\epsilon(k) = v_c k$ . В итоге получаем

$$\mathcal{S}(t) = 32i\frac{(\gamma_2^s\gamma_2)^2}{\pi^2 v_c}\int_0^\infty \frac{d\epsilon \exp(-i\epsilon|t|)}{(\mu^2 + \epsilon^2)|t|}. \quad (15)$$

Это выражение четно по  $t$ , поэтому  $\text{Re}\Delta\mathcal{S}(\omega)$  определяется функцией Раабе

$$\mathcal{R}_a(\mu t) = \int_0^\infty d\epsilon \frac{\sin(\epsilon\mu t)}{1 + \epsilon^2},$$

медленно убывающей на асимптотике  $\mu t \rightarrow 0$  (как  $\mu t \ln(\mu t)$  [21]). В итоге весь коррелятор оказывается растущим в области глубокого ультрафиолета.

В таком случае нам надо убедиться, что изменение выражения (15) в области глубокого ультрафиолета (где гамильтониан КФ неправильно описывает  $e-i$ -рассеяние) не изменяет частотной зависимости кондактанса. Это можно сделать, просто обрезав вклад от (15) в кондактанс на масштабе  $t \sim 1/M$ . Если вклад от области  $\leq 1/M$  мал, то такая процедура вообще не изменит окончательный ответ. Он совпадет с точным (в математическом смысле) ответом гамильтониана КФ. В этом случае его некорректность на малых длинах будет несущественна. (Точно так же, как в случае слабого  $e-e$ -взаимодействия, когда ответы от инфракрасной области параметрически велики по сравнению с вкладом от ультрафиолета.) Далее мы убедимся в том, что такое изменение коррелятора  $\mathcal{S}(t)$  качественно изменит частотную зависимость кондактанса, т.е. роль ультрафиолетовой области не сводится к перенормировке затравочной амплитуды рассеяния электронов на примеси. В таком случае мы должны вспомнить, что исходный гамильтониан неправилен в области глубокого ультрафиолета, а выражение (15) справедливо лишь на асимптотике  $t \gg 1/\mu$ , когда родившееся возбуждение  $\mathcal{V}$  находится далеко от примеси. Заметим, что в этой области асимптотический ряд теории возмущений

$$\sum_{m=0}^M \frac{(2m+1)!}{(\mu|t|)^{2m+1}}$$

сходится к  $\mathcal{R}_a(\mu t)$ . Поэтому можно воспользоваться тем, что в этой области нам известна аналитическая функция, к которой сходится весь ряд, а модель КФ в данном случае приводит к сходящемуся в ультрафиолетовой области выражению для частотно-зависящего вклада в кондактанс. Тогда мы можем получить ответы с точностью до коэффициента порядка единицы. Это удастся потому, что правильное, но неизвестное нам в ультрафиолетовой области, выражение для интересующего нас коррелятора  $\mathcal{S}_{ac}(t)$  при  $t \sim 1/\mu$  должно еще совпадать по порядку величины с (15), а вклад в частотно-зависящий кондактанс от области глубокого ультрафиолета, вычисленный с помощью  $\mathcal{S}_{ac}(t)$ , может сводиться лишь к перенормировке затравочной амплитуды  $e-i$ -рассеяния и не имеет права менять частотную зависимость кондактанса. В таком случае можно для получения порядковой оценки кондактанса просто обрезать выражение для коррелятора на  $t \sim 1/\mu$ . (Конечно только тогда, когда вычисления показывают, что наблюдаемая величина определяется верхней границей переходной области, где

$\mathcal{S}_{ac}(t) \sim \mathcal{S}(t)$ .) Таким образом,

$$\text{Re}\Delta\mathcal{S}(\omega) = -(8\gamma_2^s\gamma_2)^2 \frac{1}{\pi^2\mu v_c} \times \int_{1/\mu}^{\infty} dt \frac{1 - \cos(\omega t)}{t} \mathcal{R}_a(\mu t). \quad (16)$$

Вычитая и добавляя к полученному ответу вклад от области  $(0, 1/\mu)$ , получаем два выражения. Первое слагаемое ( $\Delta_1\mathcal{S}(\omega)$  от области  $(0, \infty)$ ) — «пороговое» (под интегралом по  $\epsilon$  из-за существования закона сохранения энергии при упругом рассеянии носителей на примеси возникает множитель  $\theta(|\omega| - \epsilon)$ ). Оно равно

$$\text{Re}\Delta_1\mathcal{S}(\omega) = -2(4\gamma_2^s\gamma_2)^2 \frac{1}{\pi\mu v_c} \text{arctg} \frac{|\omega|}{\mu} \quad (17)$$

и приводит к ответу, полученному в работах [1–6], представляя из себя точное (в математическом смысле слова) решение гамильтониана КФ<sup>4)</sup>.

Однако в результате вычитания у нас появилось еще одно слагаемое

$$\propto \int_0^1 d\tau \sin^2(\omega\tau/\mu) \mathcal{R}_a(\tau)/\tau,$$

в котором интеграл по времени определяется верхним пределом интегрирования, где  $\mathcal{R}_a(\tau) \sim 1$ . Это слагаемое мало по сравнению с первым членом разложения  $\text{arctg}(|\omega|/\mu)$ , но последнее сокращает баллистический вклад в линейном отклике. В кондактанс входят лишь следующие члены разложения арктангенса. Вычитание же дает линейный по частоте член, который в области малых частот и определяет асимптотику кондактанса. Физическая причина смены асимптотики с  $\omega^2$  на  $|\omega|$  состоит в том, что на временах  $t \leq 1/\mu$  энергия плохо определена. Поэтому вероятность рождения новой киральной пары, определяющая поток квазиэлектронов, двигающихся от примеси, не содержит  $\delta$ -функционального множителя, выражающего закон сохранения энергии. В результате это слагаемое не имеет порога в подынтегральном выражении по энергии. Это приводит к тому, что вклад в кондактанс дает и область больших энергий. В итоге

$$\mathcal{G}(\omega) = e_0^2 V_{imp}^2 c \frac{|\omega|}{\mu}, \quad (18)$$

<sup>4)</sup> В работе [5] получена полная частотная зависимость кондактанса (уравнение (5.6)), следующая из точного решения для гамильтониана КФ и совпадающая с (17).

где  $c$  — численный коэффициент порядка 1, перенормирующий амплитуду затравочного электрон-примесного рассеяния из-за  $e$ - $e$ -взаимодействия в переходной области. Отметим, что такая «регуляризация» ультрафиолетового вклада приводит к дуальным ответам для жидкостей Латтинжера с отталкивающимися и притягивающимися фермионами. Как отмечалось выше, это свойство точное, оно должно выполняться для любого  $e$ - $e$ -взаимодействия. Кроме того, эти ответы совпадают с результатами, полученными из подхода со сшивкой. Это позволяет надеяться на то, что более легкий с вычислительной точки зрения гамильтониан КФ, дополненный этим правилом, можно использовать и в случае сильного  $e$ - $e$ -взаимодействия.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Подводя итог, можно сказать, что в случае сильного  $e$ - $i$ -взаимодействия самая медленная (линейная по частоте) асимптотика кондактанса определяется поведением  $e$ - $e$ -взаимодействия в области перехода от одномерного движения носителей заряда к трехмерному, реализующемуся на масштабах порядка толщины канала. Все отличие дуальных теорий с  $v_c = 2$  и  $v_c = 1/2$  (притяжение и отталкивание) возникает из-за того, что в случае притяжения вклад в кондактанс от ультрафиолетовой области расходится [8]. Однако в обеих задачах линейный по частоте вклад возникает из-за отсутствия закона сохранения энергии в области малых времен. Несмотря на это, точной дуальности в подходе с гамильтонианом КФ нет: в ответах совпадают только частотные зависимости самой медленной асимптотики. Исходя из того, что эти две теории имеют принципиально разное поведение в ультрафиолетовой области, определяющей кондактанс в случае сильного  $e$ - $e$ -взаимодействия, следует ожидать и разной зависимости от силы  $e$ - $e$ -взаимодействия ответов подхода КФ для притяжения и отталкивания при произвольном  $v_c$ . Получившееся выражение для кондактанса и качественная картина явления находится в соответствии и с результатами работы [7].

**Благодарности.** Автор благодарит Я.М. Бельтюкова и Ю.М. Гальперина за обсуждение работы и чтение рукописи.

### ПРИЛОЖЕНИЕ. ПРИВЕДЕНИЕ ГАМИЛЬТониАНА К ДИАГОНАЛЬНОЙ ФОРМЕ

#### А. «Уравнение Шредингера» для матрицы поворота

Для того чтобы вычислить коррелятор  $S(\omega)$ , нам необходимо перейти от шредингеровского представления к гайзенберговскому. Это легко делается в случае свободных фермионов, в котором отличие одного представления от другого сводится к появлению множителя  $\exp(-i\epsilon_n t)$ . Для этого нужно привести (11) к диагональной форме. Отметим, что переменная  $\zeta$  (теперь  $\Phi_{n=0}$ ), входящая в гамильтониан, описывает изменение (а не полное число) киральных пар в основном состоянии. Отсюда следует, что матрица поворота определяется только процессами рассеяния, т.е. переходами между состояниями  $\Phi_n \leftrightarrow \Phi_{n'}$ ;  $n, n' \neq 0$  и  $\Phi_n \leftrightarrow \Phi_0$ . Поэтому матрица, приводящая (11) к диагональной форме, имеет вид

$$\lambda(\epsilon_n) = \frac{1}{L} \sum_{m \neq 0} S(\epsilon_n, p_m) \Phi(p_m) + Z(\epsilon_n) \Phi_0, \tag{19}$$

$$\lambda_0 = \frac{1}{L} \sum_{m \neq 0} T(p_m) \Phi(p_m).$$

(Аргументы элементов этой матрицы записываются как  $\epsilon_n, p_m$ , чтобы не путать индексы повернутых и неповернутых полей; в этих обозначениях  $\epsilon_n$  — энергия «повернутых» полей, а  $v_c p_m$  — «неповернутых».)

Обратная матрица перехода может быть записана в виде

$$\Phi(p_{m_1}) = \frac{1}{L} \sum_{n_1 \neq 0} S^{-1}(\epsilon_{n_1}, p_{m_1}) \lambda(\epsilon_{n_1}) + Z^{-1}(p_{m_1}) \lambda_0, \tag{20}$$

$$\Phi_0 = \frac{1}{L} \sum_{n_1 \neq 0} T^{-1}(\epsilon_{n_1}) \lambda(\epsilon_{n_1}).$$

Для того чтобы получить выражения для элементов обратной матрицы, подставляем уравнения (20) в (19):

$$\lambda(\epsilon_n) = \frac{1}{L} \sum_{m \neq 0} S(\epsilon_n, p_m) \left[ \frac{1}{L} \sum_{n_1 \neq 0} S^{-1}(\epsilon_{n_1}, p_m) \lambda(\epsilon_{n_1}) + Z^{-1}(\epsilon_n) \lambda_0 \right] + Z(\epsilon_n) \frac{1}{L} \sum_{n_1 \neq 0} T^{-1}(\epsilon_{n_1}) \lambda(\epsilon_{n_1}).$$

Варьируя это выражение по  $\lambda_n$ , имеем

$$L = \frac{1}{L} \sum_{m \neq 0} S(\epsilon_n, p_m) S^{-1}(\epsilon_n, p_m) + Z(\epsilon_n) T^{-1}(\epsilon_n).$$

С другой стороны,

$$\{\lambda(\epsilon_n), \lambda(\epsilon_m)\} = L\delta_{n,-m}.$$

Подставляя сюда уравнение (19), получаем

$$L = \frac{1}{L} \sum_{m \neq 0} S(\epsilon_n, p_m) S(\epsilon_{-n}, p_{-m}) + Z(\epsilon_{-n}) Z(\epsilon_n). \quad (21)$$

Сравнивая эти два выражения, видим, что

$$S^{-1}(\epsilon_n, p_m) = S(\epsilon_{-n}, p_{-m}), \quad T^{-1}(\epsilon_n) = Z(\epsilon_{-n}). \quad (22)$$

Для того чтобы получить уравнения для матрицы поворота, нам надо сравнить коммутатор

$$[\lambda(\epsilon_n), \mathcal{H}_\lambda]_- = \epsilon_n \lambda(\epsilon_n)$$

с этим же коммутатором, записанным в терминах «неповернутых» полей  $\hat{\Phi}$ . Таким образом, нам надо вычислить коммутатор

$$\frac{v_c}{2L} \left[ \sum_{n \neq 0} p_n \hat{\Phi}_{-n} \hat{\Phi}_n + 2i\gamma_2 \Phi_0 \frac{1}{L} \sum_{n \neq 0} \hat{\Phi}_n, \frac{1}{L} \sum_{m \neq 0} S(\epsilon_n, p_m) \Phi(p_m) + Z(\epsilon_n) \Phi_0 \right]_-.$$

Слагаемое с кинетической энергией дает

$$-\frac{v_c}{L} \sum_{m_1 \neq 0} S(\epsilon_n, p_{m_1}) p_{m_1} \Phi(p_{m_1}).$$

Осталось рассмотреть коммутатор

$$\left[ 2i\gamma_2 \Phi_0 \frac{1}{L} \sum_{n \neq 0} \hat{\Phi}_n, Z(\epsilon_n) \Phi_0 + \frac{1}{L} \sum_{m_1 \neq 0} S(\epsilon_n, p_{m_1}) \Phi(p_{m_1}) \right]_-.$$

Первое слагаемое дает

$$-i\gamma_2 Z(\epsilon_n) \frac{1}{L} \sum_{n \neq 0} \hat{\Phi}_n,$$

а второе —

$$2i\gamma_2 \Phi_0 \frac{1}{L} \sum_{m_1 \neq 0} S(\epsilon_n, p_{m_1}).$$

В итоге получаем равенство

$$-\frac{v_c}{L} \sum_{m_1 \neq 0} S(\epsilon_n, p_{m_1}) p_{m_1} \Phi(p_{m_1}) +$$

$$+ 2i\gamma_2 \Phi_0 \frac{1}{L} \sum_{m_1 \neq 0} S(\epsilon_n, p_{m_1}) - i\gamma_2 Z(\epsilon_n) \frac{1}{L} \sum_{n \neq 0} \hat{\Phi}_n = -\epsilon_n \left( \frac{1}{L} \sum_{m_1 \neq 0} S(\epsilon_n, p_{m_1}) \Phi(p_{m_1}) + Z(\epsilon_n) \Phi_0 \right).$$

Это соотношение должно выполняться на любых полях  $\Phi$ , поэтому

$$(\epsilon_n - v_c p_m) S(\epsilon_n, p_m) = i\gamma_2 Z(\epsilon_n), \quad (23)$$

$$\epsilon_n Z(\epsilon_n) = -2i\gamma_2 \frac{1}{L} \sum_{m_1 \neq 0} S(\epsilon_n, p_{m_1}).$$

В итоге мы получили уравнение, определяющее спектр:

$$\epsilon_n = 2\gamma_2^2 \frac{1}{L} \sum_{m \neq 0} \frac{1}{\epsilon_n - v_c p_m}. \quad (24)$$

Переходя к безразмерной энергии  $y_n = L\epsilon_n/2\pi v_c$ , получаем

$$y_n = d^2 \left[ \pi \operatorname{ctg}(\pi y_n) - \frac{1}{y_n} \right], \quad d^2 = 2L \left( \frac{\gamma_2}{2\pi v_c} \right)^2 \gg 1, \quad (25)$$

или

$$\operatorname{tg}(\pi y_n) = \frac{\pi d^2 y_n}{d^2 + y_n^2}.$$

Заметим, что  $[\gamma_2] \sim \sqrt{M}$ , поэтому термодинамический переход в нашем случае означает пренебрежение поправками по  $1/ML$  при  $ML \gg 1$ , но не требует предела  $L \rightarrow \infty$ . В нулевом приближении по этому параметру ищем решение в виде

$$y_n = n + \delta y_n, \quad n \gg \delta y_n.$$

Тогда сдвиг вокруг каждой точки  $y_n = n$  удовлетворяет соотношению

$$\delta y_n = \frac{1}{\pi} \operatorname{arctg} \left( \frac{\pi n}{1 + (n/d)^2} \right),$$

где  $\operatorname{arctg}$  определен в интервале  $(-\pi/2, \pi/2)$ .

В итоге спектр есть

$$\epsilon_n = \frac{2\pi v_c}{L} \left( n + \frac{1}{\pi} \operatorname{arctg} \left( \frac{\pi n}{1 + (n/d)^2} \right) \right) \quad (26)$$

при условии  $n \gg \delta y_n$ . Но при  $n \gg 1$  это условие всегда выполнено, так как  $\operatorname{arctg}$  определен в интервале  $(-\pi/2, \pi/2)$ , т.е.  $\sim 1$ . Отсюда следует, что сдвиг уровней мал и им можно пренебречь. И мы имеем спектр, удовлетворяющий периодическим граничным условиям:  $y_n = n$ . Переход в термодинамический предел совершается обычным образом,  $ML \gg 1$ , а  $2\pi n/L = k$  не зависит от  $L$ . В итоге спектр не рассеивающихся на примеси полей тоже равен  $\epsilon(k) = v_c k$ .

### В. Вычисление матрицы поворота

Соотношения (20) и (22) позволяют выразить поле Гинье через поля, диагонализующие гамильтониан ( $\lambda_n$ ), а условие нормировки, записанное в виде (21) с учетом первого уравнения системы (23), дает возможность вычислить нужный нам элемент матрицы поворота  $Z(\epsilon_n)$ :

$$\left(\frac{\gamma_2}{2\pi v_c}\right)^2 L \sum_{m_1 \neq 0} \frac{Z(\epsilon_n)Z(-\epsilon_n)}{(y_n - m_1)^2} + Z(y_n)Z(-y_m) = L. \quad (27)$$

Для вычисления суммы, стоящей в этом выражении, заметим, что

$$\begin{aligned} -\partial_y \sum_{m_1 \neq 0} \frac{1}{y_n - m_1} &= -\partial_y \left( \pi \operatorname{ctg}(\pi y) - \frac{1}{y} \right) = \\ &= \pi^2 \left( 1 + \frac{1 - \sin^2(\pi y)}{\sin^2(\pi y)} \right) - \frac{1}{y^2} = \\ &= \pi^2 + \pi^2 \operatorname{ctg}^2(\pi y) - \frac{1}{y^2} = \pi^2 + \frac{2}{d^2} + \frac{y_k^2}{d^4}. \end{aligned}$$

В итоге, пренебрегая поправками по  $1/L$ , получаем окончательное выражение для элементов матрицы перехода к диагональному виду:

$$Z(\epsilon_n) = \frac{2\sqrt{2}i\gamma_2 \operatorname{sign}(\epsilon_n)}{\sqrt{\mu^2 + \epsilon_n^2}}, \quad (28)$$

$$S(\epsilon_n, p_m) = -\frac{2\sqrt{2}\gamma_2^2 \operatorname{sign}(\epsilon_n)}{\sqrt{\mu^2 + \epsilon_n^2}(\epsilon_n - v_c p_m)}, \quad (29)$$

где  $\mu = \gamma_2^2/v_c \sim \mathcal{M}$ . Это позволяет выразить поле Гинье в гайзенберговском представлении через поля свободных квазичастиц  $\lambda(\epsilon_n)$ :

$$\zeta(t) = -\frac{4i\gamma_2}{L} \sum_{n \neq 0} \frac{\operatorname{sign}(\epsilon_n)}{\sqrt{\mu^2 + \epsilon_n^2}} \lambda(\epsilon_n) \exp(-i\epsilon_n t). \quad (30)$$

### ЛИТЕРАТУРА

1. C. L. Kane and M. P. A. Fisher, Phys. Rev. B **46**, 15233 (1992).
2. A. Furusaki and N. Nagaosa, Phys. Rev. B **47**, 4631 (1993).
3. A. Furusaki, Phys. Rev. B **56**, 9352 (1997).
4. L. I. Glazman, K. A. Matveev, and Yue D, Phys. Rev. B **49**, 1966 (1994).
5. P. Fendley, A. W. W. Ludwig, and H. Saleur, Phys. Rev. B **52**, 8934 (1995).
6. P. Fendley, A. W. W. Ludwig, and H. Saleur, Phys. Rev. Lett. **74**, 3005 (1995).
7. В. В. Афонин, В. Ю. Петров, Письма в ЖЭТФ **97**, 587 (2013).
8. В. В. Афонин, ЖЭТФ **163**, 238 (2023).
9. M. Peskin and D. Schroeder, *An Introduction to Quantum Field Theory*, Addison-Wesley (1996).
10. S. L. Adler and R. F. Dashen, *Current Algebras and Applications to Particle Physics*, W. A. Benjamin Inc, New York–Amsterdam (1968).
11. V. J. Emery, in *Highly Conducting One-Dimensional Solids*, Plenum Press, New York (1979), p. 327.
12. L. D. Landau, Sov. Phys. JETP **7**, 19 (1937).
13. В. В. Афонин, В. Ю. Петров, ЖЭТФ **101**, 637 (2008).
14. J. M. Kosterlitz and D. J. Thouless, J. Phys. C **6**, 1181 (1973).
15. V. V. Afonin and V. Yu. Petrov, Found. Phys. **40**, 190 (2010).
16. K.-V. Pham, M. Gabay, and P. Lederer, *Fractional Excitations in the Luttinger Liquid*, Phys. Rev. B **61**, 1637 (2000).
17. А. Ф. Андреев, ЖЭТФ **46**, 1823 (1964).
18. P. G. d’Gennes, *Superconductivity of Metals and Alloys*, W. A. Benjamin Inc., New York–Amsterdam (1966).
19. В. В. Афонин, В. Ю. Петров, Письма в ЖЭТФ **109**, 797 (2019).
20. J. von Delft and H. Schoeller, cond-mat/9805275 v3 (1998).
21. H. Bateman and A. Erdelyi, *Higher Transcendental Functions*, New York, Mc. Graw-Hill Book Company (1953), Vol. 2, p. 148.

# ГАРМОНИКИ ВЫСШЕГО ПОРЯДКА В ГЕКСАГОНАЛЬНЫХ ГРАФЕНОВЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧКАХ

*Х. В. Седракян<sup>a</sup>, А. Г. Казарян<sup>a\*</sup>, Б. Р. Авчян<sup>a</sup>, К. С. Погосян<sup>a</sup>, Т. М. Маркосян<sup>b</sup>*

<sup>a</sup> *Центр физики сильных полей, Ереванский государственный университет  
0025, Ереван, Армения*

<sup>b</sup> *Институт синхротронных исследований «КЕНДЛ»  
0022, Ереван, Армения*

Поступила в редакцию 29 марта 2023 г.,  
после переработки 29 марта 2023 г.  
Принята к публикации 17 апреля 2023 г.

Рассмотрена генерация высших гармоник в плоских графеновых квантовых точках гексагональной формы в рамках независимого квазичастичного приближения — модели сильной связи. Исследовано, как на такой нелинейный эффект влияют сильное оптическое волновое поле, типичная ширина запрещенной зоны и латеральный размер квантовых точек, а также процессы дефазировки. Уравнение движения для матрицы плотности решается путем интегрирования по времени с помощью алгоритма Рунге–Кутты восьмого порядка. Если частота оптической волны намного меньше собственной ширины запрещенной зоны квантовой точки, то выявляются основные аспекты многофотонного излучения высших гармоник в квантовых точках. В этом случае зависимость энергии фотонов отсечки от напряженности оптической волны накачки практически линейна. Но когда частота волны сравнима с шириной запрещенной зоны квантовой точки, энергия отсечки фотонов при увеличении напряженности поля волны насыщается.

DOI: 10.31857/S0044451023090146

EDN: KEGRMN

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Многофотонный процесс генерации высших гармоник (ГВГ) играет особую роль в нелинейных оптических эффектах, вызванных сильным когерентным электромагнитным полем излучения в области оптических частот, напряженность которого сравнима с внутренним электрическим полем в твердом теле. Он позволяет преобразовать низкочастотную волну накачки в видимом или инфракрасном диапазоне в высокочастотное излучение, например, жесткое ультрафиолетовое в твердой среде [1–9]. Есть два вклада в ГВГ в твердых телах: электронно-дырочные переходы внутри незанятых/занятых уровней и рождение электронно-дырочных пар (переходы с занятых уровней на незанятые) и последующая рекомбинация [3–6, 10–12]. Первый дает вклад только для низких гармоник и аналогичен внутризонному току в полупроводнике, второй и есть основной вклад в высокочастотную часть, соответствующий межзонному току, представляющему со-

бой рекомбинацию/рождение электронно-дырочной пары. Какой вклад существеннее, определяется шириной запрещенной зоны твердого тела и параметрами волнового поля, например, частотой или напряженностью поля. Уникальным свойством ГВГ в твердых телах является то, что энергия отсечки спектров ГВГ линейно зависит от напряженности волны накачки [3], тогда как в газах отсечка спектров ГВГ линейно зависит от интенсивности волны [13]. Действительно, ГВГ является одной из характеристик нелинейно-оптического отклика твердых тел. Их нелинейно-оптические свойства сильно зависят от зонной структуры, уровня примесей и других внутренних характеристик твердых тел. Мы будем исследовать нульмерные системы квантовых точек (КТ) [14, 15], которые состоят из конечного числа атомов углерода [16–19]. Энергетические спектры КТ дискретны из-за размерного квантования и аналогичны спектрам обычных атомов. В то же время КТ по-прежнему имеют особенности кристаллической структуры соответствующего твердого тела: в пределах области КТ атомы располагаются периодически и дискретные энергетические уровни КТ обычно можно идентифицировать как принадлежащие разным зонам твердого тела. Таким об-

\* E-mail: amarkos@ysu.am

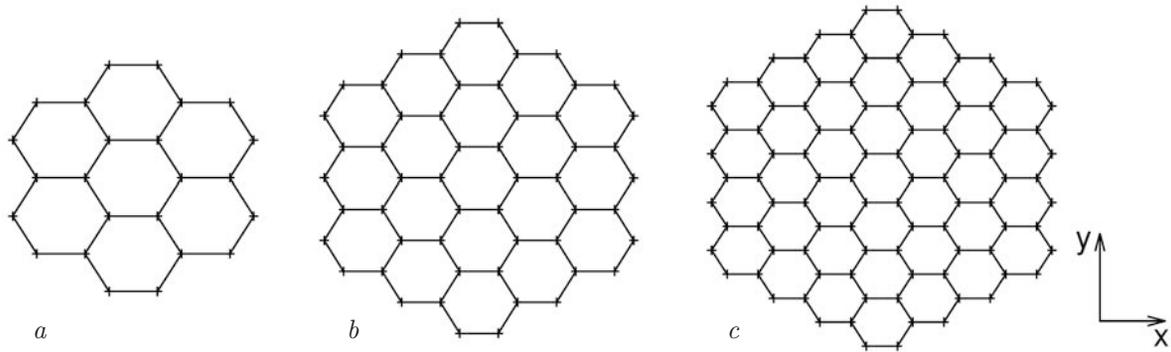


Рис. 1. Геометрическая структура графеновых КТ с 24 (а), 54 (b), 96 (c) атомами. Лазерное поле линейно поляризовано вдоль направления оси  $x$ . Расстояние между ближайшими соседними атомами равно  $b \simeq 1.42 \text{ \AA}$

разом, спектры ГВГ в КТ могут напоминать спектры соответствующих твердых тел. В работе [20] в рамках одномерной модели прослеживалась трансформация спектра ГВГ из атомарного в спектр кристаллического твердого тела для КТ, что показано для КТ, состоящей всего из шести ядер [20].

В работах [21–23] экспериментально наблюдался сильный гармонический сигнал от графеноподобных КТ, таких как замкнуто-выпуклая фуллереновая плазма. Теоретические работы предсказали сильную ГВГ от молекулы  $C_{60}$  [24–27] и от твердого  $C_{60}$  [28]. Что касается плоских графеновых КТ, ГВГ в этих наноструктурах является неисследованной областью, и интересно заполнить этот пробел. Ожидается, что сильная ГВГ от плоских КТ графена будет обладать новыми свойствами, отсутствующими в графене. Ожидается, что эффективность ГВГ будет увеличиваться с увеличением ограничения размерности пространства, поскольку последнее будет ограничивать распространение электронного волнового пакета [29]. Хотя графен обладает экстраординарными транспортными и оптическими свойствами электронной системы [30], отсутствие энергетической щели сильно ограничивает его применимость. Графеновые КТ имеют щель, которая может влиять на нелинейный процесс ГВГ в КТ [20]. Например, теоретически рассматривалось сильная ГВГ в графеновых КТ, состоящих всего из 24 атомов, и влияние на такой нелинейный эффект процессов расфазировки в КТ [31]. В работах [14, 15] преобладает теоретический анализ в одночастичном рассмотрении, но неясно, влияет ли и как латеральный размер КТ графена на процесс ГВГ и электронный отклик субцикла в КТ.

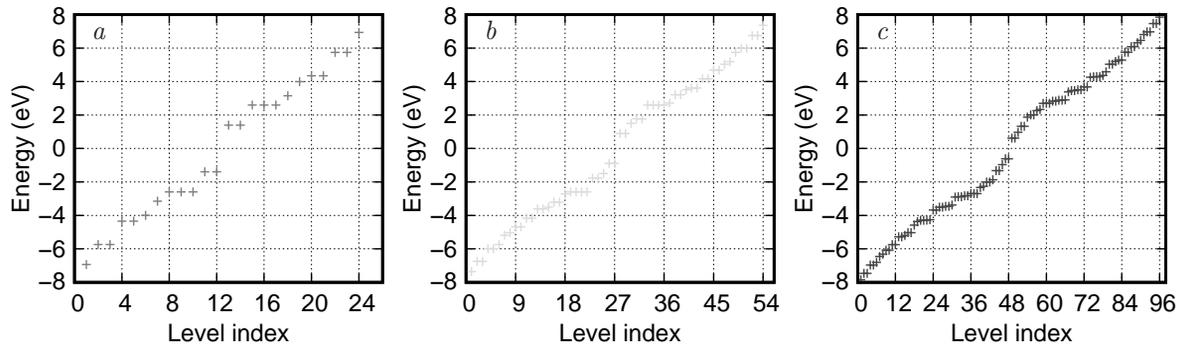
В настоящей работе рассматривается процесс ГВГ в плоских гексагональных графеновых КТ, вызванный интенсивным когерентным излучением, в рамках модели сильной связи [32] — независимого квазичастичного приближения. Взаимодействие

электромагнитной волны с точкой рассмотрено в калибровке длины. В рамках микроскопической теории, описывающей экстремальный нелинейно-оптический отклик КТ, численно решается замкнутая система дифференциальных уравнений для одночастичной матрицы плотности при многофотонном взаимодействии КТ с сильным лазерным полем. Энергетическая щель КТ определяется ее латеральным размером и типом края. Отметим, что рассматриваемые КТ доступны экспериментально [33, 34]. Действительно, для экспериментальной проверки ГВГ от графеновых КТ предлагается подготовить массив КТ для увеличения интенсивности соответствующего излучения [31], а измерения можно проводить, когда испускаемое излучение направляется на спектрометр [35]. Массив графеновых КТ также можно использовать для генерации высокочастотных оптических импульсов. Хотя интенсивность таких импульсов может быть низкой, импульсы могут генерироваться в области жесткого ультрафиолета. Настоящее рассмотрение позволит подвести итоги и наметить оптимальные условия ГВГ в графеновых КТ.

Работа построена следующим образом. В разд. 2 приведена система уравнений для одночастичной матрицы плотности. В разд. 3 мы рассматриваем многофотонное возбуждение и генерацию гармоник в КТ с зигзагообразным краем различных латеральных размеров в зависимости от типичных ширин запрещенной зоны в КТ, интенсивности и частоты лазерного излучения. Наконец, выводы приведены в разд. 4

## 2. ГАМИЛЬТониАН СИЛЬНОЙ СВЯЗИ И ОСНОВНОЕ УРАВНЕНИЕ ДЛЯ ОДНОЧАСТИЧНОЙ МАТРИЦЫ ПЛОТНОСТИ

На рис. 1 показаны геометрические структуры гексагональных КТ с зигзагообразными краями с



**Рис. 2.** Собственные энергии графеновых КТ, представленных на рис. 1. Спектры состоят из одинарного, двойного, тройного и четырехкратно вырожденных уровней. Уровни с отрицательной энергией соответствуют валентной зоне, а уровни с положительной энергией — зоне проводимости. Ширина запрещенной зоны 3.00 эВ (a), 1.77 эВ (b), 1.24 эВ (c)

разным числом атомов углерода с соответствующими запрещенными зонами, которые имеют симметрию  $D_{6h}$ . Будем исследовать процесс ГВГ в такой КТ с сильной электромагнитной волной, линейно поляризованной в направлении  $x$  (см. рис. 1):

$$\mathbf{E}(t) = \hat{\mathbf{x}} E_0 f(t) \cos \omega t, \quad (1)$$

где  $\hat{\mathbf{x}}$  — единичный вектор поляризации,  $E_0$  — амплитуда,  $\omega$  — несущая частота,  $f(t) = \sin^2(\pi t/\mathcal{T})$  — медленно меняющаяся огибающая,  $\mathcal{T}$  — длительность импульса. В качестве последнего принимается  $n$  периодов волны:

$$\mathcal{T} = 2n\pi/\omega = \pi\tau_0.$$

Далее мы рассмотрим частоты оптических волн. Например, при  $\tau_0 = 2n/\omega = 10$  фс происходит восемь колебаний поля волны накачки.

Мы предполагаем нейтральные плоские КТ, электронная система которых описывается моделью сильной связи с полным гамильтонианом

$$\hat{H} = \hat{H}_0^{TB} + \hat{H}_{int}, \quad (2)$$

где

$$\hat{H}_0^{TB} = - \sum_{\langle i,j \rangle \sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} \quad (3)$$

— гамильтониан КТ свободного графена. Здесь оператор  $c_{i\sigma}^\dagger$  рождает электрон со спиновой поляризацией  $\sigma$  в узле  $i$ , а  $\langle i, j \rangle$  пробегает все первые ближайšie узлы перескока на соседние узлы с энергией переноса  $t_{ij}$  ( $\bar{\sigma}$  поляризация спина, противоположная  $\sigma$ ). Взаимодействие света с веществом описывается в калибровке длины через скалярный потенциал

$$\hat{H}_{int} = e \sum_{i\sigma} \mathbf{r}_i \cdot \mathbf{E}(t) c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma},$$

где  $e$  — элементарный заряд,  $\mathbf{r}_i$  — радиус-вектор,  $\mathbf{E}(t)$  — напряженность электрического поля. В гамильтониане мы пренебрегаем колебаниями решетки. Тогда интеграл перескока между ближайшими атомами в позициях  $\mathbf{r}_i$  и  $\mathbf{r}_j$  аппроксимируется

как средняя константа перескока  $t_{ij} = 2.7$  эВ, что близко к экспериментально определенному значению [33, 36]. Из уравнения Гейзенберга

$$i\hbar \frac{\partial \hat{L}}{\partial t} = [\hat{L}, \hat{H}],$$

где  $\hat{L}$  — лагранжиан квантовой системы, можно получить эволюционные уравнения для одночастичной матрицы плотности

$$\rho_{ij}^{(\sigma)} = \langle c_{j\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \rangle.$$

Примем, что система релаксирует со скоростью  $\gamma$  к равновесному распределению  $\rho_{0ij}^{(\sigma)}$ . Таким образом, получаем следующее уравнение для матрицы плотности:

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}^{(\sigma)}}{\partial t} = \sum_k (t_{kj} \rho_{ik}^{(\sigma)} - t_{ik} \rho_{kj}^{(\sigma)}) + e \mathbf{E}(t) \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) \rho_{ij}^{(\sigma)} - i\hbar \gamma (\rho_{ij}^{(\sigma)} - \rho_{0ij}^{(\sigma)}). \quad (4)$$

Мы численно диагонализировали гамильтониан сильной связи  $\hat{H}_0^{TB}$ . Следует отметить, что полные электрон-электронные взаимодействия в настоящем рассмотрении включены в эмпирический интеграл перескоков  $t_{ij}$  между ближайшими соседними атомами. С помощью численной диагонализации находим собственные состояния  $\psi_\mu(i)$  и собственные энергии  $\varepsilon_\mu$  ( $\mu = 0, 1, \dots, N-1$ ) гамильтониана (3) при фиксированном  $t_{ij}$ . Результаты численной диагонализации представлены на рис. 2. Видно, что без туннелирования все уровни энергии вырождены. Итак, туннелирование сняло вырождение и привело к образованию зоны валентных состояний ниже уровня Ферми  $\varepsilon_\mu = 0$ , зоны состояний проводимости выше уровня Ферми и щели поперек уровня Ферми [33]. На рис. 2 также видно, что с ростом числа атомов решетки плотность состояний увеличивается. Это может оказать прямое влияние на выход ГВГ, как будет показано ниже.

Квантовая динамика КТ в периодическом сильном волновом поле определяется замкнутой системой дифференциальных уравнений (4), которая должна быть решена с определенными начальными условиями. Построим матрицу плотности  $\rho_{0ij}^{(\sigma)}$  через заполнение электронных состояний в валентной зоне в соответствии с распределением Ферми – Дирака при нулевой температуре,

$$\rho_{0ij}^{(\sigma)} = \sum_{\mu=N/2}^{N-1} \psi_{\mu}^*(j) \psi_{\mu}(i),$$

с собственным состоянием  $\psi_{\mu}(i)$  гамильтониана  $\widehat{H}_0^{TB}$ . Уравнение движения для матрицы плотности решается путем численного интегрирования по времени уравнения (4) с помощью алгоритма Рунге – Кутты восьмого порядка.

### 3. ЧИСЛЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В этом разделе мы рассмотрим нелинейный отклик плоских графеновых КТ с учетом генерации гармоник при многофотонном возбуждении. Спектр гармоник определяется преобразованием Фурье  $\mathbf{a}(\Omega)$  дипольного ускорения  $\mathbf{a}(t) = d^2\mathbf{d}/dt^2$ . Для сравнения спектров ГВГ-излучения в КТ с разным числом атомов решетки мы получили все результаты для спектров, нормируя их на число атомов  $N$ . Дипольный момент  $\mathbf{d}(t) = \left\langle \sum_{i\sigma} \mathbf{r}_i c_{i\sigma}^{\dagger} c_{i\sigma} \right\rangle$  тоже можно нормализовать, разделив на дипольное ускорение  $a_0 = \overline{\omega}^2 \overline{d}$ , где  $\overline{\omega} = 1 \text{ эВ}/\hbar$  и  $\overline{d} = 1 \text{ \AA}$ . Мощность ГВГ при фиксированной частоте пропорциональна  $|\mathbf{a}(\Omega)|^2$ . Для рассматриваемого приближения сильной связи частота волны накачки должна быть  $\hbar\omega \ll t_{ij}$ . На рис. 2 показан соответствующий энергетический спектр в окрестности уровня Ферми,  $\varepsilon_{\mu} = 0$ . Состоящие из  $N$  атомов КТ, согласно модели сильной связи, имеют  $N$  уровней, при этом  $N/2$  уровней с отрицательными энергиями до действия волны изначально заняты и принадлежат валентной зоне, а  $N/2$  уровней с положительными энергиями пусты и относятся к зоне проводимости. Благодаря размерному квантованию графеновые КТ имеют собственную ширину запрещенной зоны, которая определяется поперечным размером КТ. Основные аспекты многофотонной ГВГ в КТ проявляются, когда частота волны много меньше энергетической щели КТ. Значения ширины запрещенной зоны КТ для числа атомов  $N = 24, 54, 96$  соответственно равны 3 эВ, 1.77 эВ, 1.24 эВ. КТ имеет относительно большую ширину запрещенной зоны, например,

около 3 эВ при  $N = 24$ , поэтому для оптической волны накачки с частотами 1–2.5 эВ отсутствуют резонансные переходы внутри системы. С увеличением размера КТ ширина запрещенной зоны за счет размерного квантования уменьшается. Итак, резонансные переходы на относительно малых частотах волны реальны. Как показано в работе [31], влияние релаксационных процессов на ГВГ в графеновых КТ уже значительны для КТ достаточно малых размеров.

Для определения полной населенности зон в КТ при воздействии волны накачки мы сделали замену базиса по формуле

$$\rho_{ij} = \sum_{\mu'} \sum_{\mu} \psi_{\mu'}^*(j) \rho_{\mu\mu'} \psi_{\mu}(i),$$

где  $\rho_{\mu\mu'}$  — матрица плотности в энергетическом представлении. Диагональные элементы  $N(t) = \rho_{\mu\mu}(t)$  представляют функции распределения валентной зоны и зоны проводимости, а недиагональные элементы описывают когерентные переходы между валентной зоной и зоной проводимости. На рис. 3 и 4 представлены населенности зон  $N(t)$ , рассчитанные по известной матрице плотности  $\rho_{\mu\mu}(t)$  при воздействии волны накачки с частотой  $\omega = 1.5 \text{ эВ}/\hbar$ , в зависимости от энергии уровня и номера уровня КТ соответственно. На рис. 3 уровни с положительной энергией, соответствующие зоне проводимости, в основном пусты. Напротив, уровни с отрицательной энергией, соответствующие валентной зоне, заполнены электронами с противоположными спинами. Максимальная разность энергий между уровнями валентной зоны и зоны проводимости составляет около 16 эВ для всех случаев КТ с разным числом атомов. Если при этом высокие гармоники генерируются за счет переходов между уровнями КТ, то величина 16 эВ должна быть максимальной энергией, которая может генерироваться в такой КТ. Населенность уровней КТ, зависящая от времени из-за взаимодействия электронов с волной, приводит к гармоникам с энергиями выше 16 эВ, как обсуждается ниже. Вырожденные энергетические состояния КТ без туннелирования (см. рис. 2) дают одинаковые результаты для населенности зон КТ, взаимодействующих с волной накачки. Поэтому, как видно на рис. 3, для разных энергий результатов (вертикальных линий) меньше, чем на рис. 4 для разных номеров уровней. Рисунки 3, 4 показывают, что с увеличением числа атомов в КТ вероятность зонных состояний возрастает. Последнее может существенно изменить населенность зоны проводи-

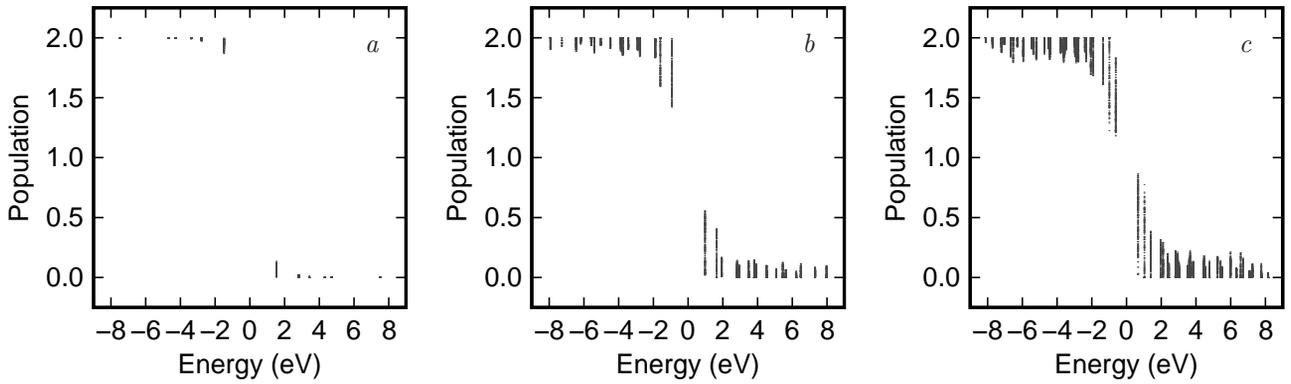


Рис. 3. Зависимости населенности зоны в волне накачки, нормированные на число атомов  $N$ , от энергии уровня для КТ с  $N = 24$  (a), 54 (b), 96 (c) атомами. Уровни с отрицательной энергией принадлежат валентной зоне, а уровни с положительной энергией — зоне проводимости. Вырожденные энергетические состояния дают одинаковый результат. Время релаксации  $\tau = 4$  фс. Частота линейно поляризованной волны  $\omega = 1.5 \text{ эВ}/\hbar$ , а напряженность волнового поля  $E_0 = 0.4 \text{ В}/\text{Å}$

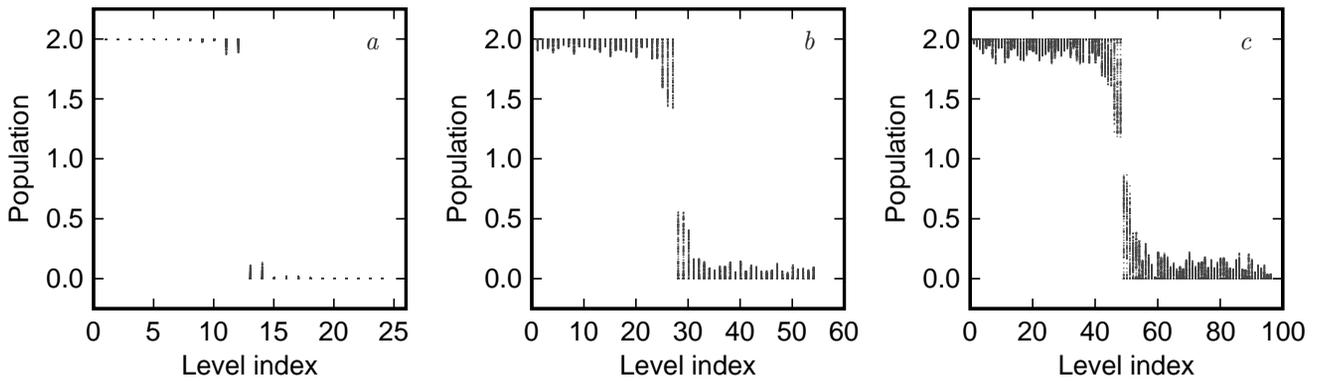


Рис. 4. То же, что и на рис. 3, но в зависимости от номера уровня

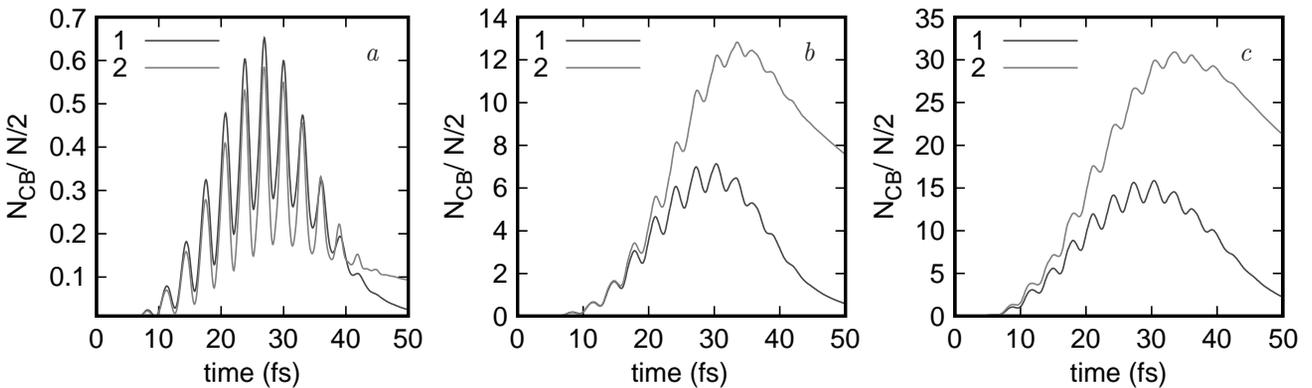


Рис. 5. (В цвете онлайн) Населенность зоны проводимости  $N_{CB}$  в зависимости от времени для КТ с 24 (a), 54 (b) и 96 (c) атомами. Результат нормирован на число электронов  $N/2$  в зоне проводимости. Частота волны  $\omega = 1.5 \text{ эВ}/\hbar$ , напряженность поля  $E_0 = 0.4 \text{ В}/\text{Å}$ . Времена релаксации равны  $\tau = 4$  фс (1),  $\tau = 20$  фс (2)

мости для КТ с большим числом атомов. Чтобы показать это, на рис. 5 приведена населенность зоны проводимости в КТ при воздействии волны накачки. Рассчитаем зависящую от времени населенность  $N_{CB}(t)$  зоны проводимости с известной матрицей

плотности, используя следующее выражение:

$$N_{CB}(t) = \sum_{\mu=0}^{N/2-1} \rho_{\mu\mu}(t),$$

где сумма берется по всем состояниям зоны прово-

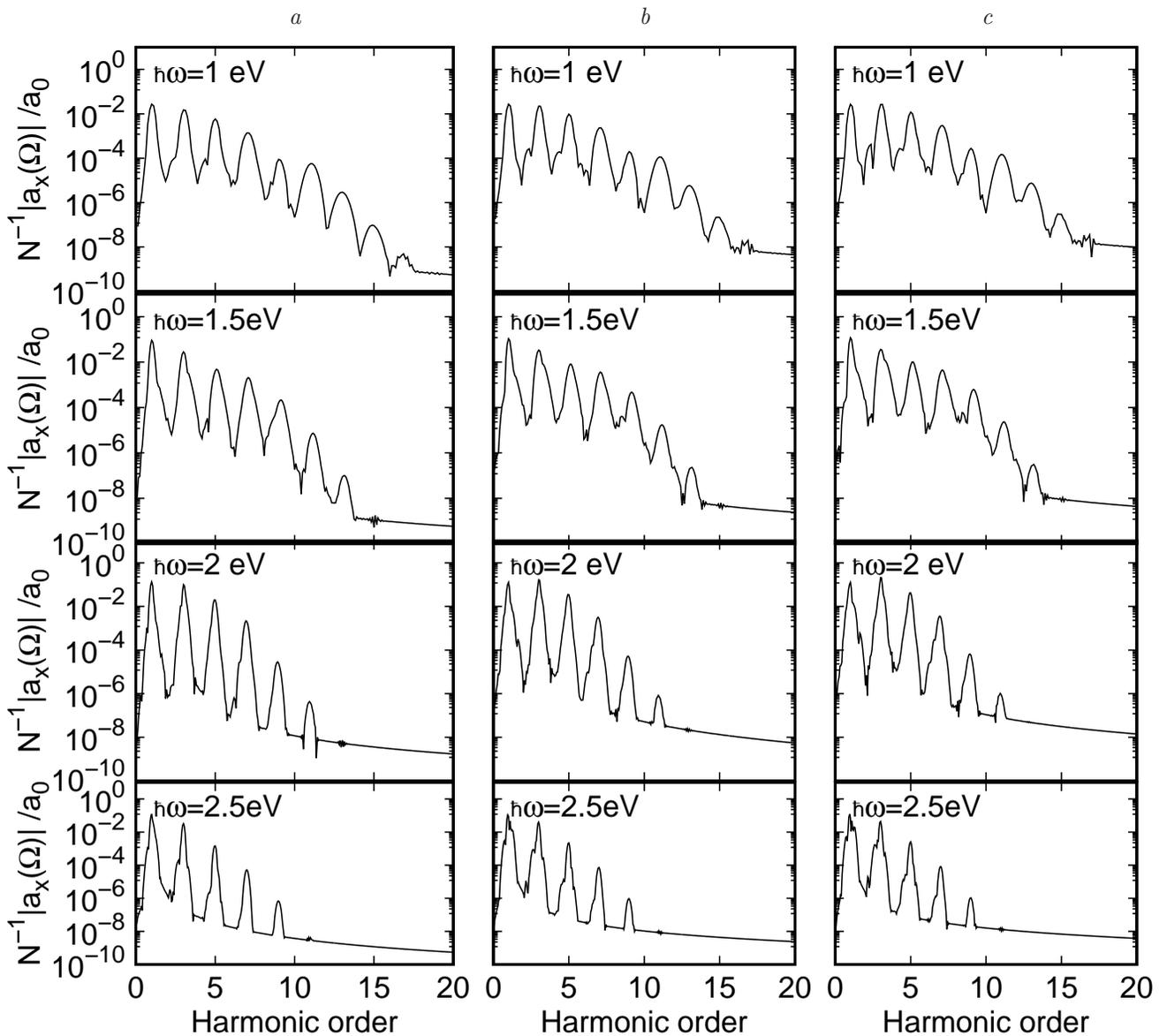


Рис. 6. Спектры ГВГ в режиме сильного поля через преобразование Фурье дипольного ускорения  $N^{-1}|a_x(\Omega)|/a_0$  в логарифмическом масштабе в зависимости от номера гармоники для КТ с 24 атомами. Для каждого графика отмечена соответствующая частота волн. Время релаксации  $\tau = 4$  фс (а),  $\tau = 10$  фс (б),  $\tau = 20$  фс (с). Напряженность линейно поляризованного волнового поля  $E_0 = 0.4 \text{ В/\AA}$

димости КТ. Зависимости населенности уровней зоны проводимости от времени релаксации чувствительны к частоте волны накачки. Для взятой частоты волны  $1.5 \text{ эВ}/\hbar$  (рис. 5) с увеличением времени релаксации населенность уровней зоны проводимости подавляется. При частоте волны, близкой к собственной ширине запрещенной зоне КТ, населенность энергетических уровней слабо зависит от времени релаксации [31]. Сравнивая рис. 3, 4 с рис. 5, можно заключить, что населенность зоны проводимости иллюстрирует высокую необратимую динамику электронов, когда населенность после взаимодействия с волной накачки сравнима с макси-

мальной населенностью зоны проводимости во время действия волны накачки.

Спектры излучения в режиме сильного поля для КТ разных размеров представлены на рис. 6–8 для линейно поляризованной волны накачки с фиксированной напряженностью поля  $E_0 = 0.4 \text{ В/\AA}$  в области оптических частот. Из-за инверсионной симметрии КТ генерируются только нечетные гармоники. Дипольное излучение системы линейно поляризовано вдоль направления  $x$ , см. рис. 1. Как показано в работе [31], динамика электронов в поле оптической волны накачки сильно зависит от релаксационных процессов. Чтобы проиллюстрировать такую зави-

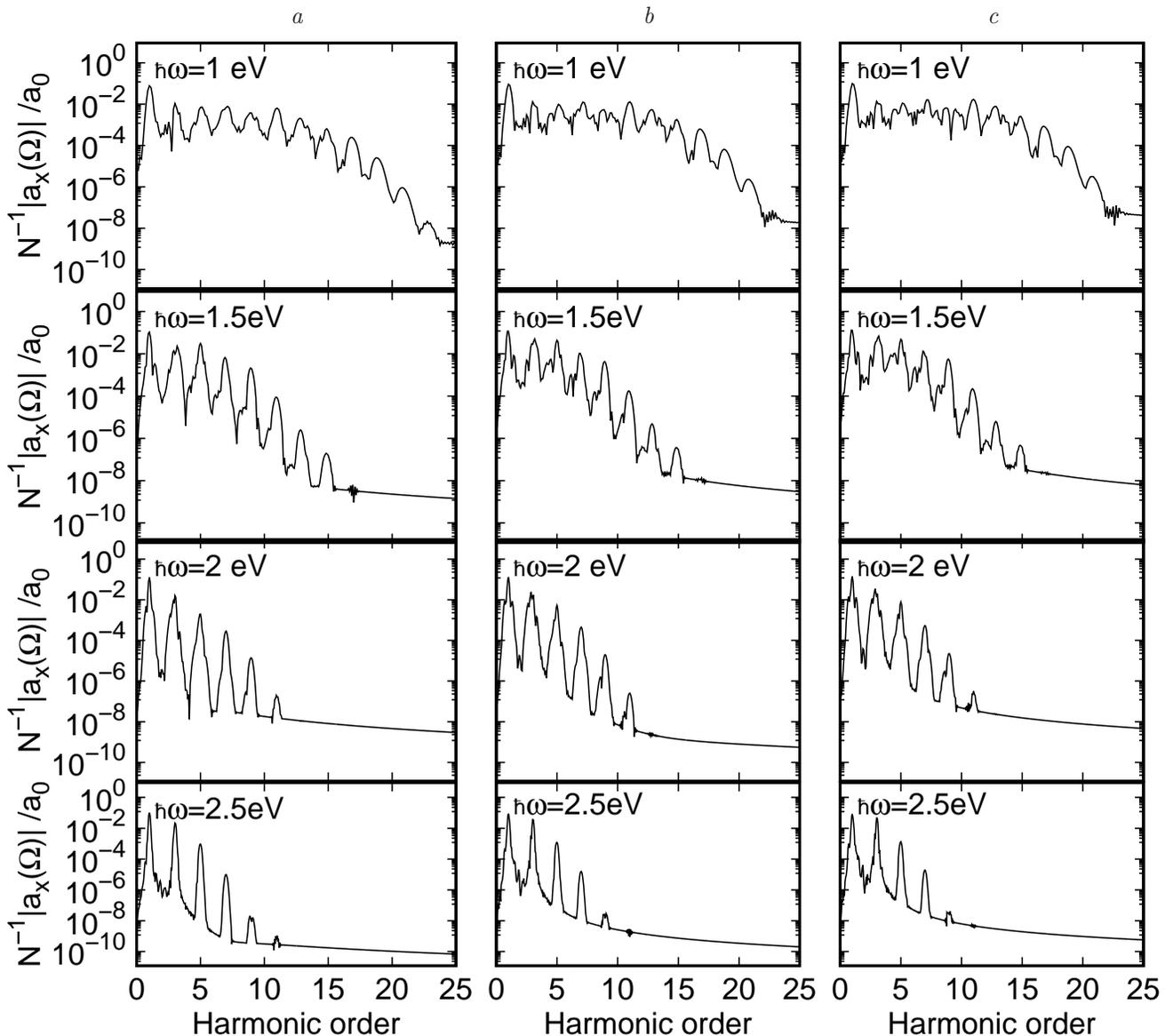


Рис. 7. То же, что и на рис. 6, но для КТ с 54 атомами

симось, мы показываем на рис. 6–8 спектры излучения ГВГ для четырех различных частот волны и трех различных значений времени релаксации. Вероятности релаксации составили  $\hbar\gamma = 16.45$  мэВ для времени релаксации  $\tau = 4$  фс,  $\hbar\gamma = 6.58$  мэВ для  $\tau = 10$  фс и  $\hbar\gamma = 3.29$  эВ для  $\tau = 20$  фс. Как видно на рис. 6–8, в некоторых случаях частота волны немного больше, чем собственная ширина запрещенной зоны КТ, в этом случае генерируются всего несколько высших гармоник. Например, рис. 7b показывает, что при времени релаксации 20 фс максимальное число гармоник, генерируемых при  $\omega = 1$  эВ/ $\hbar$ , равно 23, а при частоте  $\omega \simeq 2$  эВ/ $\hbar$  равно 17.

Рисунки 6–8 показывают также, что частота гармоник уменьшается с увеличением времени релаксации. Это результат влияния релаксации на от-

сечку гармоник, что также связано с обратимостью электронной динамики, т. е. с увеличением времени релаксации электронная динамика становится более обратимой с меньшей населенностью высоко-возбужденных уровней КТ [31]. При частоте волны  $\omega = 1$  эВ/ $\hbar$ , как показано на рис. 6–8, номер гармоники отсечки  $n_{cut} = 17$  для КТ с  $N = 24$  атомами и  $n_{cut} = 23$  для  $N = 54$  и  $N = 96$  атомов, что не может быть связано с переходом низшего занятого энергетического состояния в высшее незанятое (см. рис. 4). Максимальная разность энергий связана с возбуждениями собственных энергетических состояний между незанятыми энергетическими уровнями и занятыми уровнями и должна составлять  $n_{cut}\hbar\omega \simeq 16$  эВ, см. рис. 3с. Тогда, как следует из рис. 6–8, номер отсечки спектра высших гармо-

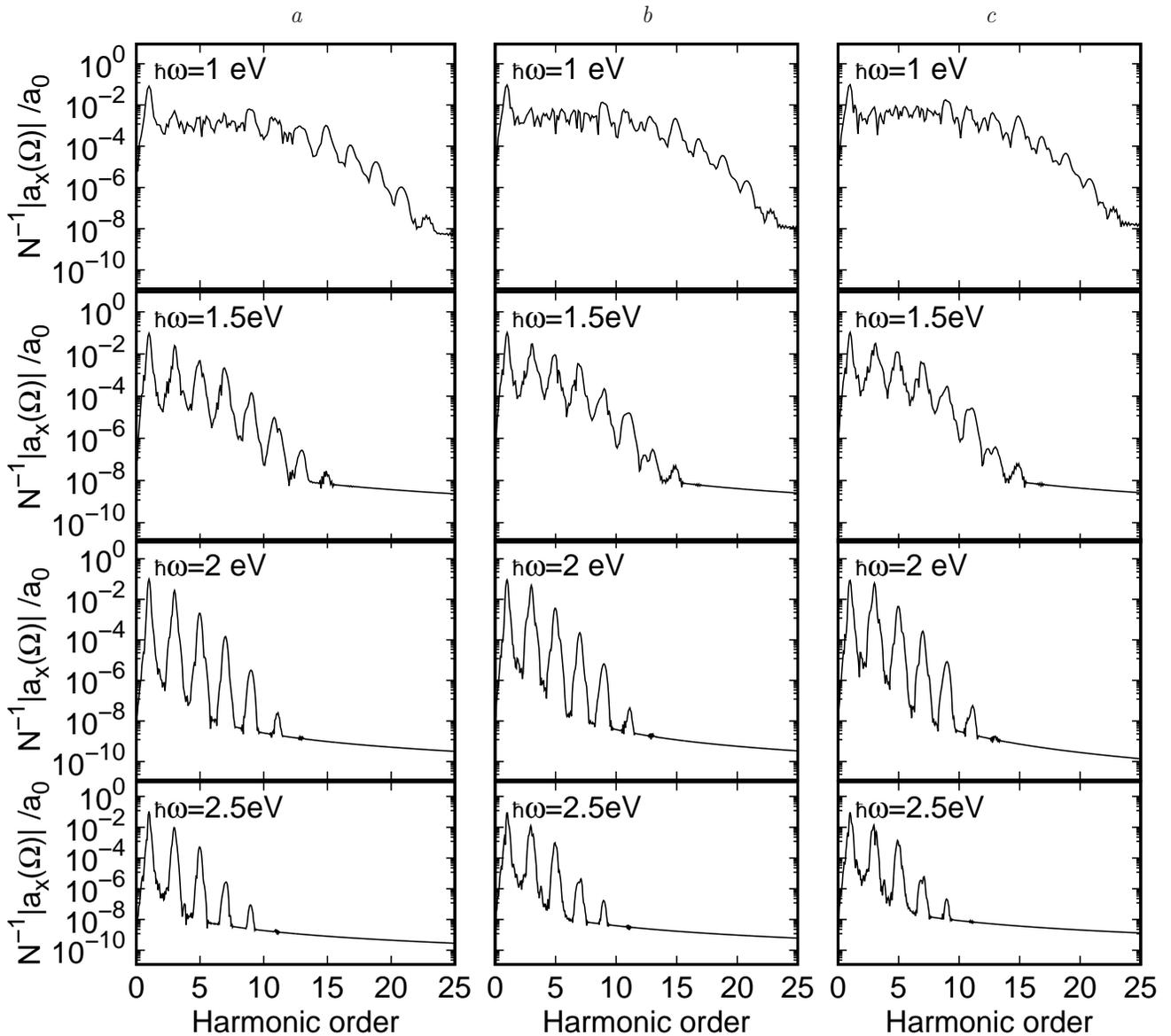


Рис. 8. То же, что и на рис. 6, но для КТ с 96 атомами

ник, излучаемых КТ, значительно больше. Изменение во времени населенностей уровней КТ, т. е. одевание состояний КТ за счет электронно-волновых взаимодействий, приводит к гармоникам с частотами больше чем  $16 \text{ эВ}/\hbar$ , как обсуждалось выше (см. также рис. 3–5).

Кроме того, мы рассмотрели спектры ГВГ в зависимости от поля волны накачки. На рис. 9 приведены спектры ГВГ в зависимости от напряженности поля и порядка гармоники для фиксированной оптической частоты  $\omega = 1 \text{ эВ}/\hbar$  в КТ с различным числом атомов углерода. Как показано на рис. 9, вероятность ГВГ увеличивается с ростом числа атомов  $N$  или с появлением новых энергетических состояний (см. также рис. 2). В пределах каж-

дого плато гармоника отсечки линейно возрастает с увеличением напряженности волнового поля. Так, для времени релаксации  $\tau = 4 \text{ фс}$  достигаются гармоники отсечки  $n_{cut} = 17$  и  $n_{cut} = 23$  для атомов  $N = 24$  и  $N = 54$  соответственно, что отвечает переходу низшего занятого энергетического состояния в высшее незанятое через квазистационарные состояния зависящей от времени волновой функции с относительными квазиэнергиями [37], а вероятность ГВГ достигает насыщения. Обратите внимание, что на рис. 6, 7, 9 выявляется линейная зависимость энергии отсечки ГВГ  $n_{cut}\hbar\omega$  от напряженности поля волны, аналогичная ГВГ через дискретные уровни [37–39], либо в кристаллах с линейной дисперсией энергии [40–42].

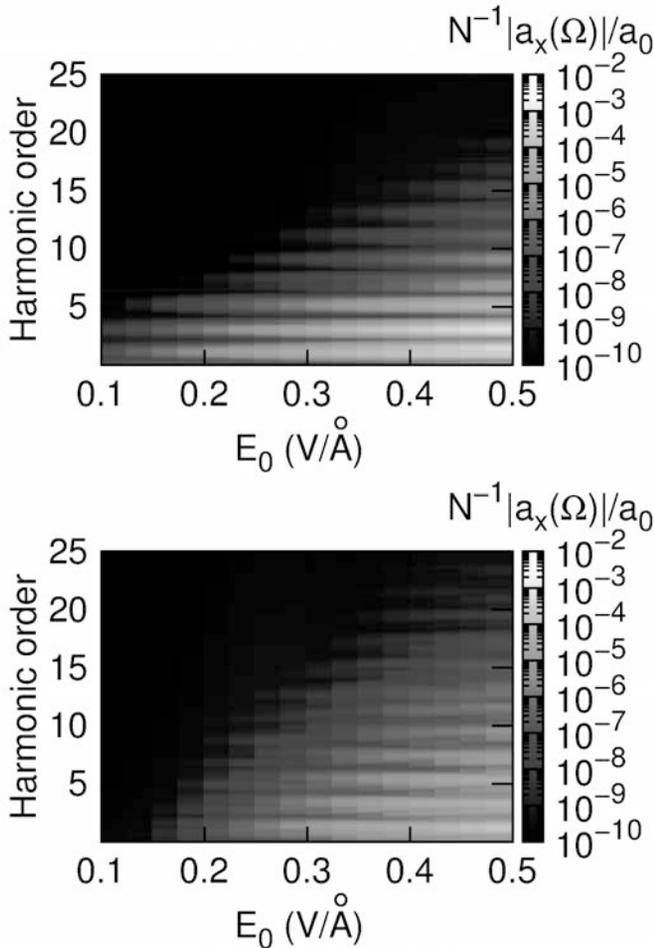


Рис. 9. (В цвете онлайн) Цветные полосы представляют уровень излучения ГВГ в режиме сильного поля в логарифмическом масштабе через преобразование Фурье дипольного ускорения  $N^{-1}|a_x(\Omega)|/a_0$  (в условных ед.) в зависимости от номера гармоники и напряженности волнового поля  $E_0$  при фиксированной частоте волны  $\omega = 1 \text{ эВ}/\hbar$  для КТ с  $N = 24$  атомами и шириной запрещенной зоны 3 эВ (a) и  $N = 54$  атомами и шириной запрещенной зоны 1.77 эВ (b). Время релаксации  $\tau = 4$  фс

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мы рассмотрели процессы многофотонного возбуждения и ГВГ в плоских гексагональных графеновых КТ с зигзагообразными ребрами. Для таких КТ применена микроскопическая квантовая теория, описывающая взаимодействие КТ с полем лазера в рамках модели сильной связи. Полученные результаты показывают нелинейное поведение спектров ГВГ со структурой множественных плато, если частота волны намного меньше типичного эмпирического параметра туннелирования между ближайшими атомами,  $t_{ij}/\hbar$ , и ширины собственной запрещенной зоны графеновой КТ. Последнее вызвано

размерным квантованием и зависит от латерального размера точки. Энергия отсечки фотонов в процессе ГВГ в зависимости от напряженности поля волны почти линейная на малых частотах волны накачки, когда соответствующая энергетическая отсечка меньше диапазона энергий, в который входят низший и высший уровни энергии в КТ. Если этот диапазон энергий становится сравнимым с энергетической щелью КТ, что происходит при больших частотах волны, то отсечка в зависимости от напряженности волны накачки выходит на плато. При этом доминирующее плато смещается в сторону более высоких частот с увеличением числа атомов. Следовательно, при изменении латерального размера наноструктуры можно увеличить порядки гармоник в пределах основного плато. Кроме того, энергия отсечки фотонов также смещается в ультрафиолетовую область с увеличением латерального размера наноструктуры. Продемонстрированная модель позволит развить теорию аттосекундной спектроскопии высших гармоник для восстановления электронных свойств графеновых КТ.

**Благодарности.** Авторы глубоко признательны Г. К. Аветисяну и Г. Ф. Мкртчяну за постоянные обсуждения и ценные рекомендации.

**Финансирование.** Работа выполнена при поддержке Комитета науки Республики Армения в рамках Проекта 20TTWS-1C010.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. D. von der Linde, T. Engers, G. Jenke, P. Agostini, G. Grillon, E. Nibbering, A. Mysyrowicz, and A. Antonetti, *Phys. Rev. A* **52**, R25(R) (1995).
2. P. A. Norreys, M. Zepf, S. Moustakizis, A. P. Fews, J. Zhang, P. Lee, M. Bakarezos, C. N. Danson, A. Dyson, P. Gibbon, P. Loukakos, D. Neely, F. N. Walsh, J. S. Wark, and A. E. Dangor, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1832 (1996).
3. S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, *Nat. Phys.* **7**, 138 (2011).
4. G. Vampa, T. J. Hammond, N. Thire, B. E. Schmidt, F. Legare, C. R. McDonald, T. Brabec, and P. B. Corkum, *Nature* **522**, 462 (2015).
5. H. K. Avetissian, *Relativistic Nonlinear Electrodynamics, Relativistic Nonlinear Electrodynamics: The QED Vacuum and Matter in Super-Strong Radiation Fields*, Springer, Berlin (2015).

6. G. Ndabashimiye, S. Ghimire, M. Wu, D. A. Browne, K. J. Schafer, M. B. Gaarde, and D. A. Reis, *Nature*, **534**, 520 (2016).
7. Y. L. Li, Y. S. You, S. Ghimire, T. F. Heinz, H. Z. Liu, and D. A. Reis, *Nat. Phys.* **13** 262 (2017).
8. Y. Yin, Y. Wu, A. Chew, X. Ren, F. Zhuang, S. Gholam-Mirzaei, M. Chini, Z. Chang, Y. S. You, and S. Ghimire, *Nat. Commun.* **8**, 724 (2017).
9. N. Klemke, N. Tancogne-Dejean, G. M. Rossi, Y. Yang, F. Scheiba, R. E. Mainz, G. Di Sciacca, A. Rubio, F. X. Kartner, and O. D. Mucke, *Nat. Commun.* **10**, 1319 (2019).
10. D. Golde, T. Meier, and S. W. Koch, *Phys. Rev. B* **77**, 075330 (2008).
11. N. Klemke, O. D. Mucke, A. Rubio, F. X. Kartner, and N. Tancogne-Dejean, *Phys. Rev. B* **102**, 104308 (2020).
12. I. Kilen, M. Kolesik, J. Hader, J. V. Moloney, U. Huttner, M. K. Hagen, and S. W. Koch, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 083901 (2020).
13. J. L. Krause, K. J. Schafer, and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3535 (1992).
14. R. C. Ashoori, *Nature*, **379**, 413 (1996).
15. T. Chakraborty, *Quantum Dots*, Elsevier, Amsterdam (1999).
16. D. Pan, J. Zhang, Z. Li, and M. Wu, *Adv. Mater.* **22**, 734 (2010).
17. S. Chung, R. A. Revia, and M. Zhang, *Adv. Mater.* **33**, 1904362 (2021).
18. H. Sun, L. Wu, W. Wei, and X. Qu, *Mater. Today* **16**, 433 (2013).
19. M. Bacon, S. J. Bradley, and T. Nann, *Part. Part. Syst. Character.* **31**, 415 (2014).
20. K. K. Hansen, D. Bauer, and L. B. Madsen, *Phys. Rev. A* **97**, 043424 (2018).
21. R. Ganeev, L. Bom, J. Abdul-Hadi, M. Wong, J. Brichta, V. Bhardwaj, and T. Ozaki, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 013903 (2009).
22. R. Ganeev, L. E. Bom, M. C. H. Wong, J. P. Brichta, V. Bhardwaj, P. Redkin, and T. Ozaki, *Phys. Rev. A* **80**, 043808 (2009).
23. R. A. Ganeev, *J. Mod. Opt.* **59**, 409 (2012).
24. G. P. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 047401 (2005).
25. G. P. Zhang and T. F. George, *Phys. Rev. A* **74**, 023811 (2006).
26. G. P. Zhang and T. F. George, *J. Opt. Soc. Amer. B* **24**, 1150 (2007).
27. L. Jia, Zh. Zhang, D. Z. Yang, Y. Liu, M. S. Si, G. P. Zhang, and Y. S. Liu, *Phys. Rev. B* **101**, 144304 (2020).
28. G. P. Zhang and Y. H. Bai, *Phys. Rev. B* **101**, 081412 (2020).
29. M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
30. A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, and A. K. Geim, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 109 (2009).
31. S. Gnawali, R. Ghimire, K. R. Magar, S. J. Hossaini, and V. Apalkov, *Phys. Rev. B* **106**, 075149 (2022).
32. P. R. Wallace, *Phys. Rev.* **71**, 622 (1947).
33. A. D. Guclu, P. Potasz, M. Korkusinski, and P. Hawrylak, *Graphene Quantum Dots*, Springer, Berlin (2014).
34. H. Yoon, M. Park, J. Kim, T. G. Novak, S. Lee, and S. Jeon, *Chem. Phys. Rev.* **2**, 031303 (2021).
35. E. Goulielmakis and T. Brabec, *Nat. Photon.* **16**, 411 (2022).
36. A. H. C. Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, and A. K. Geim, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 109 (2009).
37. H. K. Avetissian, B. R. Avchyan, and G. F. Mkrtchian, *J. Phys. B* **45**, 025402 (2012).
38. H. K. Avetissian, A. G. Markossian, and G. F. Mkrtchian, *Phys. Rev. A* **84**, 013418 (2011).
39. H. K. Avetissian, A. G. Markossian, and G. F. Mkrtchian, *Phys. Lett. A* **375**, 3699 (2011).
40. G. Vampa, C. R. McDonald, G. Orlando, D. D. Klug, P. B. Corkum, and T. Brabec, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 073901 (2014).
41. G. Vampa, C. R. McDonald, G. Orlando, P. B. Corkum, and T. Brabec, *Phys. Rev. B* **91**, 064302 (2015).
42. H. K. Avetissian, A. K. Avetissian, B. R. Avchyan, and G. F. Mkrtchian, *Phys. Rev. B* **100**, 035434 (2019).

# ДИНАМИКА ЯН-ТЕЛЛЕРОВСКОГО УПОРЯДОЧЕНИЯ В ПАРАЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ФАЗЕ $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$ : ЗОНДОВАЯ МЕССБАУЭРОВСКАЯ ДИАГНОСТИКА НА ЯДРАХ $^{57}\text{Fe}$

А. В. Соболев<sup>а</sup>, В. И. Ниценко<sup>а</sup>, А. А. Белиж<sup>б</sup>, Я. С. Глазкова<sup>а\*</sup>, М. С. Кондратьева<sup>с</sup>,  
И. А. Пресняков<sup>а,с</sup>

<sup>а</sup> Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова  
119991, Москва, Россия

<sup>б</sup> Research Center for Materials Nanoarchitectonics (MANA),  
National Institute for Materials Science (NIMS)  
Tsukuba 305-0044, Ibaraki, Japan

<sup>с</sup> Shenzhen MSU-BIT University  
Shenzhen 518115, Guangdong province, China

Поступила в редакцию 27 апреля 2023 г.,  
после переработки 27 апреля 2023 г.  
Принята к публикации 2 мая 2023 г.

Представлены результаты мессбауэровского исследования электрических сверхтонких взаимодействий зондовых ядер  $^{57}\text{Fe}$ , стабилизированных в структуре манганита  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$ . Измерения спектров проводились в параэлектрической области температур, включающей структурные фазовые переходы  $I2/m \leftrightarrow Im\bar{3}$  ( $T_1 \approx 600$  К) и  $Im \leftrightarrow I2/m$  ( $T_2 \approx 450$  К). Расчет параметров тензора градиента электрического поля с учетом дипольных вкладов от катионов  $\text{Bi}^{3+}$  в области первого фазового перехода позволил подтвердить случайную ориентацию дипольных моментов  $p_{\text{Bi}}$  в кубической фазе манганита ( $Im\bar{3}$ ). На основании анализа мессбауэровских спектров при  $T_2 < T < T_1$  в рамках релаксационной двухуровневой модели рассмотрены различные сценарии проявления динамического эффекта Яна–Теллера, приводящего к «плавлению» орбитального порядка в подрешетке марганца.

DOI: 10.31857/S0044451023090158

EDN: KENEI

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Повышенный интерес исследователей к двойному манганиту висмута  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$  [1–4] и соединениям на его основе, например,  $\text{BiMn}_{7-x}\text{Cu}_x\text{O}_{12}$  ( $0 < x \leq 1$ ) [5, 6] связан с большим числом проявляемых этими перовскитоподобными системами структурных и магнитных фазовых переходов. Предполагается, что подобное разнообразие разных по своей природе переходов во многом связано с входящими в состав этих оксидов двух «активных», с точки зрения структурной неустойчивости, катионов  $\text{Mn}^{3+}$  и  $\text{Bi}^{3+}$  [7–10]. Высокоспиновые ян-теллеровские ка-

тионы  $\text{Mn}^{3+}(d^4)$  в идеальном октаэдрическом анионном окружении имеют двукратно вырожденную конфигурацию  $e_g^1$ , для которой характерно не только локальное искажение полиэдров  $\text{MnO}_6$ , сохраняющее их центр симметрии, но и кооперативное взаимодействие самих ян-теллеровских центров, которое часто приводит к орбитальному упорядочению [7, 8, 11, 12]. Именно с орбитальным упорядочением часто связано образование при низких температурах необычных типов магнитного упорядочения катионов  $\text{Mn}^{3+}$  [2, 6, 13, 14]. В случае легко поляризуемых катионов  $\text{Bi}^{3+}(6s^2)$ , имеющих стереохимически активную неподеленную  $6s^2$ -электронную пару, индуцируемые искажения кристаллической решетки приводят к исчезновению центросимметричных позиций. В большинстве случаев с этими типами искажений связаны переходы кристаллов в ферроэлектрическое состояние [15, 16]. Сосуществование в одном соединении магнитного порядка и элект-

\* E-mail: janglaz@bk.ru

трической поляризации является характерной особенностью «собственных» мультиферроиков, имеющих большое фундаментальное и практическое значение [17].

В последнее время для исследования рассматриваемых манганитов и схожих классов соединений все чаще применяются локальные ядерно-резонансные методы диагностики [18–24]. Получаемые с помощью этих методов температурные зависимости сверхтонких магнитных полей  $B_{hf}$  и главных компонент  $V_{ii}$  тензора градиента электрического поля (ГЭП) отражают аналогичные зависимости спонтанных намагниченности и электрической поляризации [9, 18–24]. Ранее нами уже были опубликованы результаты исследования  $\text{ViMn}_7\text{O}_{12}$  методом зондовой мессбауэровской спектроскопии ядер  $^{57}\text{Fe}$  в температурных областях со спонтанной электрической поляризацией  $T_N < T < T_2$  (где  $T_N \approx 60$  К и  $T_2 \approx 450$  К) [25]. На основании полученных экспериментальных данных и разработанных модельных подходов впервые были построены температурные зависимости электрической поляризации  $P_S(T)$ , по которым удалось установить природу наблюдаемых структурных фазовых переходов.

В настоящей работе зондовый вариант мессбауэровской спектроскопии на ядрах  $^{57}\text{Fe}$  применен для исследования двух высокотемпературных областей, в первой из которых ( $T > T_1 \approx 600$  К)  $\text{ViMn}_7\text{O}_{12}$  находится в разупорядоченном параэлектрическом состоянии, а во второй ( $T_1 > T > T_2 \approx 450$  К), как предполагается в некоторых работах [3, 5, 6], переходит в состояние с орбитальным упорядочением в подрешетке марганца. Цель настоящей работы состоит в построении общей картины наблюдаемых для манганита  $\text{ViMn}_7\text{O}_{12}$  структурных и электрических фазовых переходов, демонстрирующих взаимосвязь между так называемыми орбитальными, зарядовыми и спиновыми степенями свободы в фазах с сильной электронной корреляцией.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Методика синтеза легированного манганита  $\text{ViMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$  при высоких давлениях была подробно описана в наших предыдущих публикациях [3, 25]. Контроль однофазности полученных образцов и структурные исследования проводились с помощью порошковой дифракции на синхротронном источнике рентгеновского излучения в температурном диапазоне 300–650 К в большой камере Дебая–Шеррера на линии BL15XU (SPring-8)

в интервале  $2\theta$  от 3 до 60° с шагом 0.003°. Использовали монохроматическое излучение с длиной волны  $\lambda = 0.65298$  Å. Интерпретация диффрактограмм и уточнение параметров кристаллической решетки проводились методом Ритвельда с помощью пакета RIETAN-2000 [26].

Кривые дифференциальной сканирующей калориметрии (ДСК) измеряли в алюминиевых капсулах с помощью калориметра Mettler Toledo DSC1 STAR<sup>e</sup> при скорости нагрева/охлаждения 10 К/мин в токе азота и температурном диапазоне от 140 до 673 К.

Мессбауэровские спектры измерялись на спектрометре электродинамического типа MS-1104Em, работающем в режиме постоянного ускорения. В качестве источника мессбауэровского  $\gamma$ -излучения использовали  $^{57}\text{Co}(\text{Rh})$ . Значения изомерных сдвигов приводятся относительно  $\alpha$ -Fe (298 К). Расшифровка экспериментальных мессбауэровских спектров осуществлялась с использованием программного пакета SpectrRelax [27]. Расчет параметров тензора ГЭП проводился с помощью программы GradientNCMS, разработанной в НИЛ ядерно-химического материаловедения химического факультета МГУ.

## 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

### 3.1. Кристаллографические и термодинамические данные

Диффрактограммы полученного манганита  $\text{ViMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$  не выявили присутствия каких-либо дополнительных рефлексов, которые могли бы относиться к примесным фазам (рис. 1). При  $T = 615$  К все наблюдаемые рефлекс относятся к кубической фазе ( $Im\bar{3}$ )  $\text{ViMn}_7\text{O}_{12}$ , стабильной при  $T > T_1$  (рис. 1а). При переходе в область  $T_2 < T < T_1$  происходит расщепление рефлексов, соответствующее моноклинной сингонии  $I2/m$  (рис. 1б) Диффрактограммы  $\text{ViMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$  практически не отличаются от недопированного манганита  $\text{ViMn}_7\text{O}_{12}$  при тех же температурах [3].

На кривых ДСК образца  $\text{ViMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$  (рис. 2) в области 350–650 К наблюдаются два фазовых перехода. Один из них (420–440 К) отвечает структурному превращению  $Im \leftrightarrow I2/m$ , подробному описанию которого была посвящена наша предыдущая работа [25]. Интенсивные сигналы при более высоких температурах (580–600 К) относятся к структурному переходу  $I2/m \leftrightarrow Im\bar{3}$ ,

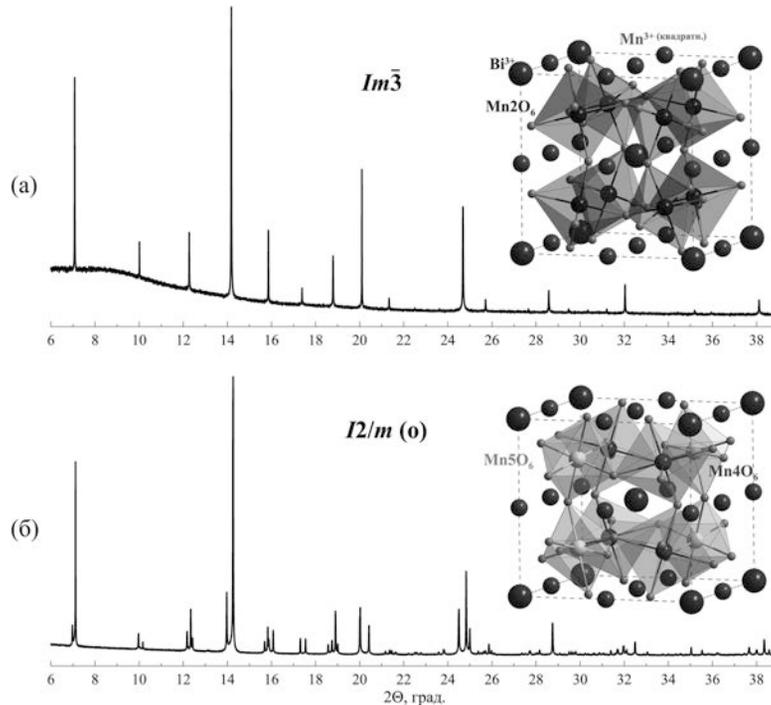


Рис. 1. (В цвете онлайн.) Рентгенограммы манганита  $\text{BiMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$ , измеренные при  $T = 615\text{ K}$  ( $T > T_1$ ) (а) и  $T = 480\text{ K}$  ( $T_2 < T < T_1$ ) (б). На вставках изображены структурные фрагменты кубической  $Im\bar{3}$  и моноклинной  $I2/m$  модификаций двойного манганита  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$ , устойчивых при соответствующих температурах [3]

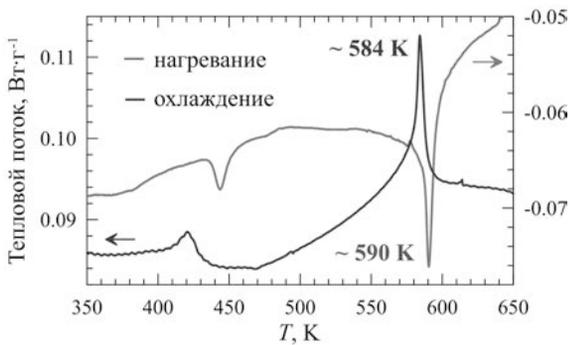


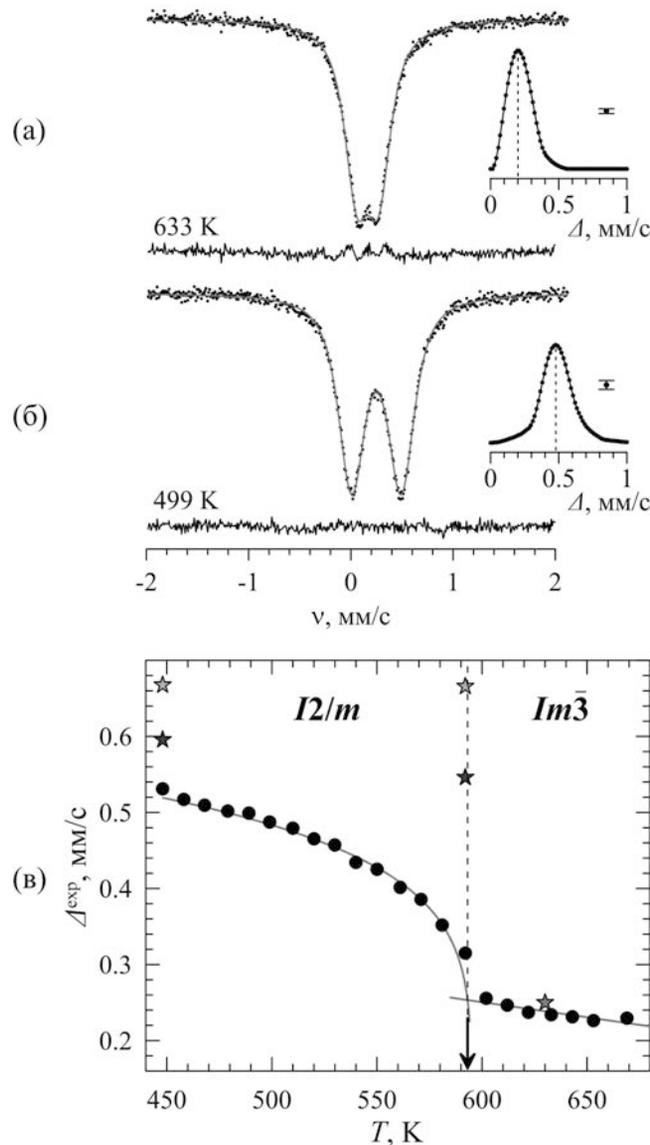
Рис. 2. (В цвете онлайн.) ДСК-кривые манганита  $\text{BiMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$ , полученные в режимах нагревания и охлаждения

ранее наблюдавшемуся для незамещенного образца  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$  при  $T_1 = 608\text{ K}$  [3]. Сравнение кривых ДСК, измеренных в режимах охлаждения и нагревания, демонстрирует гистерезис шириной  $\Delta T \approx 6\text{ K}$ , который сопоставим с соответствующей величиной для  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$  (около  $18\text{ K}$ ) [3]. Небольшое уменьшение величины точки фазового перехода  $T_1 \approx 590\text{ K}$  для  $\text{BiMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$  по сравнению с незамещенным образцом  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$  ранее наблюдалось для других манганитов  $\text{BiMnO}_3$  [28] и

$\text{AMn}_7\text{O}_{12}$  ( $A = \text{Sr}, \text{Cd}$ ) [29] и, таким образом, может служить косвенным подтверждением локализации атомов  $^{57}\text{Fe}$  в структуре исследуемого манганита.

### 3.2. Мессбауэровские данные для диапазона $T > T_1$

На рис. 3а представлен характерный мессбауэровский спектр ядер  $^{57}\text{Fe}$  в манганите  $\text{BiMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$ , измеренный в «высокотемпературном» диапазоне  $T > T_1 \approx 600\text{ K}$ . Для всего указанного диапазона спектры представляют собой уширенный дублет с небольшим и практически не зависящим от температуры квадрупольным расщеплением  $\Delta \approx 0.26\text{ мм/с}$  (рис. 3б). Полученное нами среднее значение изоэнерного сдвига  $\langle \delta \rangle_{633\text{ K}} \approx 0.17\text{ мм/с}$  соответствует катионам  $\text{Fe}^{3+}$  [30], изовалентно замещающим  $\text{Mn}^{3+}$  в октаэдрических позициях. Несмотря на то, что при  $T > T_1$  манганит  $\text{BiMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$  обладает кубической структурой (пр. гр.  $Im\bar{3}$ ), частные октаэдрические позиции  $\text{Mn}2$ , в которых стабилизируются зондовые катионы  $\text{Fe}^{3+}$ , имеют более низкую локальную симметрию, что объясняет тем самым ненулевое значение ГЭП



**Рис. 3.** (В цвете онлайн.) Характерные мессбауэровские спектры ядер  $^{57}\text{Fe}$  в манганите  $\text{BiMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$ , измеренные в диапазонах  $T > T_1$  (а) и  $T_2 < T < T_1$  (б). Справа на рис. а и б приведены распределения  $p(\Delta)$  квадрупольных расщеплений  $\Delta$ . На рис. в приведены полученные экспериментальные (черные точки) и теоретические (цветные звездочки) значения квадрупольных расщеплений  $\Delta$

и, как следствие, наблюдаемое квадрупольное расщепление дублета. Для подтверждения этого предположения нами был проведен расчет радиальной зависимости парциальных вкладов всех сортов ионов в главную компоненту  $V_{ZZ}$  тензора ГЭП. Расчет проводился в рамках «ионной модели» с учетом только monopольных вкладов  $V_{ZZ}^{mon}$  ионов, заряды которых принимались равными их формальным степеням окисления ( $\text{Bi}^{3+}$ ,  $\text{Mn}^{3+}$  и  $\text{O}^{2-}$ ) (рис. 4). Параметры кристаллической решетки были взяты для нелегированного  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$  при  $T = 630 \text{ K}$  [3].

Как видно на рис. 4, основной вклад в  $V_{ZZ}$  для кубической фазы дают катионы  $\text{Bi}^{3+}$  ( $V_{ZZ}^{mon} > 0$ ) и  $\text{Mn}^{3+}$  ( $V_{ZZ}^{mon} < 0$ ). Однако из-за практически полной взаимной компенсации этих противоположных по знаку вкладов решающее влияние на результирующее значение  $V_{ZZ}$  также могут оказывать ионы  $\text{O}^{2-}$  ( $V_{ZZ,\text{O}}^{mon} > 0$ ). Несмотря на то, что проведенные расчеты позволяют качественно объяснить происхождение ГЭП в позициях Mn2 кубической фазы  $\text{BiMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$ , полученное теоретическое значение  $\Delta^{theor} \propto V_{ZZ}$  все же заметно отличается от экс-

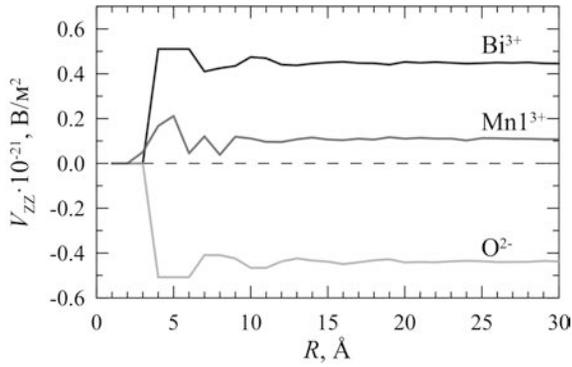


Рис. 4. Радиальные зависимости вкладов подрешеток висмута, марганца и кислорода в манганите  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$  в главную составляющую ГЭП  $V_{ZZ}$

периментальной величины  $\Delta \approx 0.26$  мм/с. Кроме того, несмотря на эквивалентность всех позиций марганца Mn2, занимаемых зондовыми катионами  $\text{Fe}^{3+}$ , экспериментальные спектры не могут быть удовлетворительно описаны в виде единственного квадрупольного дублета с неуширенными компонентами, что свидетельствует о некотором распределении  $p(V_{ZZ})$  ( $\sim p(\Delta)$ ) значений  $V_{ZZ}$  ( $\sim \Delta$ ) на ядрах  $^{57}\text{Fe}$ .

Мы предполагаем, что причина отмеченных выше расхождений может быть связана с необходимостью учета при расчете параметров тензора ГЭП не только монополярных  $V_{ZZ}^{mon}$ , но и дипольных  $V_{ZZ}^{dip}$  вкладов от ионов, находящихся в нецентросимметричных позициях структуры. Точное решение этой задачи невозможно из-за отсутствия надежных данных о значениях дипольных моментов ионов и их ориентации в кристалле. Однако в нашем случае основной вклад в  $V_{ZZ}$  связан только с катионами  $\text{Bi}^{3+}$  (см. рис. 4), имеющими стереохимически активную неподеленную  $6s^2$ -пару [1, 3]. Наличие такой пары вызывает смещение катионов  $\text{Bi}^{3+}$  из центросимметричных позиций, что фактически равносильно индуцированию у них электрического дипольного момента  $p_{\text{Bi}}$ . Поэтому в дальнейших вычислениях  $V_{ZZ}$  учитывались дипольные вклады  $V_{ZZ, \text{Bi}}^{dip}$  только от катионов  $\text{Bi}^{3+}$ , при этом сами дипольные моменты  $p_{\text{Bi}}$  выступали в качестве варьируемых параметров. Кроме того, поскольку при высоких температурах  $T > T_1$  манганит  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$  является параэлектриком, мы предполагали, что дипольные моменты  $p_{\text{Bi}}$  случайным образом разориентированы в кубической решетке манганита [3]. Детали расчетов приведены в нашей работе [25].

Полученные результаты показали, что даже в рамках сделанных приближений учет дипольного вклада от катионов  $\text{Bi}^{3+}$  позволяет достичь практи-

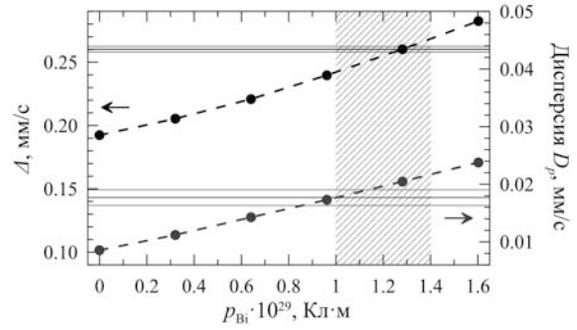


Рис. 5. (В цвете онлайн.) Зависимости квадрупольного расщепления  $\Delta^{theor}$  (черные точки) и дисперсии квадрупольного расщепления  $D_p^{theor}$  (синие точки) от дипольного момента  $p_{\text{Bi}}$  катионов  $\text{Bi}^{3+}$ . Горизонтальные линии соответствуют экспериментальным значениям  $\Delta^{exp}$  и  $D_p^{exp}$  с учетом погрешности

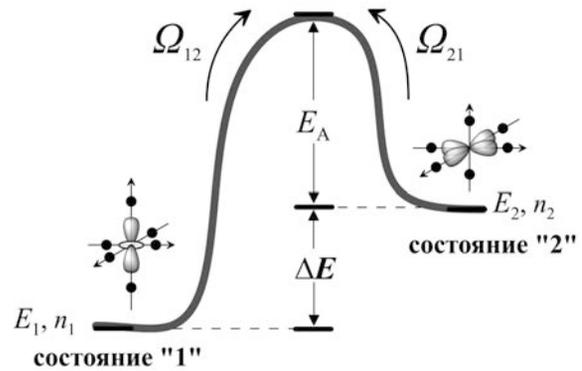
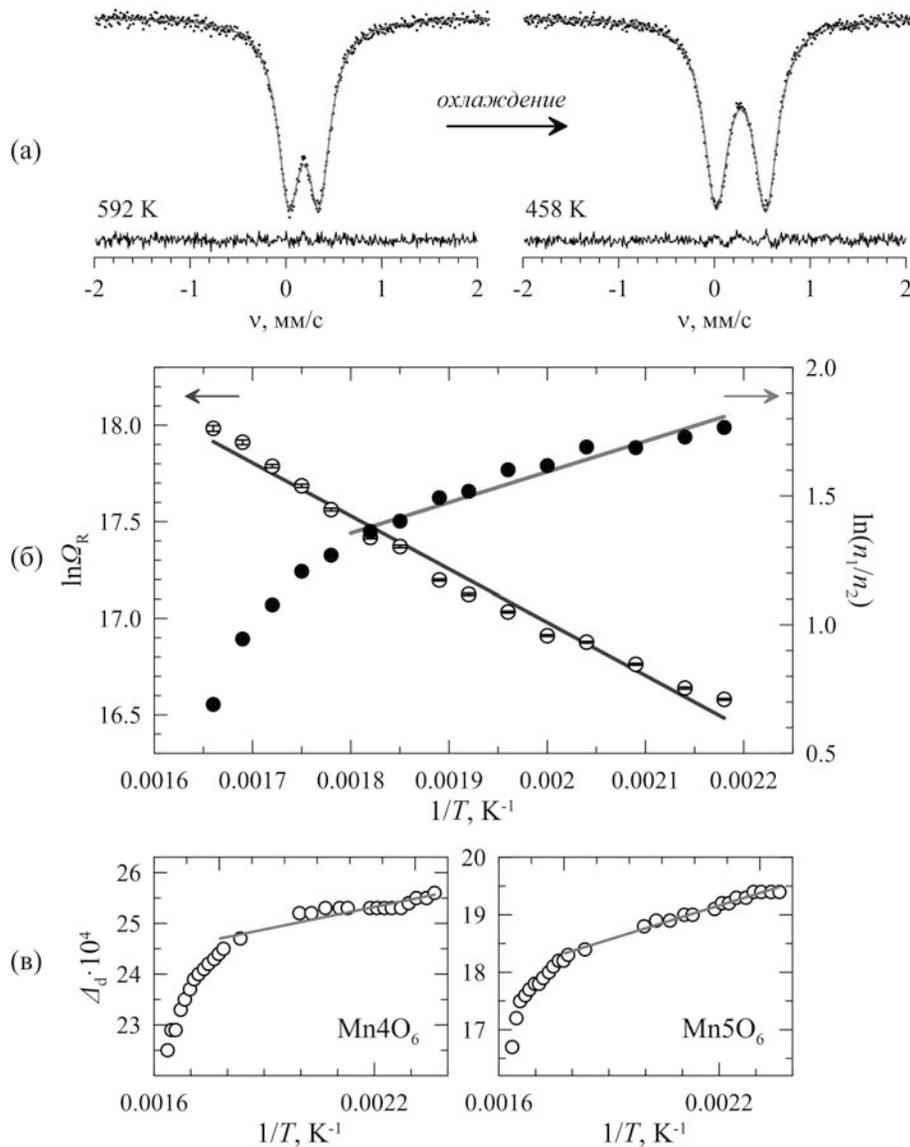


Рис. 6. Схема, поясняющая модель двухуровневой релаксации:  $E_i$  — энергии состояний «1» и «2»;  $n_i$  — их заселенности;  $\Omega_{ij}$  — частоты перехода между соответствующими состояниями;  $E_A$  — энергия активации

чески полного совпадения теоретического и экспериментального значений квадрупольного расщепления (рис. 5). Полученная в расчетах величина электрического дипольного момента  $p_{\text{Bi}} \approx 1.2 \cdot 10^{-29}$  Кл·м попадает в диапазон соответствующих значений для других оксидных соединений  $\text{Bi(III)}$  [10]. Наиболее важный результат вычислений состоит в том, что даже при случайной ориентации дипольных моментов  $p_{\text{Bi}}$  позиции Mn2 становятся неэквивалентными с точки зрения индуцируемого в них решеточного вклада в ГЭП. По сути, это и служит основной причиной наблюдаемого уширения спектров, т. е. появления распределения  $p(\Delta)$  (см. рис. 3a). Используя рассчитанные теоретические значения  $\Delta^{theor}$  для каждой из позиций Mn2, различающихся лишь относительной ориентацией окружающих их моментов  $p_{\text{Bi}}$ , было смоделировано распределение  $p^{theor}(\Delta)$ , дисперсия которого  $D_p^{theor} = 0.020$  мм<sup>2</sup>/с<sup>2</sup> оказалась



**Рис. 7.** (В цвете онлайн.) а) Мессбауэровские спектры  $\text{BiMn}_{6.96}^{57}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$  ( $T_2 < T < T_1$ ), обработанные в рамках двухуровневой модели. б) Полученные зависимости логарифма  $\ln \Omega_R$  средней частоты релаксации и логарифма  $\ln(n_1/n_2)$  отношения заселенностей  $n_1$  и  $n_2$  от обратной температуры. в) Аналогичные зависимости параметров дисторсии  $D_d$  октаэдров  $\text{Mn}_4\text{O}_6$  и  $\text{Mn}_5\text{O}_6$ , рассчитанные с использованием структурных данных [3]. Линии красного цвета соответствуют линейной аппроксимации в выбранных диапазонах

очень близкой к дисперсии  $D_p^{exp} = 0.017(1)\text{мм}^2/\text{с}^2$  экспериментального распределения  $p(\Delta)$  (рис. 5).

Таким образом, представленные выше мессбауэровские данные свидетельствуют о том, что в параэлектрической кубической фазе  $\text{BiMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$  (при  $T > T_1$ ) катионы  $\text{Bi}^{3+}$ , оставаясь в локально искаженном кристаллическом окружении, сохраняют электрические дипольные моменты  $p_{\text{Bi}}$ , разориентированные случайным образом в кубической решетке. В этом случае фазовые переходы при более низ-

ких температурах ( $T < T_2$ ) в антиферро- или ферроэлектрическое состояние будут сопровождаться упорядочением диполей  $p_{\text{Bi}}$ , т.е. являются фазовыми переходами типа порядок–беспорядок [31] как альтернатива фазовым переходам типа смещения [32]. В некоторых работах статические дипольные моменты  $p_{\text{Bi}}$  связывают с наличием у катионов  $\text{Bi}^{3+}$  неподеленной  $sp^x$ -гибридной электронной пары, направленной в противоположную сторону от направления смещения катиона висмута из его условной

центросимметричной позиции. В рамках такого подхода можно качественно объяснить отмеченный в работах [1, 3] для  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$  ( $T > T_1$ ) аномально большой по объему эллипсоид тепловых колебаний катионов  $\text{Bi}^{3+}$ . Можно предположить, что этот эллипсоид является результатом наложения разнонаправленных  $sp^x$ -гибридных электронных пар, вершины которых образуют сферу, «воспринимаемую» дифракционными методами как аномально объемные позиции висмута. Следует однако отметить, что подобный подход, основанный на теории гибридизации валентных  $6s$ - и  $6p$ -орбиталей катионов  $\text{Bi}^{3+}$ , является наглядной, но все же очень упрощенной моделью, которая для большинства известных оксидных фаз  $\text{Bi(III)}$  не нашла теоретического и экспериментального подтверждения [33–35].

### 3.3. Мессбауэровские данные для диапазона $T_2 < T < T_1$

При понижении температуры манганит  $\text{BiMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$  претерпевает структурный переход при  $T_1 \approx 600$  К, сопровождающийся понижением симметрии кристаллической решетки из кубической (пр. гр.  $Im\bar{3}$ ) в моноклинную (пр. гр.  $I2/m$ ) сингонию. Выше на рис. 3б приведен характерный мессбауэровский спектр зондовых ядер  $^{57}\text{Fe}$  в моноклинной структуре  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$ , представляющий собой уширенный симметричный квадрупольный дублет. Модельное описание подобных спектров очень неоднозначно из-за сильной корреляции параметров составляющих их компонент. Поэтому на первом этапе анализа было восстановлено распределение  $p(\Delta)$  квадрупольных расщеплений  $\Delta$  (см. рис. 3б), линейно связанных с величиной изомерного сдвига  $\delta$  [27]. На рис. 3б видно, что, несмотря на понижение симметрии кристаллической решетки манганита, полученные распределения  $p(\Delta)$  содержат единственный максимум, отвечающий квадрупольному расщеплению  $\Delta(T)$ , величина которого резко возрастает при понижении температуры измерения спектров (см. рис. 3в). Данный результат кажется неожиданным, поскольку в моноклинной структуре  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$  имеются две неэквивалентные позиции (Mn4 и Mn5) катионов  $\text{Mn}^{3+}$  в октаэдрическом кислородном окружении (см. рис. 1б). Поскольку синтез манганита  $\text{BiMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$  требует использования высоких температур (около 1300 К), представляется маловероятным, что зондовые катионы  $\text{Fe}^{3+}$  избирательно замещают катионы  $\text{Mn}^{3+}$  лишь в одной из двух октаэдрических подрешеток. Если

же допустить, что катионы  $\text{Fe}^{3+}$  с равной вероятностью замещают в октаэдрической подрешетке изовалентные им катионы марганца, то в спектре  $^{57}\text{Fe}$  должны присутствовать две парциальные компоненты. Кроме того, учитывая, что основной вклад в ГЭП на ядрах сферических катионов  $\text{Fe}^{3+}$  обусловлен искажением их кристаллического окружения (решеточный вклад), трудно объяснить наблюдаемое нами довольно резкое изменение с температурой квадрупольного расщепления.

В качестве второго этапа в анализе полученных мессбауэровских данных нами были проведены расчеты параметров тензора ГЭП с учетом монопольных вкладов от всех ионов ( $\text{Bi}^{3+}$ ,  $\text{Mn}^{3+}$  и  $\text{O}^{2-}$ ) и дополнительных дипольных вкладов от катионов  $\text{Bi}^{3+}$  и анионов  $\text{O}^{2-}$ . При этом дипольный момент для  $\text{Bi}^{3+}$  ( $p_{\text{Bi}} \approx 1.2 \cdot 10^{-29}$  Кл·м) был взят из наших расчетов для высокотемпературной области ( $T > T_1$ ). В расчетах использовались кристаллографические параметры для моноклинной решетки (пр. гр.  $I2/m$ ) нелегированного манганита  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$  при разных температурах [3].

Согласно полученным данным, значения главной компоненты ГЭП ( $V_{ZZ}$ ) для позиций Mn4 и Mn5 оказываются очень близкими друг к другу ( $3.76 \cdot 10^{20}$  и  $4.21 \cdot 10^{20}$  В/м<sup>2</sup> соответственно), что, по-видимому, объясняет наличие в распределениях единственного максимума (см. рис. 3б). Как этого следовало ожидать, значения параметров ГЭП для обеих позиций марганца практически не зависят от температуры. Наконец, было установлено, что рассчитанные для Mn4 и Mn5 значения квадрупольных расщеплений  $\Delta_{\text{Mni}}^{\text{theor}} \approx eQ_{\text{Fe}}V_{ZZ, \text{Mni}}^{\text{theor}}$  (где  $Q_{\text{Fe}}$  — квадрупольный момент ядра  $^{57}\text{Fe}$  в возбужденном состоянии) существенно превышают соответствующие экспериментальные расщепления  $\Delta^{\text{exp}}$  (см. рис. 3в).

Мы предполагаем, что отмеченное расхождение рассчитанных и экспериментальных значений квадрупольных расщеплений,  $\Delta^{\text{theor}} > \Delta^{\text{exp}}$ , а также аномально резкая зависимость от температуры решеточного вклада в ГЭП на ядрах зондовых катионов  $\text{Fe}^{3+}$  могут быть связаны с проявлением в данной области температур динамического эффекта Яна–Теллера (ЯТ) катионов  $\text{Mn}^{3+}$  [36]. Взаимодействие ян-теллеровских центров  $\text{Mn}^{3+}$  в структуре  $\text{BiMn}_7\text{O}_{12}$  приводит к так называемому орбитальному упорядочению (или кооперативному эффекту ЯТ), которое также наблюдалось для других перовскитоподобных оксидных систем  $\text{Mn(III): RMnO}_3$  [37, 38];  $\text{R}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$  [11];  $\text{AMn}_7\text{O}_{12}$  [14, 23] ( $\text{R}$  — редкоземельный элемент (РЗЭ),  $\text{A} = \text{Ca, Sr, Pb}$ ). Для этих соединений переход в область вы-

соких температур ( $T > T_{JT}$ ) часто сопровождается структурным переходом с повышением симметрии их кристаллической решетки, который связывают с динамическим эффектом ЯТ или, как говорят, плавлением кооперативного ян-теллеровского искажения [36].

Подобные переходы могут осуществляться либо за счет постепенного повышения симметрии искаженных полиэдров  $Mn^{3+}O_6$  до полного «выравнивания» заселенностей  $e_g$ -орбиталей катионов  $Mn^{3+}$ , либо за счет ориентационного разупорядочения искаженных полиэдров  $Mn^{3+}O_6$  с сохранением вплоть до высоких температур ( $T \gg T_{JT}$ ) поляризации  $e_g$ -орбиталей [39]. В ряде работ отмечалось, что локальное разупорядочение полиэдров  $Mn^{3+}O_6$  может начинаться при температуре  $T^*$ , существенно меньшей, чем температура самого структурного фазового перехода,  $T_{JT} (\gg T^*)$  [40–42]. Предполагается, что переход в область ян-теллеровского разупорядочения протекает через образование двухфазной области, в которой сосуществуют упорядоченная и разупорядоченная фазы. Ширина «переходной области»  $T^* < T < T_{JT}$  в существенной степени зависит от структурных факторов [39, 43]. В частности, для семейства  $R MnO_3$  ( $R = PЗЭ$ ) протяженность данной области растет с уменьшением фактора толерантности  $\tau$  Гольдшмидта [39]. Однако до сих пор отсутствуют надежные экспериментальные данные о том, какие структурные и электронные изменения манганитов происходят в «переходной области» температур.

Известно, что при учете ангармонизма вибронных взаимодействий на поверхности адиабатического потенциала возможных ядерных конфигураций анионов  $O^{2-}$ , образующих октаэдрические полиэдры  $Mn^{3+}O_6$ , возникают локальные минимумы, которым отвечают определенные орторомбические искажения соответствующих полиэдров. При повышении температуры кристаллическое окружение ян-теллеровских катионов  $Mn^{3+}$  стохастически релаксирует между этими минимумами за счет туннельного эффекта или активационных возбуждений [44]. Несмотря на то, что сами зондовые катионы  $Fe^{3+}$  не принимают участия в вибронных взаимодействиях, из-за кооперативного характера эффекта ЯТ их локальное кристаллическое окружение также будет испытывать динамические флуктуации.

Таким образом, можно предположить, что наблюдаемое для диапазона  $T_2 < T < T_1$  существенное занижение значений  $\Delta^{exp}$  по сравнению с теоретическими расчетами может быть связано с релакса-

ционным характером мессбауэровских спектров. В работах [44, 45] было показано, что в пределе «быстрой релаксации», т. е. при условии  $\Omega_R \gg \Omega_0$  (где  $\Omega_R$  и  $\Omega_0$  — частоты релаксации окружения и квадрупольной прецессии ядерного спина  $^{57}Fe$  соответственно), мессбауэровские спектры могут быть описаны в рамках двухуровневой модели [45]. В этой модели в качестве варьируемых параметров выступают частоты прямого  $\Omega_{12}$  и обратного  $\Omega_{21}$  переходов из состояний «1» и «2» релаксирующей системы, связанные друг с другом в соответствии с принципом «детального равновесия»  $n_1\Omega_{12} = n_2\Omega_{21}$ , где  $n_1$  и  $n_2$  — заселенности состояний (рис. 6) [45].

Спектры  $BiMn_{6.96}^{57}Fe_{0.04}O_{12}$ , обработанные в рамках ДУМ, представлены на рис. 7а. На основании полученных результатов можно сделать вывод о том, что средняя частота релаксации  $\Omega_R = \Omega_{12}\Omega_{21}/(\Omega_{12} + \Omega_{21}) \approx (2-7) \cdot 10^7$  Гц в указанном диапазоне температур (рис. 7б) значительно превышает частоту квадрупольной прецессии  $\Omega_0 \approx 8.5 \cdot 10^6$  Гц ядерного спина  $^{57}Fe$ . Увеличение температуры приводит к постепенному выравниванию заселенностей ( $n_1 \approx n_2$ ), что в пределе быстрой релаксации ( $\Omega_R \gg \Omega_0$ ) должно проявляться в виде резкого уменьшения видимого квадрупольного расщепления и лишь небольшого уширения линий самого дублета [45]. Именно такой сценарий полностью воспроизводит изменение всех экспериментальных спектров при  $T_2 < T < T_1$  (рис. 7а). Из линейной аппроксимации температурной зависимости  $\ln(n_1/n_2) = f(1/T)$  (рис. 7б) была оценена средняя разница энергий  $\Delta E = 69(2)$  мэВ двух состояний, между которыми происходит релаксация, а энергия активации составила  $E_A = 220(9)$  мэВ, что коррелирует с другими перовскитоподобными манганитами  $Mn(III)$  [46]. Любые другие варианты аппроксимации всей совокупности спектров при  $T_2 < T < T_1$  в предположении изотропной релаксации между вырожденными по энергии уровнями адиабатического потенциала приводят к неудовлетворительному описанию спектров и физически неразумному изменению параметров сверхтонких взаимодействий.

Необходимо отметить, что некоторое отклонение зависимостей средней частоты релаксации и соотношения заселенностей (рис. 7б) может быть связано с температурной эволюцией энергетического профиля релаксирующей системы вследствие изменения значений параметров дисторсии  $\Delta_d$  полиэдров  $MnO_6$ :

$$\Delta_d = \frac{1}{6} \sum_{n=1}^6 \left[ \frac{l_n - \frac{1}{6} \sum_{n=1}^6 l_n}{\frac{1}{6} \sum_{n=1}^6 l_n} \right]^2 = \frac{1}{6} \sum_{n=1}^6 \left[ \frac{l_n - l_{med}}{l_{med}} \right]^2, \quad (1)$$

где  $l_n$  — длина  $n$ -й связи  $\text{Mn}-\text{O}_{(n)}$ ,  $l_{med}$  — среднее значение длины соответствующих связей в полиэдре  $\text{MnO}_6$ . Полученные зависимости этого параметра для области  $T_2 < T < T_1$  с использованием более «быстрого» метода — рентгеновской дифракции (рис. 7б), качественно согласуются с полученными экспериментальными зависимостями релаксационных параметров.

В моноклинной структуре  $\text{ViMn}_7\text{O}_{12}$  искажение полиэдров  $\text{MnO}_6$ , соответствующее минимуму энергии  $\varepsilon^-$  адиабатического потенциала, описывается в виде «связывающей»  $Q^{(-)}$  линейной комбинации орторомбической  $Q_2$  и тетрагональной  $Q_3$  мод колебаний [47]. В этом случае искажению с большей энергией  $\varepsilon^+$  соответствует «разрыхляющая» мода колебания  $Q^{(+)}$ . В «локальном приближении» (т. е. с учетом только ближайшего анионного окружения металла) модам  $Q^{(-)}$  и  $Q^{(+)}$  соответствуют искажения с одинаковыми по величине, но противоположными по знаку компонентами  $V_{ZZ}$  тензора ГЭП на ядрах  $^{57}\text{Fe}$  в позициях  $\text{Mn}4^{3+}$  и  $\text{Mn}5^{3+}$  [44]. Поэтому «выравнивание» при увеличении температуры заселенностей двух уровней,  $\varepsilon^+$  и  $\varepsilon^-$ , проявляется в мессбауэровских спектрах зондовых ядер  $^{57}\text{Fe}^{3+}$  в виде резкого уменьшения их квадрупольного расщепления  $\Delta(T) \propto \langle V_{ZZ} \rangle$  (где  $\langle V_{ZZ} \rangle$  — усредненное по энергетическим состояниям  $\varepsilon^+$  и  $\varepsilon^-$  значение главной компоненты тензора ГЭП) [44]. С другой стороны, наблюдаемое монотонное уменьшение  $\Delta(T)$  вплоть до точки  $T_1$  может свидетельствовать о постепенном повышении симметрии полиэдров  $\text{Fe}^{3+}\text{O}_6$  по мере приближения к температуре структурного фазового перехода  $I\bar{m}\bar{3} \leftrightarrow I2/m$  (при  $T_1$ ). Данный вывод согласуется с дифракционными исследованиями нелегированного манганита  $\text{ViMn}_7\text{O}_{12}$  с использованием синхротронного излучения, которые также показывают постепенное уменьшение параметра дисторсии  $\Delta_d$  полиэдров  $\text{Mn}^{3+}\text{O}_6$  по мере приближения температуры к  $T_1$  [3]. Подобное поведение, независимо проявляющееся в совершенно разных по своей физической сути методах диагностики, свидетельствует о ян-теллеровском фазовом переходе второго рода, механизм протекания которого можно отнести к

структурным переходам типа смещения как альтернативы переходам типа порядок–беспорядок.

Важно отметить, что описанные выше структурные изменения  $\text{ViMn}_7\text{O}_{12}$  в области температур ян-теллеровского перехода схожи со случаем изоструктурной фазы  $\text{LaMn}_7\text{O}_{12}$  [48], но принципиально отличаются от ставших уже «классическими» перовскитов  $\text{RMnO}_3$  ( $R = \text{PЗЭ}$ ), для которых кооперативный эффект ЯТ проходит по механизму типа порядок–беспорядок [31]. В случае этих оксидов даже при температурах, заметно превышающих  $T_{JT}$ , полиэдры  $\text{Mn}^{3+}\text{O}_6$  остаются искаженными, однако направления этих искажений случайным образом разориентированы в кристалле, делая, таким образом, структуру «макроскопически» более симметричной, чем низкотемпературная орбитально-упорядоченная фаза.

#### 4. ВЫВОДЫ

Впервые методом мессбауэровской спектроскопии на ядрах зондовых атомов  $^{57}\text{Fe}$  исследована эволюция локальной кристаллической структуры манганита  $\text{ViMn}_{6.96}\text{Fe}_{0.04}\text{O}_{12}$  в параэлектрической области температур  $T_2 < T < T_1$ . Установлено, что параметры электрических сверхтонких взаимодействий ядер  $^{57}\text{Fe}$  отражают особенности симметрии кристаллического окружения катионов  $\text{Mn}^{3+}$  в этих позициях. Расчеты параметров тензора ГЭП с учетом монополярных и дипольных вкладов показали, что в параэлектрической кубической фазе манганита (при  $T > T_2$ ) катионы  $\text{Vi}^{3+}$ , оставаясь в локально искаженном кристаллическом окружении, сохраняют электрические дипольные моменты  $p_{\text{Vi}}$ , которые разориентрованы случайным образом в кубической решетке. Таким образом, фазовые переходы в ферроэлектрическое состояние будут сопровождаться упорядочением диполей  $p_{\text{Vi}}$ , т. е. являются фазовыми переходами типа порядок–беспорядок. Установлено, что наблюдаемое монотонное уменьшение квадрупольного расщепления  $\Delta(T)$  вплоть до точки  $T_1$  может свидетельствовать о постепенном повышении симметрии полиэдров  $\text{Fe}^{3+}\text{O}_6$  при приближении к температуре структурного перехода  $I\bar{m}\bar{3} \leftrightarrow I2/m$ , что согласуется с синхротронными дифракционными исследованиями нелегированного манганита  $\text{ViMn}_7\text{O}_{12}$ . Подобное поведение, независимо проявляющееся в совершенно разных по своей физической сути методах диагностики, свидетельствует о ян-теллеровском фазовом переходе второго рода, механизм протекания которого можно отнести

к структурным переходам типа смещения как альтернативы переходам типа порядок–беспорядок.

**Финансирование.** Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 19-73-10034-П).

## ЛИТЕРАТУРА

1. F. Mezzandri, G. Calestani, M. Calicchio et al., *Phys. Rev. B* **79**, 100106 (2009).
2. A. Gauzzi, G. Rousse, F. Mezzandri et al., *J. Appl. Phys.* **113**, 043920 (2013).
3. A. A. Belik, Y. Matsushita, Y. Kumagai et al., *Inorg. Chem.* **56**, 12272 (2017).
4. W. A. Slawinski, H. Okamoto, and H. Fjellwag, *Acta Cryst.* **73**, 313 (2017).
5. A. A. Belik, Y. Matsushita, and D. D. Khalyavin, *Angew. Chem. Int. Ed.* **56**, 10423 (2017).
6. D. D. Khalyavin, R. D. Johnson, F. Orlandi et al., *Science* **369**, 680 (2020).
7. D. I. Khomskii, *Transition Metal Compounds*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (2014).
8. С. В. Стрельцов, Д. И. Хомский, *УФН* **187**, 1205 (2017).
9. A. V. Sobolev, V. S. Rusakov, A. M. Gapochka et al., *Phys. Rev. B* **101**, 224409 (2020).
10. А. В. Соболев, А. В. Боков, В. И и др., *ЖЭТФ* **156**, 972 (2019).
11. J. B. Goodenough, *Phys. Rev.* **100**, 564 (1955).
12. P. G. Radaelli, D. E. Cox, M. Marezio et al., *Phys. Rev. B.* **55**, 3015 (1997).
13. R. D. Johnson, D. D. Khalyavin, P. Manuel et al., *Phys. Rev. B* **93**, 180403 (2016).
14. R. D. Johnson, D. D. Khalyavin, P. Manuel et al., *Phys. Rev. B* **96**, 054448 (2017).
15. А. П. Пятаков, А. К. Звездин, *УФН* **182**, 593 (2012).
16. J. G. Park, M. D. Le, J. Jeong et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **26**, 433202 (2014).
17. D. Khomskii, *Physics* **2**, 20 (2009).
18. E. Jo, S. Park, J. Lee et al., *Sci. Rep.* **7**, 2178 (2017).
19. M. Prinz-Zwick, T. Gimpel, K. Geirhos et al., *Phys. Rev. B* **105**, 014301 (2022).
20. A. V. Zalessky, A. A. Frolov, T. A. Khimich et al., *Europhys. Lett.* **50**, 547 (2000).
21. M. Pregelj, P. Jeglič, A. Zorko et al., *Phys. Rev. B* **87**, 144408 (2013).
22. A. M. L. Lopes, G. N. P. Oliveira, T. M. Mendonça, *Phys. Rev. B* **84**, 014434 (2011).
23. A. A. Belik, Y. S. Glazkova, Y. Katsuya et al., *J. Phys. Chem. C* **120**, 8278 (2016).
24. A. Sobolev, V. Rusakov, A. Moskvina et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **29**, 275803 (2017).
25. В. И. Ниценко, А. В. Соболев, А. А. Белик и др., *ЖЭТФ* **163**, 698 (2023).
26. F. Izumi, T. Ikeda, *Mater. Sci. Forum* **321–324**, 198 (2000).
27. M. E. Matsnev and V. S. Rusakov, *AIP Conf. Proc.* **1489**, 178 (2012).
28. Я. С. Глазкова, А. А. Белик, А. В. Соболев и др., *Неорг. материалы* **52**, 546 (2016).
29. Y. S. Glazkova, N. Terada, Y. Matsushita et al., *Inorg. Chem.* **54**, 9081 (2015).
30. D. P. E. Dickson and F. J. Berry, *Mössbauer Spectroscopy*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (1986).
31. M. E. Lines and A. M. Glass, *Principles and Applications of Ferroelectrics and Related Materials*, Oxford Univ. Press, Oxford (1977).
32. B. A. Strukov and A. P. Levanyuk, *Ferroelectric Phenomena in Crystals*, Springer, Berlin, Heidelberg (1998).
33. S. Hussain, S. K. Hasanain, G. H. Jaffari et al., *J. Amer. Ceram. Soc.* **96**, 3141 (2013).
34. T. Lottermoser and D. Meier, *Phys. Sci. Rev.* **6**, 20200032 (2021).
35. Z. C. Xia, L. X. Xiao, C. H. Fang et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **297**, 1 (2006).

36. M. D. Kaplan and B. G. Vekhter, *Cooperative Phenomena in Jahn–Teller Crystals*, Springer, New York (1995).
37. J. A. Alonso, M. J. Martínez-Lope, M. T. Casais et al., *Inorg. Chem.* **39**, 917 (2000).
38. M. Tachibana, T. Shimoyama, H. Kawaji et al., *Phys. Rev. B* **75**, 144425 (2007).
39. T. Chatterjee, *Indian J. Phys.* **80**, 665 (2006).
40. L. Martín-Carrón and A. de Andrés, *Eur. Phys. J. B* **22**, 11 (2001).
41. A. Trokiner, S. Verkhovskii, A. Gerashenko et al., *Phys. Rev. B* **87**, 125142 (2013).
42. S. Schaile, H.-A. Krug von Nidda, J. Deisenhofer et al., *Phys. Rev. B* **90**, 054424 (2014).
43. J. Rodríguez-Carvajal, M. Hennion, F. Moussa et al., *Phys. Rev. B* **57**, R3189(R) (1998).
44. F. Ham, *J. Phys. Colloq.* **35**, C6-121 (1974).
45. M. Blume and J. A. Tjon, *Phys. Rev.* **165**, 446 (1968).
46. M. Capone, D. Feinberg, and M. Grilli, *AIP Conf. Proc.* **554**, 395 (2001).
47. I. Bersuker, *The Jahn–Teller Effect*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (2006).
48. H. Okamoto, M. Karppinen, H. Yamauchi et al., *Sol. St. Sci.* **11**, 1211 (2009).

# ВЛИЯНИЕ ВЫБОРА ПОВЕРХНОСТНОГО БАРЬЕРА НА РАСЧЕТ КОЭФФИЦИЕНТОВ РАСПЫЛЕНИЯ ВОЛЬФРАМА ИЗОТОПАМИ ВОДОРОДА

*В. С. Михайлов\**, *П. Ю. Бабенко*, *А. П. Шергин*, *А. Н. Зиновьев*

*Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук  
194021, Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 27 марта 2023 г.,  
после переработки 24 апреля 2023 г.  
Принята к публикации 24 апреля 2023 г.

С помощью разработанного нами кода получены коэффициенты распыления вольфрамовой мишени изотопами водорода в диапазоне энергий бомбардирующих частиц 50 эВ–100 кэВ, а также зависимости коэффициентов распыления от угла падения пучка на мишень и энергетические и угловые распределения распыленных частиц. Продемонстрировано сильное влияние выбора типа поверхностного барьера на результаты расчетов коэффициентов распыления, а также на характеристики распыленных частиц. Полученные результаты позволяют более точно оценивать поступление примеси вольфрама в горячую зону плазмы токамака.

DOI: 10.31857/S004445102309016X

EDN: KFFRJV

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Управляемый термоядерный синтез (УТС) на сегодняшний день является перспективным альтернативным источником энергии. Однако на пути к его успешной реализации стоит внушительный ряд трудностей технологического и технического характера. Одной из основных проблем является взаимодействие высокоэнергетических потоков плазмы с первой стенкой и другими конструктивными элементами токамака-реактора, которое может привести к его разрушению [1, 2], а также к поступлению примесей в рабочий объем реактора [3–5]. Особенно остро стоит вопрос о взаимодействии высокоэнергетических атомов примесей с поверхностью дивертора [6, 7]. Распыленные частицы дивертора достигают последней замкнутой магнитной поверхности (сепаратрисы), а затем проникают в центральную часть плазменного шнура, вызывая потери энергии на излучение.

В качестве материала дивертора в токамаке ИТЭР выбран вольфрам, самый тугоплавкий из ме-

таллов. Однако недостатком вольфрама является высокое зарядовое число  $Z = 74$ . В работе [8] показано, что при концентрации вольфрама всего  $\sim 0.1\%$  термоядерный синтез невозможен, поскольку излучение ионов вольфрама будет приводить к большим потерям энергии на излучение и к невозможности достичь нужных температур для осуществления УТС.

Наличие примесей в плазме реактора может значительно менять режим работы токамака, поэтому необходимо точно знать потоки поступающих примесей. Для этого необходимо знать коэффициенты распыления вольфрама изотопами водорода. На данный момент эти коэффициенты измерены лишь для ограниченного диапазона энергий и углов бомбардирующих атомов, к тому же зачастую измерения разных исследовательских групп носят противоречивый характер. Также следует отметить полное отсутствие экспериментальных данных для трития.

Особый интерес представляет анализ возможного влияния типа поверхностного барьера на коэффициенты распыления, а также на характеристики распыленных атомов. Понятно, что на практике ситуация будет кардинальным образом различаться для конструкционных элементов только что введенного в строй реактора и реактора, проработавшего значительное время, элементы конструкции ко-

\* E-mail: chiro@bk.ru

торого подверглись значительной эрозии вследствие распыления. В работе рассмотрено влияние состояния поверхности на коэффициенты распыления для двух предельных случаев: планарного и сферического барьеров.

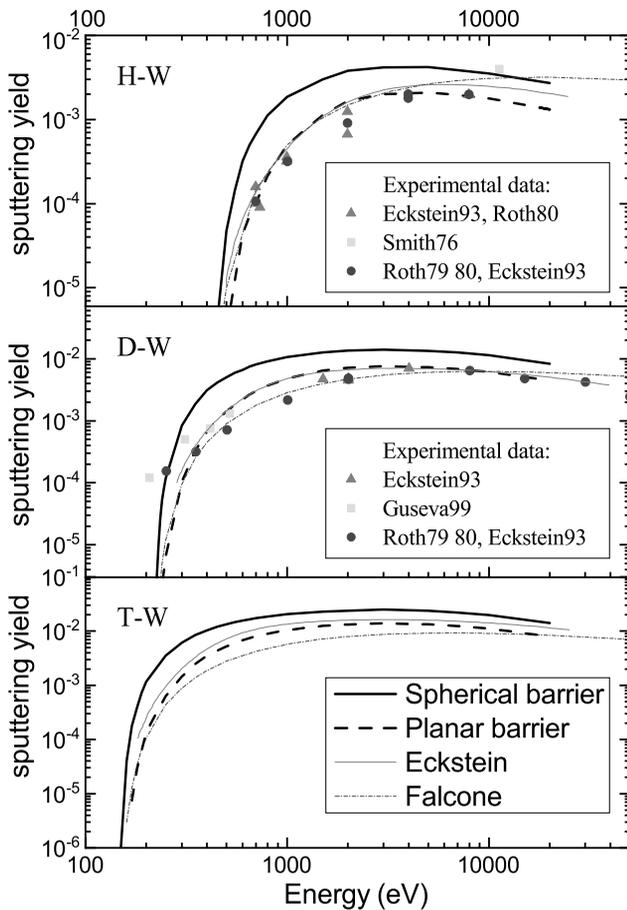


Рис. 1. Зависимости коэффициентов распыления вольфрама от энергии соударения при нормальном падении пучка на мишень для изотопов водорода. Сплошными и штриховыми линиями обозначены результаты нашего моделирования для случаев сферического и планарного барьера соответственно. Точки — экспериментальные данные. Красными тонкими линиями обозначены результаты моделирования Экштайна, синими штрихпунктирными линиями — расчет Фальконе.

## 2. ОПИСАНИЕ МЕТОДИКИ МОДЕЛИРОВАНИЯ

Расчеты были проведены с помощью разработанного нами кода, основанного на методе Монте-Карло. Мишень представляла собой набор случайно ориентированных относительно друг друга микроструктур вольфрама размером в одну элементарную ячейку. Движение частицы в твердом теле

рассматривалось либо пока ее энергия не окажется меньше  $1\text{ эВ}$ , либо пока частица не выйдет обратно за границу твердого тела вследствие многократного рассеяния. При соударении налетающей частицы с атомами мишени образуются быстрые частицы отдачи. Эти частицы также могут добавить новые каскадные частицы в массив, если передадут им энергию выше энергии сублимации  $E_s$ . Координаты и импульсы всех «задетых» атомов кристалла, получившие энергию свыше энергии сублимации  $E_s = 8.9\text{ эВ}$ , записывались в массив. После окончания расчета траектории бомбардирующей частицы происходит расчет движения выбитых частиц вольфрама с координатами и компонентами скорости, считываемыми из массива.

При выборе потенциала для расчета рассеяния налетающей частицы на атомах мишени использовался опыт предшествующих работ [9–12]. Было показано, что парные потенциалы, полученные в рамках теории функционала плотности с коррекцией глубины потенциальной ямы в соответствии с данными спектроскопических измерений, хорошо согласуются с данными экспериментов, полученными при изучении рассеяния в газовой фазе [13]. Данные о потенциале брались из работы [10]. Различие в массах изотопов практически не сказывается на потенциале взаимодействия, так как коррекция приводит к небольшому изменению приведенной массы электрона. Это подтверждается тем, что параметры потенциальной ямы для разных изотопов различаются незначительно (см. [14, 15]).

Ядерные тормозные потери налетающей частицы при столкновениях с атомами кристалла рассчитывались точно непосредственно в программе. Тормозные потери на электронах мишени в соответствии с рекомендациями работы [16] учитывались как произведение тормозной способности налетающей частицы на пройденное расстояние между столкновениями.

При расчете учитывались тепловые колебания атомов кристалла вольфрама при комнатной температуре.

В случае поверхности, состоящей из «остриев», распыленная частица должна преодолеть сферический потенциальный барьер и ее энергия вылета  $E_{out}$  должна превышать энергию сублимации  $E_s$ . В случае плоской поверхности (планарный барьер) перпендикулярная к поверхности составляющая кинетической энергии должна быть больше энергии сублимации  $E_s$ , т.е.  $E_{out} \cos^2(\theta) > E_s$ , где  $\theta$  — угол вылета частицы. Таким образом, условие отбора распыленных частиц для планарного барьера

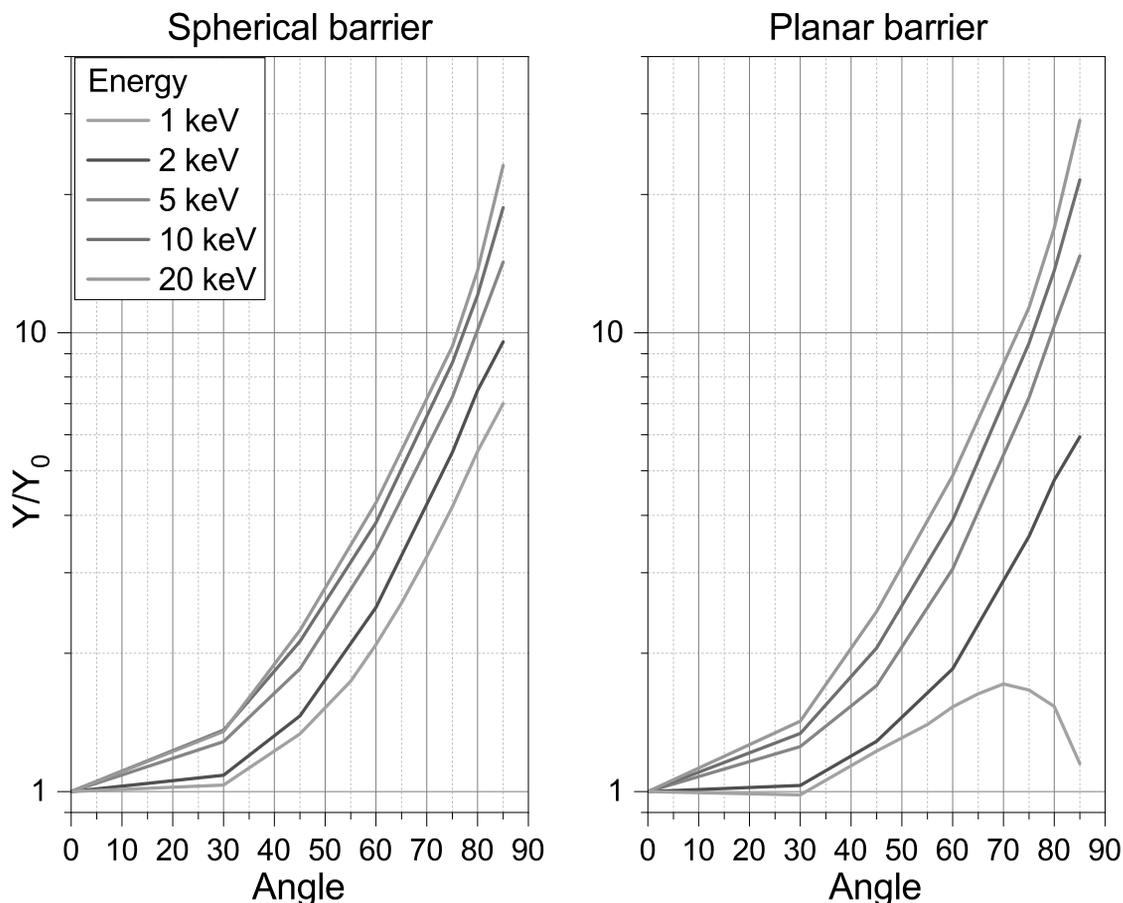


Рис. 2. Зависимости коэффициента распыления вольфрама водородом от угла падения пучка для сферического и планарного барьеров. Значения нормированы на коэффициент распыления для нормального падения

является более строгим, чем условие для сферического барьера.

Выбор типа поверхностного барьера может быть обусловлен шероховатостью распыляемого материала, это позволяет рассмотреть влияние состояния поверхности на коэффициенты распыления для двух предельных случаев.

Обычно рассматривалось 2 млн траекторий налетающих частиц. В случаях расчетов коэффициентов распыления вблизи пороговой области статистика достигала 25 млн.

### 3. КОЭФФИЦИЕНТЫ РАСПЫЛЕНИЯ ВОЛЬФРАМА ИЗОТОПАМИ ВОДОРОДА

На рис. 1 приведены результаты расчета коэффициента распыления вольфрама в зависимости от энергии соударения при нормальном падении пучка на мишень для различных изотопов водорода. Сплошной линией обозначен случай сферического барьера, штриховой линией — планарного. Символы — экспериментальные значения коэффициента

распыления из работ [17–21]. Приведены данные компьютерного моделирования Экштайна [22].

Видно, что случай планарного барьера дает меньшие значения коэффициентов распыления. Особенно эта разница ощутима в пороговой области, при этом использование планарного барьера приводит к смещению порога. Экспериментальные данные лучше согласуются с результатами модели планарного барьера (плоская поверхность). Результаты расчетов Экштайна лежат между рассмотренными нами предельными случаями.

Авторы работы [23] предложили формулу для вычисления коэффициента распыления  $Y$  тяжелых мишеней при бомбардировке легкими ионами низких энергий в виде

$$Y = 1.276 E_s^{-1} Q_1(Z_1, Z_2) Q_2(M_1, M_2) F(w). \quad (1)$$

Здесь  $E_s$  — энергия сублимации,  $Z_1$  и  $Z_2$  — заряды ядер сталкивающихся атомов,  $M_1$  и  $M_2$  — атомные массы сталкивающихся частиц,

$$Q_1(Z_1, Z_2) = \frac{Z_1 Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}},$$

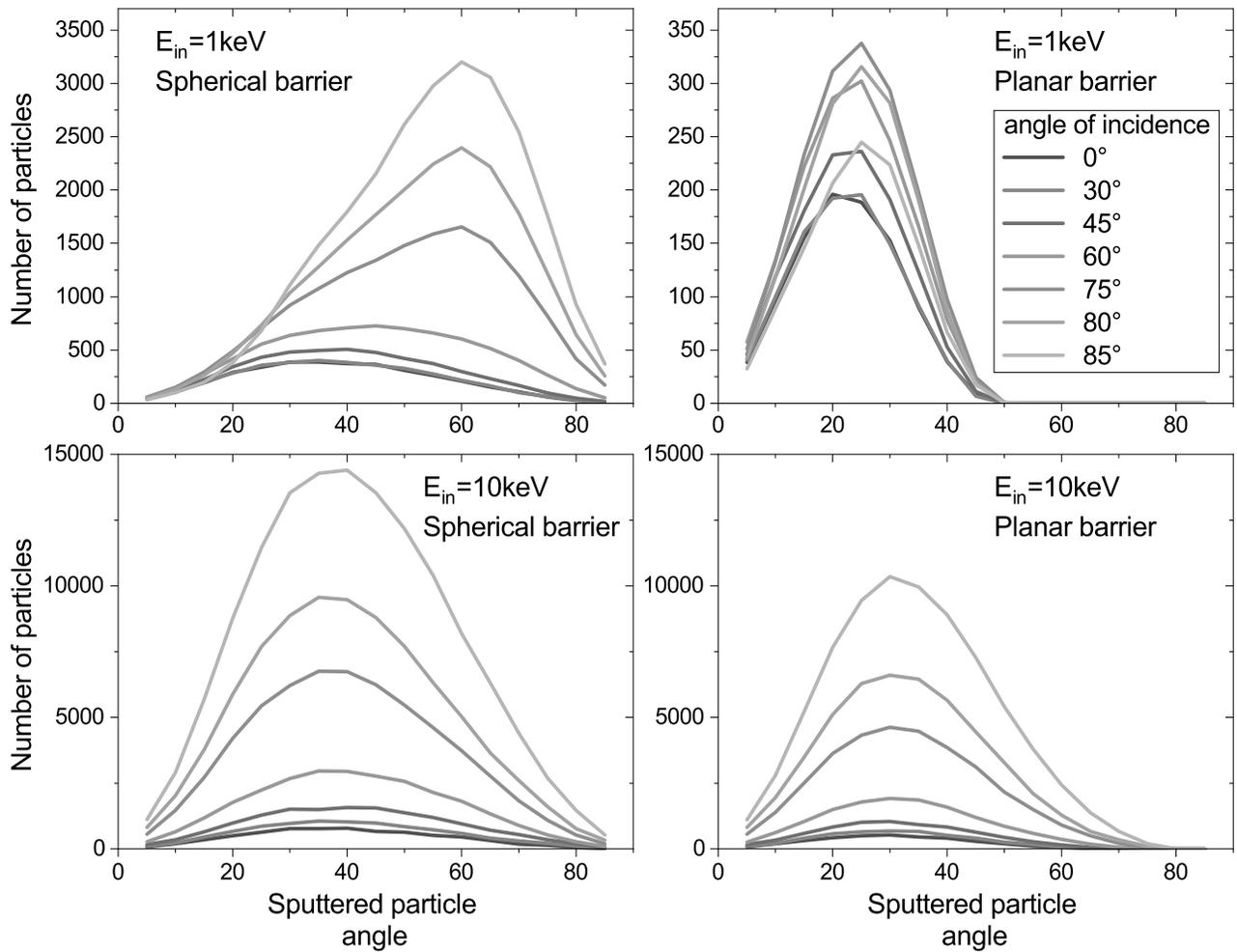


Рис. 3. Угловые распределения распыленных частиц. Представлен случай распыления вольфрама водородом. Верхние два графика отображают угловые спектры для энергии налетающих частиц 1 кэВ, нижние два графика — для энергии 10 кэВ. Представлены случаи сферического барьера (графики слева) и планарного барьера (справа)

#### 4. ЗАВИСИМОСТЬ КОЭФФИЦИЕНТОВ РАСПЫЛЕНИЯ ВОЛЬФРАМА АТОМАМИ ВОДОРОДА ОТ УГЛА ПАДЕНИЯ ПУЧКА НА МИШЕНЬ

На рис. 2 приведены зависимости коэффициента распыления вольфрама водородом от угла падения пучка на мишень. Значения нормированы на единицу при угле падения пучка  $\theta_{in} = 0^\circ$  (падение под прямым углом). Слева представлены результаты для сферического барьера, справа — для планарного барьера. Видно, что в целом нормированные угловые зависимости носят универсальный характер. Однако при малых энергиях в случае планарного барьера наблюдается уменьшение коэффициентов распыления при больших значениях угла падения  $\theta_{in}$ .

Это уменьшение легко объяснить тем, что в случае планарного барьера для большей доли частиц не выполняется условие  $E_{out} \cos^2(\theta) > E_s$ .

$$Q_2(M_1, M_2) = \frac{\mu - 1}{(1 + \mu)^2},$$

$$F(w) = \frac{\ln w + 3w^{-1/2} - (3w^{3/2})^{-1} - 8/3}{w^{1/2}},$$

$$\mu = \frac{M_1}{M_2}, \quad w = \frac{E_0}{E_{th}},$$

$$E_{th} = \frac{E_s}{\gamma(1 - \gamma)}, \quad \gamma = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2},$$

где  $E_{th}$  — пороговая энергия распыления,  $E_0$  — энергия налетающего иона.

Как видно из рис. 1, наблюдается неплохое согласие результатов расчета для планарного потенциала с результатами теоретической работы [23]. Некоторое различие имеется при больших энергиях.

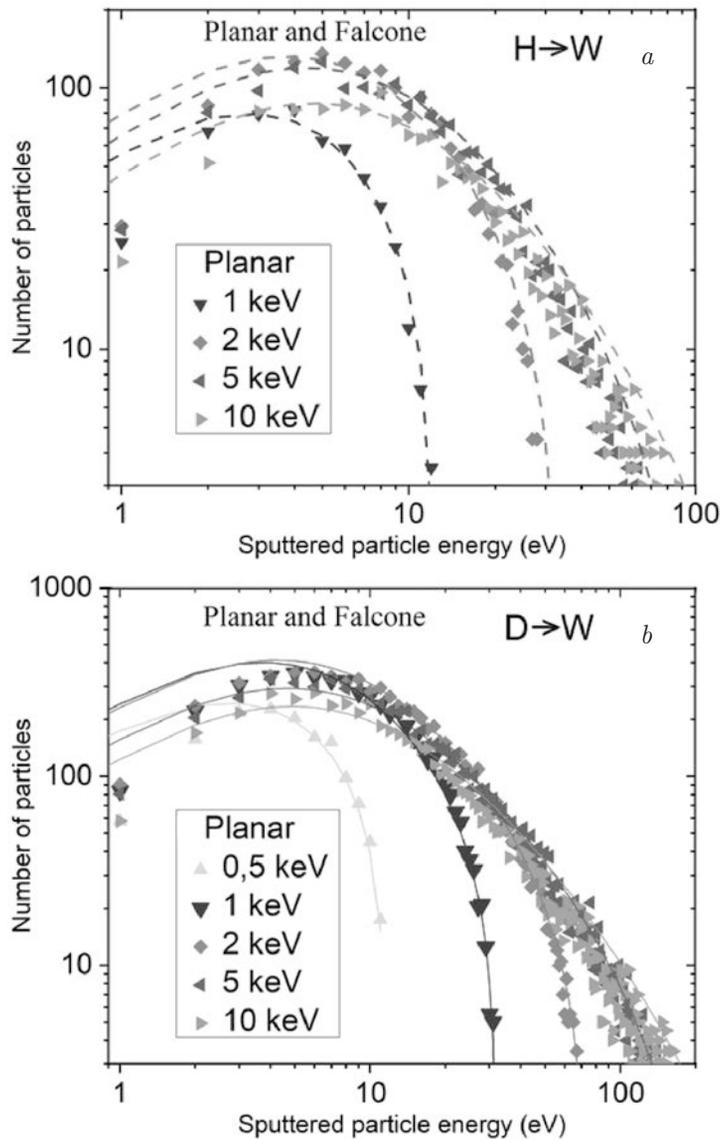


Рис. 4. Энергетические спектры распыленных частиц для планарного барьера. *a* — случай H → W, *b* — случай D → W. Сплошными линиями показаны результаты расчетов с использованием формулы Фальконе (1)

Аналогичные зависимости получены нами и для других изотопов водорода.

### 5. УГЛОВЫЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ РАСПЫЛЕННЫХ ЧАСТИЦ

Угловые и энергетические распределения распыленных частиц при бомбардировке вольфрама изотопами водорода необходимы при расчете поступления примесей в плазму, так как именно они определяют вероятность прохождения слоя пристеночной плазмы или буферного объема слабо ионизованного газа при напуске газа вблизи дивертора.

Из рис. 3 видно, что в случае сферического барьера при энергии соударения 1 кэВ и больших уг-

лах падения угловые спектры распыленных частиц смещены в сторону больших углов, т.е. перпендикулярная составляющая скорости вылета частицы мала. Из-за этого при выборе планарного барьера для большей доли частиц не выполняется условие  $E_{out} \cos^2(\theta) > E_s$ . Этим объясняется общее уменьшение интенсивности распыленных частиц на рис. 2 и рис. 3. В случае планарного барьера число вылетевших частиц при  $\theta_{in} = 85^\circ$  почти в 10 раз ниже, чем в случае сферического барьера (все расчеты проводились с одинаковым количеством налетающих частиц). Для планарного барьера имеет место смещение углового распределения в область малых углов, что связано с критерием отбора распыленных частиц.

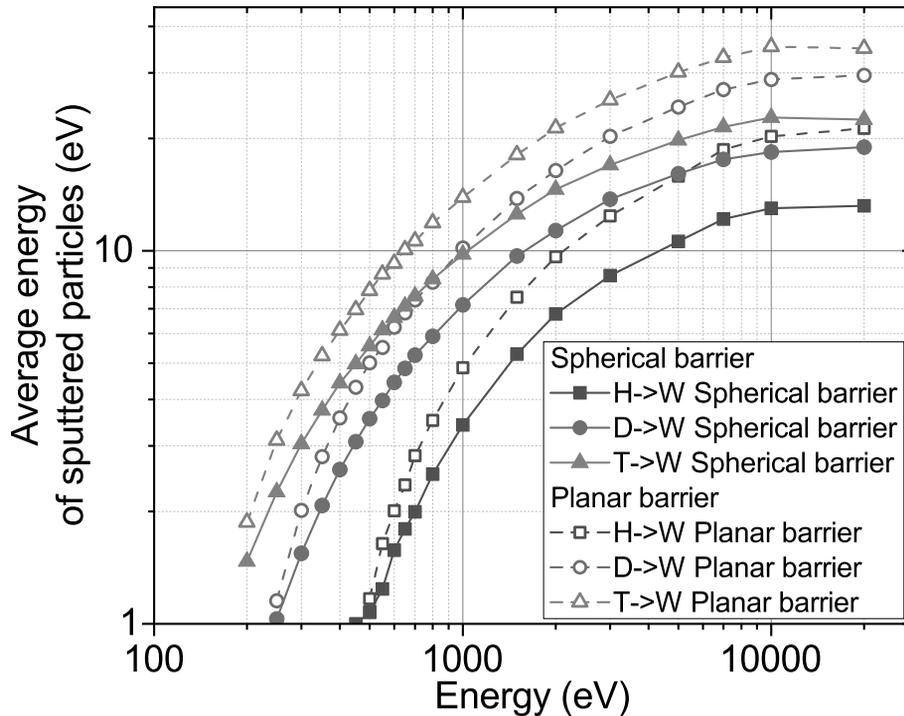


Рис. 5. Зависимость средних энергий распыленных частиц вольфрама от энергии налетающей частицы для различных изотопов водорода. Случай расчета для сферического барьера обозначен сплошными линиями, случай планарного барьера — штриховыми линиями

### 6. ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЕ СПЕКТРЫ РАСПЫЛЕННЫХ ЧАСТИЦ

Выбор барьера также существенно влияет на энергетические спектры распыленных частиц. При малых энергиях наблюдается сильное различие энергетических спектров для случаев сферического и планарного барьеров. Это объясняется тем, что в случае сферического барьера все частицы, обладающие энергией, большей энергии сублимации, вылетают с поверхности, а для планарного барьера именно величина  $E_{out} \cos^2(\theta)$  должна превышать энергию сублимации.

В работе Фальконе [24] приведены формулы для расчета энергетического спектра распыленных атомов для планарного барьера:

$$N(E) \sim \frac{E}{(E + E_s)^{5/2}} \ln \frac{\gamma(1 - \gamma)E_0}{E + E_s}. \quad (2)$$

Здесь  $E_0$  — энергия налетающей частицы. Имеется удовлетворительное согласие данных нашего моделирования с результатами расчетов по формулам для случая планарного барьера (см. рис. 4).

Как видно из рис. 4, приведенная формула Фальконе (2) неплохо описывает эволюцию энергетических спектров распыленных частиц в зависимости от энергии соударения для двух изотопов.

Используя полученные спектры, можно рассчитать среднюю энергию распыленных частиц. Эта информация необходима для расчета вероятности прохождения распыленной частицы через слой приповерхностной плазмы или буферного слоя вблизи дивертора.

Как видно из рис. 5, средняя энергия распыленных частиц растет с увеличением энергии налетающих частиц. С ростом массы изотопа энергия, переданная распыленным частицам, также растет, что является следствием законов сохранения энергии и импульса. В случае планарного барьера энергия распыленной частицы больше по сравнению со случаем сферического барьера из-за более строгого критерия отбора распыленных атомов по энергии.

### 7. ВЫВОДЫ

Показано, что коэффициенты распыления вольфрама изотопами водорода весьма чувствительны к выбору поверхности и поверхностного потенциального барьера. Получены значения коэффициентов для двух предельных случаев состояния поверхности — гладкой и состоящей из острий. Как и ожидалось, результаты для планарного барьера (плоская поверхность) удовлетворительно согласуются с экспериментальными данными. Показано, что

модель, предложенная Фальконе, неожиданно хорошо описывает как зависимость коэффициентов распыления от энергии бомбардирующей частицы и массы изотопа, так и энергетические спектры распыленных частиц в случае планарного барьера.

Полученные угловые и энергетические распределения распыленных атомов, а также их средние энергии позволят рассчитывать поступление примеси вольфрама в плазму с учетом прохождения частиц через буферный слой у дивертора или прохождения приповерхностного слоя плазмы при использовании стенки из вольфрама.

### ЛИТЕРАТУРА

1. J. Linke et al., *Matter Rad. Extrem.* **4**, 056201 (2019).
2. O. El-Atwani et al., *Nucl. Fusion* **54**, 083013 (2014).
3. S. Yamoto et al., *Nucl. Fusion* **57**, 116051 (2017); R. D. Smirnov, S. I. Krasheninnikov, A. Yu. Pigarov, and T. D. Rognlien, *Phys. Plasmas* **22**, 012506 (2015).
4. F. Ding, G. N. Luo, X. Chen et al., *Plasma-Tungsten Interactions in Experimental Advanced Superconducting Tokamak (EAST)*, *Tungsten* **1**, 122 (2019).
5. R. A. Pitts et al., *Nucl. Mater. Energy* **20**, 100696 (2019).
6. Binfu Gao et al., *Fusion Engin. Design* **156**, 111616 (2020).
7. J. Guterl, I. Bykov, R. Ding, and P. Snyder, *Nucl. Mater. Energy* **27**, 100948 (2021).
8. R. V. Jensen, D. E. Post, W. H. Grasberger et al., *Nucl. Fusion* **17**, 1187 (1977).
9. П. Ю. Бабенко, А. Н. Зиновьев, В. С. Михайлов, Д. С. Тенсин, А. П. Шергин, *ПЖТФ* **48**, 10 (2022).
10. D. S. Meluzova, P. Yu. Babenko, A. P. Shergin, K. Nordlund, and A. N. Zinoviev, *Nucl. Instr. Meth. B* **460**, 4 (2019).
11. П. Ю. Бабенко, А. Н. Зиновьев, Д. С. Тенсин, *ЖТФ* **92**, 1643 (2022).
12. A. N. Zinoviev, P. Yu. Babenko, and K. Nordlund, *Nucl. Instr. Meth. B* **508**, 10 (2021).
13. A. N. Zinoviev, and K. Nordlund, *Nucl. Instr. Meth. B* **406**, 511 (2017).
14. Б. П. Никольский, *Справочник химика*, Химия, Ленинград (1966).
15. Y. R. Luo, *Comprehensive Handbook of Chemical Bond Energies*, CRC Press, Boca Raton (2007).
16. А. Н. Зиновьев, П. Ю. Бабенко, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 603 (2022).
17. W. Eckstein, C. Garcia-Rosales, J. Roth, and W. Ottenberger, *Sputtering Data*, Report IPP 9/82, Garching: MPG (1993).
18. J. Roth, J. Bohdansky, and W. Ottenberger, *Data on Low Energy Light Ion Sputtering*, Report IPP 9/26, Garching: MPG (1979).
19. J. Roth, J. Bohdansky, and A. P. Martinelli, *Radiat. Eff.* **48**, 213 (1980).
20. J. N. Smith, Jr., C. H. Meyer, Jr., and J. K. Layton, *Nucl. Technol.* **29**, 318 (1976).
21. М. И. Гусева, А. Л. Суворов, С. Н. Коршунов, Н. Е. Лазарев, *ЖТФ* **69**, 137 (1999).
22. R. Behrisch and W. Eckstein, *Sputtering by Particle Bombardment*, Springer, Berlin (2007).
23. G. Falcone and F. Gullo, *Phys. Lett. A* **125**, 432 (1987).
24. Д. Фальконе, *УФН* **162**, 71 (1992).

## К СВЕДЕНИЮ АВТОРОВ

В ЖЭТФ публикуются статьи, содержащие изложение оригинальных научных результатов, не опубликованных и не предназначенных к публикации в другом месте. В отдельных случаях по заказу редколлегии публикуются актуальные статьи обзорного характера.

Редакция ЖЭТФ принимает статьи как на русском, так и на английском языках. С 1 сентября 2016 г. по требованию МАИК статьи, поступившие в редакцию на английском языке, будут переводиться на русский язык для русскоязычной версии журнала.

Редакция рекомендует направлять статьи в электронном виде по электронной почте или загружать их в режиме «on-line» через сайт журнала <http://jetp.ras.ru/>

Издательство требует от авторов при публикации статьи заключения договора о передаче авторских прав. Заполненные и подписанные договоры (форма договоров отправляется авторам **ВМЕСТЕ С КОРРЕКТУРОЙ**) могут быть представлены лично или по электронной почте в отсканированном виде (PDF файлы).

По всем вопросам можно обращаться в редакцию.

Адрес: 117334, Москва, ул. Косыгина, д. 2, Редакция ЖЭТФ

E-mail: [jetp@kapitza.ras.ru](mailto:jetp@kapitza.ras.ru) Телефон: +7 (499) 137 56 22

Главный редактор *А. И. СМЕРНОВ*

**Редколлегия:**

д-р физ.-мат. наук С. О. АЛЕКСЕЕВ, канд. физ.-мат. наук Ю. С. БАРАШ,  
д-р физ.-мат. наук И. Г. ЗУБАРЕВ,  
д-р физ.-мат. наук Е. И. КАЦ (зам. гл. редактора, представительство ЖЭТФ во Франции),  
д-р физ.-мат. наук В. П. КРАЙНОВ, д-р физ.-мат. наук А. С. МЕЛЬНИКОВ  
д-р физ.-мат. наук М. С. ПШИРКОВ акад. М. В. САДОВСКИЙ,  
канд. физ.-мат. наук С. С. СОСИН, член-корр. РАН С. В. ТРОИЦКИЙ (зам. гл. редактора),  
д-р физ.-мат. наук А. В. ФИЛИППОВ, член-корр. РАН И. А. ФОМИН (зам. гл. редактора),

**Редакционный совет:**

член-корр. РАН В. В. ЛЕБЕДЕВ, д-р физ.-мат. наук В. С. ПОПОВ

Зав. редакцией Н. Г. Церевитинова  
Редакторы: Л. Б. Кульчицкая, Т. Г. Орехова, Т. Н. Смирнова