

2024 г. Том 119 вып. 3, стр. 149–254
2024 г. Том 119 вып. 4, стр. 255–322



Том 119, Выпуск 3–4

ISSN 0370-274X
Февраль 2024

Письма
в
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
и
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ
ФИЗИКИ



НАУКА
— 1727 —

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

П И С Ь М А
В
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

том 119

Выпуск 3

10 февраля 2024

*Журнал издается под руководством
Отделения физических наук РАН*

Главный редактор В. М. Пудалов

Заместители главного редактора
Г. Е. Воловик, В. П. Пастухов

Зав. редакцией *И. В. Подыниглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

Web-страница <http://www.jetpletters.ru>

Интернет-версия английского издания
<http://www.springerlink.com/content/1090-6487>

Осцилляции Гайлитиса–Дамбурга в трехчастичной системе $e^-e^+\bar{p}$ В. А. Градусов¹⁾, С. Л. Яковлев¹⁾

Санкт-Петербургский государственный университет, 199034 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 18 ноября 2023 г.

После переработки 23 декабря 2023 г.

Принята к публикации 25 декабря 2023 г.

Мы исследуем околопороговое поведение сечений процессов низкоэнергетического рассеяния антипротонов на основном и возбужденном состояниях позитрония при значениях полного орбитального момента системы $L = 0$. В вычислительном эксперименте подтверждено существование над порогами возбужденных состояний атомов позитрония и антиводорода особенностей, называемых осцилляциями Гайлитиса–Дамбурга. Полученные результаты в дальнейшем могут оказаться полезными для выработки предложений по усовершенствованию условий экспериментов с антиматерией.

DOI: 10.31857/S1234567824030017, EDN: svlita

В ЦЕРН планируются и проводятся несколько экспериментов с антивеществом, использующих установку замедления антипротонов. Два из них AEgIS [1] и GBAR [2], нацеленные на гравитационное поведение антивещества, используют, среди прочего, трехчастичную реакцию



образования антиводорода $\bar{\text{H}}$ в процессе рассеяния антипротона $\bar{p}$ на газе ридберговского позитрония (Ps). В связи с этим в последнее время появился ряд теоретических работ, посвященных исследованию реакции (1). Естественный интерес здесь представляет поиск механизма увеличения скорости реакции образования антиводорода при производстве атомов антивещества.

Внимание исследователей привлекают различные особенности сечений процессов рассеяния в системе $e^-e^+\bar{p}$. Среди них можно выделить резонансы, подпороговый рост сечений, а также такие менее известные надпороговые особенности, как осцилляции Гайлитиса–Дамбурга (ГД), предсказанные впервые в работах [3, 4]. Последние возникают из-за дальнего действующего дипольного взаимодействия между возбужденным атомом (либо $\bar{\text{H}}$, либо Ps) и заряженной частицей (e^- или $\bar{p}$). Теория ГД [3, 4, 5] предсказывает особенности двух типов: серию узких резонансов в областях энергии под порогами возбужденных состояний атомов и осцилляции сечений выше этих порогов. Существование в системах $e^-e^-\bar{p}$ и $e^-e^+\bar{p}$ первых из них, также называемых резонансами Фешбаха, надежно подтверждено как экспериментально, так и теоретически, в том числе достаточно точными

специальными методами вычисления энергий и ширины резонансов [6–14]. Сложнее обстоит дело с особенностями другого типа — осцилляциями сечений. Существование их в системе $e^-e^+\bar{p}$ обсуждалось в работах [15–17], но лишь в последней из них были получены сечения, согласующиеся с предсказаниями теории ГД.

В настоящей работе поставлена цель исследовать надпороговое поведение сечений рассеяния в системе $e^-e^+\bar{p}$ в случае нулевого полного момента системы $L = 0$. Наш безмодельный подход к решению многоканальной квантовой задачи рассеяния в системе трех частиц основан на решении в конфигурационном пространстве уравнений Фаддеева–Меркурьева (ФМ), строго эквивалентных уравнению Шредингера [18]. Эти уравнения в представлении полного орбитального момента [19] сводятся к конечной системе трехмерных уравнений в частных производных. Для решения граничных задач для этих уравнений мы предложили и реализовали эффективный вычислительный алгоритм [20], который был апробирован, в частности, в расчетах низкоэнергетического рассеяния в системе $e^-e^+\bar{p}$ [21]. Для расчета полученных в настоящей работе сечений над порогами возбужденных состояний атомов критически важное значение имеет использование асимптотик решений уравнений ФМ, учитывающих в явном виде дальнедействующий характер эффективных взаимодействий между нейтральным атомом и налетающей (улетающей) частицей. Данное обстоятельство приводит к необходимости модифицировать “стандартные” формулы для асимптотик волновых функций [14, 22]. Эта модификация является обобщением на трехчастичный случай результатов нашей работы [23]. Здесь мы кратко обсуждаем соответствующую теорию и применяем ее

¹⁾e-mail: v.gradusov@spbu.ru; s.yakovlev@spbu.ru

в серии расчетов низкоэнергетических сечений над порогами первых нескольких возбужденных состояний атомов в системе $e^-e^+\bar{p}$.

Рассматривается система трех бесспиновых нерелятивистских заряженных частиц с массами m_α и зарядами Z_α , $\alpha = 1, 2, 3$. В дальнейшем, набор индексов $\alpha\beta\gamma$ обозначает одну из перестановок множества $\{1, 2, 3\}$, нумерующую частицы. Поскольку в триаде $\alpha\beta\gamma$ пара частиц $\beta\gamma$ вполне определяется номером α третьей частицы, то далее мы систематически используем этот факт для идентификации пар частиц. В системе центра масс положение частиц описывается набором координат Якоби. Для разбиения $\alpha(\beta\gamma)$, они определены как векторы относительного положения $\mathbf{x}_\alpha$ между частицами $\beta\gamma$ и $\mathbf{y}_\alpha$ между их центром масс и частицей α . Мы используем приведенные координаты Якоби $\{\mathbf{x}_\alpha, \mathbf{y}_\alpha\}$, которые являются векторами Якоби, масштабируемыми множителями $\sqrt{2\mu_\alpha}$ и $\sqrt{2\mu_{\alpha(\beta\gamma)}}$ соответственно. Приведенные массы пары α (μ_α) и системы “частица α — пара α ” ($\mu_{\alpha(\beta\gamma)}$) выражаются через массы частиц m_α стандартными формулами. Для разных значений α приведенные векторы Якоби связаны ортогональным преобразованием $\mathbf{x}_\beta = c_{\beta\alpha}\mathbf{x}_\alpha + s_{\beta\alpha}\mathbf{y}_\alpha$, $\mathbf{y}_\beta = -s_{\beta\alpha}\mathbf{x}_\alpha + c_{\beta\alpha}\mathbf{y}_\alpha$ [18]. В дальнейшем модули векторов обозначаются соответствующими нежирными буквами, например, $x_\alpha = |\mathbf{x}_\alpha|$. Состояния системы с полным орбитальным моментом $L = 0$ обладают симметрией относительно поворота системы как целого и по этой причине зависят лишь от трех координат $X_\alpha = \{x_\alpha, y_\alpha, z_\alpha = \cos\theta_\alpha \equiv (\mathbf{x}_\alpha, \mathbf{y}_\alpha)/(x_\alpha y_\alpha)\}$, определяющих положение частиц в содержащей их плоскости. В дальнейшем, где это необходимо, предполагается, что координаты X_β выражены через X_α .

Уравнения ФМ для трех заряженных частиц [18, 24] в случае $L = 0$ имеют вид [21, 25]:

$$\left[T_\alpha + V_\alpha(x_\alpha) + \sum_{\beta \neq \alpha} V_\beta^{(1)}(x_\beta, y_\beta) - E \right] \psi_\alpha(X_\alpha) = -V_\alpha^{(s)}(x_\alpha, y_\alpha) \sum_{\beta \neq \alpha} \frac{x_\alpha y_\alpha}{x_\beta y_\beta} \psi_\beta(X_\beta). \quad (2)$$

Здесь операторы кинетической энергии даются выражением

$$T_\alpha = -\frac{\partial^2}{\partial y_\alpha^2} - \frac{\partial^2}{\partial x_\alpha^2} - \left(\frac{1}{y_\alpha^2} + \frac{1}{x_\alpha^2} \right) \frac{\partial}{\partial z_\alpha} (1 - z_\alpha^2) \frac{\partial}{\partial z_\alpha}. \quad (3)$$

Потенциалы V_α представляют собой парное кулоновское взаимодействие $V_\alpha(x_\alpha) = \sqrt{2\mu_\alpha} Z_\beta Z_\gamma / x_\alpha$. Они расщепляются на короткодействующую $V_\alpha^{(s)}$ и дальнедействующую части $V_\alpha^{(l)}$

$$V_\alpha(x_\alpha) = V_\alpha^{(s)}(x_\alpha, y_\alpha) + V_\alpha^{(l)}(x_\alpha, y_\alpha) \quad (4)$$

при помощи функции, называемой срезкой Меркурьева [18, 21]. Уравнения (2) можно просуммировать, что приводит к уравнению Шредингера для волновой функции $\Psi = \sum_\alpha \psi_\alpha(X_\alpha)/(x_\alpha y_\alpha)$, где ψ_α — компоненты волновой функции, заданные решением уравнений (2).

При значениях энергии E ниже порога развала (ионизации) системы компоненты ФМ $\psi_\alpha(X_\alpha)$ при $y_\alpha \rightarrow \infty$ в существенном отличны от нуля лишь в асимптотической области $\Omega_\alpha = \{x_\alpha, y_\alpha : x_\alpha \ll y_\alpha \text{ при } y_\alpha \rightarrow \infty\}$. В Ω_α компоненты ФМ могут быть представлены в виде

$$\begin{aligned} \psi_\alpha^{(\alpha_0\nu\lambda)}(X_\alpha) &\sim \\ &\sim \sum_{n\ell} \phi_{n\ell}(x_\alpha) Y_{\ell 0}(\theta_\alpha, 0) \left(\psi_{(n\ell)(\nu\lambda)}^-(y_\alpha, p_\nu) \delta_{\alpha\alpha_0} - \right. \\ &\left. - \sum_{n'\ell'} \psi_{(n\ell)(n'\ell')}^+(y_\alpha, p_{n'}) \sqrt{\frac{p_\nu}{p_{n'}}} \mathcal{S}_{(\alpha n'\ell'), (\alpha_0\nu\lambda)} \right). \end{aligned} \quad (5)$$

В этой формуле индексы $\alpha n\ell$ нумеруют бинарные каналы рассеяния, определяемые связанными кулоновскими состояниями двух частиц в паре α с радиальной волновой функцией $\phi_{n\ell}(x)$ и энергией связи ε_n . Набор индексов $\alpha_0\nu\lambda$ определяет начальный канал рассеяния. $Y_{\ell m}$ обозначает стандартную сферическую гармонику. В формуле (5) и ниже в тексте предполагается, что индексы $n\ell$ принимают целые значения $n > \ell \geq 0$, соответствующие открытым при данной энергии E каналам. Импульс p_n налетающей (улетающей) частицы определяется условием сохранения энергии $E = p_n^2 + \varepsilon_n$. Соответственно, канал считается открытым, если $E - \varepsilon_n \geq 0$. Функции $\psi_{(n\ell)(\nu\lambda)}^-$ и $\psi_{(n\ell)(\nu\lambda)}^+$ задают падающую и рассеянную волны. Стандартным является выбор этих функций в виде

$$\hat{\psi}_{(n\ell)(n'\ell')}^\pm(y_\alpha, p_{n'}) = u_\ell^\pm(\eta_n, p_n y_\alpha) \delta_{(n\ell), (n'\ell')}, \quad (6)$$

где $u_\ell^\pm(\eta, z)$ — кулоновские сходящаяся и расходящаяся волны [26], а параметр Зоммерфельда определяется как $\eta_n \equiv Z_\alpha(Z_\beta + Z_\gamma) \sqrt{2\mu_{\alpha(\beta\gamma)}}/(2p_n)$. Действительно, использование функций (6) в (5) приводит к решению уравнений ФМ с асимптотическим поведением вида:

$$\begin{aligned} \hat{\psi}_\alpha^{(\alpha_0\nu\lambda)}(X_\alpha) &\sim \\ &\sim \phi_{\nu\lambda}(x_\alpha) Y_{\lambda 0}(\theta_\alpha, 0) u_\lambda^-(\eta_\nu, p_\nu y_\alpha) \delta_{\alpha\alpha_0} - \\ &- \sum_{n\ell} \phi_{n\ell}(x_\alpha) Y_{\ell 0}(\theta_\alpha, 0) u_\ell^+(\eta_n, p_n y_\alpha) \sqrt{\frac{p_\nu}{p_n}} \hat{\mathcal{S}}_{(\alpha n\ell), (\alpha_0\nu\lambda)}. \end{aligned} \quad (7)$$

Сечение процесса рассеяния с начальным $\alpha_0\nu\lambda$ и конечным $\alpha n\ell$ каналами стандартным образом выражается через элемент S-матрицы $\hat{\mathcal{S}}_{(\alpha n\ell), (\alpha_0\nu\lambda)}$ [25].

Наличие в системе трех заряженных частиц эффективного дипольного потенциала между возбужденным связанным состоянием пары α (атомом) и частицей α приводит к тому, что представление (6) становится не достаточно точным, так как оставляет дипольное взаимодействие нескомпенсированным в уравнениях ФМ. Формально дипольный потенциал может быть получен подстановкой в уравнения ФМ (2) асимптотического разложения в Ω_α суммы дальнедействующих частей потенциалов

$$\sum_{\beta \neq \alpha} V_\beta^{(1)}(x_\beta, y_\beta) = \sum_{\ell=0}^{\infty} d_\alpha^{(\ell+1)} \frac{x_\alpha^\ell P_\ell(z_\alpha)}{y_\alpha^{\ell+1}}, \quad (8)$$

где P_ℓ — полиномы Лежандра. Действительно, из свойств меркурьевской срезки следует, что в Ω_α $V_\beta^{(1)}$ с точностью до экспоненциально убывающего по переменной y_α слагаемого совпадает с потенциалом V_β . Тогда коэффициенты мультипольного разложения (8) могут быть определены при помощи формулы

$$\begin{aligned} \frac{1}{x_\beta} &= \frac{1}{|c_{\beta\alpha}\mathbf{x}_\alpha + s_{\beta\alpha}\mathbf{y}_\alpha|} \Big|_{|s_{\beta\alpha}|y_\alpha \geq |c_{\beta\alpha}|x_\alpha} = \\ &= \frac{1}{|s_{\beta\alpha}|y_\alpha} \sum_{\ell=0}^{\infty} \left(\frac{|c_{\beta\alpha}|x_\alpha}{s_{\beta\alpha}y_\alpha} \right)^\ell P_\ell(z_\alpha). \end{aligned} \quad (9)$$

В частности, первые два коэффициента имеют вид

$$C_\alpha \equiv d_\alpha^{(1)} = Z_\alpha(Z_\beta + Z_\gamma)\sqrt{2\mu_{\alpha(\beta\gamma)}}, \quad (10)$$

$$\begin{aligned} D_\alpha \equiv d_\alpha^{(2)} &= Z_\alpha(-1)^\alpha \sqrt{2\mu_{\alpha(\beta\gamma)}} \sqrt{\frac{m_\alpha}{m_\alpha + m_\beta + m_\gamma}} \times \\ &\times \left[Z_\gamma \text{sign}(\beta - \alpha)(-1)^\beta \sqrt{\frac{m_\beta}{m_\gamma}} + \right. \\ &\left. + Z_\beta \text{sign}(\gamma - \alpha)(-1)^\gamma \sqrt{\frac{m_\gamma}{m_\beta}} \right]. \end{aligned} \quad (11)$$

Как известно из теории уравнений ФМ, правые части уравнений убывают экспоненциально в Ω_α . Подставляя первые два слагаемых разложения (8) в уравнения ФМ (2), получаем, что в асимптотической области Ω_α уравнения принимают форму

$$\begin{aligned} \left[T_\alpha + V_\alpha(x_\alpha) + \frac{C_\alpha}{y_\alpha} + \frac{D_\alpha x_\alpha z_\alpha}{y_\alpha^2} - E \right] \psi_\alpha^{(\alpha_0\nu\lambda)}(X_\alpha) = \\ = O\left(\frac{1}{y_\alpha^3}\right). \end{aligned} \quad (12)$$

Подставим теперь асимптотическое представление (5) в уравнения (12) и спроецируем их на волновые функции связанных состояний $\phi_{n\ell}Y_{\ell 0}$.

Используем при этом следующие хорошо известные соотношения [26, 27]:

$$\frac{\partial}{\partial \cos \theta} (1 - \cos^2 \theta) \frac{\partial}{\partial \cos \theta} Y_{\ell 0}(\theta, 0) = -\ell(\ell+1)Y_{\ell 0}(\theta, 0), \quad (13)$$

$$\left[-\frac{d^2}{dx_\alpha^2} + \frac{\ell(\ell+1)}{x_\alpha^2} + V_\alpha(x_\alpha) - \varepsilon_n \right] \phi_{n\ell}(x_\alpha) = 0, \quad (14)$$

$$\begin{aligned} 2\pi \int_0^{+\infty} dx_\alpha \int_{-1}^1 d \cos \theta \phi_{n'\ell'}(x_\alpha) Y_{\ell'0}(\theta, 0) \phi_{n\ell}(x_\alpha) \times \\ \times Y_{\ell 0}(\theta, 0) = \delta_{\ell\ell'} \delta_{nn'}, \end{aligned} \quad (15)$$

$$\begin{aligned} 2\pi \int_{-1}^1 d \cos \theta Y_{\ell'0}(\theta, 0) \cos \theta Y_{\ell 0}(\theta, 0) = \\ = \delta_{\ell,\ell'+1} \frac{\ell}{\sqrt{4\ell^2 - 1}} + \delta_{\ell,\ell'-1} \frac{\ell+1}{\sqrt{4(\ell+1)^2 - 1}}. \end{aligned} \quad (16)$$

В результате получим, что функции $\psi_{(n\ell)(\nu\lambda)}^\pm$ должны являться линейно независимыми решениями уравнений сильной связи каналов:

$$\begin{aligned} \left[-\frac{d^2}{dy_\alpha^2} + \frac{\ell(\ell+1)}{y_\alpha^2} + \frac{C_\alpha}{y_\alpha} - p_n^2 \right] \psi_{(n\ell)(\nu\lambda)}^\pm(y_\alpha, p_\nu) + \\ + \sum_{n'\ell'} \frac{A_{n\ell,n'\ell'}^\alpha}{y_\alpha^2} \psi_{(n'\ell')(\nu\lambda)}^\pm(y_\alpha, p_\nu) = O\left(\frac{1}{y_\alpha^3}\right). \end{aligned} \quad (17)$$

Элементы матрицы A^α , задающей эффективный дипольный потенциал, даются выражениями

$$\begin{aligned} A_{n\ell,n'\ell'}^\alpha = D_\alpha M_{n\ell,n'\ell'}^\alpha \times \\ \times \left(\delta_{\ell',\ell+1} \frac{\ell+1}{\sqrt{4(\ell+1)^2 - 1}} + \delta_{\ell',\ell-1} \frac{\ell}{\sqrt{4\ell^2 - 1}} \right), \end{aligned} \quad (18)$$

в которых

$$M_{n\ell,n'\ell'}^\alpha \equiv \int_0^{+\infty} dx_\alpha \phi_{n'\ell'}(x_\alpha) x_\alpha \phi_{n\ell}(x_\alpha). \quad (19)$$

Как упоминалось выше, сходящаяся и расходящаяся волны $\hat{\psi}_{(n\ell)(n'\ell')}^\pm$, определенные в (6), не достаточно точно описывают асимптотическое поведение решения уравнений ФМ в Ω_α , так как не учитывают наличие эффективного дипольного потенциала. Действительно, при подстановке этих функций в уравнения (17) остается нескомпенсированным в левой части последнее дипольное слагаемое, имеющее порядок $O(y_\alpha^{-2})$. Частичный учет дипольного члена в асимптотических решениях уравнений (17) осуществлялся в работах [3, 4, 22, 14] путем диагонализации блочной части матрицы связи каналов

$$\begin{aligned} \delta_{nn'} [\ell(\ell+1)\delta_{\ell\ell'} + A_{(n\ell)(n'\ell')}^\alpha], \\ \ell = 0, 1, \dots, n-1, \quad \ell' = 0, 1, \dots, n'-1. \end{aligned}$$

Однако при этом недиагональная по n часть дипольного взаимодействия оставалась некомпенсированной. Мы провели полный учет дипольной части взаимодействия в уравнениях (17) прямыми асимптотическими методами, что привело нас к следующему виду искомых асимптотических решений

$$\psi_{(n\ell)(\nu\lambda)}^{\pm}(y_{\alpha}, p_{\nu}) = \left[W_{(n\ell)(\nu\lambda)}^{\alpha(0)} + \frac{1}{y_{\alpha}^2} W_{(n\ell)(\nu\lambda)}^{\alpha(1)} \right] u_{L_{\alpha}^{(\nu\lambda)}}^{\pm}(\eta_{\nu}, p_{\nu} y_{\alpha}). \quad (20)$$

Здесь матрицы $W^{\alpha(0)}$ и $W^{\alpha(1)}$ даются формулами

$$W_{(n\ell)(\nu\lambda)}^{\alpha(0)} = \delta_{n\nu} V_{\ell}^{\alpha(\nu\lambda)},$$

$$W_{(n\ell)(\nu\lambda)}^{\alpha(1)} = (1 - \delta_{n\nu}) \frac{\sum_{\ell'=0}^{\nu-1} A_{(n\ell)(\nu\ell')}^{\alpha} V_{\ell'}^{\alpha(\nu\lambda)}}{(p_n^2 - p_{\nu}^2)}, \quad (21)$$

а новые значения угловых моментов $L_{\alpha}^{(\nu\lambda)}$ возникают как решения квадратного уравнения

$$L_{\alpha}^{(\nu\lambda)}(L_{\alpha}^{(\nu\lambda)} + 1) = q_{\alpha}^{(\nu\lambda)}. \quad (22)$$

Наконец, $q_{\alpha}^{(\nu\lambda)}$, $V_{\ell}^{\alpha(\nu\lambda)}$ являются собственными значениями и собственными векторами матрицы

$$\ell(\ell+1)\delta_{\ell\ell'} + A_{(\nu\ell)(\nu\ell')}^{\alpha}, \quad \ell, \ell' = 0, 1, \dots, \nu-1. \quad (23)$$

Заметим, что именно второй член в квадратных скобках в (20) ответственен за полную компенсацию дипольной части взаимодействия в уравнениях (17). Детальный вывод приведенных асимптотических решений выходит за рамки данной работы и будет сделан в отдельной публикации.

Решения (20) позволяют нам переформулировать асимптотические граничные условия (7) для уравнений ФМ

$$\begin{aligned} & \tilde{\psi}_{\alpha}^{(\alpha_0\nu\lambda)}(X_{\alpha}) \sim \\ & \sim \sum_{n\ell} \phi_{n\ell}(x_{\alpha}) Y_{\ell 0}(\theta_{\alpha}, 0) \times \left[\tilde{\psi}_{(n\ell)(\nu\lambda)}^{-}(y_{\alpha}, p_{\nu}) \delta_{\alpha\alpha_0} - \right. \\ & \left. - \sum_{n'\ell'} \psi_{(n\ell)(n'\ell')}^{+}(y_{\alpha}, p_{n'}) \sqrt{\frac{p_{\nu}}{p_{n'}}} \tilde{\mathcal{S}}_{(\alpha n'\ell'), (\alpha_0\nu\lambda)} \right], \quad (24) \end{aligned}$$

со сходящейся волной вида

$$\begin{aligned} & \left[\tilde{\psi}^{-} \right]_{(n\ell)(\nu\lambda)}(y_{\alpha}, p_{\nu}) = \\ & = \sum_{\lambda'} e^{i(\lambda - L_{\alpha}^{(\nu\lambda')})\pi/2} \left[V_{\lambda}^{\alpha(\nu\lambda')} \right]^* \psi_{(n\ell)(\nu\lambda')}^{-}(y_{\alpha}, p_{\nu}). \quad (25) \end{aligned}$$

Важным обстоятельством является тот факт, что правые части (7) и (24) совпадают друг с другом в пределе $y_{\alpha} \rightarrow \infty$. Отсюда следует, что связь между

компонентами “физической” S-матрицы $\hat{\mathcal{S}}$ и матрицы $\tilde{\mathcal{S}}$, определенной решением (24), дается равенством

$$\begin{aligned} & \hat{\mathcal{S}}_{(\alpha n\ell), (\alpha_0\nu\lambda)} = \\ & = \sum_{\ell'} e^{i(\ell - L_{\alpha}^{(n\ell')})\pi/2} V_{\ell}^{\alpha(n\ell')} \tilde{\mathcal{S}}_{(\alpha n\ell'), (\alpha_0\nu\lambda)}. \quad (26) \end{aligned}$$

Для решения уравнений ФМ с асимптотическими граничными условиями (24) применяется численная схема, подробно описанная в [20, 28]. Использование в расчетах более точной асимптотики (24) приводит к существенному снижению требований к компьютерным ресурсам. Это связано с тем, что такая асимптотика достигается компонентами ФМ на расстояниях, существенно меньших, чем асимптотика (7), которая вынуждает использовать размеры счетной области по переменной y_{α} в сотни атомных единиц [29]. При переходе к достаточно малым надпороговым энергиям p_n^2 , которыми мы интересуемся в настоящей работе, этот размер неограниченно растет, что делает вычисление сечений рассеяния при таких энергиях практически невозможным. В нашей работе [23] мы продемонстрировали это на примере модельной одноканальной задачи рассеяния на дипольном центральном потенциале.

Для получения представленных в статье результатов мы вычисляли сечения рассеяния с точностью не хуже 1% и высоким разрешением по энергии: $6 \cdot 10^{-6}$ а.е. при расчете сечений непосредственно над порогами возбужденных состояний атомов и $6 \cdot 10^{-5}$ а.е. в остальных случаях. Все представленные величины приведены в атомных единицах, сечения даются в единицах πa_0^2 . Бинарные процессы рассеяния обозначаются начальным и конечным состояниями атома. Например, $\text{Ps}(1) \rightarrow \bar{\text{H}}(2)$ означает процесс образования возбужденного антиводорода с $n=2$ (s и p состояния) при рассеянии антипротона на основном ($n=1$) состоянии позитрония.

Согласно теории ГД [5], околпороговые осцилляции в сечениях возникают при наличии неэвентественных новых значений угловых моментов $L_{\alpha}^{(n\ell)}$. Над порогом возбужденного связанного состояния атома с главным квантовым числом n , в случае единственного (среди значений с разными $\ell < n$) неэвентественного значения $L_{\alpha}^{(n\ell)}$, теория предсказывает следующую зависимость от энергии p_n^2 сечений:

$$\sigma = A + B \cos(2\Im L_{\alpha}^{(n\ell)} \ln p_n + \phi). \quad (27)$$

Здесь константы A , B , ϕ , свои для каждой конкретной системы и сечения, можно считать независимыми от энергии p_n^2 при малых p_n . Простой расчет показывает, что в системе e^-e^+p для первых несколь-

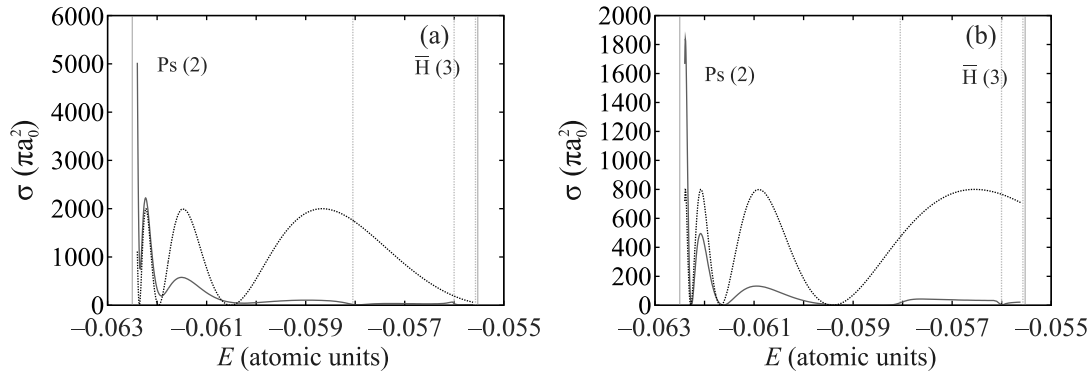


Рис. 1. (Цветной онлайн) Сечения: (а) – упругого $\text{Ps}(2s) \rightarrow \text{Ps}(2s)$ и (б) – квазиупругого $\text{Ps}(2s) \rightarrow \text{Ps}(2p)$ рассеяния. Пунктирной кривой изображен возможный график зависимости (27). Вертикальными штриховыми линиями показаны положения резонансов [10–13]

ких каналов рассеяния с возбужденными состояниями $\text{Ps}(2)$, $\bar{\text{H}}(3)$ и $\bar{\text{H}}(4)$ реализуется как раз описанное выше условие. Мнимые части моментов $\text{Im } L_\alpha^{(n\ell)}$ равны, соответственно, 4.76914, 2.19836 и 3.99364. Таким образом, в сечениях над порогами этих состояний можно ожидать появления осцилляций ГД.

На рисунке 1 представлены упругое и квазиупругое сечения рассеяния антипротона на позитронии Ps в первом возбужденном состоянии между порогами $\text{Ps}(2)$ и $\bar{\text{H}}(3)$. В сечениях над порогом $\text{Ps}(2)$ прекрасно видны осцилляции ГД с расположением максимумов, хорошо согласующимся с законом (27). Действительно, для наглядности на рис. 1 изображен также график кривой (27) с эмпирически подобранными значениями констант A , B и фазы ϕ . Представленные кривые подтверждают полученные ранее результаты [17], где на тех же сечениях была проверена выполнимость закона (27). Первые из присутствующих на рис. 1 волн осцилляций были также получены в работах [15, 16].

Перейдем теперь к обсуждению сечений образования антиводорода $\bar{\text{H}}$ над различными порогами возбужденных состояний атомов. На рисунках 2 и 3 показаны сечения образования антиводорода $\bar{\text{H}}$ в основном $\bar{\text{H}}(1)$ и возбужденных $\bar{\text{H}}(2s)$, $\bar{\text{H}}(2p)$ состояниях между порогами состояний $\bar{\text{H}}(2)$ и $\bar{\text{H}}(3)$. Это уточнение наших ранее опубликованных результатов [25], которые были получены с использованием стандартных асимптотических граничных условий (7). Граничные условия необходимо было ставить на очень больших межкластерных расстояниях y_α для достижения сходимости результатов расчетов. Хотя последнее требовало привлечения очень серьезных компьютерных ресурсов, но и это в ряде случаев не позволило в [25] достичь требуемой точности при малых надпороговых энергиях. Кро-

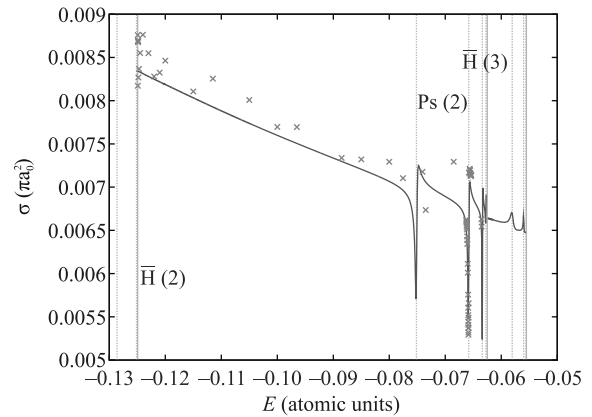


Рис. 2. (Цветной онлайн) Сечения образования антиводорода $\text{Ps}(1) \rightarrow \bar{\text{H}}(1)$. Крестиками отмечены точки, соответствующие работе [16] (получены в частном порядке от доктора Р. Лазаускаса). Вертикальными штриховыми линиями показаны положения резонансов [10–13]

ме того, в нашей предыдущей работе [21] на рис. 4 приведено суммарное сечение $\text{Ps}(2) \rightarrow \bar{\text{H}}(1,2)$ в интервале энергий между порогами $\text{Ps}(2)$ и $\bar{\text{H}}(3)$, которое мы не дублируем здесь для экономии места. Среди всех перечисленных сечений слабые осцилляции можно увидеть лишь на рис. 3 в сечениях образования антиводорода в возбужденных состояниях $\bar{\text{H}}(2)$ над соответствующим порогом. Ввиду малости амплитуд этих колебаний и малого количества волн трудно однозначно заключить, связаны ли они с пороговым поведением, предсказываемым теорией ГД. Однако, имеющиеся осцилляции согласуются с законом (27), что проиллюстрировано на рис. 3. Все сечения имеют достаточно гладкий характер везде, кроме окрестностей подпороговых резонансов, отмеченных на рис. 2, 3. В частности, мы не видим в наших результатах резких пиков в сечениях $\text{Ps}(1,2) \rightarrow \bar{\text{H}}(1,2)$

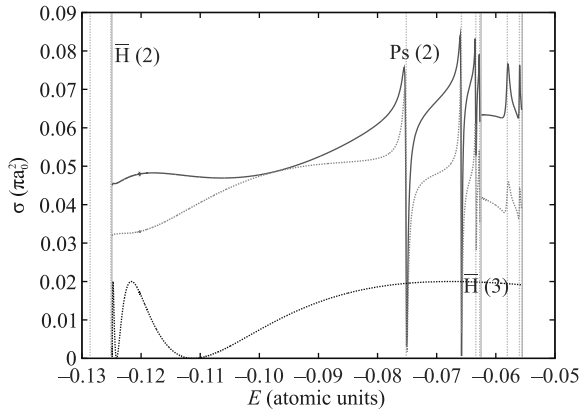


Рис. 3. (Цветной онлайн) Сечения образования антиводорода $\text{Ps}(1) \rightarrow \bar{\text{H}}(2s)$ (сплошная) и $\text{Ps}(1) \rightarrow \bar{\text{H}}(2p)$ (штриховая кривая). Пунктирной кривой изображен возможный график зависимости (27). Вертикальными штриховыми линиями показаны положения резонансов [10–13]

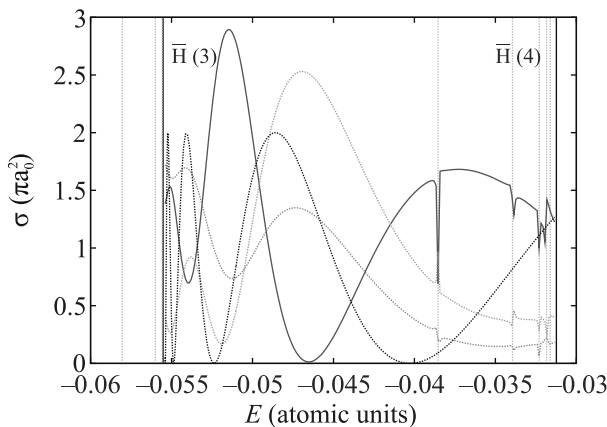


Рис. 4. (Цветной онлайн) Сечения образования антиводорода $\text{Ps}(2s) \rightarrow \bar{\text{H}}(3s)$ (сплошная), $\text{Ps}(2s) \rightarrow \bar{\text{H}}(3p)$ (штриховая) и $\text{Ps}(2s) \rightarrow \bar{\text{H}}(3d)$ (штрихпунктирная кривая). Пунктирной кривой изображен возможный график зависимости (27). Вертикальными штриховыми линиями показаны положения резонансов [10–13]

над порогом возбужденного состояния $\text{Ps}(2)$, полученных в работах [15, 16].

Наконец, в сечениях образования антиводорода во вторых возбужденных состояниях $\bar{\text{H}}(3)$, изображенных на рис. 4, мы обнаружили осцилляции, расположение максимумов которых в целом удовлетворяет зависимости (27). Заметим, что теория ГД предсказывает малые относительные амплитуды осцилляций сечений процессов перехода в возникающие над порогом новые каналы из старых каналов [5]. Это утверждение, вообще говоря, не согласуется с видом осцилляций сечений на рис. 4, поскольку последние

имеют достаточно большие амплитуды. Возможно данное обстоятельство связано с тем, что теория ГД, как указано выше, не учитывает дипольное взаимодействие между каналами с различными значениями n , хотя значения матричных элементов $A_{n\ell, n'\ell'}^\alpha$ в (18) при $n \neq n'$ по величине сопоставимы со значениями при $n = n'$. Одной из задач для будущих исследований может служить дальнейшее выявление причин этой несогласованности. Мы также планируем обобщить теорию учета дипольного взаимодействия на случай $L > 0$ и провести соответствующие высокоточные расчеты сечений рассеяния в системе $e^-e^+\bar{p}$. Мы надеемся, что это позволит более определенно ответить на вопрос о существовании осцилляций ГД в полных сечениях процессов рассеяния, непосредственно измеряемых в эксперименте.

Исследования проведены с использованием вычислительных ресурсов Ресурсного Центра “Вычислительный центр СПбГУ” (<http://cc.spbu.ru>). Авторы выражают благодарность В. А. Рудневу и Е. А. Яревскому за плодотворные обсуждения результатов работы.

Финансирование работы. Работа поддержана Российским научным фондом (проект номер # 23-22-00109).

Конфликт интересов. Конфликт интересов отсутствует.

1. G. Testera, S. Aghion, C. Amsler et al. (AEgIS Collaboration), *Нуп. Int.* **233**, 13 (2015).
2. P. Pérez, D. Banerjee, F. Biraben et al. (Collaboration), *Нуп. Int.* **233**, 21 (2015).
3. М. Гайлитис, Р. Дамбург, *ЖЭТФ* **44**, 1644 (1963) [M. Gailitis and R. Damburg, *Sov. Phys. JETP* **17**, 1107 (1963)].
4. M. Gailitis and R. Damburg, *Proc. Phys. Soc.* **82**, 192 (1963).
5. M. Gailitis, *J. Phys. B* **15**, 3423 (1982).
6. Ph. L. Bartlett, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39**, R379 (2006).
7. A. G. Abrashkevich, D. G. Abrashkevich, I. V. Khimich, I. V. Puzynin, and S. I. Vinitisky, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **24**, 2807 (1991).
8. S. Chakraborty and Y. K. Ho, *Chem. Phys. Lett.* **438**, 99 (2007).
9. E. Yarevsky, S. L. Yakovlev, and N. Elander, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **50**, 055001 (2017).
10. Y. K. Ho and Z.-C. Yan, *Phys. Rev. A* **70**, 032716 (2004).
11. K. Varga, J. Mitroy, J. Zs. Mezei, and A. T. Kruppa, *Phys. Rev. A* **77**, 044502 (2008).
12. R.-M. Yu, Y.-J. Cheng, L.-G. Jiao, and Y.-J. Zhou, *Chin. Phys. Lett.* **29**, 053401 (2012).

13. M. Umair and S. Jonsell, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **47**, 225001 (2014).
14. P. G. Burke, *R-Matrix Theory of Atomic Collisions*, Springer, Heidelberg, Dordrecht, London, N.Y. (2011).
15. C.-Y. Hu, D. Caballero, and Z. Papp, Phys. Rev. Lett. **88**, 063401 (2002).
16. M. Valdes, M. Dufour, R. Lazauskas, and P.-A. Hervieux, Phys. Rev. A **97**, 012709 (2018).
17. I. I. Fabrikant, A. W. Bray, A. S. Kadyrov, and I. Bray, Phys. Rev. A **94**, 012701 (2016).
18. С. П. Меркурьев, Л. Д. Фаддеев, *Квантовая теория рассеяния для систем нескольких частиц*, Наука, М. (1985) [L. D. Faddeev and S. P. Merkuriev, *Quantum Scattering Theory for Several Particle Systems*, Kluwer, Dordrecht (1993)].
19. V. V. Kostykin, A. A. Kvitsinsky, and S. P. Merkuriev, Few Body Syst. **6**, 97 (1989).
20. V. A. Gradusov, V. A. Roudnev, E. A. Yarevsky, and S. L. Yakovlev, Commun. Comput. Phys **30**, 255 (2021).
21. В. А. Градусов, В. А. Руднев, Е. А. Яревский, С. Л. Яковлев, Письма в ЖЭТФ **114**, 6 (2021) [V. A. Gradusov, V. A. Roudnev, E. A. Yarevsky, and S. L. Yakovlev, JETP Lett. **114**, 11 (2021)].
22. M. Gailitis, J. Phys. B: Atom. Molec. Phys. **9**, 843 (1976).
23. В. А. Градусов, С. Л. Яковлев, ТМФ **217**, 416 (2023) [V. A. Gradusov and S. L. Yakovlev, Theor. Math. Phys. **217**, 1777 (2023)].
24. S. P. Merkuriev, Ann. Phys. **130**, 395 (1980).
25. V. A. Gradusov, V. A. Roudnev, E. A. Yarevsky, and S. L. Yakovlev, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **52**, 055202 (2019).
26. А. Мессиа, *Квантовая механика*, Наука, М. (1978), т. 1 [A. Messiah, *Quantum Mechanics*, North-Holland, Amsterdam (1961)].
27. NIST Digital Library of Mathematical Functions, <http://dlmf.nist.gov/>, 2023.
28. L. Sokolinsky and M. Zymbler (editors), *Parallel Computational Technologies. 17th International Conference, PCT 2023, Saint Petersburg, Russia, March 28–30, 2023, Revised Selected Papers*, Springer, Cham (2023).
29. В. А. Градусов, В. А. Руднев, Е. А. Яревский, С. Л. Яковлев, Изв. РАН, сер. физ. **87**, 1191 (2023) [V. A. Gradusov, V. A. Roudnev, E. A. Yarevsky, and S. L. Yakovlev, Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. **87**, 1200 (2023)].

Влияние учета детальной геометрии активной зоны на поток антинейтрино от реактора ВВЭР-1000

И. Н. Жутиков^{1)*}, Е. А. Литвинович^{†*}, В. А. Хватов[×]

[†] Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, 115409 Москва, Россия

^{*} Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

[×] Филиал АО Концерн Росэнергоатом “Калининская атомная станция”, 171841 Удомля, Россия

Поступила в редакцию 11 декабря 2023 г.

После переработки 9 января 2024 г.

Принята к публикации 10 января 2024 г.

На основе данных топливной кампании 3-го энергоблока Калининской АЭС показано, что учет детальной геометрии реактора, его конечных размеров, распределения энерговыделения и состава топлива в различных точках активной зоны приводит к появлению неоднородности в потоке антинейтрино из активной зоны. Эта неоднородность особенно заметна на расстояниях, сравнимых с размерами активной зоны. На таких расстояниях детальный расчет дает больший поток антинейтрино в сравнении с упрощенными моделями, а также появляется зависимость потока от направления. Для нейтринных детекторов, осуществляющих поиск переходов нейтрино в стерильное состояние на малых расстояниях от реактора, это может заметно повлиять на измерения параметров осцилляций Δm_{14}^2 и $\sin^2 2\theta_{14}$. Показано, что существуют выделенные направления на реактор, при которых по изменению скорости счета нейтринного детектора можно судить не только об изменении изотопного состава топлива, но и изменении распределения энерговыделения по объему активной зоны.

DOI: 10.31857/S1234567824030029, EDN: svlogt

1. Введение. В настоящее время большое пространство получили нейтринные эксперименты на атомных станциях с промышленными реакторами, которые обеспечивают большой поток электронных антинейтрино из активной зоны (АЗ). Перед такими экспериментами ставится ряд прикладных задач, связанных с мониторингом состояния реактора и измерением накопления плутония по антинейтрину, а также фундаментальные задачи, среди которых поиск переходов антинейтрино в стерильное состояние. Детектирование антинейтрино осуществляется, как правило, по продуктам реакции обратного бета-распада на протоне – позитрону, энергия которого однозначно связана с энергией антинейтрино ($E_{\bar{\nu}_e} = E_{e^+} + 0.784$ МэВ), и нейтрону, запаздывающая регистрация которого обеспечивает выделение “полезных” нейтринных событий взаимодействия среди маскирующих фоновых событий:

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n \rightarrow (e^+ + e^- \rightarrow 2\gamma) + n.$$

Существующие ограничения на параметры осцилляций нейтрино в стерильное состояние Δm_{14}^2 и $\sin^2 2\theta_{14}$ [1–5] требуют размещения нейтринного де-

тектора на малых расстояниях от центра АЗ. Методика поиска осцилляций заключается, как правило, в анализе отношения спектров антинейтрино, измеренных на различных расстояниях, и его сравнении с теоретически ожидаемым. Для реактора ВВЭР-1000 высота АЗ составляет 3.70 м, а диаметр – 3.16 м. Таким образом, при расчете ожидаемого потока и спектров антинейтрино от делящихся нуклидов из АЗ становится очевидной необходимость учета детальной геометрии реактора и эволюции топливной загрузки в ходе кампании. Ниже рассмотрены вопросы влияния на поток антинейтрино детальной геометрии АЗ реактора ВВЭР-1000, распределения мощности и долей деления нуклидов по ее объему в ходе топливной кампании.

2. Методика расчета потока антинейтрино от реактора. В общем виде поток антинейтрино Φ от реактора можно рассчитать по формуле:

$$\Phi(t, E_{\bar{\nu}_e}, \mathbf{L}_0) = \frac{1}{4\pi} \cdot \sum_k \frac{N_f(t, \mathbf{r}_k)}{(\mathbf{L}_0 - \mathbf{r}_k)^2} \cdot S_f(t, \mathbf{r}_k, E_{\bar{\nu}_e}), \quad (1)$$

где сумма по k берется по всем элементам АЗ, от которых вычисляется поток антинейтрино. В этой формуле $\mathbf{L}_0$ – расстояние между точкой, в которой рассчитывается поток, и центром АЗ, $\mathbf{r}_k$ – радиус-

¹⁾e-mail: Zhutikov_IN@nrcki.ru

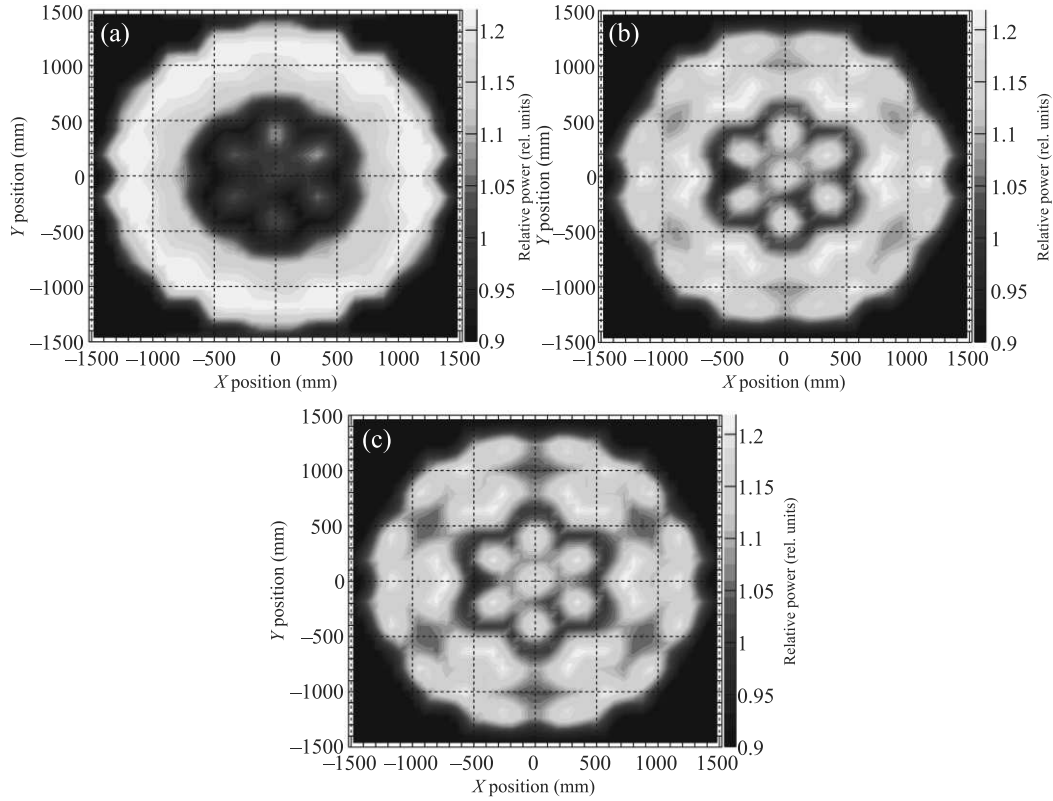


Рис. 1. (Цветной онлайн) Распределение усредненной по высоте активной зоны относительной мощности в зависимости от положения в горизонтальной плоскости XOY для: (a) – начала, (b) – середины и (c) – конца кампании

вектор от центра АЗ до k -го элемента АЗ, от которого вычисляется поток, $N_f(t, \mathbf{r}_k) = \frac{P_{th}(t, \mathbf{r}_k)}{E_f(t, \mathbf{r}_k)}$ – число делений в элементе АЗ, $P_{th}(t, \mathbf{r}_k)$ – тепловая мощность данного элемента, $E_f(t, \mathbf{r}_k) = \sum_i \alpha_i(t, \mathbf{r}_k) E_i$ – средняя тепловая энергия, выделяющаяся в данном элементе на одно деление, $S_f(t, \mathbf{r}_k, E_{\bar{\nu}_e}) = \sum_i \alpha_i(t, \mathbf{r}_k) S_i(E)$ – спектр антинейтрино, приходящийся на одно деление для данного элемента АЗ. $E_f(t, \mathbf{r}_k)$ и $S_f(t, \mathbf{r}_k)$ представляют собой средневзвешенное, соответственно, энергий деления E_i и кумулятивных спектров антинейтрино S_i для четырех основных делящихся изотопов $i = (^{235}\text{U}, ^{238}\text{U}, ^{239}\text{Pu}, ^{241}\text{Pu})$, взвешенных с соответствующими им долями деления α_i . Ниже будут представлены детальные расчеты потока антинейтрино от каждого элемента АЗ по данной формуле на примере данных за одну полную топливную кампанию 3-го энергоблока Калининской АЭС (28.05.2021 – 08.10.2022). Реакторная установка 3-го энергоблока относится к серии ВВЭР-1000.

Результаты детального расчета сравнивались с результатами расчетов по двум упрощенным моделям: точечная модель АЗ со статичным центром,

равным геометрическому (СЦ), и точечная АЗ, динамически меняющая положение своего центра относительно геометрического центра в ходе кампании из-за изменения распределения энерговыделения (ДЦ). Параметры для этих моделей рассчитываются на основании детального расчета, и, тем самым, отличия этих моделей носят чисто геометрический характер. Ниже, как в детальном, так и упрощенных расчетах будут использованы одинаковые значения E_i , взятые из [6], и S_i из [7], так что для всех приведенных сравнений результаты будут безразличны к их конкретным значениям. Также для большей общности все зависимости от времени были приведены в эффективных сутках для того, чтобы убрать явную зависимость потока антинейтрино от периодических изменений мощности реактора. Эффективные сутки (эфф. сут.) – это единица измерения длительности работы реактора в сутках в пересчете на работу на номинальной мощности, которая для ВВЭР-1000 составляет 3000 МВт. Длительность кампании реактора составила ≈ 510 эфф. сут. За начало кампании были приняты первые 10 эфф. сут., за середину – 250–260 эфф. сут. и за конец – последние 10 эфф. сут.

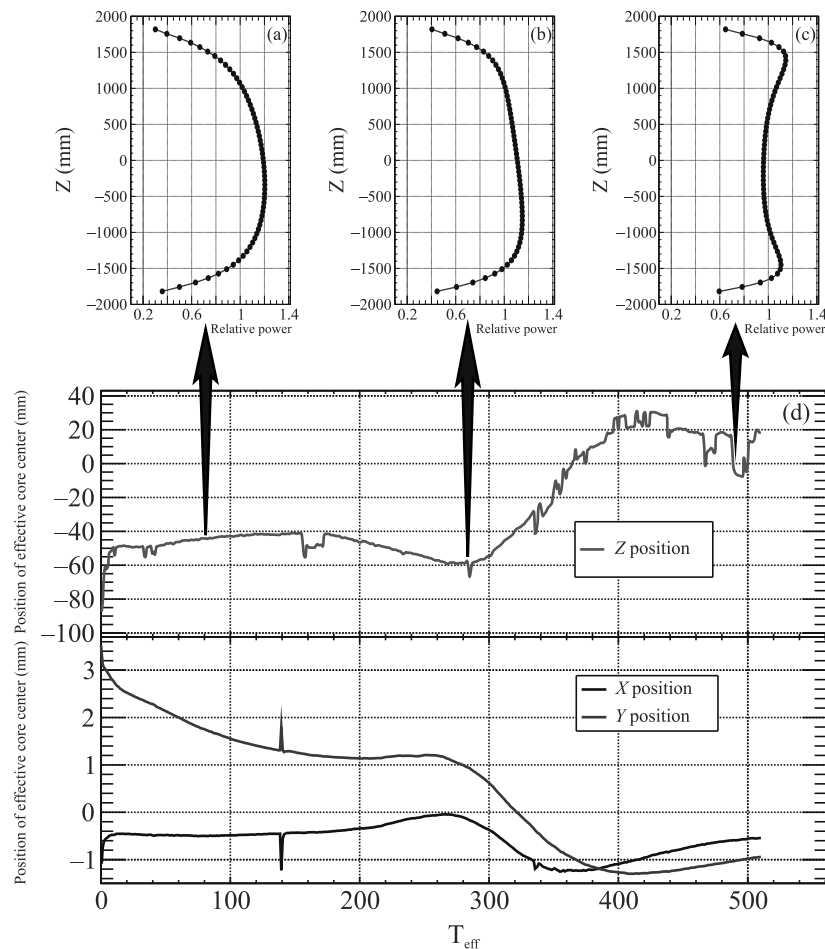


Рис. 2. (Цветной онлайн) Усредненные по горизонтальной плоскости профили энерговыделения для начала (а), середины (b) и конца (с) кампании; (d) – изменение положения эффективного центра АЗ относительно ее геометрического центра по осям Z (красная кривая), X (черная) и Y (синяя) в зависимости от эфф. сут.

3. Учет распределения выделяемой мощности по объему реактора. Одной из особенностей реактора ВВЭР-1000 является значительное изменение распределения мощности по объему АЗ в ходе топливной кампании. Для учета этого изменения при вычислении потока антинейтрино были проведены имитационные нейтронно-физические расчеты топливной кампании по программе БИПР-7А для фактически измеренной полной мощности реактора в течение кампании. Погрешность измерения полной тепловой мощности определена проектом реакторной установки ВВЭР-1000 и не превышает 2%. Программа БИПР-7А предназначена для проектных и эксплуатационных расчетов ВВЭР-1000 и позволяет имитировать состояния активной зоны в процессе выгорания топлива, проводить трехмерные расчеты полей глубин выгорания топлива, энерговыделения и потоков нейтронов. На рисунке 1 показано полученное распределение усредненной по высоте АЗ отно-

сительной мощности, приходящейся на один элемент АЗ, в зависимости от положения в горизонтальной плоскости XOY для начала (а), середины (b) и конца (с) кампании. Значения даны относительно средней мощности, приходящейся на один элемент АЗ, $\langle p \rangle = \frac{P_{th}}{N}$, где P_{th} – полная тепловая мощность реактора, а N – количество элементов АЗ. Видно, что на протяжении кампании распределение сильно неоднородно, причем в начале кампании более удаленные от центра кассеты давали, в среднем, на 20 % большую мощность. Отклонение расчетной и измеренной мощности отдельных ТВС имеет нормальный характер, среднеквадратичное отклонение расчетных значений для всех ТВС по данным внутриреакторного контроля составляет $\sim 2.8\%$.

Знание того, как распределено энерговыделение по объему АЗ, позволяет рассчитать изменение положения эффективного центра энерговыделения в те-

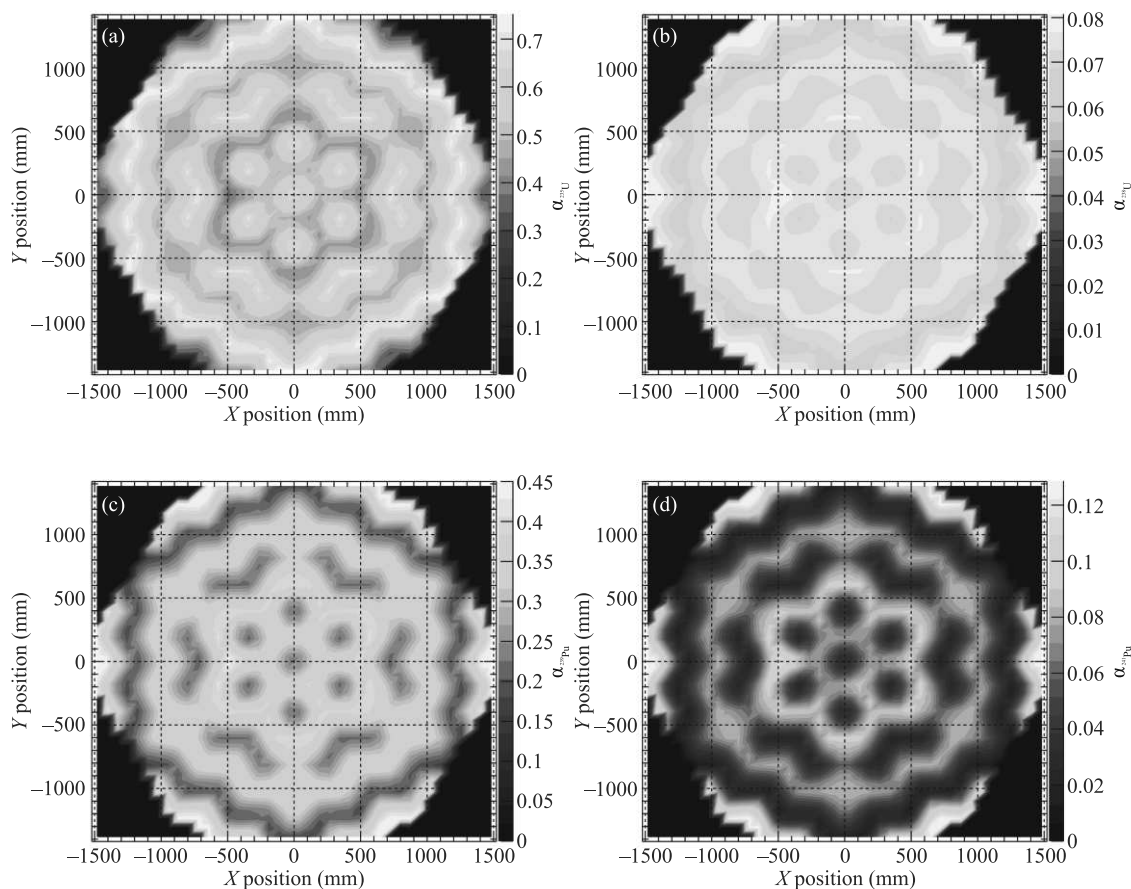


Рис. 3. (Цветной онлайн) Распределение усредненных за кампанию долей деления по объему АЗ для четырех основных изотопов: (а) – ^{235}U , (б) – ^{238}U , (с) – ^{239}Pu , (д) – ^{241}Pu

чение кампании. Радиус-вектор от геометрического центра АЗ до эффективного центра энерговыделения можно вычислить как $\mathbf{r}_{\text{eff}} = \sum_i \frac{p_i}{P_{th}} \mathbf{r}_i$, где p_i – мощность i -го элемента АЗ, $\mathbf{r}_i$ – расстояние до данного элемента, P_{th} – полная тепловая мощность реактора. На рисунке 2 представлено изменение координат эффективного центра АЗ относительно ее геометрического центра для начала (а), середины (б) и конца (с) кампании, а также изменение положения эффективного центра АЗ относительно геометрического центра (д) по осям Z (красная кривая), X (черная) и Y (синяя). Положение эффективного центра энерговыделения меняется в наибольшей степени по оси Z : в начале кампании эффективный центр расположен ниже геометрического на ~ 8 см, после ~ 300 эфф. сут. кампании начинает быстро подниматься, а после 400 эфф. сут. достигает максимального отличия в ~ 10 см от положения в начале. Такое изменение эффективного центра АЗ будет эффективно менять расстояние от него до точки, в которой вычисляется поток антинейтрино (1), качествен-

но меняя зависимость потока от времени в ходе кампании. По осям X и Y положение эффективного центра практически не меняется. Отметим, что такое изменение высотного профиля энерговыделения является универсальным для полугодовых топливных загрузок реактора ВВЭР-1000 и обусловлено особенностями выгорания топлива и выгорающего поглотителя нейтронов в АЗ.

4. Распределение долей деления по объему реактора. Программа БИПР-7А позволяет рассчитать объемное распределение мощности и глубины выгорания для всех 163 ТВС реактора ВВЭР-1000 в 60 слоях по высоте. Для перехода от энерговыделения и глубины выгорания к распределению долей деления использовались результаты расчетов по программе ТВС-М. Данная программа позволяет проводить расчеты изменения изотопного состава и долей деления (скоростей реакций деления) в процессе выгорания топлива, опираясь на точное описание геометрии и материального состава АЗ, в двумерном приближении (например, поперечное сечение ТВС). Зная зависимость долей деления от глубины

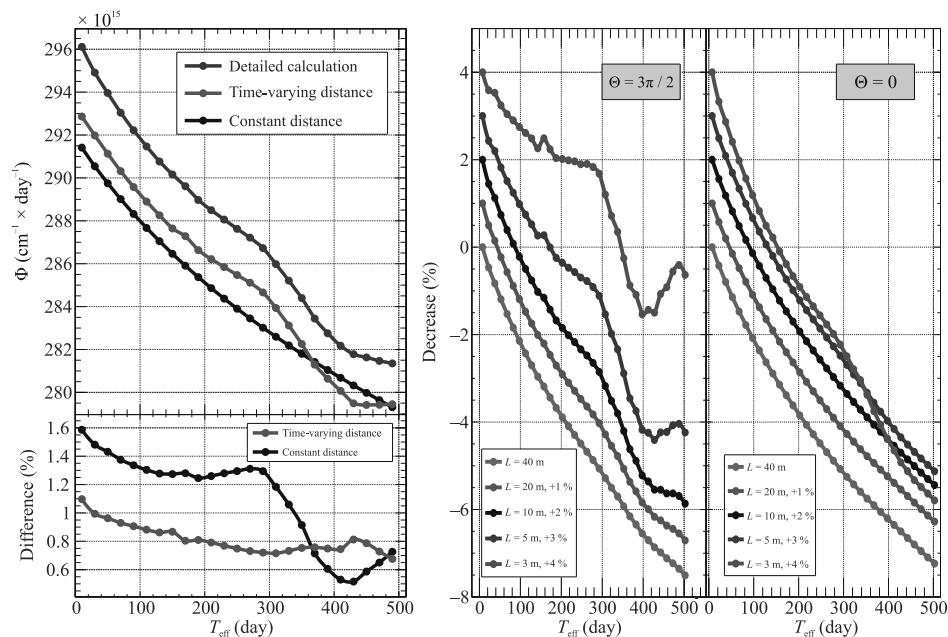


Рис. 4. (Цветной онлайн) Слева: поток антинейтрино в течение кампании на основе детального расчета (синий), модели ДЦ (красный) и СЦ (черный) – сверху, и отличие (в %) от детального расчета результатов по моделям ДЦ (красный) и СЦ (черный), для расстояния 20 м в направлении вниз от центра АЗ. Справа: изменение (%) потока антинейтрино в детальном расчете относительно начала кампании для направления вниз от центра АЗ ($\theta = 3\pi/2$) и вбок ($\theta = 0$), для различных расстояний от центра АЗ

выгорания топлива (из расчетов по программе ТВС-М) и распределение выгорания топлива и мощности по объему АЗ (из расчетов по программе БИПР-7А), определялось распределение долей деления по объему АЗ. Подобные расчеты были проделаны для каждого из трех отличающихся обогащением сортов топлива, загруженных в АЗ в начале кампании. Всего было загружено 163 ТВС, из которых 67 – свежих, 65 – на второй цикл эксплуатации и 31 – на третий цикл. Загрузка является типичной для ВВЭР-1000.

Из-за отличающегося изотопного состава и цикла эксплуатации, ТВС будут иметь разную зависимость долей деления от глубины выгорания. На рисунке 3 приведены усредненные за кампанию распределения по объему АЗ долей деления ^{235}U (а), ^{238}U (б), ^{239}Pu (с) и ^{241}Pu (д). Видно, что они распределены по АЗ весьма неоднородно, и, как следствие, это будет давать свой вклад в отличие детального расчета от упрощенных.

5. Анализ потока антинейтрино в детальной и упрощенных моделях АЗ. На рисунке 4 (слева) приведено сравнение результатов детального расчета потока антинейтрино в ходе кампании реактора с расчетами по упрощенным моделям СЦ и ДЦ для расстояния 20 м в направлении вниз от центра АЗ. На таком расстоянии размещен детектор

iDREAM [8] на 3-м энергоблоке Калининской АЭС. Как следует из рис. 4, на этом расстоянии детальный расчет дает на $\sim 1.5\%$ больший поток антинейтрино, чем модель СЦ, и на $\sim 1\%$ больший, чем модель ДЦ. Также стоит отметить возникновение “ступеньки” в районе 300 эфф. сут., которое вызвано началом поднятия в этот период кампании эффективного центра энерговыделения (см. также рис. 2d – красная кривая). На рисунке 4 (справа) показано, как меняется поток антинейтрино в детальном расчете относительно начала кампании для направления вниз от центра АЗ ($\theta = 3\pi/2$) и вбок ($\theta = 0$), для различных расстояний от центра АЗ. Графики для $L = 3$ м (серая кривая) и $L = 5$ м (синяя кривая) даны для иллюстрации, так как установка нейтринного детектора на таком расстоянии невозможна из-за особенностей конструкции реактора и биологической защиты. Видно, что по мере приближения к центру АЗ снизу ($\theta = 3\pi/2$), “ступенька” в области 300 эфф. сут. проявляется все сильнее и для небольших расстояний под реактором могла бы быть измерима. В целом, данное следствие говорит о том, что только по одному изменению потока антинейтрино можно определить изменение распределения энерговыделения внутри АЗ, а также момент начала подъема эффективного центра АЗ.

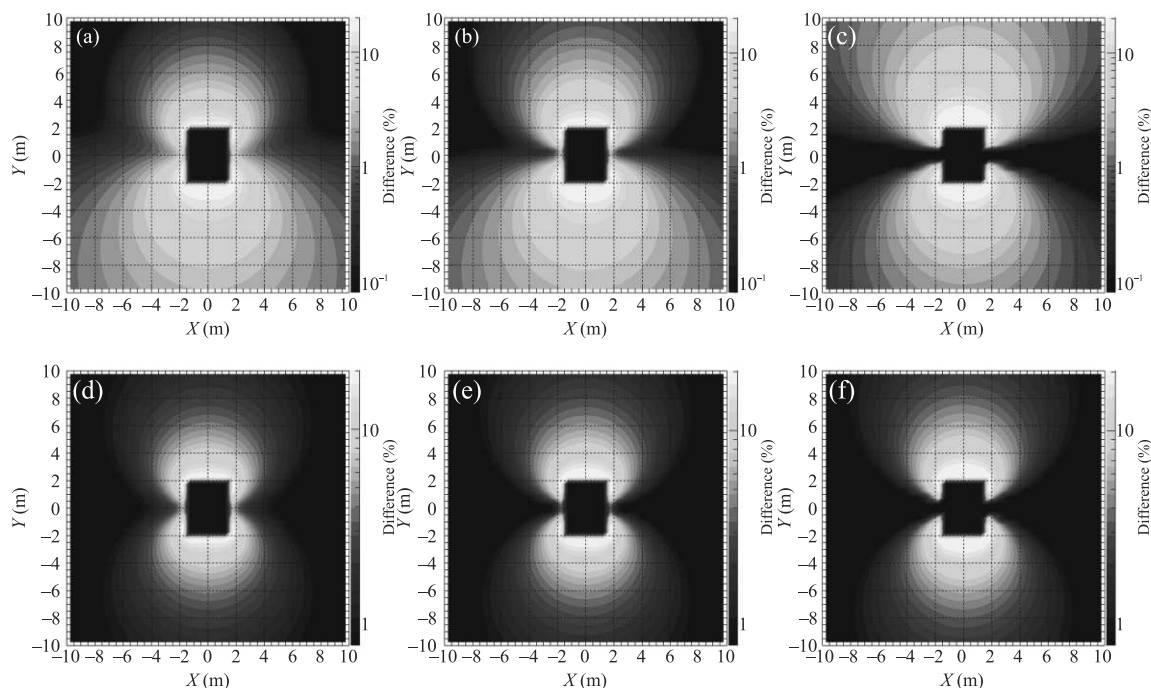


Рис. 5. (Цветной онлайн) Разность между детальным расчетом и упрощенной моделью СЦ (ДЦ) в зависимости от координаты в вертикальной плоскости XOZ для: а (d) – начала, (b), (e) – середины и (c), (f) – конца кампании

Для полноты картины приведем также двухмерный график зависимости от координаты в вертикальной плоскости XOZ разности между детальным и упрощенными расчетами, который представлен на рис. 5. Верхний ряд представляет собой разность между детальным расчетом и упрощенной моделью СЦ, в которой нет никакой анизотропии, в зависимости от угла, под которым наблюдается АЗ, и по сути выражает собой эту анизотропию. Видно, что в детальном расчете появляется явная анизотропия излучения между направлениями вбок или вверх и вниз, причем разница пропорционально увеличивается по мере приближения к АЗ. На рисунке 6 более

Таблица 1. Отношения потоков антинейтрино на 10 и 12 м, рассчитанные различными способами

Способ расчета	Начало	Середина	Конец
СЦ	0.6944	0.6944	0.6944
ДЦ	0.6930	0.6931	0.6947
Детальный расчет	0.6897	0.6893	0.6900

детально показана зависимость разности между детальным расчетом потока антинейтрино и расчетом по модели СЦ, для различных направлений на центр АЗ. Видно, что для расстояний порядка 10 м в направлении вниз от центра АЗ (рис. 6 красная кривая) она будет составлять уже $\sim 3\%$.

Необходимо отметить, что появление неоднородности повлияет и на отношение спектров антинейтрино, измеряемых на различных расстояниях от АЗ. Для изучения осцилляций антинейтрино в стерильное состояние ряд детекторов измеряет спектры антинейтрино на различных, достаточно малых расстояниях, и ищут проявление осцилляций в изменении отношения данных спектров (см., например, [9]). Для примера, в табл. 1 приведены значения отношений для начала, середины и конца топливной кампании для расстояний 10 и 12 м в направлении вниз от центра АЗ. Данное отношение без учета осцилляций нейтрино не будет зависеть от энергии антинейтрино, однако будет меняться со временем в ходе кампании. Для данных расстояний детальным расчет будет давать, в зависимости от этапа кампании, на $0.63\text{--}0.73\%$ ($0.48\text{--}0.68\%$) меньшее отношение спектров в сравнении с расчетом по модели СЦ (ДЦ). На рисунке 7 показано, как данное отношение будет отличаться от расчетов по моделям СЦ и ДЦ, в зависимости от ближнего (L_{near}) и дальнего (L_{far}) расстояний от нейтринного детектора до реактора. Видно, что при уменьшении ближнего и увеличении дальнего расстояний разница в отношении возрастает и достигает нескольких процентов, что должно влиять на измерения параметров осцилляций антинейтрино в стерильное состояние.

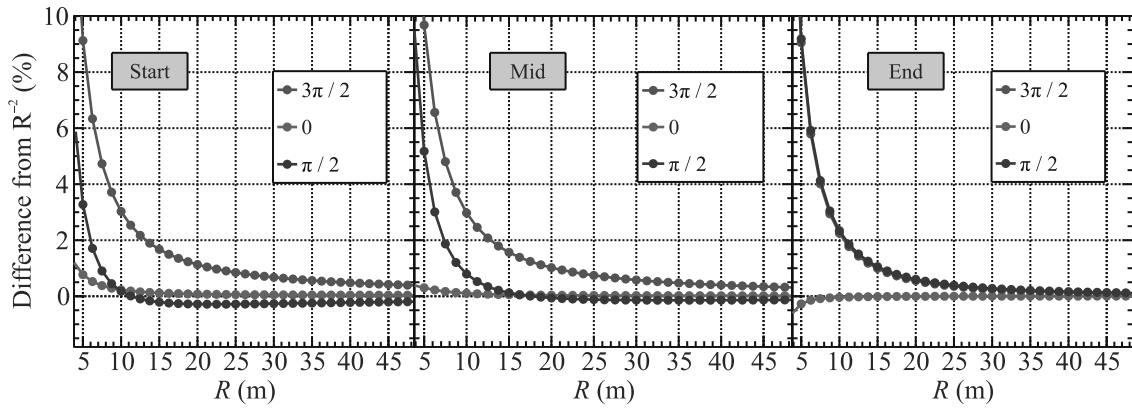


Рис. 6. (Цветной онлайн) Разность между детальным расчетом потока антинейтрино и расчетом по модели СЦ для направлений вниз ($\theta = 3\pi/2$), вбок ($\theta = 0$) и вверх ($\theta = \pi/2$) относительно центра АЗ, в зависимости от расстояния до центра АЗ, для начала (слева), середины (в центре) и конца (справа) кампании

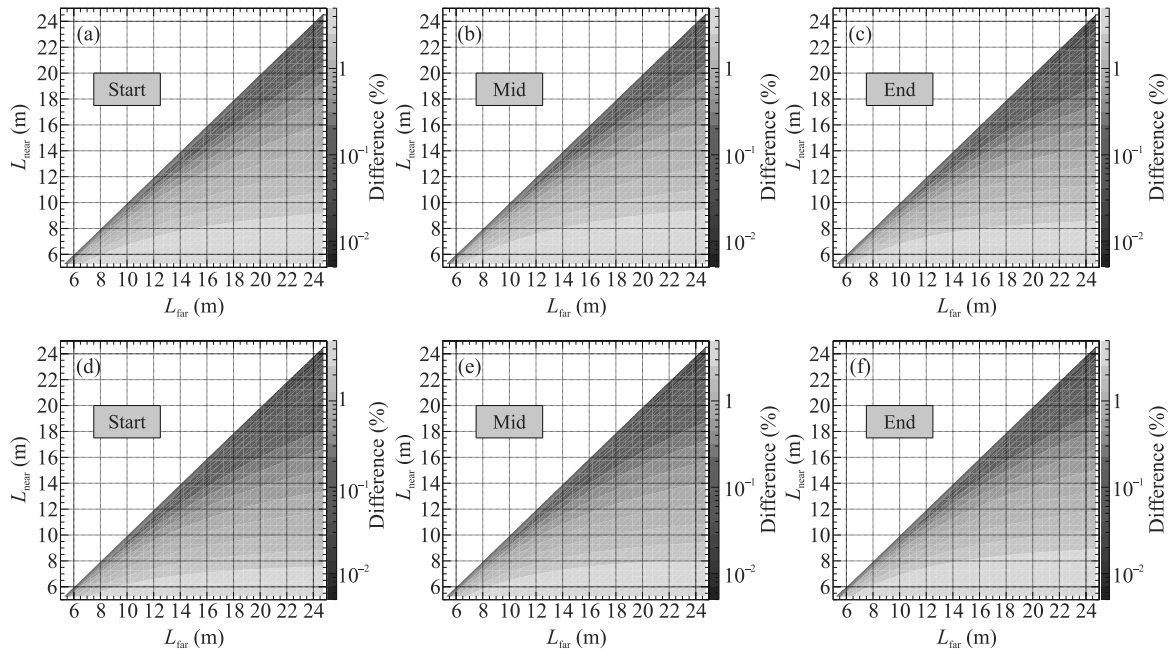


Рис. 7. (Цветной онлайн) Разница в отношении спектров между детальным расчетом и упрощенной моделью СЦ (ДЦ) в зависимости от ближнего (L_{near}) и дальнего (L_{far}) расстояния от детектора до реактора, для направления вниз от центра АЗ, для: (a), (d) – начала, (b), (e) – середины и (c), (f) – конца кампании

6. Заключение. Проведен расчет потока антинейтрино для топливной кампании 3-го энергоблока Калининской АЭС с учетом детальной геометрии АЗ и меняющихся в ходе кампании распределений энерговыделения и долей деления. Полученные результаты свидетельствуют о том, что для небольших расстояний от реактора, сравнимых с размерами АЗ, поток антинейтрино зависит от направления на АЗ. В частности, наибольшее отличие между детальным расчетом и расчетом по упрощенным моделям достигается в направлении вниз от центра АЗ. При измере-

нии отношения спектров антинейтрино, регистрируемых нейтринным детектором на двух отличающихся расстояниях, должна появляться поправка, которая может повлиять на измеряемые параметры осцилляций антинейтрино в стерильное состояние.

7. Финансирование работы. Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект # 22-12-00219). Анализ данных проведен с использованием вычислительных ресурсов Объединенного вычислительного кластера НИЦ “Курчатовский институт”.

8. Конфликт интересов. Авторы заявляют, что у них нет известных конкурирующих финансовых интересов или личных отношений, которые могли бы повлиять на работу, описанную в данной статье.

-
1. M. Danilov, PoS **ICHEP2022**, 616 (2022).
 2. Z. Atif, J.H. Choi, and B.Y. Han et al. (RENO and NEOS Collaborations), Phys. Rev. D **105**, L111101 (2022).
 3. M. Andriamirado, A.B. Balantekin, and H.R. Band et al. (PROSPECT Collaboration), Phys. Rev. D **103**, 032001 (2021).
 4. H. Almazán, L. Bernard, and A. Blanchet et al. (STEREO Collaboration), Nature **613**(7943), 257 (2023).
 5. A. Serebrov, R. Samoilov, and V. Ivochkin et al. (Neutrino-4 Collaboration), Phys. Rev. D **104**(3), 032003 (2021).
 6. V. Kopeikin, L. Mikaelyan, and V. Sinev, Phys. Atom. Nucl. **67**, 1892 (2004).
 7. V. Kopeikin, M. Skorokhvatov, and O. Titov, Phys. Rev. D **104**(7), L071301 (2021).
 8. A. Abramov, A. Chepurnov, and A. Etenko et al. (iDREAM Collaboration), JINST **17**(09), P09001 (2022).
 9. I. Alekseev, V. Belov, and V. Brudanin et al. (DANSS Collaboration), JINST **11**(11), P11011 (2016).

Генерация терагерцового излучения релятивистскими лазерными импульсами на поверхности толстых твердотельных мишеней и тонких фольг

А. В. Митрофанов^{+*×1)}, М. В. Рожко^{+×}, М. М. Назаров*, Н. В. Якушкин^{+×}, А. А. Воронин^{+×},
А. Б. Федотов^{+×}, Д. А. Сидоров-Бирюков^{+*×}

⁺Российский квантовый центр, Территория инновационного центра “Сколково”, 121205 Москва, Россия

^{*}Федеральное государственное бюджетное учреждение “Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”,
123182 Москва, Россия

[×]Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 21 ноября 2023 г.

После переработки 6 декабря 2023 г.

Принята к публикации 7 декабря 2023 г.

Экспериментально исследована генерация терагерцового излучения при взаимодействии мультитераваттных лазерных импульсов с поверхностью толстых твердотельных мишеней и металлических фольг. Зарегистрированы импульсы с энергией до 7 мкДж в спектральной области < 3 ТГц в направлении зеркального отражения от поверхности CaF_2 мишени. Зависимость энергии терагерцового импульса W_{THz} от интенсивности лазерного импульса I_L^α аппроксимируется степенной функцией $W_{\text{THz}} \sim I_L^\alpha$. При фиксированном значении длительности и переменной энергии лазерного импульса показатель степени лежит в интервале $\alpha \approx 1.5 \dots 2.8$, при фиксированном значении энергии и изменении длительности $\alpha \approx 1$.

DOI: 10.31857/S1234567824030030, EDN: svqvbb

1. Введение. Изучение взаимодействия мощного лазерного излучения с твердыми телами началось практически одновременно с появлением импульсных лазерных систем [1–3]. При облучении поверхности твердотельной мишени лазерными импульсами высокой интенсивности часть энергии лазерного импульса может передаваться материалу мишени и приводить к возбуждению электронных токов как на поверхности, так и в глубине мишени. Способы передачи энергии к электронной подсистеме зависят от интенсивности лазерного импульса, его длительности, угла падения на мишень, а также крутизны градиента плазменного слоя [4]. При использовании лазерных импульсов с субрелятивистскими и релятивистскими интенсивностями ($10^{17}–10^{19}$ Вт/см² для длины волны 800 нм) основными механизмами передачи энергии от лазерного поля к электронам являются: вакуумное ускорение электронов [5, 6], резонансное поглощение [7] и нагрев $J \times B$ [8]. Часть электронов покидает область взаимодействия, набрав при этом релятивистскую кинетическую энергию [6, 9–11], и может быть зарегистрирована. Другая часть горячих электронов ускоряется вглубь по-

верхности мишени, передавая энергию лазерного поля более глубоким электронам, что приводит к коллективному движению электронной плазмы и генерации вторичного электромагнитного излучения – жесткого рентгеновского излучения [12–14], высоких гармоник падающего лазерного поля [15–19], а также низкочастотного излучения в терагерцовом (ТГц) [20–23], субтерагерцовом и сверхвысокочастотном (СВЧ) диапазонах [24–26], распространяющегося в направлении зеркального отражения от передней поверхности мишени. При этом энергия горячих электронов оказывается достаточной для пролета сквозь всю толщину мишени, если в качестве мишени используются тонкие фольги, и образования нестационарной электронной плотности вблизи задней поверхности мишени, что также приводит к генерации мощного ТГц излучения на обратной стороне мишени [27–29]. ТГц импульсы с энергией до 50 мДж наблюдались в такой схеме генерации с задней поверхности при облучении тонких металлических фольг пикосекундными импульсами ультрарелятивистской интенсивности [30], что является на сегодня рекордными показателями достигнутой энергии ТГц импульсов.

¹⁾e-mail: mitrallex@inbox.ru

Источники ТГц излучения востребованы в задачах биомедицины [31], молекулярной спектроскопии [32], исследования сверхбыстрой динамики переноса заряда в полупроводниках [33], ускорения заряженных частиц [34], генерации высоких гармоник в рентгеновской области [35]. По мере того, как ТГц импульсы высокой пиковой интенсивности становятся более доступны, развивается целый класс исследований, в которых ТГц излучение используется как в качестве зондирующего, так и в качестве накачки [36, 37]. В спектроскопических приложениях типа “накачка-зондирование” существует повышенный интерес к созданию компактных и удобных источников ТГц излучения, которое было бы синхронизовано с исходными лазерными импульсами, а также пучками горячих электронов и излучением высоких гармоник [38–41].

В данной статье выполнено экспериментальное исследование эффективности генерации ТГц излучения от толстых твердотельных мишеней в направлении зеркального отражения. В настоящее время в литературе прослеживается четкое разделение по типам используемых мишеней для генерации ТГц излучения и высоких оптических гармоник. В подавляющем большинстве опубликованных работ для генерации ТГц излучения используются тонкие металлические фольги, а для генерации высоких гармоник – диэлектрические поверхности. В данной работе показано, что использование диэлектриков также позволяет получать мощные ТГц импульсы. Для сравнения достигаемых энергетических характеристик проведены эксперименты по генерации ТГц импульсов от передней и задней поверхности тонких металлических фольг разной толщины. Восстановлен спектр генерируемого излучения и измерена зависимость выхода ТГц излучения от начальной длительности лазерного импульса. Максимальная энергия ТГц импульса в используемой геометрии сбора составила около 7 мкДж в спектральной области < 3 ТГц при использовании пластинки из CaF_2 . Изучена зависимость энергии ТГц сигнала W_{THz} от интенсивности лазерного импульса I_L при изменении его длительности и энергии.

2. Экспериментальная установка и методика измерений. Эксперименты были выполнены в НИЦ КИ на лазерном тераваттном фемтосекундном комплексе, оперирующем на центральной длине волны 800 нм. На выходе лазерной системы имелись импульсы с энергией до 250 мДж длительностью 30–35 фс. Частота следования импульсов составляла 10 Гц. Пучок диаметром 60 мм заводился в экспериментальную вакуумную камеру (рис. 1а) и

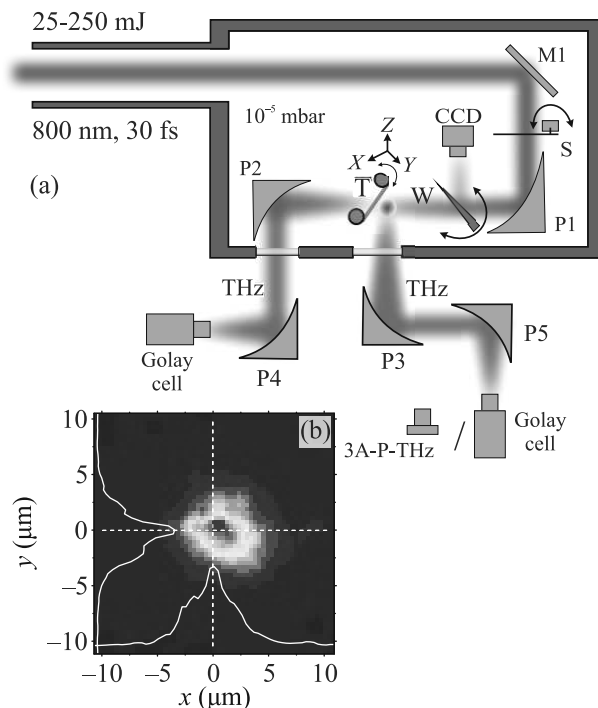


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Схема экспериментальной установки. M1 – поворотное зеркало; P1–P5 – параболические зеркала; W – клиновидная пластинка, установленная на флиппере, CCD – ПЗС камера для измерения фокального пятна; S – шаттер; T – мишень; 3A-P-THz – датчик измерения мощности ТГц излучения. (б) – Профиль интенсивности пучка накачки в фокусе при энергии импульса 50 мДж

фокусировался на мишень при помощи параболического зеркала с фокусным расстоянием 177 мм (фокусировка $f/3$). Для предотвращения загрязнения параболического зеркала вследствие лазерной абляции мишени между зеркалом и мишенью устанавливалась защитная лавсановая лента толщиной 150 мкм, которую можно было прокрутить на чистое место при загрязнении без вскрытия вакуумного объема. Профиль пучка в фокусе регистрировался ПЗС камерой с размером пикселя 1.1×1.1 мкм². Для этого использовалась ослабленная реплика пучка, отраженная от передней поверхности клиновидной пластинки, которая вводилась в лазерное излучение с помощью моторизированной подачи. При оптимальной настройке управляемого деформируемого зеркала, установленного перед оптическим компрессором и модулирующего фазу пучка, диаметр пучка в фокусе по уровню половины от максимального значения составлял 10 мкм (рис. 1б). В качестве мишеней использовались медные фольги толщиной 10, 20, 40 мкм, а также плоскопараллельные пластинки из

CaF₂, полистирола и алюминия толщиной 1 мм. Для обеспечения взаимодействия каждого лазерного импульса с чистой поверхностью мишени использовался лентопротяжный механизм для мишеней из фольги, а пластинки устанавливались на вращающейся подаче.

Наблюдение ТГц излучения производилось в направлении зеркального отражения для фольг и толстой мишени, а также продольно вдоль линии лазерного луча со стороны задней поверхности в случае фольги (см. рис. 1). ТГц излучение коллимировалось параболическим зеркалом и затем фокусировалось вторым параболическим зеркалом на ячейку Голея. Для вывода излучения из объема вакуумной камеры использовалось полипропиленовое окно толщиной 3 мм и ТРХ окно толщиной 5 мм. Угол сбора ТГц излучения составлял около 20 градусов (0.1 ср). Для измерения абсолютных значений энергии ТГц импульсов использовался калиброванный детектор Ophir 3A-P-THz. Оптимальное положение мишени в фокусе пучка находилось по наибольшему сигналу ТГц излучения.

3. Экспериментальные результаты. Были исследованы зависимости выхода ТГц излучения от энергии лазерных импульсов и их длительности. Плавное регулирование энергии лазерных импульсов осуществлялось при помощи полуволновой пластинки и тонкопленочного поляризатора. Диапазон интенсивностей $1.5 \cdot 10^{18} \text{ Вт/см}^2 - 2 \cdot 10^{19} \text{ Вт/см}^2$, использовавшихся в эксперименте, соответствует изменению приведенного векторного потенциала $a_0 = eE/(m\omega_L c) = [I(\text{Вт/см}^2)\lambda_L^2(\text{мкм}^2)/(1.37 \cdot 10^{18})(\text{Вт/см}^2 \cdot \text{мкм}^2)]^{1/2} \approx 0.8 \dots 3 \text{ Вт/см}^2$, где e , m – заряд и масса электрона, соответственно, c – скорость света в вакууме. Временной контраст импульса составлял 10^{-8} на наносекундном масштабе и 10^{-6} на пикосекундном масштабе (8 пс до основного пика).

На рисунке 2а, б приведены зависимости выхода ТГц излучения в направлении зеркального отражения для фольг разной толщины и толстых мишеней при падении p -поляризованного лазерного импульса под углом 45° к нормали к поверхности мишени. Видно, что среди фольг наибольший сигнал наблюдался от фольги наибольшей толщины и оказался схожим с сигналом от толстой мишени из алюминия. Наибольшая энергия ТГц излучения была зарегистрирована от толстой мишени из CaF₂ и составила около 7 мкДж в телесном угле 0.1 ср в направлении зеркального отражения от поверхности.

Одновременно с наблюдением ТГц сигнала регистрировался спектр в видимом диапазоне частот

кремниевым спектрометром Ocean Optics. Регистрация происходила вдоль нормали к поверхности мишени, излучение выводилось из вакуумной камеры через систему зеркал. На рисунке 2с представлена спектральная карта излучения видимого диапазона, генерируемого от передней поверхности медной фольги толщиной 40 мкм, для различных энергий лазерного импульса. Видно, что при интенсивностях $I_L \approx 2 \cdot 10^{18} \text{ Вт/см}^2$ наблюдается появление сигнала на частоте $\frac{3}{2}\omega_L$, соответствующей длине волны $\approx 530 \text{ нм}$. Известно, что процесс генерации излучения на частоте $\frac{3}{2}\omega_L$ связан с формированием плазмонов и может эффективно протекать только при величинах плазменного градиента $L \approx \lambda_L$ [42]. Измерение временного контраста лазерного импульса при помощи техники автокорреляции третьего порядка показало наличие предимпульса, отстоящего на 8 пс от основного пика, с 10^6 раз меньшей интенсивностью. При интенсивности основного пика на уровне 10^{18} Вт/см^2 интенсивность предимпульса оказывается на уровне 10^{12} Вт/см^2 , что достаточно для ионизации металлической мишени [43]. С учетом скорости разлета плазмы на уровне 100 нм/пс [44] получаем величину плазменного градиента $L \approx 800 \text{ нм} \approx \lambda_L$, что согласуется с появлением излучения на частоте $\frac{3}{2}\omega_L$. Слабый рассеянный сигнал на частоте $2\omega_L$ наблюдался только при максимальных энергиях лазерного импульса. Его сбор не был оптимизирован в данных экспериментах, так как он распространяется в направлении зеркального отражения от поверхности мишени [42].

Величина плазменного градиента является одним из важных параметров, влияющих на эффективность генерации ТГц излучения. В работе [40] показано, что оптимальный выход ТГц излучения при генерации от передней поверхности твердотельной мишени наблюдается в области $0.2 \dots 0.5 \lambda_L$. Таким образом, использование стеклянных мишеней, для ионизации которых требуются интенсивности $I_L > 10^{13} \text{ Вт/см}^2$ [45], позволяет избежать формирования размытого плазменного слоя с длиной $L \approx \lambda_L$ предимпульсом, отстоящим на 8 пс от основного пика, и наблюдать наибольший сигнал ТГц излучения.

Большой интерес представляет вопрос о характере зависимости сигнала вторичного излучения от интенсивности лазерного импульса. Характерным параметром масштабирования является величина $a_0^2 \sim I_L \lambda_L^2$. Аппроксимация полученных экспериментальных зависимостей выхода ТГц излучения как функции $(I_0 \lambda_0^2)^\alpha$ дает результат для $\alpha = 1.5 \dots 2.1$, что говорит о том, что при обсуждаемом диапазоне интенсивностей лазерного излучения наблюдается одновременный вклад механизмов вакуумного

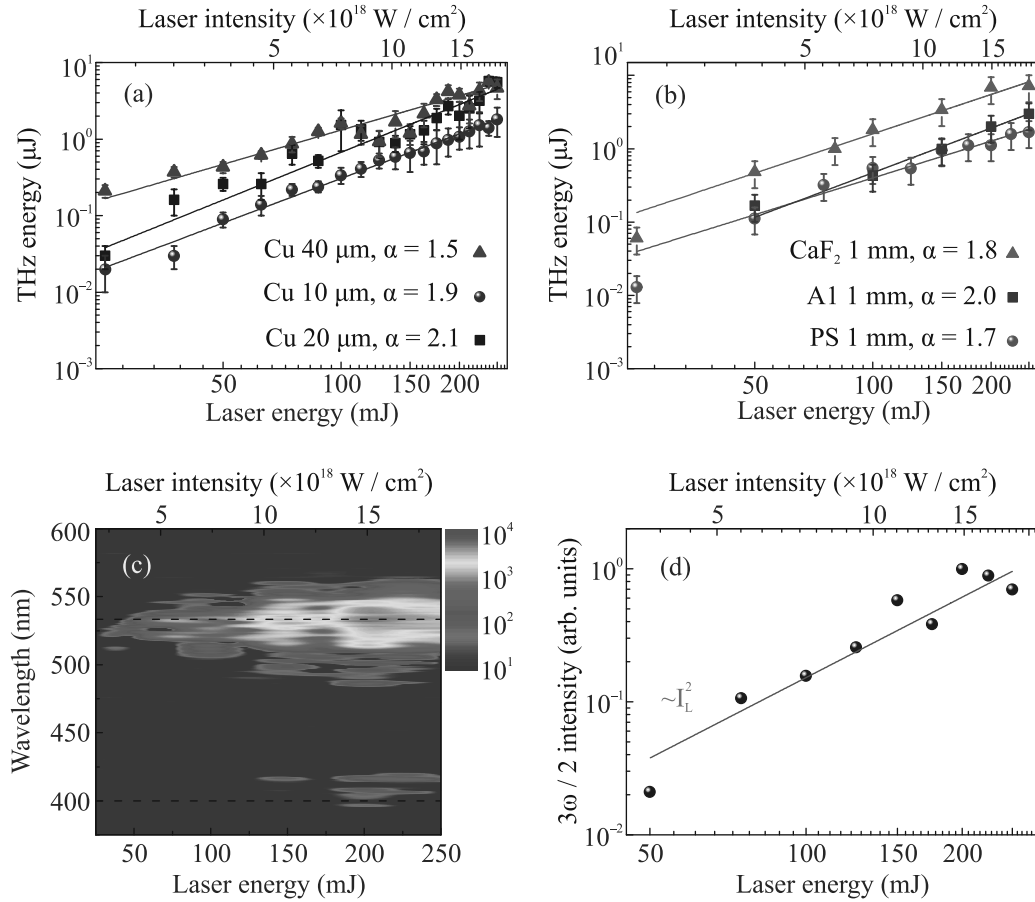


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость сигнала ТГц излучения от энергии лазерного импульса: (а) – для мишеней из тонких медных фольг толщиной 40 мкм (зеленые треугольники), 20 мкм (синие квадраты), 10 мкм (бордовые кружки) и (б) – для толстой твердотельной мишени толщиной 1 мм из материала CaF₂ (розовые треугольники), Al (синие квадраты), полистирола (красные кружки) для угла падения p -поляризованного излучения на мишень, равного 45°. Точками показаны экспериментальные данные, прямыми – аппроксимация экспериментальных данных степенной функцией $(I_0\lambda_0^2)^\alpha$, где (а) – $\alpha = 1.5$ (зеленые треугольники), 1.9 (бордовые кружки), 2.1 (синие квадраты) и (б) $\alpha = 1.8$ (розовые треугольники), 2.0 (синие квадраты), 1.7 (красные кружки). Каждая экспериментальная точка – результат усреднения по 10 лазерным импульсам. (с) – Зависимость спектральной интенсивности видимого излучения, наблюдаемого в направлении нормали к поверхности, от энергии лазерного импульса для фольги толщиной 40 мкм. Штриховыми прямыми обозначены расчетные позиции гармоник $\frac{3}{2}\omega_L$ и $2\omega_L$. (д) – Зависимость интенсивности сигнала на частоте $\frac{3}{2}\omega_L$ от энергии лазерного импульса

нагрева и нагрева $J \times B$ в процесс ускорения горячих электронов [4]. Характер зависимости $(I_0\lambda_0^2)^\alpha$ выхода ТГц излучения может являться инструментом для оценки энергии быстрых электронов, вырываемых с поверхности мишени. На основании полученных экспериментальных данных (рис. 2) и численного моделирования, выполненного в [41], можно оценить температуру T_e горячих электронов на уровне $T_e \approx 0.1 \dots 1$ МэВ для нашего диапазона интенсивностей. Схожий характер поведения с $\alpha \approx 2$ демонстрирует и зависимость интенсивности сигнала $\frac{3}{2}\omega_L$ от интенсивности лазерного поля (рис. 2д).

Горячие электроны, генерируемые на передней поверхности и ускоряемые внутрь объема мишени, могут пролетать сквозь мишень и являться источником ТГц сигнала за счет генерации когерентного переходного излучения (КПИ) при пересечении задней границы раздела материала мишени и вакуума [46]. При этом электронное облако вблизи задней поверхности и нескомпенсированный положительный заряд внутри мишени можно рассматривать как короткоживущий диполь, который также дает вклад в генерацию вторичного электромагнитного излучения [27, 29]. В нашем эксперименте

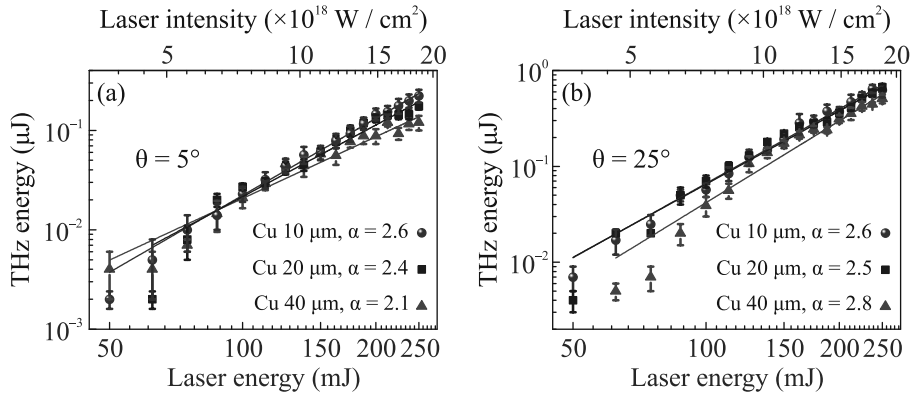


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость энергии ТГц излучения, детектируемого позади мишени из медной фольги толщиной 40 мкм (зеленые треугольники), 20 мкм (синие квадраты), 10 мкм (бордовые кружки) при угле падения лазерного излучения на мишень 5° (а) и 25° (б). Точками показаны экспериментальные данные, прямыми – аппроксимация экспериментальных данных степенной функцией $(I_0 \lambda_0^2)^\alpha$, где (а) – $\alpha = 2.1$ (зеленые треугольники), 2.6 (бордовые кружки), 2.4 (синие квадраты) и (б) – $\alpha = 2.8$ (зеленые треугольники), 2.6 (бордовые кружки), 2.5 (синие квадраты). Каждая экспериментальная точка – результат усреднения по 10 лазерным импульсам

сигнал ТГц излучения от задней поверхности медной фольги регистрировался в направлении, совпадающем с направлением распространения $\mathbf{k}$ лазерного поля. В работе [29] показано, что угловое распределение КПИ имеет максимум в направлении $\mathbf{k}$, а дипольное излучение направлено преимущественно вдоль поверхности мишени. Из-за технических особенностей лентопротяжного механизма имелось ограничение на углы установки мишени от 0° (нормальное падение) до 25° при регистрации вторичного излучения позади мишени вдоль направления $\mathbf{k}$. Излучение собиралось параболическим зеркалом с фокусным расстоянием 15 см и апертурой 5 см, как и в случае с наблюдением вдоль направления зеркального отражения от передней поверхности. Таким образом, геометрия сбора обеспечивает преобладающий вклад КПИ в регистрируемый сигнал. При угле падения лазерного излучения на мишень, равном $\theta = 25^\circ$, наблюдался примерно в 3 раза более интенсивный сигнал ТГц излучения, чем при угле падения $\theta = 5^\circ$ (рис. 3). В нашем диапазоне интенсивностей и толщин мишени зависимость выхода ТГц излучения от толщины фольги практически не наблюдалась, что совпадает с результатами работы [27]. Уменьшение угла падения лазерного излучения на мишень до $\theta = 5^\circ$ (почти нормальное падение) делает неэффективными процессы резонансного поглощения и вакуумного нагрева для передачи энергии от лазерного импульса к электронной подсистеме мишени. Малый сигнал ТГц излучения, наблюдаемый при $\theta = 5^\circ$, говорит также о низкой эффективности $J \times B$ нагрева при интенсивностях $I_L \leq 10^{19}$ Вт/см².

Электроны рециркуляции являются источником вторичного излучения позади тонкопленочных мишеней. Моделирование с помощью пакета Casino рассеяния горячих электронов с начальной энергией 1 МэВ при пробеге сквозь объем материала толщиной 2 мм показывает, что менее 50 процентов исходного количества электронов обладают энергией от 0.2 до 0.4 МэВ и не могут вносить существенный вклад в генерацию ТГц излучения [41].

Характер зависимости выхода ТГц излучения от интенсивности лазерного импульса существенно меняется при изменении интенсивности за счет варьирования начальной длительности импульса, определяемой расстоянием между решетками компрессора (рис. 4а). Обнаружено, что в диапазоне интенсивностей $0.7 \cdot 10^{19} - 2 \cdot 10^{19}$ Вт/см² при регистрации в направлении зеркального отражения и $0.1 \cdot 10^{19} - 2 \cdot 10^{19}$ Вт/см² для наблюдения от задней поверхности энергия ТГц импульса W_{THz} практически не зависит от интенсивности при фиксированной энергии лазерных импульсов и спадает при дальнейшем уменьшении интенсивности по закону $W_{THz} \sim I_L^\alpha$ с $\alpha \approx 1$. Такое медленное спадание ТГц сигнала может объясняться генерацией большего количества горячих электронов при увеличении длительности импульса из-за chirpирования [47], что компенсирует уменьшение пиковой интенсивности лазерного импульса. Обоснование более острой зависимости от длительности импульса для ТГц сигнала от передней поверхности мишени требует дополнительных исследований.

Спектр генерируемого ТГц излучения (рис. 4б) восстанавливался по методу, подробно изложено-

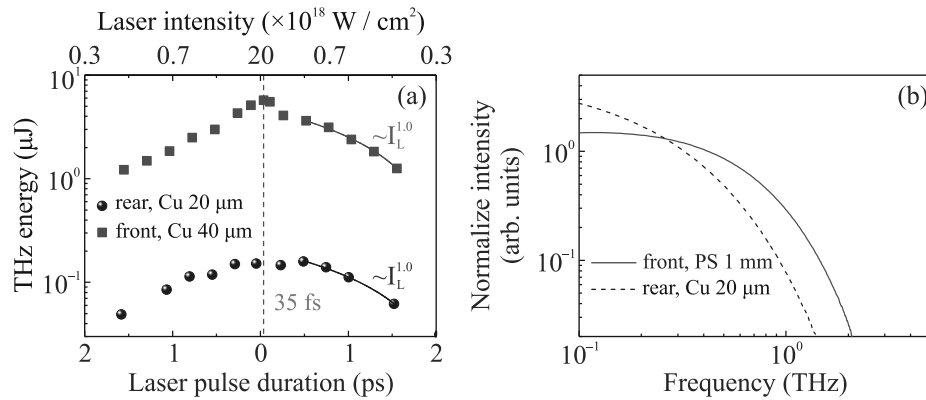


Рис. 4. (Цветной онлайн) (a) – Зависимость энергии ТГц импульсов от начальной длительности (чирпа) лазерного импульса для медной фольги толщиной 40 мкм при отражении от передней поверхности мишени (квадраты) и для фольги толщиной 20 мкм при регистрации сигнала на задней стороне мишени (кружки, угол падения 25°) при энергии импульсов 250 мДж. Использован логарифмический масштаб только по оси ординат. Сплошные кривые – аппроксимация экспериментальных данных степенной функцией. Вертикальной штриховой прямой указана минимальная длительность лазерных импульсов 35 фс. (b) – Спектр ТГц излучения, генерируемого от передней поверхности толстой мишени из полистирола (сплошная зеленая кривая) и от медной фольги толщиной 20 мкм позади мишени (синяя штриховая кривая, угол падения 25°)

му в работе [48], на основании измерения энергии ТГц сигнала, проходящего через набор различных фильтров, заранее калиброванных в ТГц диапазоне частот. Строилась зависимость, которая наилучшим образом минимизировала невязку реального сигнала после фильтра и рассчитанного численно. Видно, что спектр ТГц излучения лежит в области < 3 ТГц (рис. 4b) для сигнала от передней поверхности. Методом прямой регистрации сигнала электромагнитного излучения коаксиально-волноводным переходом, подключенным к осциллографу с полосой пропускания до 23 ГГц, зарегистрирована низкочастотная составляющая сигнала электромагнитного излучения в спектральной области вплоть до 5 ГГц.

4. Заключение. Таким образом, в данной работе экспериментально исследована генерация импульсов ТГц излучения в направлении зеркального отражения при облучении поверхности толстых диэлектрических мишеней лазерными импульсами субрелятивистской и релятивистской интенсивности под углом падения 45° . Проведено сравнение с мишенями из тонких металлических фольг различной толщины. Зависимость энергии ТГц импульса W_{THz} от интенсивности аппроксимируется степенной функцией $W_{\text{THz}} \sim I_L^\alpha$. При фиксированном значении длительности и переменной энергии лазерного импульса показатель степени лежит в интервале $\alpha \approx 1.5 \dots 2.8$, при фиксированном значении энергии и изменении длительности $\alpha \approx 1$. Выполнено сравнение эффективности генерации ТГц излучения при использовании медных фольг разной тол-

щины и толстых мишеней. Показано, что наибольшая энергия терагерцовых импульсов в схеме “на отражение” достигает 7 мДж в спектральной области < 3 ТГц при лазерных интенсивностях на уровне $2 \cdot 10^{19}$ Вт/см 2 и наблюдается при использовании оптических стекол в качестве мишеней. Использование оптических стекол в качестве мишеней упрощает методику проведения эксперимента: облегчает подготовку поверхности; позволяет избежать использования лентопротяжного механизма, что повышает точность позиционирования мишени в фокусе пучка; уменьшает загрязнение оптических элементов в камере взаимодействия из-за распыления материала мишени. Такой источник ТГц излучения может быть удобен в спектроскопических приложениях типа “накачка-зондирование”, в которых необходима временная синхронизация ТГц импульсов с исходными лазерными импульсами, а также пучками горячих электронов и излучением высоких гармоник.

Авторы выражают глубокую благодарность профессору А. М. Жёлтикову за всестороннюю поддержку. Н. В. Якушкин является стипендиатом Фонда развития теоретической физики и математики “БАЗИС”.

Финансирование работы. Данная работа финансировалась за счет средств гранта Российского научного фонда 22-22-00955.

Конфликт интересов. Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

1. P.D. Maker, R.W. Terhune, and C.M. Savage, Proc. 3rd Int. Quantum Electr. Conf. Paris (1963); Dunod (Paris) (1964), v. II, p. 1559.
2. N.G. Basov, V.A. Boiko, V.A. Dement'ev, O.N. Krokhin, and G.V. Sklizkov, JETP **24**, 659 (1967).
3. J.F. Ready, *Effects of High Power Laser Radiation*, Academic Press, N.Y. (1971).
4. P. Gibbon, *Short pulse laser interactions with matter: an Introduction*, Imperial College Press, London (2005).
5. F. Brunel, Phys. Rev. Lett. **59**, 52 (1987).
6. P. Gibbon, Phys. Rev. Lett. **73**, 664 (1994).
7. D.W. Forslund, J.M. Kindel, K. Lee, E.L. Lindman, and R.L. Morse, Phys. Rev. A **11**, 679 (1975).
8. W.L. Kruer and K. Estabrook, Phys. Fluids **28**, 430 (1985).
9. D.W. Forslund, J.M. Kindel, and K. Lee, Phys. Rev. Lett. **39**, 284 (1977).
10. S.C. Wilks, W.L. Kruer, M. Tabak, and A.B. Langdon, Phys. Rev. Lett. **69**, 1383 (1992).
11. T. Kluge, T. Cowan, A. Debus, U. Schramm, K. Zeil, and M. Bussmann, Phys. Rev. Lett. **107**, 205003 (2011).
12. M. Schnürer, M.P. Kalashnikov, P.V. Nickles, Th. Schlegel, W. Sandner, N. Demchenko, R. Nolte, and P. Ambrosi, Phys. Plasmas **2**, 3106 (1995).
13. H. Schwöerer, P. Gibbon, S. Düsterer, R. Behrens, C. Ziener, C. Reich, and R. Sauerbrey, Phys. Rev. Lett. **86**, 2317 (2001).
14. C. Zülck, B. Hou, F. Dollar, A. Maksimchuk, J. Nees, A.G.R. Thomas, Z. Zhao, and K. Krushelnick, New J. Phys. **15**, 123038 (2013).
15. 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).
16. F. Quéré, C. Thauray, P. Monot, S. Dobosz, P. Martin, J.-P. Geindre, and P. Audebert, Phys. Rev. Lett. **96**, 125004 (2006).
17. A. Tarasevitch, K. Lobov, C. Wünsche, and D. von der Linde, Phys. Rev. Lett. **98**, 103902 (2007).
18. O. Jahn, V.E. Leshchenko, P. Tzallas, A. Kessel, M. Krüger, A. Münzer, S.A. Trushin, G.D. Tsakiris, S. Kahaly, D. Kormin, L. Veisz, V. Pervak, F. Krausz, Z. Major, and S. Karsch, Optica **6**, 280 (2019).
19. A.V. Mitrofanov, D.A. Sidorov-Biryukov, M.V. Rozhko, S.V. Ryabchuk, A.A. Voronin, and A.M. Zheltikov, Opt. Lett. **43**, 5571 (2018).
20. Y.T. Li, C. Li, M.L. Zhou et al. (Collaboration), Appl. Phys. Lett. **100**, 254101 (2012).
21. G.-Q. Liao, Y.-T. Li, C. Li, S. Mondal, H.A. Hafez, M.A. Fareed, T. Ozaki, W.-M. Wang, Z.-M. Sheng, and J. Zhang, Phys. Plasmas **23**, 013104 (2016).
22. G.-Q. Liao, Y.-T. Li, C. Li et al. (Collaboration), Phys. Rev. Lett. **114**, 255001 (2015).
23. М.М. Назаров, П.А. Щеглов, А.А. Гарматина, М.В. Чашин, З.Ч. Маргушев, К.А. Бжеумихов, А.В. Митрофанов, Д.А. Сидоров-Бирюков, А.М. Жёлтиков, В.М. Гордиенко, В.Я. Панченко, Квантовая электроника **52**, 811 (2022).
24. A. Poyé, S. Hulin, M. Bailly-Grandvaux, J.-L. Dubois, J. Ribolzi, D. Raffestin, M. Bardon, F. Lubrano-Lavaderci, E. D'Humières, J. J. Santos, Ph. Nicolaï, and V. Tikhonchuk, Phys. Rev. E **91**, 043106 (2015).
25. P. Rączka, J. Cikhardt, M. Pfeifer, J. Krása, M. Krupka, T. Burian, M. Krūs, T. Pisarczyk, J. Dostál, and R. Dudzák, Plasma Phys. Contr. Fusion **63**, 085015 (2021).
26. F. Consoli, V.T. Tikhonchuk, M. Bardon et al. (Collaboration), High Power Laser Sci. Eng. **8**, e22 (2020).
27. Z. Jin, H.B. Zhuo, T. Nakazawa, J.H. Shin, S. Wakamatsu, N. Yugami, T. Hosokai, D.B. Zou, M.Y. Yu, Z.M. Sheng, and R. Kodama, Phys. Rev. E **94**, 033206 (2016).
28. S. Herzer, A. Woldegeorgis, J. Polz, A. Reinhard, M. Almassarani, B. Beleites, F. Ronneberger, R. Grosse, G.G. Paulus, U. Hübner, New J. Phys. **20**, 063019 (2018).
29. A. Woldegeorgis, S. Herzer, M. Almassarani, S. Marathapalli, and A. Gopal, Phys. Rev. E **100**, 053204 (2019).
30. G. Liao, Y. Li, H. Liu et al. (Collaboration), Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A. **116**, 3994 (2019).
31. A. D'Arco, M. Di Fabrizio, V. Dolci, M. Petrarca, and S. Lupi, Condens. Matter **5**, 25 (2020).
32. X. Fu, Y. Liu, Q. Chen, Y. Fu, and T.J. Cui, Front. Phys. **10**, 869537 (2022).
33. G. Vampa, T.J. Hammond, M. Taucer et al. (Collaboration), Nat. Photonics **12**, 465 (2018).
34. E.A. Nanni, W.R. Huang, K.H. Hong, K. Ravi, A. Fallahi, G. Moriena, R.J. Dwayne Miller, and F.X. Kärtner, Nat. Commun. **6**, 8486 (2015).
35. D.B. Milošević, Phys. Rev. A **105**, 053111 (2022).
36. H.A. Hafez, X. Chai, A. Ibrahim, S. Mondal, D. Férachou, X. Ropagnol, and T. Ozaki, J. Opt. **18**, 093004 (2016).
37. P. Salén, M. Basini, S. Bonetti, J. Hebling, M. Krasilnikov, A.Y. Nikitin, G. Shamuilov, Z. Tibai, V. Zhaunerchyk, and V. Goryashko, Phys. Rep. **836**, 1 (2019).
38. P.B. Glek and A.M. Zheltikov, J. Appl. Phys. **131**, 103104 (2022).
39. P.B. Glek, A.A. Voronin, V.Ya. Panchenko, and A.M. Zheltikov, Laser Phys. Lett. **17**, 055401 (2020).
40. X.-B. Wang, G.-Y. Hu, B.-F. Shen, H.-B. Tang, Z.-M. Zhang, and Yu.-Q. Gu, AIP Adv. **12**, 055002 (2022).
41. P.B. Glek and A.M. Zheltikov, Sci. Rep. **12**, 7660 (2022).

42. A. Tarasevitch, C. Dietrich, C. Blome, K. Sokolowski-Tinten, and D. von der Linde, *Phys. Rev. E* **68**, 026410 (2003).
43. M. Hashida, A.F. Semerok, O. Gobert, G. Petite, Y. Izawa, and J.F. Wagner, *Appl. Surf. Sci.* **197**, 862 (2002).
44. K. Adumi, K.A. Tanaka, T. Matsuoka, T. Kurahashi, T. Yabuuchi, Y. Kitagawa, R. Kodama, K. Sawai, K. Suzuki, K. Okabe, T. Sera, T. Norimatsu, and Y. Izawa, *Phys. Plasmas* **11**, 3721 (2004).
45. M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, C. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, and F. Krausz, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4076 (1998).
46. C. Bellei, J.R. Davies, P.K. Chauhan, and Z. Najmudin, *Plasma Phys. Control. Fusion* **54**, 035011 (2012).
47. E. Yazdani, R. Sadighi-Bonabi, H. Afarideh, Z. Riazi, and H. Hora, *J. Appl. Phys.* **116**, 103302 (2014).
48. M.M. Nazarov, P.A. Shcheglov, V.V. Teplyakov, M.V. Chashchin, A.V. Mitrofanov, D.A. Sidorov-Biryukov, V.Y. Panchenko, and A.M. Zheltikov, *Opt. Lett.* **46**, 5866 (2021).

Однофотонное фемтосекундное лазерное возбуждение фотолюминесценции N3- и N4-центров природного алмаза для измерения их концентраций

С. И. Кудряшов⁺¹⁾, П. А. Данилов⁺, В. Г. Винс⁺, Д. А. Помазкин⁺, П. П. Пахольчук⁺, М. Л. Скориков⁺,
И. В. Сметанин⁺, Ф. В. Дуонг^{*2)}, Ф. Х. Минг^{*2)}

⁺Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 199991 Москва, Россия

^{*}Institute of Physics, Vietnamese academy of science and technology, Hanoi, Vietnam

Поступила в редакцию 29 ноября 2023 г.

После переработки 8 декабря 2023 г.

Принята к публикации 14 декабря 2023 г.

Спектры фотолюминесценции доминирующих N3-, N4-центров в природном алмазе, предварительно охарактеризованном методами оптической и инфракрасной спектrophотометрии, возбуждались фемтосекундными лазерными импульсами с длиной волны накачки 470 нм и варьируемой интенсивностью. Насыщение интенсивности фотолюминесценции N3-, N4-центров, нормированной на интенсивность лазерного излучения, связывалось с насыщением возбуждаемого резонансного перехода, что позволило впервые оценить величины сечения поглощения N3-, N4-центров, сопоставленные с известными литературными значениями и значениями, измеренными по кинетике фотолюминесценции, а также общую концентрацию N3-, N4-центров. С учетом известного коэффициента поглощения образца на длине волны 470 нм и ранее установленного соотношения вкладов N3-, N4-центров были впервые оценены их индивидуальные концентрации.

DOI: 10.31857/S1234567824030042, EDN: suwnpg

1. Алмазы выступают в качестве привлекательно-го оптического материала для различных оптоэлектронных устройств – светодиодов, лазеров, фотодиодов и других – в силу целого ряда важных технических характеристик [1–3]: 1) теплопроводность алмаза выше, чем у меди, которая обычно выступает в качестве теплоотводящего материала в лазерных системах (например, дисковых); 2) широкополосная (ультрафиолетовый(УФ)-средний инфракрасный (ИК) диапазон) высокая прозрачность и оптическая стойкость – особенно у бесцветных алмазов; 3) возможность управляемого легирования синтетических алмазов, полученных синтезом при высоких давлениях и температуре, различными химическими примесями (обычно – азотом) в измеряемых концентрациях 1–10³ ppm (10¹⁷–10²⁰ см^{–3}); 4) возможность синтеза или подбор алмазов преимущественно с одним типом примесных центров окраски – так, чтобы центры другого типа не поглощали в области эмиссии основного центра; 5) возможность лазерной генерации в синем (N3-центр), зеленом (N3-центр) и красном (NV-центр) диапазонах цветовой RGB

(red/green/blue) палитры; 6) прямозонные внутри-центровые переходы, высокая квантовая эффективность фотовозбуждения и эмиссии (квантовый выход ~ 0.1–1, сечения порядка 10^{–16} см²), поскольку из-за жесткой решетки алмаза все центры испытывают однородное уширение, широкий диапазон перестройки генерации – обычно до 200 нм в спектрах фотолюминесценции (ФЛ). Тем не менее, фотофизические параметры различных активных сред из природных и синтетических алмазов – например, с центрами N3 (положение бесфононной линии, БФЛ ≈ 415 нм) и N3 (БФЛ ≈ 503 нм) [2] – сечения поглощения и эмиссии, времена безызлучательной и радиационной релаксации, инверсная населенность верхнего уровня лазерного перехода и соответствующий коэффициент усиления – во многих работах [3–8] оценивались, основываясь на данных единичных не прямых измерений скорости затухания ФЛ почти сорокалетней давности.

В настоящей работе, используя специально отобранный образец природного алмаза с преобладающими N3-, N4-центрами и источник практически непрерывной по спектру накачки ФЛ на базе параметрического генератора фемтосекундных импульсов (600–3000 нм) и нелинейного кристалла-

¹⁾ e-mail: kudryashovsi@lebedev.ru

²⁾ P. V. Duong, P. H. Minh.

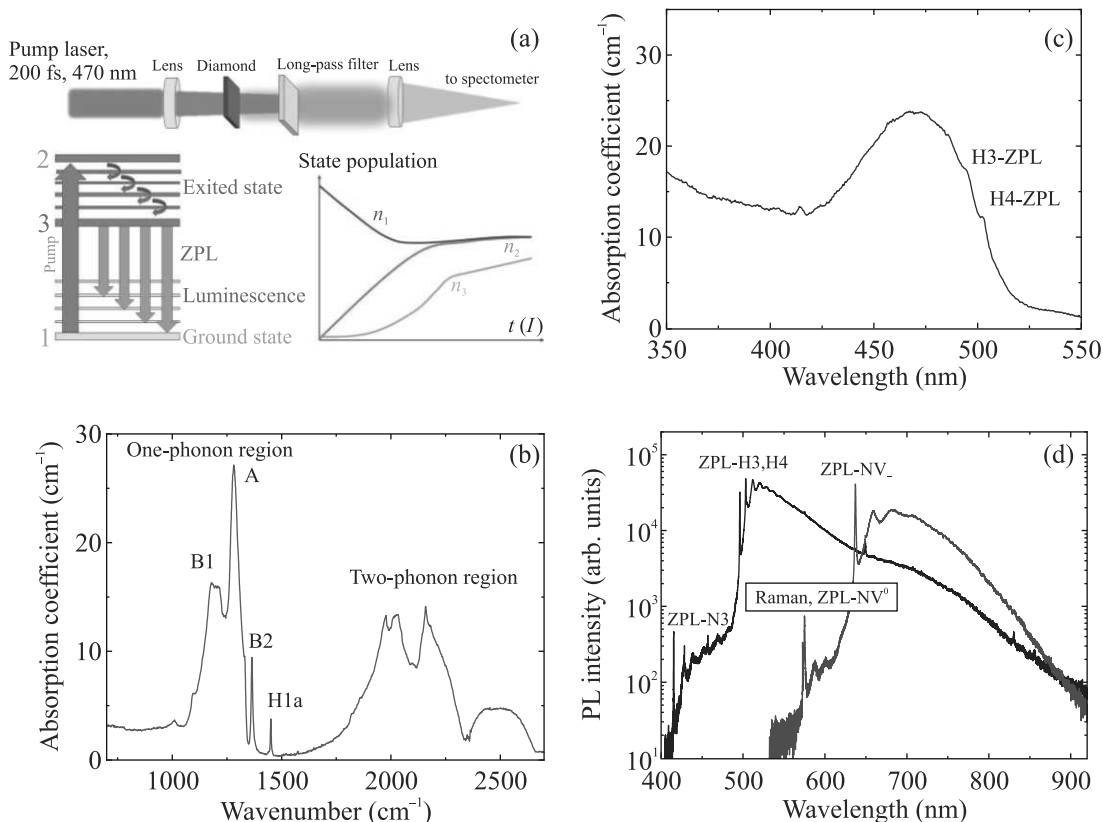


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Экспериментальная схема для спектроскопии ФЛ алмаза с фемтосекундным лазерным возбуждением, схемы энергетических уровней 1–3 и их кинетики. (б) – ИК-спектры поглощения первого и второго порядка для алмазной пластинки, с отнесением полос ИК-активных примесных А-, В1-, В2- и Н1а-центров (по данным [2]). (с) – Спектр поглощения НЗ-, Н4-центров в образце в диапазоне 350–550 нм с обозначенными БФЛ (по данным [2]). (д) – ФЛ/КР-спектры образца при температуре -70°C при возбуждении непрерывными лазерами с длиной волны 405 и 532 нм, с обозначенными КР-линиями и БФЛ для N3-, НЗ-, Н4-, NV⁰- и NV⁻-центров (по данным [2])

удвоителя частоты, проведены измерения сечения поглощения этих центров в кристалле по насыщению выхода фотолюминесценции в зависимости от интенсивности накачки на длине волны 470 нм и впервые оценена их концентрация.

2. В качестве образца для лазерных фотолюминесцентных исследований (рис. 1а) использовалась пластинка природного алмаза IaAB-типа (размер – $5 \times 3 \times 0.9$ мм) с содержанием ИК-активных А-центров (центры с двумя соседними атомами азота в положениях замещения, 2N) $[A] = 374 \text{ ppm}$ ($7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) и В1-центров (центры с четырьмя соседними атомами азота в положениях замещения, окружающими вакансию, 4NV) $[B1] = 243 \text{ ppm}$ ($4.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$), а также небольших концентраций В2-центров и Н1а-центров, установленных методом колебательной ИК-спектроскопии пропускания (рис. 1б) с использованием ИК фурье-спектрометра ФТ-805 (Симекс, РФ). Вместе с тем, в оптическом диапазоне в электронных спектрах поглощения и

ФЛ, снятых при помощи спектрофотометра СФ-2000 (ОКБ Спектр, РФ) и 3Д-сканирующего конфокального микроскопа-спектрометра ФЛ и комбинационного рассеяния (КР) Confotec MR520 (SOL Instruments, РБ), в областях 400–500 нм (рис. 1с) и 500–550/650–750 нм (рис. 1д), соответственно, проявляются преимущественно НЗ-, Н4-центры (пик БФЛ на ≈ 503 нм для НЗ и 496 нм для Н4 [2]), причем по ФЛ-сигналу содержание НЗ-центров многократно – более чем а порядок – превышает содержание Н4-центров.

Спектральные исследования ФЛ НЗ-, Н4-центров проводились с использованием оптической схемы (рис. 1а) на базе Yb-лазера ТЕТА-20 (Фемтоника, РФ), накачивающего фемтосекундными импульсами (250 фс, 1030 нм) параметрический генератор ПА-РУС (Авеста Проект, РФ) в диапазоне 600–2800 нм, и нелинейного кристалла-удвоителя частоты ВВО толщиной 0.5 мм. Лазерное излучение на длине волны 470 нм (в области максимума линейного погло-

нения НЗ,Н4-центров, рис. 1с) слабо фокусировалось микрообъективом ($NA=0.1$, ЛОМО, РФ) в пятно $1/e$ -радиусом ≈ 0.25 мм в кристалле алмаза и далее блокировалось длинноволновым полосовым фильтром (LP500, Фотооптик, РФ) и линейным поляризатором (FLP25-VIS-M, LBTEK, КНР), ось которого располагалась перпендикулярно направлению поляризации излучения накачки. Пршедшее ФЛ/КР излучение фокусировалось флюоритовой линзой (CaF_2 , фокусное расстояние – 75 мм) на щель спектрометра ASP-150F (Авеста Проект, РФ, диапазон – 190–1100 нм, разрешение – 0.5 нм). Накопление спектров (рис. 2) происходило в течение 1 с при

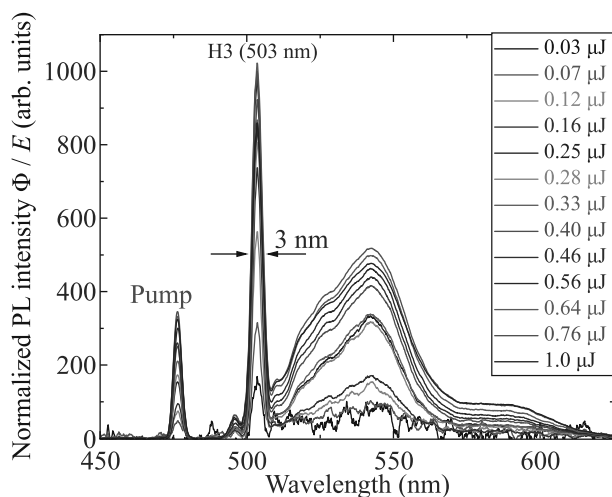


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры фотолюминесценции НЗ-, Н4-центров, нормированные на энергию импульсов накачки с длиной волны 470 нм (даны в рамке). Показана полуширина пика БФЛ-НЗ (503 нм), пик БФЛ Н4-центра (496 нм) предполагается находящимся в фоновом сигнале из-за малой интенсивности (ср. рис. 1)

частоте следования ультракоротких лазерных импульсов (УКИ) 10 кГц, при этом образец после съемки каждого спектра смещался в новое положение на 50 мкм с помощью моторизованной платформы для микро-позиционирования. Энергия излучения варьировалась с помощью нейтрального фильтра в диапазоне $E = 0.03$ – 2.5 мкДж (пиковая плотность энергии и интенсивность в образце – 10 – 1000 мкДж/см² и 0.1 – 7 ГВт/см², экспозиция – $(2.5$ – $250) \times 10^{13}$ фотон/см²).

Дополнительно, кинетика фотолюминесценции алмаза была исследована со спектральным разрешением, используя спектрометр Acton SpectraPro 2500i, в фокальной плоскости которого размещали электронно-оптическую камеру C5680 (Hamamatsu) с фотокатодом S-20 (диапазон – 200–900 нм). ФЛ

возбуждалась импульсами второй гармоники (центральная длина волны – 400 нм) титан-сапфирового лазера Mira 900D длительностью 3 пс, следующими с выбранной частотой повторения 180 кГц при средней мощности 10 мкВт, в конфокальной схеме с помощью 5х-микрообъектива ($NA=0.12$) для возбуждения и сбора эмиссии. Спектральное и временное разрешение составляло, соответственно, ≈ 1 нм и 30 пс.

3. Полученные спектры динамической ФЛ Ф были нормированы на энергию импульсов E (рис. 2) для удобства представления всего массива спектров и сравнения со спектром стационарной ФЛ для накачки 405 нм на рис. 1d. Спектры демонстрируют сильную БФЛ НЗ и ее слабые низкочастотные антистоксовские реплики (< 500 нм), а также сильные высоко- и низкочастотные стоксовские реплики (> 500 нм). При этом, на первый взгляд, нормированная интенсивность Φ/E для максимума ФЛ вблизи 540 нм отражает относительную эффективность ФЛ-возбуждения без учета энергии накачки – быстро растет до 0.25 мкДж и затем значительно медленнее с ростом E (рис. 2).

Для максимальной нормированной интенсивности ФЛ в зависимости от энергии E и интенсивности I накачки наблюдается насыщение при $E_S \approx 0.16$ мкДж (рис. 3). Данный характер зависимости

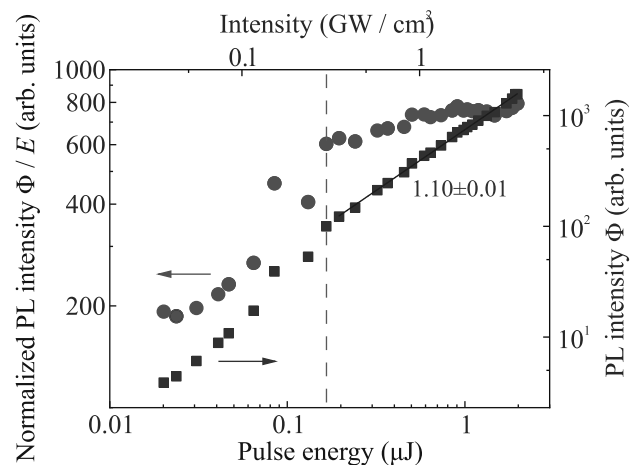


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости полной Φ (правая ось) и нормированной Φ/E (левая ось) ФЛ-интенсивности на длине волны 540 нм от энергии (нижняя ось) и интенсивности (верхняя ось) импульса накачки с линейной аппроксимацией в двойных логарифмических координатах

можно интерпретировать в рамках трехуровневой схемы ФЛ-возбуждения в НЗ-, Н4-центрах (рис. 1а), где рассмотренные уровни 1–3 представляют, соот-

ветственно, 1) невырожденное основное электронное состояние (уровень 1, $\varepsilon_1 = 0$) с невозбужденными ненулевыми колебаниями, 2) невырожденное резонансное возбужденное электронное состояние с энергией БФЛ, увеличенной на энергию фононных повторений, связанных с НЗ-, Н4-центрами – оптических фононов разной симметрии и локальные моды вакансии [2] (2, $\varepsilon_2 \geq \varepsilon_{ZPL}$ – см. спектр поглощения на рис. 1с), и 3) спектр нижележащих нерезонансных колебательно-возбужденных состояний того же терма (3, $\varepsilon_{ZPL}\varepsilon_3 < \varepsilon_2$), куда происходит безызлучательная релаксация с уровня (2) из-за фонон-фононного ангармонизма и переноса колебательной энергии вне центров и откуда происходят стоксовские переходы в колебательно-возбужденные состояния нижнего терма со скоростью спонтанного излучения γ_{31} (рис. 1а). Соответствующую систему кинетических уравнений можно приближенно записать в виде

$$\begin{aligned}\frac{dn_1}{dt} &\approx -\kappa_{12}(I)n_1 + (\gamma_{21} + \kappa_{21}(I))n_2 + \gamma_{31}n_3, \\ \frac{dn_2}{dt} &\approx -\kappa_{12}(I)n_1 - (\gamma_{21} + \kappa_{21}(I) + \gamma_{23})n_2, \\ \frac{dn_3}{dt} &\approx \gamma_{23}n_2 - \gamma_{31}n_3,\end{aligned}\quad (1)$$

где $n_1 + n_2 + n_3 = n_0$, для переходов $1 \rightarrow 2$ и $2 \rightarrow 1$ рассматриваются только довольно быстрые радиационные процессы вынужденного поглощения и излучения (связанные с коэффициентом Эйнштейна константы скорости $\kappa_{12}(I) = \kappa_{21}(I)$ для одинакового вырождения уровней 1, 2), а также значительно более медленные процессы спонтанного испускания (типичная константа скорости $\gamma_{21}, \gamma_{31} \sim 10^9 \text{ с}^{-1}$). При большой отстройке длины волны накачки от соответствующих БФЛ (470 нм/2.66 эВ против 496 нм/2.52 эВ и 503 нм/2.48 эВ) с учетом ширины линии накачки ($\sim 3\text{--}4$ нм) при комнатной температуре колебательно-возбужденными состояниями того же возбужденного электронного терма будут как оптические фононы с энергией около 0.16 эВ, так и фононы меньших энергий [2]. В этих условиях, быстрая безызлучательная релаксация с уровня 2 на нижележащие нерезонансные колебательно-возбужденные состояния того же терма (условный уровень 3) имеет прямую аналогию с симметричным распадом оптических фононов в пару акустических с половинной энергией и противоположно направленными волновыми векторами (механизм Клеменса [9]). Соответственно, можно оценить скорость безызлучательной релаксации снизу скоростью спонтанного распада оптического фонона алмаза при

комнатной температуре (время распада порядка 1–10 пс); также можно оценить такую скорость скоростью межмодовой колебательной (V-V) релаксации $\gamma_{23} \sim 10^{13} \text{ с}^{-1} \gg \gamma_{21}$ [10], поскольку центры окраски можно рассматривать как квазимолекулярные образования, встроенные в алмазную решетку. При этом, мы пренебрегаем вынужденными радиационными переходами с уровня 2 в более высокие по энергии электронные состояния (например, в зону проводимости [5]) и спонтанными радиационными переходами с уровня 3 на уровень 1.

При данных условиях, систему (1) при умеренных интенсивностях и $n_1 \approx n_0 \gg n_2$ можно представить в виде основных членов для модельного прямоугольного импульса ($I = \text{const}$)

$$\begin{aligned}\frac{dn_1}{dt} &\approx -\kappa_{12}(I)n_0, \\ \frac{dn_2}{dt} &\approx \kappa_{12}(I)n_0, \\ \frac{dn_3}{dt} &\approx \gamma_{23}n_2,\end{aligned}\quad (2)$$

где для $\kappa_{12}(I) = \kappa_{21}(I) \propto In_1$ линейно уменьшается в течение импульса как $n_0 - Cit$, n_2 – линейно растет ($\propto It$), а n_3 в итоге растет квадратично ($\propto \int n_2(t)dt \sim It^2$), как и связанная с ним величина Φ . Для прямоугольной формы импульса при линейном характере поглощения величины t и I проявляются в фотовозбуждении схожим образом, поэтому аналогичный вид можно ожидать для модельных зависимостей величин n_1, n_2, n_3 и Φ от I (см. квазилинейный начальный участок и плато Φ/E от I на рис. 3).

Далее, с ростом величины I можно ожидать насыщения резонансного перехода, например, когда $\kappa_{12}(I)n_{1S} \approx \kappa_{21}(I)n_{2S}$, $\kappa_{12}(I), \kappa_{21}(I) \gg \gamma_{23}$ и $n_{1S} \approx n_{2S} = n_S$. В этом случае система (1) примет вид

$$\begin{aligned}\frac{dn_1}{dt} &\approx -\kappa_{12}(I)n_{1S} + \kappa_{21}(I)n_{2S} = 0, \\ \frac{dn_2}{dt} &\approx \kappa_{12}(I)n_{1S} - \kappa_{21}(I)n_{2S}, \\ \frac{dn_3}{dt} &\approx \gamma_{23}n_S,\end{aligned}\quad (3)$$

то есть n_3 растет линейно ($\propto t$), как и величина Φ ; аналогично – в зависимости от I . В настоящей работе насыщение будет проявляться в виде плато зависимости Φ/E от I на рис. 3, где начало плато определяет пороговую интенсивность насыщения $I_S \approx 0.3 \text{ ГВт/см}^2$ (экспозиция – 1.8×10^{14} фотон/см²).

Заметим, что такой уровень интенсивности лазерного излучения вряд ли возможно достигнуть в алмазах для наносекундных импульсов без разрушения образца, т.е. использование фемтосекундной или пикосекундной лазерной накачки является необходимым условием достижения режима насыщения поглощения НЗ-, Н4-центров. Тогда по критерию насыщения можно оценить сечение поглощения резонансного перехода σ [11]

$$\frac{2\sigma_{12}I_S\tau}{\hbar\omega} = 1 \quad (4)$$

составляющее $\sigma_{12} \approx 2.7 \times 10^{-15} \text{ см}^2$ и подтвердить, что скорость радиационных переходов $1 \rightarrow 2$ и $2 \rightarrow 1$ в режиме насыщения $(\sigma_{12}I_S/\hbar\omega) \sim 10^{13} \text{ с}^{-1}$ становится сопоставимой с характерными скоростями межмодовой колебательной релаксации γ_{23} , допуская сближение величин n_1 и n_2 в режиме насыщения. Отметим также, что величина σ_{12} примерно на порядок превышает величину сечения эмиссии $(1.6 \times 10^{-16} \text{ см}^2 [5, 6])$, оцененную на основе кинетики фотолуминесценции почти 40 лет назад.

Для сравнения, близкие значения сечения переходов для НЗ-, Н4-центров в этом оптическом диапазоне получаются из измерений кинетики их фотолуминесценции при слабой накачке на длине волны 400 нм (рис. 4), в определенной степени воспроизво-

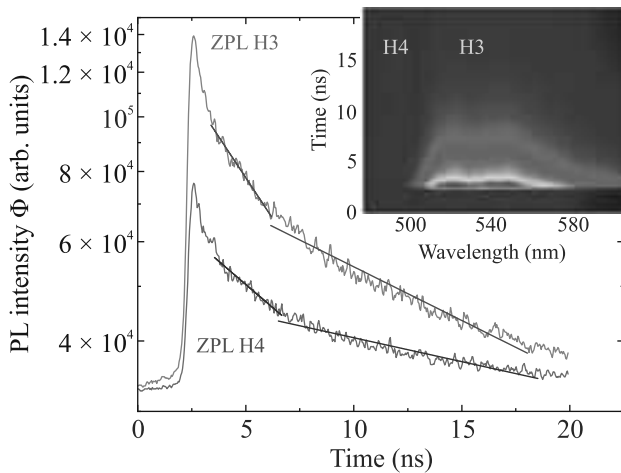


Рис. 4. (Цветной онлайн) Временные зависимости интенсивности БФЛ основного НЗ-центра и вторичного Н4-центра с биэкспоненциальной аппроксимацией путем линейаризации в осях $\ln\Phi$ - t . Вставка: цветовая карта кинетики ФЛ этих центров в алмазе в осях “длина волны-время”

дящей условия съемки при непрерывной накачке на длине волны 405 нм (рис. 1d). По этой причине возможно зарегистрировать ФЛ Н4-центров и ее кинетику.

В частности, зависимости $\Phi(t)$ для НЗ-, Н4-центров лучше аппроксимируются двумя экспонентами с временами спада $\tau_{em,1} = 7.5 \pm 0.2 \text{ нс}$ (НЗ) и $13.1 \pm 0.5 \text{ нс}$ (Н4), а также $\tau_{em,2} = 22.7 \pm 0.5 \text{ нс}$ (НЗ) и $51.0 \pm 0.8 \text{ нс}$ (Н4), причем данные времена заметно отличаются от измеренных много ранее – $\tau_{em} \approx 16.7 \pm 0.5 \text{ нс}$ (НЗ) и $19.1 \pm 1.0 \text{ нс}$ (Н4) [5, 6, 12]. Тем не менее, с учетом вырождения уровней 1, 2 НЗ-центра $g_{1,2} = 1$ [5], $\Delta\lambda(\text{НЗ}) \approx 3 \text{ нм}$ (рис. 3), сечения эмиссии для $\tau_{em,1}$

$$\sigma_{em,1}(\lambda) = \frac{g_2}{g_1} \frac{\lambda^4}{4\pi} \frac{1}{\pi c \Delta\lambda \tau_{em,1}} \quad (5)$$

составляет $\sigma_{em,1} \approx 2 \times 10^{-15} \text{ см}^2$ и хорошо согласуется с величиной $\sigma_{12} \approx 2.7 \times 10^{-15} \text{ см}^2$.

С другой стороны, известная величина σ_{12} делает возможной оценку концентрации НЗ-, Н4-центров, учитывая, что их оптические характеристики близки [5, 6], а неизвестные вклады этих центров в значение коэффициента оптического поглощения (в частности, на длине волны накачки 470 нм, рис. 1с) следуют соотношению концентраций близких оптически-неактивных центров [A] и [B1] [12, 13], измеряемых ИК-спектроскопией (рис. 1b)

$$\frac{\alpha_{H4}}{\alpha_{H3}} = 0.25 \frac{[B1]}{[A]}. \quad (6)$$

Для известных концентраций $[A] = 374 \text{ ppm}$ и $[B1] = 243 \text{ ppm}$ соотношение вкладов НЗ-, Н4-центров в величину $\alpha(470 \text{ нм}) \approx 24 \text{ см}^{-1}$ (рис. 1с) составляет 6:1, т.е. $\alpha_{H3}(470 \text{ нм}) \approx 20.5 \text{ см}^{-1}$ и $\alpha_{H4}(470 \text{ нм}) \approx 3.5 \text{ см}^{-1}$. С учетом преобладания вклада НЗ-центра в поглощение и, видимо, ФЛ образца алмаза, можно с хорошей точностью измеренное сечение поглощения σ_{12} к этому центру ($\sigma_{H3}(470 \text{ нм}) \approx \sigma_{12}$) и оценить его концентрацию

$$[H3] = \frac{\alpha_{H3}(470 \text{ нм})}{\sigma_{H3}(470 \text{ нм})}, \quad (7)$$

получив, в результате, $[H3] \approx 7 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$, т.е. порядка 0.1 ppm. Ввиду близости оптических характеристик НЗ-, Н4-центров [5], аналогично для $\alpha_{H4}(470 \text{ нм}) \approx 3.5 \text{ см}^{-1}$ можно оценить также концентрацию Н4-центров $[H4] \approx 1 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$.

Отметим, что предложенный подход к оценке концентрации НЗ-центров оказывается, как очевидно, значительно универсальнее и удобнее способа, опирающегося на измерение коэффициента оптического БФЛ-поглощения этих центров (не разрешается на рис. 1с для измерений при комнатной температуре) в виде [12, 13]

$$[H3] = (0.67-0.83) \times 10^{15} \int \alpha_{ZPL}(\lambda) d\lambda, \quad (8)$$

требующего хорошего разрешения БФЛ НЗ-центров в спектре поглощения, что возможно при температурах жидкого азота, когда полуширина этой линии в спектрах ФЛ с возбуждением на длине волны 405 нм уменьшается до 0.5–0.6 нм (рис. 1d).

4. В заключение, в данной работе впервые экспериментально исследованы спектры фотолюминесценции НЗ-, Н4-центров алмаза, возбуждаемой в полосе их линейного поглощения фемтосекундными лазерными импульсами накачки с длиной волны 470 нм и варьруемой интенсивностью. Обнаружено, что выход ФЛ в определенном диапазоне изменяет характер зависимости от интенсивности накачки с квадратичной на линейную, что связано с насыщением резонансного поглощения и впервые использовано для оценки сечения процесса и индивидуальных концентраций поглощающих НЗ-, Н4-центров алмаза.

Финансирование работы. Данное исследование финансировалось Российским научным фондом (проект # 21-79-30063); <https://rscf.ru/en/project/21-79-30063/>.

Конфликт интересов. Авторы не имеют конфликта интересов.

1. И. С. Григорьев, Е. З. Мейлихов (ред.), *Физические величины*, Энергоатомиздат, М. (1991).
2. А. М. Zaitsev, *Optical properties of diamond: a data handbook*, Springer Science & Business Media (2013).

3. L. T. S. Lin, M. A. Prelas, and G. Popovici, *Laser modes in diamond. Wide Band Gap Electronic Materials* **1**, 187 (1995).
4. V. P. Mironov, E. A. Protasova, E. I. Lipatov, E. F. Martynovich, *Generation of laser radiation by color centers in diamond crystals, AIP Conference Proceedings*, Published by AIP Publishing **2392**, 030001-1?030001-8 (2021).
5. S. C. Rand and L. G. DeShazer, *Opt. Lett.* **10**(10), 481 (1985).
6. S. Rand, *Synthetic Diamond for Color Center Lasers*, in *Advanced Solid State Lasers*, Optica Publishing Group (1986), p. FA9.
7. S. D. Subedi, V. V. Fedorov, J. Peppers, D. V. Martyshev, S. B. Mirov, L. Shao, and M. Loncar, *Opt. Mater. Express* **9**(5), 2076 (2019).
8. A. Savvin, A. Dormidonov, E. Smetanina, V. Mitrokhin, E. Lipatov, D. Genin, S. Potanin, A. Yelisseyev, and V. Vins, *Nat. Commun.* **12**(1), 7118 (2021).
9. P. G. Klemens, *Phys. Rev. B* **11**, 3206 (1975).
10. В. О. Компанец, В. Н. Лохман, Д. Г. Пойдашев, С. В. Чекалин, Е. А. Рябов, *ЖЭТФ* **149**(4), 723 (2016).
11. Н. В. Карлов, *Лекции по квантовой электронике*, Наука, М. (1988), т. 52.
12. G. Davies, S. C. Lawson, A. T. Collins, A. Mainwood, and S. J. Sharp, *Phys. Rev. B* **46**(20), 13157 (1992).
13. G. Davies (editor), *Properties and Growth of Diamond*, INSPEC, London (1994).

Двухэлектронный механизм генерации высших гармоник атомом в интенсивном инфракрасном поле и аттосекундном импульсе

А. А. Романов⁺*, А. А. Силаев⁺, Н. В. Введенский⁺⁺¹⁾, М. В. Фролов^{*×}

⁺Институт прикладной физики им. А. В. Гапонова-Грехова РАН, 603950 Н. Новгород, Россия

^{*}Нижегородский государственный университет им. Н. И. Лобачевского, 603950 Н. Новгород, Россия

[×]Воронежский государственный университет, 394018 Воронеж, Россия

Поступила в редакцию 23 ноября 2023 г.

После переработки 8 декабря 2023 г.

Принята к публикации 8 декабря 2023 г.

Предложен двухэлектронный механизм формирования высокоэнергетического плато в спектре генерации высших гармоник атомом в интенсивном инфракрасном поле и аттосекундном импульсе, реализуемый при возбуждении аттосекундным импульсом резонанса между валентной и более глубокой оболочками атома. На основе численного решения нестационарных уравнений Кона–Шэма проанализированы вклады от одноэлектронного [Phys. Rev. A **98**, 063433 (2018)] и двухэлектронного механизмов генерации высших гармоник при укорочении аттосекундного импульса с отстроенной от атомного резонанса несущей частотой. Найдены условия доминирования двухэлектронного механизма, приводящего к значительному усилению выхода гармоник за отсечкой индуцированного инфракрасным полем плато в спектре генерации высших гармоник.

DOI: 10.31857/S1234567824030054, EDN: srxirm

1. Введение. Реализация различных многоэлектронных механизмов в динамике атомов и молекул в интенсивных лазерных полях может приводить к ряду новых эффектов, в частности, к гигантскому резонансу в спектрах генерации высших гармоник (ГВГ) в ксеноне [1–4], к резонансному усилению отдельных гармоник в спектрах ионов переходных металлов [5–7], к многоэлектронному поляризационному экранированию [8] и др. На качественном уровне описание этих эффектов возможно в рамках существующей аналитической параметризации вероятности ГВГ, представляющей собой произведение лазерного фактора и сечения фоторекомбинации [9–11]: лазерный фактор описывает туннельную ионизацию и одноэлектронную динамику валентного электрона в интенсивном инфракрасном (ИК) поле, а сечение фоторекомбинации, связанное с сечением фотоионизации принципом детального равновесия, определяет вклад многоэлектронных эффектов на этапе рекомбинации [12, 13]. Количественные оценки вклада многоэлектронных эффектов в ГВГ могут дать численные расчеты, выполненные в рамках нестационарных методов Хартри – Фока [3, 14–16] и функционала плотности [4, 8, 17, 18], а также R-матрицы [19].

Электронно-корреляционная динамика в сильном

ИК-поле может быть также индуцирована дополнительным взаимодействием ИК-возмущенной системы с аттосекундным импульсом с несущей частотой в вакуумном ультрафиолете (ВУФ) [20–22]. Например, взаимодействие ВУФ-импульса с атомной системой может приводить к высвобождению электронов из низколежащих оболочек с последующим Оже-распадом атома [23]. Использование аттосекундных импульсов совместно с интенсивным ИК-полем позволяет извлекать из экспериментальных данных беспрецедентно точные значения для времен Оже-распадов, составляющих десятки аттосекунд.

Совместное воздействие интенсивного ИК-поля и аттосекундного ВУФ-импульса на атом приводит к возникновению новых каналов ГВГ. Ранее в работах [11, 24–27] исследованы соответствующие одноэлектронные каналы ГВГ. Теоретическое описание ВУФ-индуцированных каналов основывается на пертурбативном характере взаимодействия аттосекундного импульса с атомной системой (даже для интенсивностей $\sim 10^{16}$ Вт/см², соизмеримых с внутриатомной) на фоне нелинейного воздействия ИК-поля на атомную мишень, которое, например, может быть описано в рамках адиабатической теории [11, 28, 29]. Динамика в одном из таких ВУФ-индуцированных каналов ГВГ может быть описана следующим образом: атомный электрон туннелирует под действием ин-

¹⁾e-mail: vvded@appl.sci-nnov.ru

тенсивного ИК-поля и квазиклассически распространяется в континууме, из которого рекомбинирует в начальное состояние с одновременным поглощением ВУФ-фотона [11, 24, 25]. Интерес к данному каналу вызван рядом обстоятельств. Во-первых, он позволяет получать фотоны с энергией, превосходящей энергию отсечки высокоэнергетического плато в ИК-поле [30] на величину энергии ВУФ-фотона [24, 31]. Во-вторых, данный канал представляет интерес для аттосекундной метрологии [25, 26] и исследования частотно-временной динамики ГВГ в ИК-поле [27].

В данной работе мы показываем, что учет многоэлектронных эффектов может существенно поменять динамику ГВГ в ИК-поле и аттосекундном ВУФ-импульсе. Действительно, рассмотрим ВУФ-импульс, несущая частота которого ω_{XUV} совпадает с разностью энергий электрона в валентной и внутренней оболочках. Интенсивное ИК-поле туннельно ионизирует атомную систему, в результате чего электрон из внешней оболочки переходит в континуум и тем самым порождает вакансию в валентной оболочке. Образовавшаяся вакансия может быть заполнена в результате резонансного ВУФ-индуцируемого перехода электрона из внутренней оболочки, в то время как рекомбинация электрона из ИК-модифицированного континуума может заполнить вакансию во внутренней оболочке (см. рис.1). Энергия генерируемого фотона в рамках такого двухэлектронного механизма ГВГ совпадает с энергией фотона в одноэлектронном ВУФ-сопровожаемом канале ГВГ [24], однако эффективность ГВГ может быть существенно увеличена за счет попадания ω_{XUV} в резонанс. Для исследования двухэлектронного сценария ГВГ мы рассматриваем атом ксенона (Xe) и используем метод функционала плотности, основанный на численном решении нестационарных уравнений Кона–Шэма (НУКШ) [4]. Результаты расчетов явно демонстрируют, что ВУФ-индуцированная резонансная двухэлектронная динамика приводит к усилению выхода высокоэнергетических гармоник за областью ИК-индуцированного плато в спектре ГВГ. Более того, мы показываем существенную разницу в зависимости одно- и двухэлектронных каналов ГВГ от временной задержки между ИК- и ВУФ-импульсами и длительности ВУФ-импульса. В частности, для короткого аттосекундного импульса одноэлектронный ВУФ-сопровожаемый канал ГВГ наиболее выражен, если время задержки между ИК- и ВУФ-импульсами близко ко времени рекомбинации электрона с соответствующей энергией [25]. Напротив, для двухэлектронного сценария ГВГ время задержки определяет

момент перехода из низколежащей оболочки в валентное состояние, и для эффективной ГВГ достаточно, чтобы до этого момента было произведено высвобождение электрона с валентного уровня за счет действия ИК-поля.

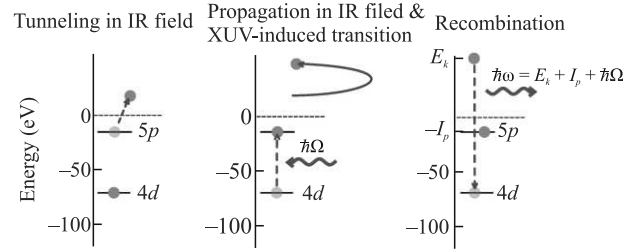


Рис. 1. (Цветной онлайн) Смеха ГВГ с участием двух электронов при резонансном возбуждении внутреннего перехода атома ксенона ВУФ-импульсом. Здесь $\hbar\Omega = E_{5p} - E_{4d}$ - энергия поглощаемого фотона ВУФ-импульса, I_p - потенциал ионизации, E_k - энергия возвращающегося электрона, $\hbar\omega = E_k + I_p + \hbar\Omega$ - энергия излучаемого фотона, $\hbar$ - приведенная постоянная Планка

2. Нестационарные уравнения Кона–Шэма.

Для описания многоэлектронной динамики мы используем НУКШ [32] (в работе используется атомная система единиц, если не указано иного):

$$i\frac{\partial\psi_j(\mathbf{r},t)}{\partial t} = \hat{H}\psi_j(\mathbf{r},t), \quad j = 1 \dots N/2, \quad (1a)$$

$$\hat{H} = -\frac{\nabla^2}{2} - \frac{N}{r} + \hat{V}_{ee} + \hat{V}_L, \quad (1b)$$

где $\psi_j(\mathbf{r},t)$ - нестационарная волновая функция n -ой орбитали Кона–Шэма, $N = 54$ - общее число электронов в атоме Xe, совпадающее с зарядом ядра, $\hat{V}_{ee}$ - потенциал, описывающий электрон-электронное взаимодействие, $\hat{V}_L$ - оператор взаимодействия атомного электрона с ИК- и ВУФ-импульсами. Электрон-электронное взаимодействие представляется в виде суммы потенциала Хартри и обменно-корреляционного потенциала, описываемого в приближении LB94 [33]:

$$\hat{V}_{ee} = V_H + V_{xc}, \quad (2a)$$

$$V_H = \int \frac{\rho(\mathbf{r}',t)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r}', \quad \rho(\mathbf{r},t) = 2 \sum_{n=1}^{N/2} |\psi_n(\mathbf{r},t)|^2, \quad (2b)$$

$$V_{xc} = V_{LDA} - \frac{2^{1/3}\beta\chi^2(\mathbf{r},t)\rho^{1/3}(\mathbf{r},t)}{1 + 2^{1/3}\beta\chi(\mathbf{r},t)\sinh^{-1}[2^{1/3}\chi(\mathbf{r},t)]}, \quad (2c)$$

$$\chi(\mathbf{r},t) = \frac{|\nabla\rho(\mathbf{r},t)|}{\rho^{4/3}(\mathbf{r},t)},$$

где V_{LDA} - обменно-корреляционный потенциал в приближении локальной плотности [32], $\beta = 0.05$.

Индекс j нумерует различные орбитали, каждая из которых характеризуется собственным главным квантовым числом (n), угловым моментом (l) и его проекцией (m) на ось квантования в соответствии с электронной конфигурацией атома Хе, $[\text{Kr}]4d^{10}5s^25p^6$, где $[\text{Kr}]$ – электронная конфигурация атома криптона. Начальными условиями для ψ_j являются собственные функции $\psi_j^{(0)}$ гамильтониана в отсутствие поля, которые записываются как $\psi_j^{(0)} = r^{-1}R_{nl}(r)Y_{lm}(\theta, \varphi)$, где $R_{nl}(r)$ – радиальная часть волновой функции, $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ – сферические гармоники, θ и φ – соответственно, полярный и азимутальный углы сферической системы координат. Угол θ отсчитывается от оси z , которая совпадает с направлением электрического поля.

Взаимодействие с полем рассматривается в дипольном приближении в калибровке длины:

$$\hat{V}_L = z\mathcal{F}(t), \quad \mathcal{F}(t) = \mathcal{F}_{\text{IR}}(t) + \mathcal{F}_{\text{XUV}}(t - \tau), \quad (3)$$

$$\mathcal{F}_\alpha(t) = F_\alpha f_\alpha(t) \cos(\omega_\alpha t), \quad \alpha = \{\text{IR}, \text{XUV}\}, \quad (4)$$

где $f_\alpha(t)$, F_α , ω_α – огибающая, пиковая напряженность, несущая частота ИК- и ВУФ-импульсов, τ – время задержки между импульсами ($\tau = 0$ соответствует совпадению максимумов огибающих двух импульсов).

В методе функционала плотности все физически наблюдаемые величины выражаются через электронную плотность $\rho(\mathbf{r}, t)$. Например, дипольное ускорение $a(t)$, которое определяет вероятность генерации гармоники $[R(\omega)]$ на частоте ω ,

$$a(t) = \frac{d^2}{dt^2} \int_{-\infty}^{\infty} z\rho(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r} = -N\mathcal{F}(t) - N \int \frac{z}{r^3} \rho(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r},$$

$$R(\omega) = \frac{|a(\omega)|^2}{2\pi c^3}, \quad a(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} a(t) e^{i\omega t} dt,$$

где c – скорость света.

Результаты решения НУКШ сравниваются с результатами, даваемыми приближением одного активного электрона, основанным на одноэлектронном нестационарном уравнении Шредингера для волновой функции $\psi(\mathbf{r}, t)$ во внешнем электрическом поле и стационарном потенциале иона $V_{\text{eff}}(r)$ [34], задаваемом в виде сглаженного кулоновского потенциала [35]

$$V_{\text{eff}}(r) = -\frac{1}{r} \left[\tanh\left(\frac{r}{a}\right) + \frac{r}{b} \text{sech}^2\left(\frac{r}{a}\right) \right]. \quad (5)$$

В качестве начального состояния мы используем состояние $2p_0$, представляемое в виде $\psi(\mathbf{r}, 0) = R_{2p}(r)Y_{10}(\theta, \varphi)$. Такой выбор потенциала и начального состояния позволяет избежать численных арте-

фактов, связанных с использованием в качестве начального состояния уровня $5p_0$, для которого возникают нефизические переходы в свободный нижележащий уровень $4d_0$ при взаимодействии с внешним электрическим полем с резонансной частотой. Нами использовались значения констант $a = 0.564$, $b = 12$, для которых энергия состояния $2p_0$ в потенциале (5) равняется по модулю потенциалу ионизации атома Хе. При этом нижележащее состояние $1s$ расположено на 97.3 эВ ниже уровня $2p_0$, что много больше рассматриваемых нами энергий квантов ВУФ-импульсов. Энергии первых трех возбужденных состояний $3s$, $3p$, $3d$ равны, соответственно, -2.33 эВ, -2.59 эВ, -1.52 эВ, в то время как в многоэлектронной системе, описываемой методом функционала плотности, энергии трех нижних стационарных незанятых состояний $5d$, $6s$, $6p$ равны, соответственно, -2.33 эВ, -3.9 эВ, -2.22 эВ. Отметим, что структура уровней высокоэнергетических состояний мало влияет на формирование спектра ГВГ, который хорошо описывается в рамках факторизации на лазерный фактор и сечение фоторекомбинации [9–11]. На рисунке 2 представлена радиальная часть $R_{2p}(r)$ волновой функции в начальном состоянии для одноэлектронной модели, а также найденные на основе метода функционала плотности радиальные части $R_{nl}(r)$ внешней орбитали $5p_0$ атома Хе и участвующей в обсуждаемом двухэлектронном механизме ГВГ орбитали $4d_0$. Дипольное ускорение выражается через волновую функцию как [8, 35, 36]

$$a(t) = -\mathcal{F}(t) - \int |\psi(\mathbf{r}, t)|^2 \frac{\partial V_{\text{eff}}}{\partial z} d\mathbf{r}. \quad (6)$$

3. Численные результаты и их обсуждение.

Численный анализ системы уравнений (1) был выполнен для атома Хе, взаимодействующего с ИК-полем и аттосекундным ВУФ-импульсом (см. соотношение (3)). ИК поле задавалось в виде импульса с несущей частотой $\omega_{\text{IR}} = 1$ эВ ($\lambda_{\text{IR}} = 1.2$ мкм), огибающей $f_{\text{IR}}(t) = \cos^2(\pi t / \mathcal{T}_{\text{IR}})$ (для $t \in (-\mathcal{T}_{\text{IR}}/2, \mathcal{T}_{\text{IR}}/2)$), где $\mathcal{T}_{\text{IR}} = 20.7$ фс (5 полных периодов ИК поля) – длительность ИК-импульса, и пиковой интенсивностью $I_{\text{IR}} = 2 \times 10^{14}$ Вт/см². Огибающая аттосекундного импульса была параметризована гауссовой функцией $f_{\text{XUV}}(t) = \exp[-2 \ln(2)t^2 / \mathcal{T}_{\text{XUV}}^2]$, где $\mathcal{T}_{\text{XUV}}$ – полная длительность по уровню интенсивности 1/2. Во всех расчетах, представленных на рис. 3 и 4, пиковая интенсивность ВУФ-импульса равна 5×10^{13} Вт/см², кроме рис. 3с, на котором рассмотрена также интенсивность 5×10^{12} Вт/см². Численный метод решения системы НУКШ (1) описан в работе [4]. Численные результаты для энергий свя-

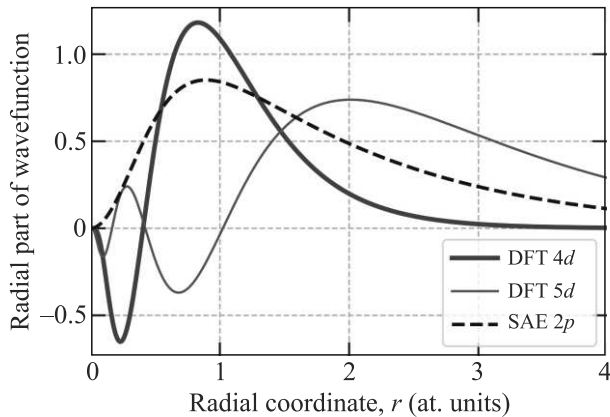


Рис. 2. (Цветной онлайн) Радиальные части $R_{nl}(r)$ волновых функций стационарных орбиталей $4d$ (толстая синяя линия) и $5p$ (тонкая красная) при использовании метода функционала плотности, а также радиальная часть R_{2p} начального $2p$ -состояния в приближении одного активного электрона (черная штриховая линия)

зи орбиталей Кона–Шэма в отсутствие лазерных полей (см. табл. 1 в [4]) хорошо согласуются с экспериментальными данными, которые указывают возможность дипольного (резонансного) перехода между $5p$ и $4d$ оболочками на частоте $\Omega = E_{5p} - E_{4d} \approx 57.2$ эВ (см. рис. 1). Поэтому в обсуждаемых ниже численных расчетах несущая частота аттосекундного импульса изменялась в пределах 50–60 эВ.

На рисунке 3 представлены спектры ГВГ для разных несущих частот аттосекундного импульса. Резкий пик в области ИК-индуцированного плато связан с рэлеевским рассеянием аттоимпульса на атомной мишени, и, соответственно, его положение определяется несущей частотой ВУФ-импульса [37]. Спектр ГВГ содержит две платообразные структуры. Первое плато формируется в результате хорошо известного трехшагового механизма, реализуемого в интенсивном ИК-поле [1–4, 30, 38] (см. пунктирные линии на рис. 3), а второе, дополнительное, плато формируется в результате взаимодействия аттосекундного импульса с ИК-возмущенной системой (см. толстые непрерывные линии на рис. 3). В зависимости от параметров основной канал формирования дополнительного плато может определяться как одно-, так и двухэлектронной динамикой. Действительно, аттоимпульс с несущей частотой $\omega_{XUV} = 50$ эВ и длительностью 0.6 фс (частотная ширина импульса ≈ 7 эВ) не может возбудить резонанс между $5p$ и $4d$ оболочками, и в этом случае реализуется одноэлектронный трехшаговый механизм, состоящий в ИК-туннелировании валентного электрона из $5p$ оболочки, его распространении в ИК-модифицированном

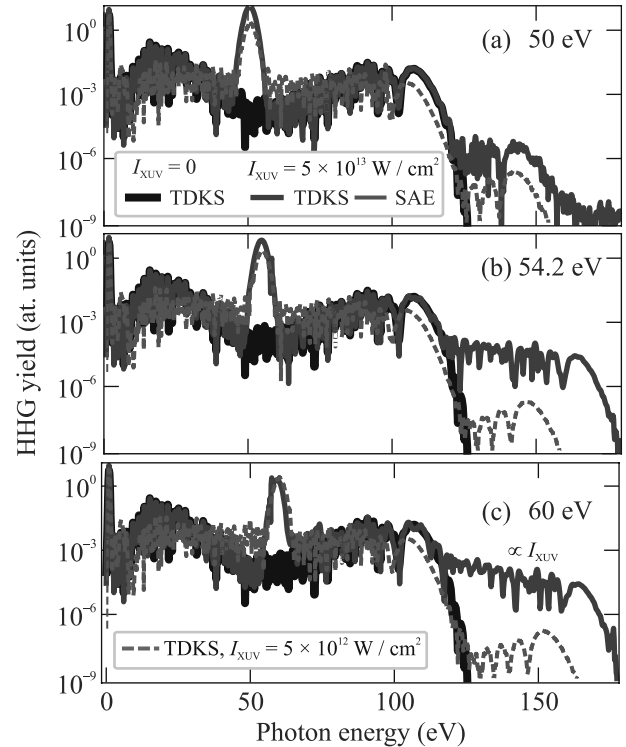


Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектры ГВГ атомом ксенона, взаимодействующим с ИК-полем и аттосекундным импульсом с различными частотами $\omega_{XUV} = 50$ эВ (a); $\omega_{XUV} = 54.2$ эВ (b); $\omega_{XUV} = 60$ эВ (c). Длительность аттосекундного импульса $T_{XUV} = 0.6$ фс, временная задержка между ИК- и ВУФ-импульсами $\tau = -1.2$ фс, пиковая интенсивность ИК-импульса $I_{IR} = 2 \times 10^{14}$ Вт/см². Толстые черные линии и толстые синие линии – решение НУКШ для интенсивности ВУФ-импульса $I_{XUV} = 0$ и 5×10^{13} Вт/см², соответственно, тонкие красные пунктирные линии – расчет в приближении одного активного электрона для $I_{XUV} = 5 \times 10^{13}$ Вт/см². Штриховая бирюзовая линия на панели (c) – решение НУКШ для $I_{XUV} = 5 \times 10^{12}$ Вт/см²

континууме и последующей ВУФ-сопровожаемой рекомбинацией в $5p$ оболочку [24, 25]. Для нерезонансного случая (см. рис. 3a) решение НУКШ и одноэлектронные расчеты качественно согласуются между собой. Напротив, для ВУФ-импульсов с несущими частотами $\omega_{XUV} = 54.2$ эВ и $\omega_{XUV} = 60$ эВ спектральной ширины импульса достаточно, чтобы возбудить $5p$ – $4d$ резонанс, что приводит к возникновению новых эффектов в области ВУФ-индуцированного плато, состоящих в значительном удлинении плато и усилении выхода гармоник на 1–2 порядка по сравнению с нерезонансным случаем (см. рис. 2b и c). Отметим, что спектральная интенсивность в рассматриваемом диапазоне частот линейно зависит от интенсивности ВУФ-импульса, что можно видеть на рис. 3c:

уменьшение интенсивности ВУФ-импульса на порядок приводит к такому же уменьшению выхода гармоник.

Для более подробного исследования указанных выше особенностей рассмотрим зависимость спектральной интенсивности на дополнительном ВУФ-индуцированном плато от длительности ВУФ-импульса, несущая частота которого отстроена от $5p-4d$ резонанса. Для относительно длинных ВУФ-импульсов отстройка от резонанса позволяет реализовать только одноэлектронный сценарий, однако с уменьшением длительности, благодаря спектральному уширению импульса, $5p-4d$ резонанс может быть возбужден. На рисунке 4 представлены частотно-временные спектрограммы дипольного ускорения атома (панели (а), (с), (е)) и соответствующие спектры ГВГ (панели (b), (d), (f)) при фиксированной частоте ВУФ-импульса $\omega_{XUV} = 50$ эВ и различных его длительностях от 0.2 до 0.6 фс. О возбуждении резонанса можно судить по наличию характерной горизонтальной полосы на спектрограмме вблизи энергии резонанса (см. рис. 4е), говорящей о формировании в волновой функции, соответствующей начальному $4d_0$ состоянию, суперпозиции из $5p_0$ и $4d_0$ состояний.

Как следует из рис 4а, резонансный переход $5p \rightarrow 4d$ не возбуждается для $\omega_{XUV} = 50$ эВ и $\mathcal{T}_{XUV} = 0.6$ фс, и ГВГ за отсечкой основного плато определяется одноэлектронной динамикой. В частности, максимальная генерируемая частота в данном канале определяется известным соотношением [25]:

$$E_c^{(XUV)} = \mathcal{E}_{IR}(t_i, t_f = \tau) + \omega_{XUV}, \quad (7)$$

$$\mathcal{E}_{IR}(t_i, t_f) = |E_0| + \frac{1}{2} [A_{IR}(t_i) - A_{IR}(t_f)]^2, \quad (8)$$

где $\mathcal{E}_{IR}(t_i, t_f)$ – кинетическая энергия фотоэлектрона, рекомбинирующего в момент времени t_f , и возникшего благодаря туннелированию с валентного $5p_0$ уровня с энергией связи E_0 в момент времени t_i , определяемый соотношением

$$A_{IR}(t_i) = \frac{1}{t_f - t_i} \int_{t_i}^{t_f} A_{IR}(\xi) d\xi, \quad (9)$$

где $A_{IR}(t)$ – проекция векторного потенциала ИК-поля на ось z . Для $\mathcal{T}_{XUV} = 0.4$ фс доминирующим все еще остается одноэлектронный канал ГВГ, однако наблюдается формирование плато, связанного с резонансным двухэлектронным каналом (см. рис. 4d). Это выражается в появлении в спектре ГВГ компонент с частотами 160–170 эВ, которые выше $E_c^{(XUV)}$. При $\mathcal{T}_{XUV} = 0.2$ фс (см. рис. 4е, f) сформировано ровное дополнительное плато на частотах 120–160 эВ, на

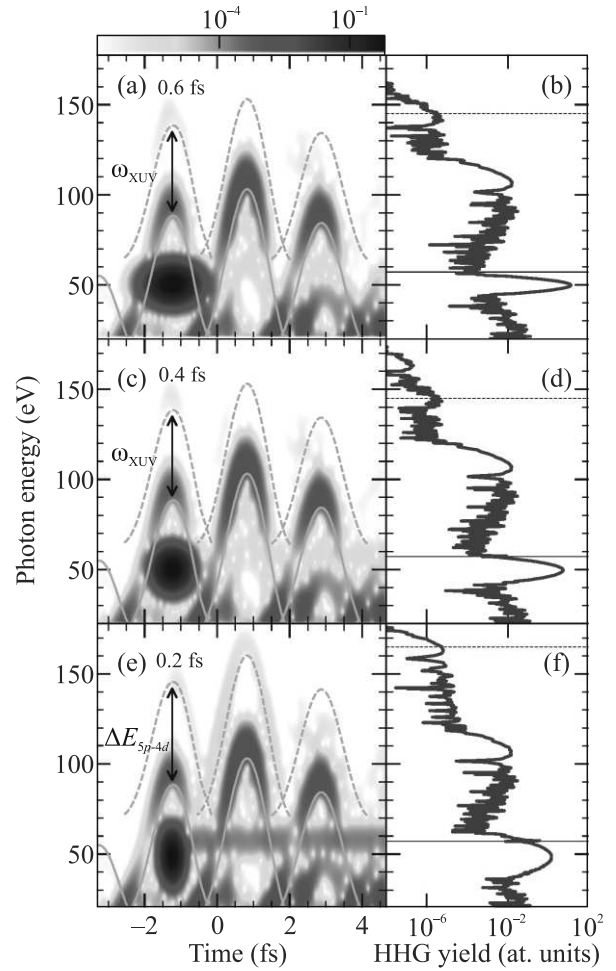


Рис. 4. (Цветной онлайн) Частотно-временные спектрограммы ГВГ для ВУФ-импульса с интенсивностью 5×10^{13} Вт/см² и несущей частотой $\omega_{XUV} = 50$ эВ и тремя длительностями 0.6 фс (а), 0.4 фс (с) и 0.2 фс (е), и соответствующие спектры ГВГ (b), (d) и (f). Остальные параметры такие же, как на рис. 3. Тонкие серые непрерывные линии – зависимость набранной энергии свободного электрона в ИК-поле от времени возврата (см. уравнение (8)), тонкие серые штриховые линии – то же, что и тонкие непрерывные линии, но сдвинутые на несущую частоту ВУФ-фотона (а), (с) и на энергию резонанса Ω (е). Горизонтальная непрерывная линия показывает положение $5p-4d$ резонанса, пунктирная штриховая линия – положение энергии отсечки на ВУФ-индуцированном плато

котором пик от одноэлектронного канала ГВГ уже не проявляется.

Двухэлектронный механизм формирования ВУФ-индуцированного плато реализуется при одновременном выполнении двух условий: (а) спектр ВУФ-импульса должен охватывать резонансную частоту и иметь интенсивность, достаточную

для возбуждения резонанса и создания суперпозиции между резонирующими состояниями, (б) наличие в момент прихода ВУФ-импульса вакансии в $5p$ -оболочке, образуемой в результате ИК-туннелирования электрона из атомной системы. Указанные условия выполняются для аттоимпульса с рассматриваемой задержкой и длительностью $T_{\text{XUV}} = 0.2$ фс. В рамках двухэлектронной динамики (см. выше описание рис. 1) электрон, находящийся в ИК-модифицированном континууме, может рекомбинировать в любые моменты времени, следующие за резонансным переходом. По этой причине протяженность ВУФ-индуцированного плато в резонансном случае определяется максимальной энергией электрона в ИК-поле:

$$E_c^{(\text{XUV})} = \max(\mathcal{E}_{\text{IR}}(t_i, t_f)) + \Omega \quad (10)$$

и не зависит от времени задержки между ИК- и ВУФ-импульсами.

Необходимо отметить, что атом Хе, рассматриваемый в данной работе, имеет особенность, связанную с наличием гигантского резонанса в переходе из $4d$ состояния в f -состояние континуума. Благодаря электрон-электронному взаимодействию это приводит к увеличению сечения рекомбинации фотоэлектрона во внешнюю $5p_0$ орбиталь и значительному росту эффективности ГВГ вблизи 100 эВ. Наличие гигантского усиления вблизи 100 эВ хорошо видно также на представленных на рис. 3 и 4 спектрах ГВГ. Однако, из-за большой ширины гигантского резонанса, усиленными также оказываются и обсуждаемые в данной работе каналы ГВГ за краем отсечки основного плато: как в случае двухэлектронного, так и одноэлектронного сценария ГВГ излучательная рекомбинация усилена благодаря наличию гигантского резонанса $4d$ -подоболочки.

4. Заключение. На основе численного решения нестационарных уравнений Кона–Шэма показано, что формирование ВУФ-индуцированного высокоэнергетического плато в спектре ГВГ ИК-возмущенного атома возможно в результате действия как одноэлектронного [24, 25], так и двухэлектронного механизмов. Двухэлектронный механизм состоит в туннелировании валентного электрона в ИК-поле, переходе второго электрона из более глубокой оболочки в валентную под действием резонансного ВУФ-импульса и распространении высвободившегося электрона в континууме с последующей рекомбинацией в вакансию в низколежащем состоянии. Показано, что в этом случае в отличие от одноэлектронного сценария протяженность ВУФ-индуцируемого плато определяется макси-

мальной набранной энергией электрона в ИК-поле и не зависит от времени задержки между ИК- и ВУФ-импульсами. При этом выход гармоник на ВУФ-индуцированном плато на 1–2 порядка выше, чем в результате действия одноэлектронного механизма, что значительно облегчает его регистрацию в условиях малой интенсивности ВУФ-импульса. Использование ксенона обладает преимуществом над другими инертными газами, связанным с наличием гигантского резонанса в матричном элементе перехода из континуума в $4d$ оболочку вблизи 100 эВ, что дополнительно усиливает выход гармоник на ВУФ-индуцированном плато.

Финансирование работы. Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант # 20-11-20289).

Конфликт интересов. Конфликт интересов отсутствует.

1. M. V. Frolov, N. L. Manakov, T. S. Sarantseva, M. Y. Emelin, M. Y. Ryabikin, and A. F. Starace, *Phys. Rev. Lett.* **102**(24), 243901 (2009).
2. A. D. Shiner, B. E. Schmidt, C. Trallero-Herrero, H. J. Wörner, S. Patchkovskii, P. B. Corkum, J.-C. Kieffer, F. Légaré, and D. M. Villeneuve, *Nat. Phys.* **7**, 464 (2011).
3. S. Pabst and R. Santra, *Phys. Rev. Lett.* **111**(23), 233005 (2013).
4. A. A. Romanov, A. A. Silaev, T. S. Sarantseva, M. V. Frolov, and N. V. Vvedenskii, *New J. Phys.* **23**, 043014 (2021).
5. P. A. Ганеев, *УФН* **179**(1), 65 (2009).
6. M. V. Frolov, N. L. Manakov, and A. F. Starace, *Phys. Rev. A* **82**(2), 023424 (2010).
7. I. S. Wahyutama, T. Sato, and K. L. Ishikawa, *Phys. Rev. A* **99**(6), 063420 (2019).
8. A. A. Romanov, A. A. Silaev, M. V. Frolov, and N. V. Vvedenskii, *Phys. Rev. A* **101**(1), 013435 (2020).
9. T. Morishita, A.-T. Le, Z. Chen, and C. D. Lin, *Phys. Rev. Lett.* **100**(1), 013903 (2008).
10. Т. С. Саранцева, М. В. Фролов, Н. В. Введенский, *Письма в ЖЭТФ* **106**(3), 145 (2017).
11. A. V. Flegel, N. L. Manakov, I. V. Breev, and M. V. Frolov, *Phys. Rev. A* **104**(3), 033109 (2021).
12. М. Я. Амусья, *Атомный фотоэффект*, Наука, М. (1987).
13. A. F. Starace, *Theory of atomic photoionization*, Springer-Verlag, Berlin (1982), p. 1.
14. J. Caillat, J. Zanghellini, M. Kitzler, O. Koch, W. Kreuzer, and A. Scrinzi, *Phys. Rev. A* **71**(1), 012712 (2005).

15. L. Greenman, P.J. Ho, S. Pabst, E. Kamarchik, D. Mazziotti, and R. Santra, *Phys. Rev. A* **82**(2), 023406 (2010).
16. T. Sato and K. L. Ishikawa, *Phys. Rev. A* **88**(2), 023402 (2013).
17. D. A. Telnov and S.-I. Chu, *Phys. Rev. A* **80**(4), 043412 (2009).
18. D. A. Telnov, K.E. Sosnova, E. Rozenbaum, and S.-I. Chu, *Phys. Rev. A* **87**(5), 053406 (2013).
19. A. Brown and H. Van Der Hart, *Phys. Rev. Lett.* **117**(9), 093201 (2016).
20. M. Uiberacker, T. Uphues, M. Schultze et al. (Collaboration), *Nature* **446**, 627 (2007).
21. R. Pazourek, J. Feist, S. Nagele, and J. Burgdörfer, *Phys. Rev. Lett.* **108**(16), 163001 (2012).
22. M. Ossianer, F. Siegrist, V. Shirvanyan, R. Pazourek, A. Sommer, T. Latka, A. Guggenmos, S. Nagele, J. Feist, J. Burgdörfer, R. Kienberger, and M. Schultze, *Nat. Phys.* **13**, 280 (2016).
23. M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, and F. Krausz, *Nature* **419**, 803 (2002).
24. T.S. Sarantseva, M.V. Frolov, N.L. Manakov, A.A. Silaev, N.V. Vvedenskii, and A.F. Starace, *Phys. Rev. A* **98**(6), 063433 (2018).
25. T.S. Sarantseva, M.V. Frolov, N.L. Manakov, A.A. Silaev, A.A. Romanov, N.V. Vvedenskii, and A.F. Starace, *Phys. Rev. A* **101**(1), 013402 (2020).
26. T.S. Sarantseva, A.A. Romanov, A.A. Silaev, N.V. Vvedenskii, and M.V. Frolov, *Opt. Express* **29**(23), 38298 (2021).
27. T.S. Sarantseva, A.A. Silaev, A.A. Romanov, N.V. Vvedenskii, and M.V. Frolov, *Opt. Express* **29**(2), 1428 (2021).
28. Y. Okajima, O.I. Tolstikhin, and T. Morishita, *Phys. Rev. A* **85**(6), 063406 (2012).
29. O.I. Tolstikhin and T. Morishita, *Phys. Rev. A* **86**(4), 043417 (2012).
30. P.B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**(13), 1994 (1993).
31. A. Fleischer, *Phys. Rev. A* **78**(5), 053413 (2008).
32. C.A. Ullrich, *Time-dependent density-functional theory: concepts and applications*, Oxford University Press, Oxford (2012).
33. R. van Leeuwen and E. J. Baerends, *Phys. Rev. A* **49**(4), 2421 (1994).
34. H. G. Muller, *Phys. Rev. A* **60**(2), 1341 (1999).
35. A.A. Silaev, A.A. Romanov, M.V. Silaeva, and N.V. Vvedenskii, *Phys. Rev. A* **108**(1), 013118 (2023).
36. А. А. Силаев, В. А. Костин, И. Д. Ларюшин, Н. В. Введенский, *Письма в ЖЭТФ* **107**(3), 160 (2018).
37. A.A. Romanov, A.A. Silaev, N.V. Vvedenskii, A.V. Flegel, and M.V. Frolov, *Opt. Lett.* **47**(47), 3147 (2022).
38. Б. В. Румянцев, А. В. Пушкин, Ф. В. Потемкин, *Письма в ЖЭТФ* **118**(4), 270 (2023).

Металлическая пленка на подложке в магнитном поле как магнитоплазменная замедляющая система СВЧ-ТГц диапазонов

М. В. Давидович¹⁾

Саратовский национальный исследовательский государственный университет им. Н. Г. Чернышевского,
410012 Саратов, Россия

Поступила в редакцию 11 октября 2023 г.

После переработки 18 декабря 2023 г.

Принята к публикации 19 декабря 2023 г.

Рассмотрены магнитоплазмы вдоль тонкой металлической или хорошо проводящей полупроводниковой пленки при их движении вдоль внешнего сильного магнитного поля в плоскости пленки, а также для пленки на диэлектрической подложке. Дисперсионные уравнения для гибридных волн получены строгим методом и в приближении тонких пленок путем ведения поверхностных проводимостей. Показана возможность наличия медленных магнитоплазмов в СВЧ и ТГц диапазонах. Рассматриваемые структуры могут использоваться как замедляющие системы для усилителей бегущей волны, в частности, ЛБВ.

DOI: 10.31857/S1234567824030066, EDN: spmurq

Для создания терагерцевых частот (ТГц) ЛБВ необходимы замедляющие системы (ЗС) с микронными размерами, что требует использования прецизионных MEMS технологий типа LIGA [1]. В таких усилителях бегущей волны перспективны широкие и тонкие ленточные электронные пучки [1, 2]. Для их фокусировки используют продольное магнитное поле с индукцией порядка 1 Тл [1, 2]. Оно создается массивными магнитными системами из редкоземельных постоянных магнитов [1]. Для увеличения мощности используют релятивистские приборы, для которых замедление может варьироваться в пределах от 2 до 5. Такие и существенно больше замедления можно получить для плазмон-поляритонов (ПП), распространяющихся вдоль тонких проводящих металлических, полупроводниковых, или графеновых пленок типа двумерного электронного газа (ДЭГ), расположенных на диэлектрических подложках [3–8]. В данной работе под термином “металлические” мы понимаем хорошо проводящие пленки ДЭГ, описываемые диэлектрической проницаемостью (ДП) модели Друде–Лоренца металла, в том числе и выполненные из легированных хорошо проводящих полупроводниковых материалов. В тонких металлических пленках без использования магнитного поля при комнатной температуре возможны замедления порядка до 10 на частотах $\omega \sim 0.1\omega_p$ [4] при относительно малых потерях. Здесь ω_p – плазменная частота (ПЧ). Для хороших металлов ПЧ лежат в ультрафиоле-

товом (УФ) диапазоне, а в ТГц диапазоне это замедление чуть больше единицы. Однако использование сильного магнитного поля может существенно менять замедление, что до сих пор не рассматривалось и не исследовалось. Имеется работы по магнитоплазмам (МП) в проводящих полупроводниковых пленках [3–7]. В [3] рассмотрены поверхностные МП, распространяющиеся перпендикулярно магнитному полю, что отличается от нашего случая. В [4–7] рассмотрено возбуждение МП. В [8] рассмотрены блоховские МП в периодических плоскостойных структурах. В [9] рассмотрены МП в ферромагнитной пленке (Co), обложенной слоями золота. Строгие дисперсионные уравнения (ДУ) МП, распространяющихся вдоль магнитного поля, не рассматривались.

Для работы в ТГц диапазоне надо на порядки снижать ПЧ. Желательно снижать и частоту столкновений (ЧС). Переход в ТГц диапазон может быть достигнут для МП, тем более что сильные фокусирующие продольные магнитные поля в ЗС ЛБВ уже имеются. Далее рассмотрены возможности перехода, как для комнатных, так и для криогенных температур. ДЭГ описывается поверхностной плотностью тока $\mathbf{j}$ и предполагает введение поверхностной проводимости σ . Для тонкой металлической пленки с ДП металла ε_m плотность тока поляризации $\mathbf{J}_p = i\omega\varepsilon_0(\varepsilon_m - 1)\mathbf{E}_\tau$, где $\mathbf{E}_\tau$ – касательное к пленке электрическое поле. В пленке с толщиной t в несколько нм можно считать поле $\mathbf{E}_\tau$ постоянным, поэтому она описывается поверхностной проводимостью $\sigma(\omega) = i\omega\varepsilon_0(\varepsilon_m - 1)t$, $\varepsilon_m(\omega) = \varepsilon_L - \omega_p^2/(\omega^2 - i\omega\omega_{co})$,

¹⁾e-mail: davidovichmv@info.sgu.ru

$\omega_p^2 = N_e e^2 / (m_e \varepsilon_0)$. Величина $N_s = N_e t$ определяет число носителей заряда на единицу поверхности, а выражение для поверхностной проводимости можно записать в форме Друде $\sigma(\omega) = \sigma_L + \sigma_{0s} / (1 + i\omega/\omega_{co})$, где $\sigma_L(\omega) = i\omega\varepsilon_0(\varepsilon_L - 1)t$ – поверхностная проводимость, связанная с дисперсией Лоренца ДП ε_L , $\sigma_{0s} = \varepsilon_0 e^2 N_s / \omega_{co}$ – поверхностная проводимость на нулевой частоте. Приближение имеет место при $k_0 t |\sqrt{\varepsilon_m}| \ll 1$ и относится также к тонким диэлектрическим пленкам, в которых проводимость определяется током поляризации. Формально переход к диэлектрическому случаю соответствует взятию $N_s = 0$. Переход от диэлектрика ($t \gg L_D$) к металлу ($t \ll L_D$) определяется соотношением между толщиной и длиной экранирования Дебая $L_D = \sqrt{\varepsilon_0 \varepsilon k_B T / (N_e e^2)}$. В ТГц диапазоне хорошим материалом для ДЭГ может служить монослой графена или n -слойный графен (α -графит). В таких структурах возможно усиление ПП ленточными электронными пучками, а также в случае оптически накачанного графена усиление (или компенсация потерь) за счет активного оптически накачанного графенового листа [10, 11]. В данной работе получены новые ДУ для МП, распространяющихся вдоль магнитного поля, и показана возможность получения замедленных МП, что может быть важно для ТГц электроники.

Мы рассматриваем тонкий металлический или полупроводниковый слой (пленку) ДЭГ как ЗС. Располагаем ось x перпендикулярно поверхности пленки. Координаты в пленке $\mathbf{r} = y_0 y + z_0 z$, а в двумерном k -пространстве $\mathbf{k} = y_0 k_y + z_0 k_z$. Зависимость от $\mathbf{k}$ означает пространственную дисперсию (ПД). При $k_y = 0$ ПД означает зависимость только от замедления $n = n_z = k_z / k_0$. Структура не ограничена по y и z , поэтому зависимость волн $\exp(i\omega\tau - i\mathbf{k}\mathbf{r} - ik_x x)$. Как частный случай будем рассматривать ПП вдоль полупространства. Без магнитного поля металл в модели Друде–Лоренца описывается скалярной диэлектрической проницаемостью (ДП) $\varepsilon_m = \varepsilon_L - \omega_p^2 / (\omega^2 - i\omega\omega_{co})$, как и диэлектрик. Формально переход к диэлектрику осуществляется при $\omega_p = 0$ (отсутствие свободных зарядов). Поэтому далее ДП пленки будем обозначать $\varepsilon_m = \varepsilon$, а ДП диэлектрической подложки как ε_d . Вводим нормированные (на импеданс $\eta_0 = \sqrt{\mu_0/\varepsilon_0} = 376.73$ Ом) волновые импедансы $\rho_e = y_e^{-1} = k_z / (k_0 \varepsilon)$, $\rho_h = y_h^{-1} = k_0 \mu / k_z$ Е-волн и Н-волн вдоль оси x (нормали). Здесь μ – магнитная проницаемость изотропной среды. Тогда $k_x = \sqrt{k_0^2 \varepsilon \mu - \mathbf{k}^2}$, $\mathbf{k}^2 = k^2 = k_y^2 + k_z^2$. При падении Е-волны из вакуума структура на границе имеет входную нормированную проводимость $Y_{in} = y_e$. При скалярной σ имеем условие возникновения Е-ПП $y_e + \sigma = -y_{0e}$. Здесь

$y_{0e} = k_0 / k_{0x} = k_0 / \sqrt{k_0^2 - \mathbf{k}^2}$ – проводимости Е-волны в вакууме. Для Е-ПП вдоль границы диэлектрического полупространства сразу следует явное дисперсионное уравнение (ДУ) Ценнека $k_z = k_0 \sqrt{\varepsilon / (\varepsilon + 1)}$, а для проводящей пленки в среде с ДП ε_d имеем ДУ $2y_e + \sigma = 0$ или $k_z = k_0 \sqrt{\varepsilon_d - (2\varepsilon_d - (2\varepsilon_d/\sigma))^2}$. Для Н-ПП получаем ДУ $k_z = k_0 \sqrt{\varepsilon_d - (\sigma/2)^2}$. Для Е-ПП вдоль поверхности магнитодиэлектрического полупространства явное ДУ Ценнека приобретает вид $k_z = k_0 \sqrt{\varepsilon(\varepsilon - \mu) / (\varepsilon^2 - 1)}$, а для Н-ПП соответственно $k_z = k_0 \sqrt{\mu(\mu - \varepsilon) / (\varepsilon^2 - 1)}$. Вдоль диэлектрического полупространства этот ПП не существует. ДУ для слоя конечной толщины приведены в [12]. Они неявные. Эти ДУ получены при отсутствии внешнего магнитного поля. В случае проводящей пленки оно усложняет ДУ.

Тонкие металлические (проводящие) пленки ДЭГ во внешнем магнитном поле приближенно можно описать моделями электрической поверхностной проводимости. При этом такие проводимости уже тензорные, а структуры невзаимные и гиротропные. Строгие ДУ для можно построить на основе метода объемных интегральных уравнений [13], или путем использования коммерческих пакетов программ электродинамического моделирования. Это неудобно для моделирования дисперсии. В области больших замедлений для ферритовых пленок используют магнитостатическое приближение. Электростатическое приближение возможно, но для сильно замедленных МП, что реально может не выполняться.

Получим сначала строгие ДУ для тонкой пленки, а затем приближенные ДУ на основе модели двумерной проводимости, включая и пленку на подложке. Рассмотрим тонкую проводящую пленку во внешнем постоянном магнитном поле $\mathbf{H} = H_{0z} \mathbf{z}_0$. Используем плазменную модель ДП металла

$$\begin{aligned} \varepsilon_{xx}(\omega) &= \varepsilon_{yy} = \varepsilon_x = \varepsilon_L - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - \omega_H^2 - i\omega\omega_{co}}, \\ \varepsilon_{xy}(\omega) &= -\varepsilon_{yx} = \frac{-i\omega_p^2 \omega_H}{\omega(\omega^2 - \omega_H^2 - i\omega\omega_{co})} = -ib, \\ \varepsilon_{zz}(\omega) &= \varepsilon(\omega) = \varepsilon_L - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - i\omega\omega_{co}}. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь $\omega_p^2 = N_e e^2 / (\varepsilon_0 m_e)$ – ПЧ, $\omega_H = \mu_0 H_{0z} e / m_e$ – циклотронная частота, ω_{co} – ЧС, ε_L – терм Лоренца. Вплоть до оптических частот он почти постоянный и действительный. Для серебра можно взять $\varepsilon_L = 9.3$, $\omega_p = 1.57 \cdot 10^{16}$ Гц. При температуре 300 К для серебра $\omega_{co} = 3.56 \cdot 10^{13}$ Гц. Эти значения получены с учетом концентрации электронов, экспе-

риментального значения проводимости на постоянном токе и экспериментального значения частоты перехода реальной части ДП через нуль. Для меди $\varepsilon_L = 13.09$, $\omega_p = 1.65 \cdot 10^{16}$ Гц, $\omega_c = 4.23 \cdot 10^{13}$ Гц. Для металлов ЧС обратна пропорциональна температуре, а концентрация N_e и ПЧ практически от нее не зависят. При температуре порядка 1 К можно взять $\omega_{co} \approx 10^{11}$. Для полупроводников используем связь концентрации с температурой и шириной запрещенной зоны. Для ДЭГ в виде пленки InSb или легированного n -InSb имеем $\varepsilon_L = 17.0$, для n -GaAs (легированного кремнием) $\varepsilon_L = 14.0$. ПЧ тогда при комнатной температуре попадает в ИК диапазон, а при криогенных температурах сильно снижается, но может существенно быть повышена путем легирования. ЧС можно сдвинуть в СВЧ диапазон, используя жидкий азот. Для проводимости имеем $\sigma_{xx} = \sigma_{yy} = \xi_{xx}\eta_0^{-1} = ik_0t\eta_0^{-1}(\varepsilon_x - 1)$, $\sigma_{xy} = -\sigma_{yx} = k_0t\eta_0^{-1}b$, $\sigma_{xz} = \sigma_{zx} = \sigma_{yz} = \sigma_{zy} = 0$, $\sigma_{zz} = ik_0t\eta_0(\varepsilon - 1)$. Если магнитное поле нормально к пленке, т.е. $\mathbf{H} = H_0\mathbf{x}_0$, то следует везде заменить $x \leftrightarrow z$, т.е. взять $\sigma_{xx} = ik_0t\eta_0^{-1}(\varepsilon - 1)$, $\sigma_{xy} = \sigma_{yx} = 0$, $\sigma_{xz} = -\sigma_{zx} = k_0t\eta_0^{-1}b$, $\sigma_{zz} = k_0t\eta_0^{-1}\omega_p^2\omega_H/(\omega^3 - \omega_H^2\omega - i\omega^2\omega_{co})$. Заметим, что в этом случае при $z \rightarrow -z$ компонента σ_{xz} изменяет знак, т.е. имеет место невязность. Будем искать ПП с зависимостями от поперечной координаты $\exp(-ik_{mx}x)$, причем в области вакуума ($m = 0$) брать $k_{0x} = \sqrt{k_0^2 - k_z^2}$, в области пленки ($m = 1$) $k_{1x} = k_x$, в области диэлектрической подложки или полупространства ($m = 2$) $k_{2x} = \sqrt{k_0^2\varepsilon_d - k_z^2}$. Рассматриваем бесконечные по осям y и z структуры рис. 1 (вставка) и полагаем $k_y = 0$, т.е. независимость от координаты y . Уравнения Максвелла принимают вид

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_x & -ib & 0 \\ ib & \varepsilon_x & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \frac{1}{k_0} \begin{pmatrix} 0 & k_z & 0 \\ -k_z & 0 & k_z \\ 0 & -k_x & 0 \end{pmatrix}, \quad (2)$$

$$\begin{pmatrix} h_x \\ h_y \\ h_z \end{pmatrix} = \frac{1}{k_0} \begin{pmatrix} 0 & -k_z & 0 \\ k_z & 0 & -k_x \\ 0 & k_x & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix}. \quad (3)$$

Для удобства введено нормированное магнитное поле $\mathbf{h} = \eta_0\mathbf{H}$ с размерностью электрического поля В/м. Везде опущен общий множитель $\exp(i\omega\tau - ik_zz)$ для компонент полей (время τ далее нигде не фигурирует). Подставляя (3) в (2), получаем

$$\begin{pmatrix} k_0^2\varepsilon_x - k_z^2 & -ibk_0^2 & -k_xk_z \\ ibk_0^2 & k_0^2\varepsilon_x - k_x^2 - k_z^2 & 0 \\ -k_xk_z & 0 & k_0^2\varepsilon - k_x^2 \end{pmatrix} \times$$

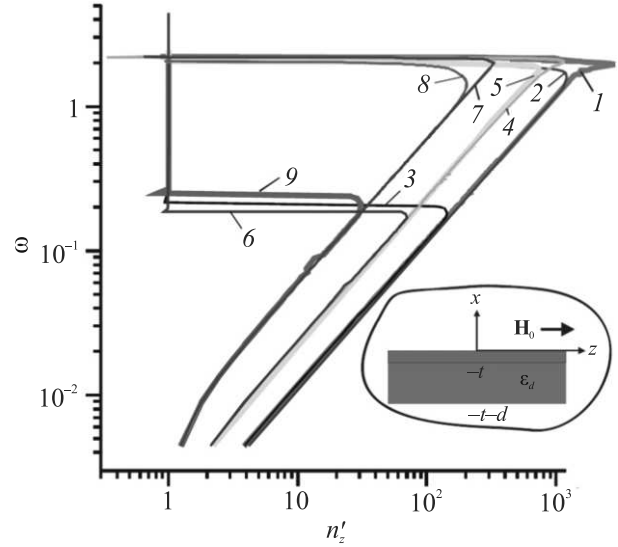


Рис. 1. (Цветной онлайн) Дисперсия МП (частота ω в ТГц в зависимости от замедления $n' = k'_z/k_0$) в серебряной пленке при разных толщинах (нм) и температурах (К): кривая 1 – $t = 10$, $T = 2$; 2 – $t = 10$, $T = 10$; 3 – $t = 10$, $T = 77$; 4 – $t = 5$, $T = 2$; 5 – $t = 5$, $T = 10$; 6 – $t = 5$, $T = 77$; 7 – $t = 10$, $T = 2$; 8 – $t = 10$, $T = 10$; 9 – $t = 10$, $T = 77$, $\omega_H = 1.76$ ТГц

$$\times \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = 0. \quad (4)$$

Равенство нулю определителя в (4) приводит к дисперсионному уравнению Френеля (УФ)

$$(k_0^2\varepsilon_x\varepsilon - k_z^2\varepsilon - k_x^2\varepsilon)(k_0^2\varepsilon_x - k_z^2 - k_x^2) - b^2k_0^2(k_0^2\varepsilon - k_x^2) = 0. \quad (5)$$

Это биквадратное уравнение как относительно k_z , так и относительно k_x :

$$k_{(x,z)\pm} = B_{(x,z)} \pm \sqrt{B_{(x,z)}^2 - C_{(x,z)}}. \quad (6)$$

Здесь обозначено: $B_x = [k_0^2(\varepsilon_\tau^2/\varepsilon_x + \varepsilon) - k_z^2(1 + \varepsilon/\varepsilon_x)]/2$, $B_z = k_0^2(\varepsilon + \varepsilon_x)/2 - k_x^2(1 + \varepsilon_x/\varepsilon)/2$, $C_x = k_z^2\varepsilon/\varepsilon_x - 2k_0^2\varepsilon k_z^2 + k_0^4\varepsilon_\tau^2(\varepsilon/\varepsilon_x)$, $C_z = (k_0^2\varepsilon - k_x^2)(k_0^2\varepsilon_\tau^2/\varepsilon - k_x^2\varepsilon_x/\varepsilon)$, $\varepsilon_\tau^2 = \varepsilon_x^2 - b^2$. Также имеем $B_x = [(k_0^2\varepsilon_x - k_z^2)(1 + \varepsilon/\varepsilon_x) - b^2k_0^2/\varepsilon_x]/2$, $C_x = (k_0^2\varepsilon_x - k_z^2 - b)(k_0^2\varepsilon_x - k_z^2 + b)\varepsilon/\varepsilon_x$. Мы ставим индексы $\pm$ в соответствие со знаками перед корнем в (6). Тогда получаем $k_{(x,z)\pm} = \pm \sqrt{B_{(x,z)} \pm \sqrt{B_{(x,z)}^2 - C_{(x,z)}}}$. Знаки берутся независимо, т.е. имеем четыре корня. Пусть ветвь корня для $k_{x\pm} = k'_{x\pm} - ik''_{x\pm}$ выбрана так, что знак “+” перед внешним корнем соответствует прямой (падающей), а знак “–” определяет противоположную (отраженную) волну вдоль оси x . Можно по-разному

выбирать прямую волну: по направлению движения фазы: $\text{Re}(k_{x+}) > 0$, или по направлению движения энергии: $\text{Im}(k_{x+}) < 0$. В данном случае используем первый вариант. Далее величина $k_z = k'_z - ik''_z$ подлежит определению (в формулах считается заданной), причем при определении берем $\text{Re}(k_z) = k'_z > 0$. Тем самым за положительное направление рассматриваем движение фазы в направлении оси z . При заданном k_z имеем четыре значения k_x . При $k''_{x+} > 0$ волна $\exp(-ik'_{x+}x - k''_{x+}x)$ затухает вдоль x , а противоположная волна с $-k_{x+}$ возрастает. Такая волна прямая: ей соответствует условие $k'_z k''_z > 0$ (затухание вдоль движения фазы). В обратной волне имеем условие $k'_z k''_z < 0$, т.е. движение затухания (энергии) противоположно движению фазы [12]. В бесконечной среде можно взять $k_x = 0$, и тогда $k_{z\pm}^2 = k_0^2(\varepsilon_x \pm b)$. Это говорит о том, что в пренебрежении диссипацией в области частот, где $\varepsilon_x \pm b \gg 1$ имеется сильно замедленная плоская циркулярно поляризованная волна. В области частот, где $0 \leq \varepsilon_x \pm b < 1$, эта волна быстрая, а в области частот, где $\varepsilon_x \pm b < 0$, волна затухающая. Полагая $\omega_{co} = 0$, найдем области, где ε_x , ε , b , $\varepsilon_\tau^2/\varepsilon$ и $\varepsilon_\tau 2/\varepsilon_x$ положительные. Для $\varepsilon_x > 0$ это $0 < \omega < \omega_H$ и $\omega > \sqrt{\omega_H^2 + \omega_p^2/\varepsilon_L}$. Для $\varepsilon > 0$ это $\omega > \omega_p/\sqrt{\varepsilon_L}$. Для $b > 0$ это $\omega > \omega_H$. Для $\varepsilon_\tau^2 > 0$ граница области определяется уравнением третьей степени $\omega^3 - \omega(\omega_H^2 + \omega_p^2/\varepsilon_L) = \omega_p^2 \omega_H/\varepsilon_L$. Оно имеет корень $\omega = \omega_H$, поэтому $\omega > \omega_H$. Для $\varepsilon_\tau^2/\varepsilon > 0$ это $\omega < \omega_H$ и $\omega > \omega_p/\sqrt{\varepsilon_L}$. Для $\varepsilon_\tau^2/\varepsilon_x$ это $\omega > \sqrt{\omega_H^2 + \omega_p^2/\varepsilon_L}$. Сильная диссипация существенно изменяет такие границы для реальных частей указанных величин. Под сильной диссипацией понимаем ЧС $\omega_c \sim \omega_H$ и более. Для хороших металлов при комнатной температуре диссипация сильная: $\omega_c \gg \omega_H$. Тогда около резонанса $(\omega_H - \omega)^2 \ll \omega \omega_c \approx \omega_H \omega_c$, и имеем $\varepsilon \approx \varepsilon_x \approx -i\omega_p^2/(\omega \omega_c)$, т.е. $\varepsilon/\varepsilon_x \sim 1$. Как будет показано выше (рис. 1), в этом случае при $\omega \approx \omega_H$ возможна медленная поверхностная волна с $k_x^2 \approx -k_z^2 < 0$. При слабой диссипации $\omega_{co} \ll \omega_H$ имеем $\varepsilon/\varepsilon_x \sim 1 - \omega + H^2/\omega^2$. В случае $\omega < \omega_H$ возможен объемный МП с $k_x^2 \approx -k_z^2 \varepsilon/\varepsilon_x > 0$. Под объемным понимаем колебания полей в объеме пленки. При $\omega > \omega_H$ этот МП становится поверхностным, т.е. затухающим вглубь пленки. На резонансе МП сильно диссипативный.

Цель работы показать, что для проводящего слоя или пленки конечной толщины t порядка нескольких нм в СВЧ и ТГЧ диапазонах возможны медленные МП. В СВЧ области $\omega \sim 10^{10}$ для металлов имеем $\varepsilon/i \approx_p^2 /(\omega \omega_{co}) \sim 10^9$. Пусть диссипа-

ция слабая: $\omega_H \gg \omega_{co}$. Для индукции 1 Тл имеем $\omega_H = 0.176$ ТГц. Поэтому для снижения ω_{co} на два и более порядка необходимы криогенные температуры или весьма большие индукции. Получить индукции более 2 Тл на редкоземельных магнитах проблематично из-за насыщения. Лабораторно получены постоянные индукции порядка десятков (до 45) Тл. Однако это сложные магнитные системы. Поэтому единственный путь для ТГЧ электроники – снижать ЧС. Для In-Sb при температуре жидкого азота ее можно снизить до нескольких ГГц. Для металлов для снижения ω_{co} на два порядка требуется жидкий гелий. Представляет интерес использование сверхпроводящих металлических пленок ДЭГ. В ТГЧ диапазоне энергия кванта $\hbar\omega \sim 10^{-2}$ эВ, и энергия связи куперовских пар в таких пленках должна быть существенно выше. Соответственно необходимо определять высокочастотный импеданс пленки ДЭГ на подложке. Интересен случай $\omega_H \sim \omega_p$, реализуемый для полупроводниковых материалов, например, в InSb или n-InSb. Концентрация носителей при $T = 300$ К в недопированном InSb $N = 2 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$, что при $B_z = 1$ Тл и эффективной массе электронов $0.013m_e$ соответствует $\omega_p = 7$ ТГц и $\omega_H = 13.5$ ТГц. Для InSb ширина запрещенной зоны 0.172 эВ, коэффициент температурного изменения ширины запрещенной зоны $-2.8 \cdot 10^{-4}$ эВ/К, зависимость подвижности от температуры $\mu \sim T^{-3/2}$. При собственной удельной проводимости $3 \cdot 10^4 \text{ См/м}$ при $T = 300$ К и $3 \cdot 10^2 \text{ См/м}$ при $T = 77$ К [14] получаем оценки: $\omega_{co} = 1.4 \cdot 10^{10}$ Гц при $T = 300$ и при $T = 77$ К концентрацию $N = 1.5 \cdot 10^{20}$, ПЧ $\omega_p = 0.6$ ТГц и ЧС $\omega_c = 0.106$ ГГц. Легируя n-InSb до концентраций $N = 2 \cdot 10^{23}$, имеем $\omega_p = 22$ ТГц и $\omega_c = 3.9$ ГГц. Таким образом, использование жидкого азота и допирование позволяет снизить ЧС в СВЧ диапазон, при этом получить ПЧ и циклотронную частоту в ТГЧ диапазоне. Отметим, что проводимость сильно легированного n-InSb слабо зависит от температуры. Для нелегированного GaAs с концентрацией носителей заряда $5 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$ и эффективной массой электронов $0.067m_e$ получаем $\omega_p = 1.5 \cdot 10^{13}$ Гц при $T = 300$ К. Аналогично можно использовать пленки ДЭГ из других полупроводников или полуметаллов, например, из германия и теллура. При концентрации носителей $4.0 \cdot 10^{19} \text{ м}^{-3}$ в собственном германии при $T = 300$ К и эффективных массах электронов $0.55m_e$ и дырок $0.388m_e$ получаем весьма низкую ПЧ $\omega_p = 5 \cdot 10^6$ Гц, для продвижения которой в ТГЧ диапазон концентрацию надо повышать на несколько порядков. Для теллура при $T = 77$ К концентрация дырок имеет порядок 10^{19} м^{-3} , и имеем такой

же порядок ПЧ, как и для германия, но при существенно меньшей ЧС. Для бесщелевого теллурида ртути HgTe при $T = 4.2$ К концентрация электронов 10^{21} м^{-3} при эффективной массе $0.013m_e$ и подвижности $10^8 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ [15], что приводит к $\omega_P = 2.6 \cdot 10^{13}$ и весьма малой ЧС $3.74 \cdot 10^6$ Гц. Таким образом, можно создать пленку ДЭГ, описываемую ДП металла с ПЧ и циклотронной частотой в ТГЦ диапазоне, а ЧС, лежащей существенно ниже: в СВЧ диапазоне или даже в мегагерцовой области.

Рассмотрим ДУ для конечных по оси x структур. Пусть ищется значение k_z . Фиксируя его, из УФ определяем два значения $k_{x\pm}^2$. Определение k_z осуществляется путем его приближенного задания с последующим уточнением итерациями на основе полученного ДУ. Поэтому из четырех значений $\pm k_{x\pm}$ всегда можно определить два: k_{x+} и k_{x-} , например, соответствующие переносу энергии вдоль оси x . С тем же успехом можно выбрать ветвь корня из условия $\text{Re}(k_x)$, т.е. из условия движения фазы. В вакууме будем рассматривать Е-волны и Н-волны вдоль оси x . Внутри пленки волны гибридные. Вводим обозначения $n_x = k_x/k_0$, $n_z = k_z/k_0$. Обозначая $\varepsilon_\tau^2 = (\varepsilon_x^2 - b^2)$, из уравнений (2) выражаем электрические компоненты через магнитные и магнитные через электрические:

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \frac{1}{\varepsilon_\tau^2} \begin{pmatrix} \varepsilon_x & ib & 0 \\ -ib & \varepsilon_x & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_\tau^2/\varepsilon \end{pmatrix} \begin{pmatrix} n_z h_y \\ n_x h_z - n_z h_x \\ -n_x h_y \end{pmatrix}, \quad (7)$$

$$\begin{pmatrix} h_x \\ h_y \\ h_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & -n_z & 0 \\ n_z & 0 & -n_x \\ 0 & n_x & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -n_z E_y \\ n_x E_x - n_x E_z \\ n_x E_y \end{pmatrix}. \quad (8)$$

Матрица в (7) обратная матрице слева в формуле (2). Подставляя первое уравнение во второе, получаем $(\varepsilon_\tau^2 - n_z^2 \varepsilon_x) h_x - ib n_z^2 h_y + n_z n_x \varepsilon_x h_z = 0$, $ib n_z^2 h_x + (\varepsilon_\tau^2 - n_z \varepsilon_x n_z - n_x^2 \varepsilon_\tau^2/\varepsilon) h_y - ib n_z n_x h_z = 0$, $n_z n_x \varepsilon_x h_x + (\varepsilon_\tau^2 - n_x n_x \varepsilon_x) h_z + ib n_x n_z h_y = 0$. Определитель этой системы должен обращаться в нуль, откуда следует другой вид того же самого УФ. Выразим из первых двух уравнений продольные (касательные к пленке) компоненты через поперечную компоненту h_y :

$$h_y = \beta_y h_x = -\frac{ib \varepsilon_\tau^2}{\varepsilon_\tau^2 \varepsilon_x (1 - n_x^2/\varepsilon) - n_z^2 \varepsilon_x \varepsilon_z + b^2 n_z^2} h_x,$$

$$h_z = \beta_z h_x =$$

$$= \frac{b^2 n_z^4 - (\varepsilon_\tau^2 - n_z^2 \varepsilon_x)(\varepsilon_\tau^2 - n_z^2 \varepsilon_x - n_x^2 \varepsilon_\tau^2/\varepsilon)}{b^2 n_z^2 n_x + n_z n_x \varepsilon_x (\varepsilon_\tau^2 - n_z^2 \varepsilon_x - n_x^2 \varepsilon_\tau^2/\varepsilon)} h_x.$$

Подставляя их в последнее уравнение, получим УФ

$$\begin{aligned} & (n_x n_z)^2 \varepsilon_x + (\varepsilon_\tau^2 - n_x n_x \varepsilon_x) \times \\ & \times \frac{b^2 n_z^4 - (\varepsilon_\tau^2 - n_z^2 \varepsilon_x)(\varepsilon_\tau^2 - n_z^2 \varepsilon_x - n_x^2 \varepsilon_\tau^2/\varepsilon)}{b^2 n_z^2 + \varepsilon_x (\varepsilon_\tau^2 - n_z^2 \varepsilon_x - n_x^2 \varepsilon_\tau^2/\varepsilon)} = \\ & = \frac{b^2 \varepsilon_\tau^2 (n_x n_z)^2}{\varepsilon_x (\varepsilon_\tau^2 - n_z^2 \varepsilon_x - n_x^2 \varepsilon_\tau^2/\varepsilon) + b^2 n_z^2}. \end{aligned}$$

Подставляя теперь (8) в (7), получим уравнения $(\varepsilon_\tau^2 - \varepsilon_x n_z^2)(E_x - ib(n_x^2 + n_z^2)E_y + \varepsilon_x n_x n_z E_z) = 0$, $ib n_z^2 E_x + (\varepsilon_\tau^2 - \varepsilon_x(n_x^2 + n_z^2))E_y - ib n_x n_z E_z = 0$, $n_x n_z E_x + (\varepsilon - n_x^2)E_z = 0$, и УФ вида $(\varepsilon_\tau^2 - \varepsilon_x(n_x^2 + n_z^2))[\varepsilon_\tau^2 - n_x^2 \varepsilon_\tau^2/\varepsilon - n_z \varepsilon_x] - b^2 n_z^2(n_x^2 + n_z^2) = 0$. Мы получили разные виды одного и того же УФ. Из полученной системы уравнений следует

$$E_y = \alpha_y E_x = \frac{ib \varepsilon_\tau^2}{b^2(n_x^2 + n_z^2) + \varepsilon_x(\varepsilon_\tau^2 - \varepsilon_x(n_x^2 + n_z^2))} E_x, \quad (9)$$

$$E_z = \alpha_z E_x = \quad (10)$$

$$= -\frac{(\varepsilon_\tau^2 - \varepsilon_x n_z^2)(\varepsilon_\tau^2 - \varepsilon_x(n_x^2 + n_z^2)) - b^2(n_x^2 + n_z^2)n_z^2}{\varepsilon_x n_x n_z (\varepsilon_\tau^2 - \varepsilon_x(n_x^2 + n_z^2)) + b^2(n_x^2 + n_z^2)n_x n_z} E_x.$$

т.е. электрические касательные компоненты выражены через поперечную компоненту E_x . Теперь для касательных в плоскости пленки компонент полей из (7) и (8) имеем $E_y = [\varepsilon_x(n_x h_z - n_z h_x) - ib n_z h_y]/\varepsilon_\tau^2$, $E_z = -n_x h_y/\varepsilon$, $h_y = n_z E_x - n_x E_z = n_z \varepsilon E_x/(\varepsilon - n_x^2)$, $h_z = n_x E_y$. Подставляя магнитные компоненты в электрические компоненты и наоборот, получим

$$E_y = -n_z \frac{\varepsilon_x(\varepsilon - n_x^2)h_x + ib n_z \varepsilon E_x}{(\varepsilon_\tau^2 - \varepsilon_x n_x^2)(\varepsilon - n_x^2)}, \quad (11)$$

$$E_z = \frac{n_x n_z}{n_x^2 - \varepsilon} E_x = \alpha_{zx} E_x, \quad (12)$$

$$h_y = \frac{n_z \varepsilon}{\varepsilon - n_x^2} E_x = y_{ez} E_x, \quad (13)$$

$$h_z = -\frac{n_x n_z \varepsilon_x (\varepsilon - n_x^2) h_x + ib n_x n_z^2 \varepsilon E_x}{(\varepsilon_\tau^2 - n_x n_x \varepsilon_x)(\varepsilon - n_x^2)}. \quad (14)$$

Осталось два неиспользованных уравнения Максвелла системы (7), (8): $\varepsilon_\tau^2 E_x = \varepsilon_x n_z h_y + ib(n_x h_z - n_z h_x)$ и $h_x = -n_z E_y$. Подставляя в них поперечные компоненты, имеем

$$E_x = -\frac{ib n_z (\varepsilon - n_x^2) \varepsilon_\tau^2}{(\varepsilon_\tau^2 (\varepsilon - n_x^2) - n_z^2 \varepsilon_x \varepsilon) (\varepsilon_\tau^2 - n_z^2 \varepsilon) - b^2 n_z^2 n_z^2 \varepsilon} h_x,$$

$$h_x = \frac{ibn_z^3 \varepsilon}{(\varepsilon_\tau^2 - \varepsilon_x n_x^2)(\varepsilon - n_x^2) - n_z^2 \varepsilon_x (\varepsilon - n_x^2)} E_x.$$

Эти уравнения говорят о том, что моды гибридные, и полагать отдельно $E_x = 0$ или $h_x = 0$ нельзя. Связь исчезает при снятии магнитного поля ($\varepsilon_x = \varepsilon$, $b = 0$). Подставляя второе уравнение в первое, имеем еще один вид УФ. Пусть волна весьма медленная, т.е. $|k_z| \gg k_0$. Используя первый полученный вид УФ, пренебрегая в нем k_0 по сравнению с $k_z = 0$, т.е. полагая $k_0 = 0$ (электростатическое приближение), получим $k_x^2 \approx k_z^2 [-(\varepsilon_x + \varepsilon) \pm (\varepsilon_x - \varepsilon)] / (2\varepsilon_x)$ и два приближенных корня: $k_{x1}^2 \approx -k_z^2 \varepsilon / \varepsilon_x$ и $k_{x2}^2 \approx -k_z^2$. Пусть потери весьма малы: $\omega \gg \omega_{co}$. Тогда можно считать ε большой по модулю и отрицательной. Вблизи резонанса величина ε_x также большая положительная при $\omega < \omega_H$ и отрицательная при $\omega > \omega_H$. В первом случае для медленной слабо диссипативной волны $k_{x1}^2 > 0$, т.е. волна объемная (в пленке имеются вариации полей, описываемые тригонометрическими функциями). Во втором случае волна поверхностная: поля внутри пленки экспоненциально затухают. Для корня $k_{x2}^2 \approx -k_z^2$ волна всегда поверхностная. Уравнение (11) можно записать в виде $E_y = -\rho_{hz} h_x + \alpha_{yx} E_x$, где $\rho_{hz} = n_z \varepsilon_x / (\varepsilon_\tau^2 - \varepsilon_x n_x^2)$, $\alpha_{yx} = -ibn_z^2 \varepsilon_x / [(\varepsilon_\tau^2 - \varepsilon_x n_x^2)(\varepsilon - n_x^2)]$. Аналогично для уравнения (14) имеем $h_z = \beta_{zx} h_x - y_{hy} E_x$, где $\beta_{zx} = -n_x n_z \varepsilon_x / (\varepsilon_\tau^2 - n_x^2 \varepsilon_x)$, $y_{hy} = ibn_x \varepsilon / [(\varepsilon_\tau^2 - n_x^2 \varepsilon_x)(\varepsilon - n_x^2)]$. Здесь введены нормированные волновые сопротивления и проводимости (обратные им величины) относительно отдельных осей, которые обозначены соответствующими индексами. Введем также сопротивления $\rho_{hx} = 1/n$ и $\rho_{ex} = -E_z/h_y = n_x/\varepsilon$. При снятии магнитного поля $\rho_{hx} = E_y/h_z$. В вакууме соответствующие величины будем обозначать $\rho_{0h} = 1/\sqrt{1-n^2}$ и $\rho_{0e} = \sqrt{1-n^2}$. При снятии магнитного поля также $\alpha_{yx} = y_{hy} = 0$, $\beta_{zx} = -n_x n_z / (\varepsilon - n_x^2)$. Теперь касательные поля внутри пленки можно представить в виде

$$\begin{aligned} E_x(x) &= E_1^+ \exp(-ik_{xm}x) + E_1^- \exp(ik_{xm}x), \\ h_x(x) &= h_z^+ \exp(-ik_{xm}x) - h_1^- \exp(ik_{xm}x), \\ E_y(x) &= (\alpha_{yx} E_1^+ - \rho_{hz} h_1^+) \exp(-ik_{xm}x) + \\ &+ (\alpha_{yx} E_1^- + \rho_{hz} h_1^-) \exp(ik_{xm}x), \end{aligned} \quad (15)$$

$$\begin{aligned} E_z(x) &= \alpha_{zx} E_1^+ \exp(-ik_{xm}x) - \alpha_{zx} E_1^- \exp(ik_{xm}x), \\ h_y(x) &= y_{ez} E_1^+ \exp(-ik_{xm}x) + y_{ez} E_1^- \exp(ik_{xm}x), \\ h_z(x) &= (\beta_{zx} h_1^+ - y_{hy} E_1^+) \exp(-ik_{xm}x) + \\ &+ (\beta_{zx} h_1^- - y_{hy} E_1^-) \exp(ik_{xm}x). \end{aligned}$$

Здесь $m = 1, 2$, и все коэффициенты зависят от k_{xm} (соответственно, от n_{xm}), причем $\alpha_{zx}(-k_{xm}) = -\alpha_{zx}(k_{xm})$, $\beta_{zx}(-k_{xm}) = -\beta_{zx}(k_{xm})$, а все остальные зависят квадратично, т.е. не меняют знак для волн противоположного направления. Поскольку $\mathbf{h}$ – псевдо-вектор, мы изменили знак у h_1^- , хотя это не принципиально. В вакууме при $z > 0$ рассмотрим Е-волны и Н-волны вдоль оси x , при этом только уходящие от структуры. В вакууме при $-t < z$ также рассмотрим только волны, уходящие от структуры. Это соответствует концепции излучения вытекающей волны. С таким же успехом можно взять только сходящиеся (втекающие) волны [10]. Эквивалентный способ задания волн – рассматривать затухание от структуры в случае медленной волны. Это обычно используют, когда $k_z > k_0$ и действительное, что у нас не имеет места. Итак, в вакууме при $x > 0$

$$\begin{aligned} E_y(x) &= E_{0y}^+ \exp(-ik_{0x}x), \\ h_z(x) &= y_{0h} E_{0y}^+ \exp(-ik_{0x}x), \\ E_z(x) &= E_{0z}^+ \exp(-ik_{0x}x), \\ h_y(x) &= -y_{0e} E_{0z}^+ \exp(-ik_{0x}x). \end{aligned} \quad (16)$$

Здесь $k_{0x} = \sqrt{k_0^2 - k_z^2}$, $y_{0e} = k_0/k_{0x} = 1/n_{0x}$, $y_{0h} = k_{0x}/k_0 = n_{0x} = \sqrt{1-n_z^2}$. В области $-t < z$ у $\exp(-ik_{0x}x)$ амплитуд вместо нулевого индекса будем писать индекс 2 и поменяем плюс на минус, например, $E_{0y}^+ \rightarrow E_{2y}^-$. В формулах (16) теперь следует заменить на $\exp(ik_{0x}(x+t))$ и взять проводимости с отрицательным знаком, поскольку они изменяют знак при изменении знака у k_{0x} . Для первой границы имеем уравнения $\alpha_{yx} E_1^+ - \rho_{hz} h_1^+ a \alpha_{yx} E_1^- + \rho_{hz} h_1^- = E_{0y}^+$, $\alpha_{zx} E_1^+ - \alpha_{zx} E_1^- = E_{0z}^+$, $y_{ez} E_1^+ y_{ez} E_1^- = -y_{0e} E_{0z}^+$, $\beta_{zx} h_1^+ - y_{hy} E_1^+ + \beta_{zx} h_1^- - y_{hy} E_1^- = y_{0h} E_{0y}^+$. Из второго и третьего уравнений получаем $E_1^+ = E_{0z}^+ = E_{0z}^+ (1/\alpha_{zx} - y_{0e}/y_{ez})/2$, $E_1^- = -E_{0z}^+ (1/\alpha_{zx} + y_{0e}/y_{ez})/2$. Подставляя в два других, получаем два уравнения, из которых находим $h_1^+ = (\rho_{hz} a_2 - \beta_{zx} a_1)/(2\beta_{zx} \rho_{hz})$, $h_1^- = (\rho_{hz} a_2 + \beta_{zx} a_1)/(2\beta_{zx} \rho_{hz})$. Здесь

$$\begin{aligned} a_1 &= -\rho_{hz} h_1^+ + \rho_{hz} h_1^- = E_{0y}^+ + E_{0z}^+ \alpha_{yx} (y_{0e}/y_{ez}), \\ a_2 &= \beta_{zx} h_1^+ + \beta_{zx} h_1^- = y_{0h} E_{0y}^+ - E_{0z}^+ y_{hy} (y_{0e}/y_{ez}). \end{aligned}$$

Для второй границы $E_y(-t) = E_{2y}^-$, $h_z(-t) = -y_{0h} E_{2y}^-$, $E_z(-t) = E_{2z}^-$, $h_y(-t) = y_{0e} E_{2z}^-$. Сшивая с полями (15), получаем коэффициенты разложения $E_1^+ = (y_{ez} + y_{0e} \alpha_{zx}) \exp(-ik_{xm}t) E_{2z}^- / (2y_{ez} \alpha_{zx})$, $E_1^- = (y_{0e} \alpha_{zx} - y_{ez}) \exp(ik_{xm}t) E_{2z}^- / (2y_{ez} \alpha_{zx})$, а также $h_1^+ (\rho_{hz} a_4 - \beta_{zx} a_3) \exp(-ik_{xm}t) / (2\beta_{zx} \rho_{hz})$, $h_1^- = (\rho_{hz} a_4 + \beta_{zx} a_3) \exp(ik_{xm}t) / (2\beta_{zx} \rho_{hz})$. Здесь обозначены коэффициенты $a_3 =$

$E_{2y}^- - \alpha_{yx} E_1^+(ik_{xm}t) - \alpha_{yx} E_1^- \exp(-ik_{xm}t)$, $a_4 = -y_{0h} E_{2y}^- + y_{hy} E_1^+ \exp(ik_{xm}t) + y_{hy} E_1^- \exp(-ik_{xm}t)$. Теперь, приравнивая полученные двумя способами коэффициенты, имеем уравнения

$$\begin{aligned} (y_{ez} - \alpha_{zx} y_{0e}) E_{0z}^+ - (y_{ez} + y_{0e} \alpha_{zx}) \exp(-ik_{xm}t) E_{2z}^- &= 0, \\ (y_{ez} + \alpha_{zx} y_{0e}) E_{0z}^+ + (y_{0e} \alpha_{zx} - y_{ez}) \exp(ik_{xm}t) E_{2z}^- &= 0, \\ \rho_{hz} a_2 - \beta_{zx} a_1 &= (\rho_{hz} a_4 - \beta_{zx} a_3) \exp(-ik_{xm}t), \\ \rho_{hz} a_2 + \beta_{zx} a_1 &= (\rho_{hz} a_4 - \beta_{zx} a_3) \exp(ik_{xm}t). \end{aligned}$$

Запишем эту систему уравнений в виде $a_{11} E_{0z}^+ + a_{12} E_{2z}^- = 0$, $a_{21} E_{0z}^+ + a_{22} E_{2z}^- = 0$, $a_{31} E_{0z}^+ + a_{32} E_{2z}^- + a_{33} E_{0y}^+ + a_{34} E_{2y}^- = 0$, $a_{41} E_{0z}^+ + a_{42} E_{2z}^- + a_{43} E_{0y}^+ + a_{44} E_{2y}^- = 0$, где $a_{11} = y_{ez} \alpha_{zx} - y_{0e} \alpha_{zx}$, $a_{12} = -(y_{ez} + y_{0e} \alpha_{zx}) \exp(-ik_{xm}t)$, $a_{21} = y_{ez} \alpha_{zx} + y_{0e} \alpha_{zx}$, $a_{22} = -(y_{0e} \alpha_{zx} - y_{ez}) \exp(ik_{xm}t)$. Приравнивая определитель нулю, получаем два ДУ: $D_1(k_0, k_z) = a_{11} a_{22} - a_{12} a_{21} = 0$ и $D_2(k_0, k_z) = a_{33} a_{44} - a_{34} a_{43} = 0$. Первое принимает вид

$$\frac{y_{ez} - \alpha_{zx} y_{0e}}{y_{ez} + y_{0e} \alpha_{zx}} = \pm \psi = \pm \exp(-ik_{xm}t). \quad (17)$$

При снятии магнитного поля оно суть ДУ Е-ПП с электрической и магнитной стенками в центре пленки [12]. Рассмотрим второе ДУ. В нем $a_{33} = \rho_{hz} y_{0h}$, $a_{34} = (\rho_{hz} y_{0h} \exp(-ik_{xm}t) + \beta_{zx} \exp(-ik_{xm}t))$, $a_{43}(\rho_{hz} y_{0h})$, $a_{44}(\rho_{hz} y_{0h} \exp(ik_{xm}t) - \beta_{zx} \exp(ik_{xm}t))$, поэтому

$$\frac{\rho_{hz} y_{0h} - \beta_{zx}}{\rho_{hz} y_{0h} + \beta_{zx}} = \exp(-2ik_{xm}t). \quad (18)$$

Остальные коэффициенты не важны, и мы их не приводим. Для толстой пленки с диссипацией экспоненты обращаются в нуль, и из (17) следует $y_{ez} - \alpha_{zx} y_{0e} = 0$, а из (18) получаем $\rho_{hz} y_{0h} - \beta_{zx} = 0$. Первое уравнение есть уравнение Е-ПП вдоль металлической плоскости. При снятии магнитного поля первое уравнение дает дисперсию ПП Ценнека $n_z = \sqrt{\varepsilon/(\varepsilon + 1)}$. Здесь мы не рассматриваем противоположные волны, т.е. берем один знак у корня. Второе уравнение дает дисперсию Н-МП вдоль намагниченной металлической плоскости. При снятии магнитного поля такой МП не существует. Для решения (18) запишем его в виде $\rho_{hz} y_{0h} = -i \cot(k_{xm}t) \beta_{zx}$, или $\sqrt{1 - n_z^2} = i n_x \cot(k_{xm}t)$. Возводя в квадрат и извлекая корень, получаем формулу для итераций $n_z = \sqrt{1 + n_{xm}^2 \cot^2(k_0 t n_{xm})}$. Также берем один знак. При возведении в квадрат возможны лишние корни. Для больших замедлений $n_z \approx n_{xm} \cot(k_0 t n_{xm})$. Предположим, что ПП поверхностный, медленный и слабо диссипативный: $m = 1$ при $\omega > \omega_H$, или

$m = 2$. Тогда величина n_m должна быть большой мнимой, т.е. $n_{xm} \approx -i|n_{xm}| \approx -i|w|n_z$ – в первом случае, и $n_{xm} \approx -in_z$ – во втором. Здесь $w = \sqrt{-\varepsilon/\varepsilon_x}$. Имеем результаты: $\coth(k_0 t |w| n_z) \approx 1/|w|$ – для первого случая и $\coth(k_0 t n_z) \approx 1$ или $n_z \gg 1/(k_0 t)$ – для второго. Рассматривая первый случай, получаем $n_z = \ln((1 + |w|)/(1 - |w|))/(2k_0 t |w|)$. При $|w| \ll 1$ также будет $n_z = 1/(k_0 t)$. При $|w| = 1 - \delta$ с малым δ замедление также большое: $n_z \approx \ln(2/\delta)/(2k_0 t) \gg 1$. Замедление уменьшается с ростом частоты, т.е. эти ПП обратные. Пусть $\omega < \omega_H$. Предположим, что МП объемный, медленный и слабо диссипативный: $m = 1$ и $w = \sqrt{-\varepsilon/\varepsilon_x}$ – действительный параметр. Тогда $n_{x1} \approx w n_z$, $w > 0$, и $n_z \approx \sqrt{1 + w^2 n_z^2 \cot^2(k_0 t w n)}$, т.е. имеем приближенное решение $n_z \approx (\arctan(1/w) + k\pi)/(k_0 t w)$. В нем $k = 0, 1, 2$ определяют дисперсионные ветви. Эти МП также обратные и аналогичны объемным магнитостатическим волнам (ОМСВ). В пленке феррита ОМСВ распространяются при $\omega > \omega_H$. Это связано с тем, что в рассматриваемых диапазонах в пленке феррита $\varepsilon > 1$, $\mu_{xx} < 0$, тогда как в нашем случае $\mu = 1$, $\varepsilon_{xx} > 0$, $\varepsilon = \varepsilon_{zz} < 0$.

ДУ (17) представим в виде $n_z = \sqrt{1 + (n_{xm} \tan^s(n_{xm} k_0 t/2)/\varepsilon)^2}$, $s = \pm 1$. В случае медленной поверхностной волны $n_{x2} \approx -in_z$, получаем $n_z \approx \sqrt{1 + (n_z \tanh^s(k_0 t n_z/2)/\varepsilon)^2}$ или $\tanh(k_0 t n_z/2) \approx -\varepsilon^{-1}$ (знак минус у ε взят, поскольку $\text{Re}(\varepsilon) < 0$, а минус у степени, поскольку гиперболический тангенс в отсутствии диссипации не превосходит 1). На низких частотах из $\tanh(k_0 t n_z/2) = -\varepsilon^{-1}$ следует $n_z = -2/(\varepsilon k_0 t)$. При слабой диссипации $\varepsilon \approx -\omega_p^2/\omega^2$, и $n_z = 2\omega c/(\omega_p^2 t)$, т.е. имеем решение в виде прямого ПП. Однако для получения существенного замедления толщина t должна быть весьма малой. Реально $c/t \sim \omega_p$, и при $\omega \ll \omega_p$ такой ПП быстрый. Он может стать медленным, немного ниже частоты плазмонного резонанса $\omega_p/\sqrt{\varepsilon_L + 1}$, когда $\varepsilon \approx -1$ [12]. Отметим, что для металлов в этой области b мало, а $\varepsilon_x \approx \varepsilon$.

Рассматривая случай медленной объемной слабо диссипативной волны $\omega < \omega_H$, $n_{x1} \approx w n_z$, $w > 0$, имеем $n_z = \sqrt{1 + (w n_z/\varepsilon)^2 \tan^{\pm 2}(n_z k_0 t w/2)} \approx -(w n_z/\varepsilon) \tan^{\pm 1}(n_z k_0 t w/2)$, откуда получаем приближенные решения $n_z \approx 2(\arctan(-(w/\varepsilon)^{\pm 1}) + k\pi)/(k_0 t w)$, $k = 0, 1, 2, \dots$ Такой объемный МП на низких частотах прямой, диссипативный и быстрый, т.е. не удовлетворяет предположению. Приведенные приближенные решения получены без учета диссипации. При ее учете n_x и n_z становятся комплексными, а волны не разделяются на полностью поверхностные и полностью объемные. Для всех волн зависимость внутри слоя определяется че-

рез комплексные экспоненты $\exp(\pm i(k'_x - ik''_x)x)$. Соответственно необходимо итерационно решать комплексные ДУ, в которых $k_x^2 = B_x \pm \sqrt{B_x^2 - C_x}$. Заметим, что как для медленных поверхностных, так и для медленных объемных МП поле в вакууме носит поверхностный характер, т.е. экспоненциально убывает от пленки: величина k_{0x} имеет большую мнимую и малую действительную части. За счет действительной части волна носит слабо втекающий характер.

Рассмотрим уточненные аналитические решения. При малой диссипации и больших замедлениях из УФ получаются приближения более высокого порядка: $n_{x1}^2 \approx -n_z^2 \varepsilon / \varepsilon_x - n_{10}^2 + n_2^2 n_z^{-2}$, $n_{x2}^2 \approx -n_z^2 + n_{20}^2 - n_2^2 n_z^{-2}$. В них $n_{10}^2 = [(\varepsilon_\tau^2 / \varepsilon_x + \varepsilon) \varepsilon / \varepsilon_x - 2\varepsilon] / (1 - \varepsilon / \varepsilon_x)$, и $n_2^2 = (\varepsilon_\tau^2 / \varepsilon_x - \varepsilon)^2 / [4(1 - \varepsilon / \varepsilon_x)]$ в отсутствии диссипации положительные при $\omega < \omega_H$, и отрицательные при $\omega > \omega_H$ и $\varepsilon / \varepsilon_x > 1$. Величина $n_{20}^2 = (\varepsilon_\tau^2 / \varepsilon_x - \varepsilon) / (1 - \varepsilon / \varepsilon_x)$ в отсутствии диссипации равна ε_L , т.е. положительная. На частоте резонанса она возрастает: $n_{20}^2 = \varepsilon_L + \omega_p^2 / \omega_H^2$. Приближения верны, если дополнительные члены малы по сравнению с n_z^2 . Пусть $\omega < \omega_H$ и МП объемный: $h_{x1} \approx \omega n_z$, $w = \sqrt{-\varepsilon / \varepsilon_x + n_0^2 n_z^{-2} + n_2^2 n_z^{-4}}$. Для ДУ (17) имеем $n_z = 2(\arctan((- \varepsilon / w)^{\pm 1}) + k\pi) / (k_0 t w)$, а для ДУ (18) $n_z = (\arctan(w)k\pi) / (k_0 t w)$, $k = 0, 1, 2, \dots$ На низких частотах $\varepsilon \approx -\omega_p^2 / \omega^2$, $\varepsilon_x \approx \omega_p^2 / \omega_H^2$ все арктангенсы порядка $\pi/2$, и для основных мод получаем $n_z = 2\pi / (\omega_H t / c)$ и $n_z = \pi / (\omega_H t / c)$. На сверхнизких частотах $\varepsilon \approx -i\omega_p^2 / (\omega \omega_{c0})$, и МП быстрые диссипативные, поскольку величина w мнимая. Взяв приближенно $w = w_0 \sqrt{-\varepsilon / \varepsilon_x}$, получаем для всех ДУ приближенные решения $n_{z(0)}$. Их можно уточнить, взяв $w = \sqrt{-\varepsilon / \varepsilon_x + n_0^2 n_{z(0)}^{-2} + n_2^2 n_{z(0)}^{-4}}$. Пусть МП поверхностный: $n_{x2} \approx -in_z u$, $u = \sqrt{1 - n_{20}^2 n_z^{-2} + n_2^2 n_z^{-4}}$. Тогда из ДУ (17) следует $\tanh(k_0 t u n_z / 2) = -(\varepsilon / u)^{\pm 1}$. Из ДУ (18) имеем $\tanh(k_0 t u n_z) = u$. Используя приближение $u \approx u_0 = 1 - \varepsilon_L n_{z(0)}^{-2} / 2$, получим $n_{z(0)} \approx \ln(4n_{z(0)} / \varepsilon_L) / (2k_0 t)$ для (18). Приближенный корень ищем двумя итерациями: берем $n_{z(0)} \approx \varepsilon_L$, а затем уточняем: $n_{z(0)} \approx \ln(2) / (k_0 t)$. Далее уточняем u , что дает решение $n_z = \ln((1 + u) / (1 - u)) / (2k_0 t u)$. Для ДУ (17) можно в обоих случаях взять $n_{z(0)} = \ln((\varepsilon - 1) / (\varepsilon + 1)) / (k_0 t) \approx -2 / (k_0 t \varepsilon)$ и получить уточнение. При близком к единице параметре u и $|\varepsilon| \gg 1$ оно практически не отличается от нулевого приближения: $n_z = -2(1 + (u/\varepsilon)^2/3) / (k_0 t \varepsilon)$. Эти поверхностные МП на низких частотах слабо замедленные и прямые. Частоты, при которых замедление большое и приближение применимо, определяются усло-

вием $\omega \gg \omega_p^2 t / c$. Для металлов в ТГЧ диапазоне оно не выполняется. Для $t = 10$ нм и $\omega_p = 10^{13}$ Гц это $\omega \gg 10^9$ Гц. Частоты, при которых $u \sim 1$ определяются условием $\omega \ll c / (t \sqrt{\varepsilon_L})$. Для $t = 10$ нм это $\omega \ll 3 \cdot 10^{16}$ Гц, что всегда выполняется.

В общем случае наличия нескольких металлических пленок и диэлектрических подложек задача построения ДУ решается на основе матриц переноса слоя $\hat{T}(t)$. Такие матрицы связывают 4-векторы $u(x) = (E_y, h_z, E_z, -h_y)$ в виде $u(0) = \hat{T}(t)u(t)$ и могут легко быть построены на основе уравнений (15). В оптике они носят название матриц Беремана [16]. Этот метод для пленки на подложке сложен. Рассмотрим построение ДУ более простым методом двумерного приближения, когда пленка и подложка имеют малые толщины и описываются поверхностной проводимостью. Диэлектрический слой можно описать объемной проводимостью $\zeta = i\omega \varepsilon_0(\varepsilon_d - 1)$. Она емкостная. 2D приближение применимо для весьма тонких металлических пленок и диэлектрических подложек. Для последних оно имеет хорошую точность, если $k_0 \sqrt{\varepsilon_d} d \ll 1$. В этом случае касательное электрическое поле практически постоянно в слое, вклад компоненты J_x мал, и тогда слой можно описать поверхностной проводимостью $\sigma_d = \zeta d = i\omega \varepsilon_0(\varepsilon_d - 1)d = i\eta_0^{-1} k_0(\varepsilon_d - 1)d$. Вводим безразмерную нормированную поверхностную проводимость $\xi_d = ik_0(\varepsilon_d - 1)d$ и записываем связь поверхностного тока с касательным электрическим полем: $\mathbf{j}_d = \xi_d \mathbf{E}_\tau = \xi_d(\mathbf{y}_0 E_y + \mathbf{z}_0 E_z)$. В диэлектрическом слое ток носит характер тока поляризации. Аналогичное соотношение имеет место в металлической пленке: $\mathbf{j} = \hat{\xi} \mathbf{E}_\tau = \mathbf{y}_0(\xi_{yy} E_y + \xi_{yz} E_z) + \mathbf{z}_0(\xi_{zy} E_y + \xi_{zz} E_z)$. Здесь $\hat{\xi} = ik_0(\hat{\varepsilon}(\omega) - \hat{I})t$. В нашем случае $\xi_{yy} = \xi_{xx}$, $\xi_{yz} = \xi_{zy} = 0$, $\xi_{xy} = -\xi_{yx} = k_0 t b$, но мы для удобства иногда будем сохранять общую запись. Для дифракции плоской волны на металлическом слое глубина проникновения $\delta = -1/\text{Im}(k_0 \sqrt{\varepsilon})$ для всех частот больше 200 нм. Однако для свободных волн – ПП с большим замедлением величина k_x может иметь большую мнимую часть. В этом случае поле существенно более сильно затухает внутри пленки. Поскольку в двумерной модели $\mathbf{E}_\tau$ должна быть непрерывна, можно взять $\mathbf{E}_\tau(x) = \mathbf{E}_{\tau 0} \cosh(k''_x x) / \cosh(k''_x t/2)$, где $\mathbf{E}_{\tau 0}$ – значение на поверхности, а в центре пленки поле убывает в $\cosh(k''_x t/2)$ раз. Усредненное по поперечному размеру поле есть $\bar{\mathbf{E}}_\tau = \mathbf{E}_{\tau 0} \tanh(k''_x t/2) / (k''_x t/2)$, и при $k''_x t > 2$ будем иметь $\bar{\mathbf{E}}_\tau \approx 2\mathbf{E}_{\tau 0} / (k''_x t)$, т.е. усредненное поле уменьшается по сравнению с поверхностным. Это говорит о том, что уменьшается эффективная двумерная проводимость, т.е. для нее следует

взять $\hat{\xi} = 2ik_0x \tanh(k_x''t/2)(\hat{\varepsilon}(\omega) - \hat{I})/k_x''$. Формально это соответствует учету скин-эффекта. Рассматриваемые толщины t существенно меньше длин свободного пробега электронов в массивных (неограниченных) металлических образцах. В тонкой пленке электроны не выходят из слоя t и все участвуют в переносе тока. Поэтому ЧС электронов, движущихся почти нормально к границам пленки, существенно выше, а средняя ЧС возрастает. Важно учитывать доли зеркального и диффузного отражения электронов от границ. Однако в сильном магнитном поле доля продольно движущихся под действием волны электронов сильно преобладает над почти поперечно движущимися электронами, поэтому вполне можно использовать теорию нормального скин-эффекта. Считая, что центр пленки находится при $x = 0$, а центр диэлектрического слоя при $y = 0$, получаем компоненты электрического поля

$$E_y(\mathbf{r}) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \{G_{yy}^{ee}(\mathbf{r}, 0, y', z')j_y(y', z') + G_{yz}^{ee}(\mathbf{r}, 0, y', z')j_z(y', z') + G_{yy}^{ee}(\mathbf{r}, d_0, y', z')j_y(y', z') + G_{yz}^{ee}(\mathbf{r}, d_0, y', z')j_z(y', z')\} dy' dz'. \quad (19)$$

В (19) введена тензорная электрическая функция Грина (ФГ) электрического типа, имеющая вид $\hat{G}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = (ik_0\eta_0^{-1})^{-1}(\nabla \otimes \nabla + k_0^2\hat{I})G(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$ и определенная через скалярную ФГ $G(\mathbf{r}) = (4\pi r)^{-1} \exp(-ik_0r)$, $r = |\mathbf{r}|$. Аналогично можно представить $E_z(\mathbf{r})$. Учитывая, что

$$G(\mathbf{r}) = \frac{1}{8\pi^2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(-i\mathbf{k}\boldsymbol{\rho} - i\tilde{k}|z|)}{i\tilde{k}_x} dk_y dk_z,$$

где $\mathbf{k} = y_0k_y + z_0k_z$, $\boldsymbol{\rho} = y_0y + z_0z$, $\tilde{k}_x = \sqrt{k_0^2 - k_y^2 - k_z^2}$, переходя в (19) и в выражении для пространственных спектров с вычислением интегралов, получим

$$\begin{aligned} \eta_0^{-1}E_y(\mathbf{k}) &= g_{yy}(\mathbf{k})j_y(\mathbf{k}) + g_{yz}(\mathbf{k})j_z(\mathbf{k}) + \\ &+ \exp(-i\tilde{k}_x d_0)[g_{yy}(\mathbf{k})j_y(\mathbf{k}) + g_{yz}(\mathbf{k})j_z(\mathbf{k})], \\ \eta_0^{-1}E_z(\mathbf{k}) &= g_{zy}(\mathbf{k})j_y(\mathbf{k}) + g_{zz}(\mathbf{k})j_z(\mathbf{k}) + \\ &+ \exp(-i\tilde{k}_x d_0)[g_{zy}(\mathbf{k})j_y(\mathbf{k}) + g_{zz}(\mathbf{k})j_z(\mathbf{k})]. \end{aligned}$$

Здесь тензор $\hat{g}(\mathbf{k})$ есть Фурье-преобразование от $\hat{G}^{ee}(\boldsymbol{\rho}, 0)$:

$$\hat{g}(\mathbf{k}) = \frac{-1}{2k_0\tilde{k}_x} \begin{pmatrix} k_0^2 - \tilde{k}_x^2 & -\tilde{k}_x k_y & -\tilde{k}_x k_z \\ -\tilde{k}_x k_y & k_0^2 - k_y^2 & -k_y k_z \\ -\tilde{k}_x k_z & -k_y k_z & k_0^2 - k_z^2 \end{pmatrix}.$$

Обозначим $\psi(k_z) = \exp(-i\tilde{k}_x d_0)$. В окончательных соотношениях (в ДУ) следует положить $k_y = 0$. Поэтому $2k_x\eta_0^{-1}E_y(k_z) = -[j_y(k_z) + \psi(k_z)j_{dy}(k_z)]k_0$, $2\eta_0^{-1}k_0E_z(k_z) = -[j_z(k_z) + \psi(k_z)j_{dz}(k_z)]k_x$. Подставляя $\mathbf{j}_d = \sigma_d\mathbf{E}_\tau$, $j_y(k_z) = \sigma_{yy}E_y(k_z)$, $j_z(k_z) = \sigma_{zz}E_z(k_z)$, получаем два ДУ:

$$1 + \frac{k_0(\xi_{yy} + \psi(k_z)\xi_d)}{2\tilde{k}_x(k_z)} = 0, \quad (20)$$

$$1 + \frac{\tilde{k}_x(k_z)(\xi_{zz} + \psi(k_z)\xi_d)}{2k_0} = 0, \quad (21)$$

которые преобразуем к видам

$$k_z = \pm k_0 \sqrt{1 - (\xi_{yy} + \psi(k_z)\xi_d)^2/4},$$

$$k_z = \pm k_0 \sqrt{1 - 4/(\xi_{zz} + \psi(k_z)\xi_d)^2}.$$

При большом замедлении и малой диссипации удобнее взять введенную выше функцию в форме $\psi(k_z) = \exp(-d_0\sqrt{k_z^2 - k_0^2})$. При $d_0 = 0$ получаем $\psi(k_z) = 1$, при этом проводимости пленки и слоя складываются, что в используемой модели означает нахождение пленки в центре слоя (считаем $d > 1$). При большом расстоянии d_0 для медленной волны $\psi(k_z) \rightarrow 0$, т.е. волна в направлении от пленки к слою сильно затухает, слой на нее не влияет, и пленку можно рассматривать как изолированную. При медленных ПП проводимость подложки вносит малый вклад. ДУ (20) и (21) неявные. Однако при удалении подложки и малом замедлении они становятся явными. Неявными они могут быть и при таких толщинах t , когда замедление большое и проводимости начинают зависеть от k_x'' , т.е. от k_z . Тогда итерационное решение ДУ требует пересчета k_x и проводимостей. В нашем случае зависимости от $\mathbf{k}$ означают зависимости от k_z . Приближенное ДУ (20) при снятии магнитного поля по своему виду соответствует Н-ПП, т.е. волне, не имеющей компоненты E_z , а ДУ (21) соответствует Е-ПП, т.е. волне, не имеющей компоненты H_z . Реально волны гибридные, т.е. содержат как Е-ПП, так и Н-ПП. В первом преобладает Н-ПП, а во втором – Е-ПП.

Получим коррекцию ДУ с учетом толщины пленки. Для этого следует учесть компоненту $j_x(\mathbf{k}) = i\omega\varepsilon_0(\varepsilon_{xx} - 1)tE_x(\mathbf{k}) + i\omega\varepsilon_0\varepsilon_{xy}tE_y(\mathbf{k})$ поверхностной плотности тока, которой мы ранее пренебрегли. Рассматривая одиночную пленку и учитывая, что $g_{xy}(\mathbf{k}) = g_{yx}(\mathbf{k}) = 0$, $g_{yz}(\mathbf{k}) = g_{zy}(\mathbf{k}) = 0$, $\xi_{xz} = \xi_{zx} = 0$, $\xi_{yz} = \xi_{zy} = 0$ и $k_y = 0$, имеем систему трех уравнений

$$E_x(\mathbf{k}) = g_{xx}(\mathbf{k})[\xi_{xx}E_x(\mathbf{k}) + \xi_{xy}E_y(\mathbf{k})] + g_{xz}(\mathbf{k})\xi_{zz}E_z(\mathbf{k}),$$

$$E_y(\mathbf{k}) = g_{yy}(\mathbf{k})[-\xi_{xy}E_x(\mathbf{k}) + \xi_{yy}E_y(\mathbf{k})],$$

$$E_z(\mathbf{k}) = g_{zx}(\mathbf{k})[\xi_{xx}E_x(\mathbf{k}) + \xi_{xy}E_y(\mathbf{k})] + g_{zz}(\mathbf{k})\xi_{zz}E_z.$$

Выражая из второго уравнения через E_x и подставляя в два других, запишем ДУ в виде

$$\frac{\xi_{xx}(1 - g_{yy}\xi_{yy}) - \xi_{xy}^2g_{yy}}{(1 - g_{yy}\xi_{yy})(1 - g_{xx}\xi_{xx}) + g_{xx}g_{yy}\xi_{xy}^2} = \frac{(1 - g_{zz}\xi_{zz})}{g_{xz}^2\xi_{zz}}. \quad (22)$$

Обозначая

$$\beta(k_z) = \xi_{xy}^2 \frac{(1 - g_{zz}\xi_{zz})g_{xx}g_{yy} + g_{xz}^2g_{yy}\xi_{zz}}{g_{xz}^2\xi_{zz}\xi_{xx} - (1 - g_{zz}\xi_{zz})(1 - g_{xx}\xi_{xx})}, \quad (23)$$

получим из (22) вместо (20) формулу для итераций $k_z = k_0\sqrt{1 - \xi_{yy}^2/[2(\beta(k_z) - 1)]^2}$. Она определяет квазимагнитный МП. Вместо (21) имеем итерационную формулу $k_z = k_0\sqrt{1 - 4(\alpha(k_z) - 1)^2/\xi_{zz}^2}$ для квазиэлектрического МП. В ней

$$\alpha(k_z) = \frac{\xi_{xx}(1 - g_{yy}\xi_{yy}) - \xi_{xy}^2g_{yy}}{(1 - g_{yy}\xi_{yy})(1 - g_{xx}\xi_{xx}) + g_{xx}g_{yy}\xi_{xy}^2} g_{xz}^2\xi_{zz}.$$

В нашем случае $g_{xx}(k_z) = -k_z^2/(2k_0\tilde{k}_x)$, $g_{zx}(k_z) = k_z/(2k_0)$, $g_{zz}(k_z) = -\tilde{k}_x/(2k_0)$, $g_{yy}(k_z) = -k_0/(2\tilde{k}_x)$.

Приведенные ДУ получены для металлической пленки путем формального перехода от объемных величин к поверхностным. В случае весьма тонкой пленки следует скорректировать связь E_x с j_x и j_y . Объемная плотность тока внутри однородной пленки – вектор соленоидальный, т.е. $\nabla \cdot \mathbf{J}(\mathbf{r}) = 0$ или $\nabla \cdot \mathbf{J}(\mathbf{r}) \approx t^{-1}\nabla_{y,z} \cdot \mathbf{j}(\boldsymbol{\rho}) + \partial_x J_x(\mathbf{r})$. При этом $\partial_x J_x(\mathbf{r})$ почти не зависит от x . Это означает, что в тонкой пленке $J_x(\mathbf{r}) = x f(\boldsymbol{\rho}) + J_x(0, \boldsymbol{\rho})$, причем $f(\boldsymbol{\rho}) = -t^{-1}\nabla_{y,z} \cdot \mathbf{j}(\boldsymbol{\rho})$. Для двумерной плотности тока выполняется закон сохранения заряда $\nabla_{y,z} \cdot \mathbf{j}(\boldsymbol{\rho}) + i\omega\zeta(\boldsymbol{\rho}) = 0$, где $\zeta(\boldsymbol{\rho})$ – поверхностная плотность заряда. Для введенной функции находим $f(\boldsymbol{\rho}) = i\omega\zeta(\boldsymbol{\rho})/t$. Множитель $i\omega$ указывает, что это производная по времени от объемной плотности заряда в слое. На двумерной поверхности с плотностью заряда $\zeta(\boldsymbol{\rho})$ имеет место скачок нормальной компоненты электрического поля: $E_x(+0, \boldsymbol{\rho}) - E_x(-0, \boldsymbol{\rho}) = \zeta(\boldsymbol{\rho})/\varepsilon_0$. Для малой толщины t должна иметь место аппроксимация $E_x(x, \boldsymbol{\rho}) = E_x(0, \boldsymbol{\rho}) + (2x/t)\zeta(\boldsymbol{\rho})/\varepsilon_0$. Поведение компонент поля и тока согласуются, при этом $J_x(x, \boldsymbol{\rho}) = i\omega\varepsilon_0[(\varepsilon_{xx} - 1)E_x(x, \boldsymbol{\rho}) + \varepsilon_{xy}E_y(0, \boldsymbol{\rho})]$. Переходя к спектрам, для поверхностных величин имеем $k_z j_z(k_z) + i\omega\zeta(k_z) = 0$. Дополнительный вклад в вектор-потенциал имеет вид

$$A_x(\mathbf{r}) = \frac{1}{8\pi^2} \times$$

$$\times \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-t/2}^{t/2} \left(\exp\left(-i(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}')\mathbf{k} - i|x - x'|\sqrt{k_0^2 - k^2}\right) \times \right. \\ \left. \times (J_x(0, \boldsymbol{\rho}') + x' f(\boldsymbol{\rho}')) \right) / (i\sqrt{k_0^2 - k^2}) dx' dy' dz' d^2k.$$

Здесь четыре интеграла с бесконечными пределами обозначены одним символом. Найдем поправки $\delta E_x = (ik_0\eta_0^{-1})(k_0^2 - \partial_x^2)A_x$, $\delta E_y = (ik_0\eta_0^{-1})^{-1}\partial_y\partial_x A_x$ и $\Delta E_z = (ik_0\eta_0^{-1})^{-1}\partial_z\partial_x A_x$ к электрическому полю, возникающие от компоненты A_x при $x = 0$. Вычислим A_x . Имеем

$$\int_{-t/2}^{t/2} \exp(-|x - x'|\tilde{k}_x) dx' = \\ = \frac{2 - \exp(-i(x + t/2)\tilde{k}_x) - \exp(i(x - t/2)\tilde{k}_x)}{i\tilde{k}_x}.$$

Для малых толщин t следует положить $x = 0$, и результат будет t . Аналогично интегрируем $x' \exp(-i|x - x'|\tilde{k}_x) dx'$:

$$\exp(-ix\tilde{k}_x) \int_{-t/2}^x x' \exp(ix'\tilde{k}_x) dx' + \\ + \exp(ix\tilde{k}_x) \int_x^{t/2} x' \exp(-ix'\tilde{k}_x) dx'.$$

Получаем результат $-it/\tilde{k}_x$. Таким образом, после интегрирования по dy' и dz' найдем

$$A_x(0, \boldsymbol{\rho}) = \frac{1}{8\pi^2} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(-i\boldsymbol{\rho}\mathbf{k})f(\mathbf{k})}{i\tilde{k}_x} (t - it/\tilde{k}_x) d^2k,$$

где $f(\mathbf{k}) = i\omega\zeta(\mathbf{k})/t = k_z j_z(\mathbf{k})/t$. Вклад от члена $-it/\tilde{k}_x$ мал. Поэтому

$$\delta E_x(0, \boldsymbol{\rho}) = -\frac{\eta_0 k_0}{8\pi^2 t} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(-i\boldsymbol{\rho}\mathbf{k})k_z j_z(\mathbf{k})}{\tilde{k}_x^3} d^2k.$$

Переходя к спектрам (интегрируя по поперечным координатам), получаем $\delta E_x(\mathbf{k}) = -\eta_0 k_0 k_z j_z(\mathbf{k})/(2\tilde{k}_x^3(\mathbf{k})t)$. Аналогично получаем $\delta E_z(\mathbf{k}) = \eta_0 k_z^2(\mathbf{k})/(k_0\tilde{k}_x^2(\mathbf{k})t)$, при этом $\delta E_y(\mathbf{k}) = 0$. Теперь имеем уравнения

$$E_x(\mathbf{k}) = -\frac{k_z^2}{2k_0\tilde{k}_x} (\xi_{xx}E_y(\mathbf{k}) + \xi_{xy}E_y(\mathbf{k})) + \\ + \frac{k_z}{2k_0} \left(1 - \frac{k_0^2}{\tilde{k}_x^2 k_0 t}\right) \xi_{zz}E_z(\mathbf{k}),$$

$$E_y(\mathbf{k}) = -\frac{k_0}{2k_x}(\xi_{yy}E_y(\mathbf{k}) - \xi_{xy}E_x(\mathbf{k})), \quad (24)$$

$$E_z(\mathbf{k}) = \left(\frac{k_z^2}{k_0\tilde{k}_x^2(\mathbf{k})t} - \frac{k_x}{2k_0} \right) \xi_{zz}E_z(\mathbf{k}) + \frac{k_z}{2k_0}(\xi_{xx}E_x(\mathbf{k}) + \xi_{xy}E_y(\mathbf{k})).$$

Из второго уравнения (24) находим $E_x(\mathbf{k})$ и подставляем в два других. В результате получаем ДУ $k_z = \pm k_0 \sqrt{1 - \xi_{xx}^2/[2(\gamma(k_z) - 1)]^2}$. В нем

$$\gamma(k_z) = \quad (25)$$

$$= \left(k_0 k_z^2 \xi_{xy}^2 (k_z^2 - \tilde{k}_x^2 k_0 t / \xi_{zz} - \tilde{k}_x k_0 / 2) \right) / \left(k_z^2 (\tilde{k}_x^2 t - k_0) \times \right. \\ \left. \times k_x^2 \xi_{xx} + (2\tilde{k}_x^2 k_0 + k_z^2 \tilde{k}_x \xi_{xx}) (2k_z^2 - \tilde{k}_x^3 t - 2\tilde{k}_x^2 k_0 t / \xi_{zz}) \right).$$

Пусть замедление $n = k_z/k_0$ большое по модулю. Тогда из ДУ следует $n = \pm i \xi_{xx} / (2\gamma(k_z) - 2)$. При большой реактивной проводимости это возможно при малых по модулю $\gamma(k_z)$, или при почти действительных $-\gamma(k_z)$, близких к единице. Большие замедления поверхностного ПП реализуются при $\tilde{k}_x \approx ik_z$, поэтому из (25) имеем $\gamma(k_z) \approx k_0(\xi_{xy}^2/\xi_{xx})/(2k_z^2 t - 2ik_z)$. Считаем $k_z t \sim 1$. Величина $\gamma(k_z)$ мала по модулю при $|\xi_{xy}^2/(n\xi_{xx})| \ll 1$. В ТГЧ диапазоне $\xi_{zz} = i(t/c)\omega_p^2/(i\omega_c - \omega)$, и для наноразмерных толщин $t/c \sim 10^{-16}$ с эта величина комплексная и по модулю большая $\sim 10^4$. Считая, что ξ_{xx} и ξ_{zz} большие по модулю, найдем условие большого замедления: $|\gamma| \ll 1$. При $\omega = \omega_H/\sqrt{2}$ и большой реактивной ξ_{xx} большим замедление будет при $|\gamma(k_z)| \leq 1$. При $\omega_H \sim 10^{-4}\omega_p$ получаем $n_z \sim 10^3$, при этом для малых потерь необходимо выполнение условия $\omega_{co} \ll \omega_H$. Получить такие условия для металлов можно при температуре жидкого гелия. Однако для ТГц электроники больших замедлений не требуются: достаточно замедлений порядка нескольких единиц. Снижение же диссипации ПП принципиально для получения усиления. При $n' \sim 1$ диссипация мала: $n_z''/|n_z'| \ll 1$. Для учета диэлектрической подложки в ДУ делаем замену $\xi_{xx} \rightarrow \xi_{xx} + \xi_d$. Для быстрой волны $k_z = k_0$, $\tilde{k}_x \approx 0$, величина $\gamma(k_z)$ становится очень большой по модулю, и тогда $\xi_{xx} \rightarrow \xi_{xx} + \xi_d$. Для бесконечно быстрой волны $\tilde{k}_x \approx 0$, $k_z \approx 0$ имеем $\gamma(k_z) = -k_z^2 \xi_{xy}^2 (2k_0 t / \xi_{zz} + 1) / (4k_0^3 t + 8k_0^3 t / \xi_{zz}) \approx 0$.

Рассмотрим ДУ $k_z = k_0 \sqrt{1 - \xi_{xx}^2/[2(\beta(k_z) - 1)]^2}$ для медленных ПП. Считая все проводимости сильно реактивными и большими по модулю, при большом замедлении берем $g_{xx} = ik_z/(2k_0)$, $g_{yy} = ik_0/(2k_z)$, $g_{zz} = -ik_z/(2k_0)$, $g_{xz} = k_z/(2k_0)$, откуда получаем

$\beta(k_z) = -i\xi_{xy}^2 k_0 / (2k_z \xi_{xx})$. Поскольку $\xi_{xy}^2 = (k_0 t b)^2$, а ξ_{xx} почти мнимая и при $\omega < \omega_H$ индуктивная, то при $\text{Re}(\beta(k_z)) \ll 1$ получаем замедления порядка $|\xi_{xx}|/4$. При этом величина $\beta(k_z) = 2(k_0 t)^2 \omega_H^2 / \omega^2 \sim (k_0 t)^2$ действительно мала. Медленный ПП для ДУ $k_z = k_0 \sqrt{1 - 4(\alpha(k_z) - 1)^2 / \xi_{zz}^2}$ получаем в оптическом диапазоне при достаточно малой величине $|\xi_{zz}^2|$. Выражая из (23) величину $1 - g_{xx}\xi_{xx}$, получим еще один вид ДУ.

Поскольку в общем случае возможны четыре волны и четыре дисперсионные ветви, несколько уравнений позволяют находить все ветви, при этом сходимость и скорость сходимости уравнений могут сильно различаться в разных областях. Формально достаточно решать только одно из ДУ. Полагая в нем потери нулевыми, находим все действительные корни. При этом возникают запрещенные области. Полагая для них $n_z = -i|n_z|$ мнимыми, находим и мнимые корни. Увеличивая затем плавно потери и используя итерации, можно построить все комплексные дисперсионные ветви. Для итераций следует выбирать быстро сходящиеся формулы. Все приведенные ДУ можно записать в виде $k_z = f(k_z)$. Для численных результатов использован метод прямой итерации $k_z^{(m)} = k_z^{(m-1)} - \tau_m [f(k_z^{(m-1)}) - k_z^{(m-1)}]$ с коррекцией шага итераций [17]. Шаг τ_m на каждой итерации подбирался из условия убывания невязки, для чего необходимо вычислять производные $f'(k_z)$. На низких частотах удобно полагать начальное значение $k_z^{(0)} = k_0$. Найдя корень, увеличиваем частоту на малый шаг, и в качестве нового начального приближения берем указанный корень. При малом частотном шаге он близок к новому корню, итерации для которого теперь сойдутся быстро. Использование нескольких видов ДУ полезно для нахождения всех дисперсионных ветвей.

Численные результаты получены при условии выбора ветви корня $\text{Re}(k_z) = k_0 n'_z > 0$. Условие $n_z'' > 0$ при $n_z = n'_z - i n_z''$ означает, что МП затухает в направлении оси z . При $n_z'' < 0$ МП затухает в отрицательном направлении оси z , т.е. туда движется энергия. Такая волна обратная. На рисунках 1, 2 представлены итерационные решения для дисперсии (22) в пленке серебра и в пленке синица при магнитной индукции $B_z = \mu_0 H_0 = 10$ Тл при разных температурах и толщинах. Для кривых рис. 1 индекс потерь в максимумах замедлений имеет значения $n_z''/n'_z = 0.0056$ (кривая 1), 0.015 (2), 0.011 (3), -0.024 (4), -0.017 (5), -0.024 (6), -0.027 (7). Потери при меньших замедлениях ниже, при этом МП прямой. Отрицательные отношения n_z''/n'_z означают переход к обратным МП. В области между максимальным

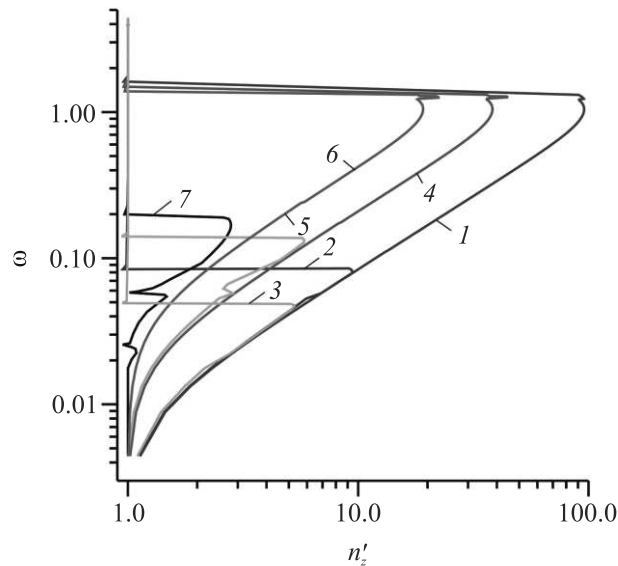


Рис. 2. (Цветной онлайн) Дисперсия МП (частота ω в ТГц в зависимости от замедления $n'_z = k'_x/k_0$) в свинцовой пленке при разных толщинах (нм) и температурах (К): кривая 1 – $t = 10$, $T = 77$; 2 – $t = 2$, $T = 77$; 3 – $t = 10$, $T = 10$; 4 – $t = 4$, $T = 10$; 5 – $t = 4$, $T = 77$; 6 – $t = 2$, $T = 10$; 7 – $t = 10$, $T = 200$

замедлением и областью с $n \approx 1$ есть весьма узкая область очень быстрых МП с $n' \ll 1$. При выбранном частотном шаге она не проявляется. Продвижение в ТГц диапазон требует использования малых толщин порядка 1–2 нм и криогенных температур. При комнатной температуре замедление в СВЧ диапазоне не превышает 20 для пленок с толщиной до 10 нм, а выше МП быстрый. Пленка толщины 2 нм на подложке является текучей и растекается на фрагменты, поэтому следует использовать несколько более толстые пленки. Диэлектрическая подложка в ТГц диапазоне является электрически тонкой даже при $d = 10^4$ нм, т.е. вклад в дисперсию мал, и для нее вполне применимо двумерное приближение. Такая и даже на порядок более толстая подложка имеет малую емкостную проводимость и практически не сказывается на дисперсии. С толщиной проводящей пленки замедление растет, но использовать толстые пленки и большие замедления в ЗС не целесообразно, поскольку согласно (24) при $|n_z| \gg 1/(k_0 t)$ компонента E_z почти не зависит от замедления. При не слишком большом замедлении волна не сильно прижата к пленке, и сопротивление связи для ленточного электронного пучка может быть приемлемым. Для свинца взято $\omega_p = 6.4 \cdot 10^{15}$ и $\omega_{co} = 6.2 \cdot 10^{13}$ Гц при $T = 300$ К. Свинец при температуре ниже 7 К становится сверхпроводящим. Его высокочастотный импеданс не является локальным, поэтому описыва-

ется достаточно сложно, а поверхностный импеданс пленки определяется через интегралы [18] и зависит от ее толщины. Определение двумерного импеданса сверхпроводящей пленки в магнитном поле – достаточно сложная и требующая отдельного рассмотрения задача в совокупности с необходимостью совместного решения ДУ. Для соответствующей модели необходимо определять число куперовских пар и неспаренных электронов, а также глубину проникновения магнитного поля. Поэтому использовать сверхпроводящие пленки проблематично. Для продвижения в ТГц диапазон при $\omega_H = 0.176$ ТГц ($B_z = 1$ Тл) следует использовать полуметаллы или полупроводники с достаточно малой ПЧ, при этом необходимо снижать ЧС на два порядка и более. На рисунке 3 представлены результаты для МП магнитного ти-

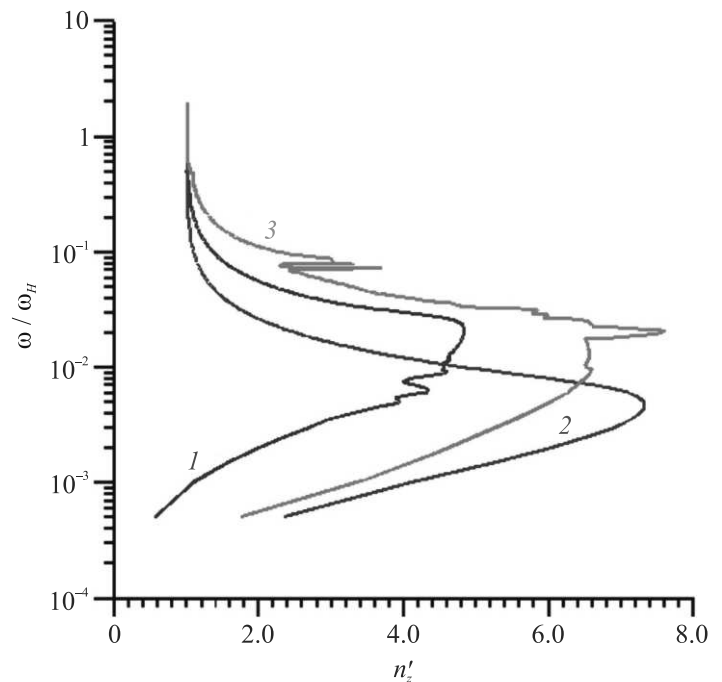


Рис. 3. (Цветной онлайн) Дисперсия (зависимость ω/ω_H в от $n'_z = k'_x/k_0$) поверхностного МП в пленке n -InSb на подложке SiO_2 ($\epsilon_d = 3.4$), $d = 5$ мкм при $\omega_H = 13.5$ ТГц, $\omega_{co} = 4$ ГГц и $\omega_p = 18$ ТГц (кривые 1, 2), $\omega_p = 2.5 \cdot 10^{13}$ (3), $t = 10$ нм для кривых (1, 3) и $t = 5$ нм, для кривой 2

па в пленки n -InSb при $\omega_p = 18$ ТГц, $\omega_H = 6$ ТГц и $\omega_{co} = 4$ ГГц, полученные по ДУ (22). МП электрического типа более высокочастотный. На рисунке 4 представлены результаты итерационного решения ДУ (17) и ДУ (18) для МП в пленки n -InSb при $\omega_H = 13.5$ ТГц и $\omega_{co} = 1$ ТГц. Результаты сошлись не более, чем за 10 итераций. МП 1–3 слабо диссипативные в окрестности ω_H и сильно диссипативные на низких частотах. Обратный объемный МП 4 (знак

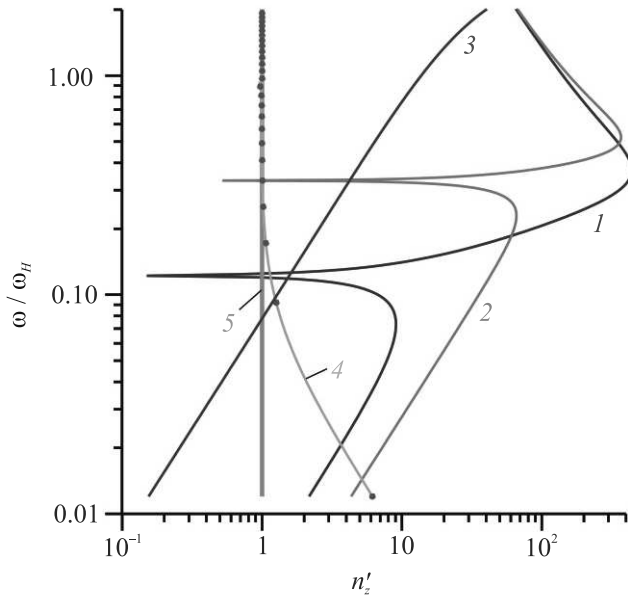


Рис. 4. (Цветной онлайн) Дисперсия МП в пленке n -InSb с $t = 10$ нм при $\omega_H = 13.5$, $\omega_{co} = 1$. Формула (17): кривые 1–3, $s = -1$ и 5, $s = 1$; формула (18) – кривая 4. Использованы ПЧ ω_p : 180 (кривые 3, 4), 25 (2), 18 (1, 5). Все частоты в ТГц

“минус” у корня в $k_{x\pm}^2$) слабо диссипативный. При знаке “плюс” ДУ (18) дает $n_z = 1$ с точностью до нескольких знаков. Поскольку два значения формулы (17) получены путем извлечения корня, она может быть записана единым образом. Сходимость итераций для нее не зависит от знака у $k_{x\pm}^2$. Таким образом, имеется четыре ветви решения ДУ. Одним из возможных подходов к снижению потерь без использования криогенных температур может быть применение активных спазеров [19] с оптической накачкой. В рассмотренном случае это может быть оптически активный графеновый лист, расположенный на пленке.

В работе рассмотрены методы построения ДУ для МП вдоль тонких хорошо проводящих пленок ДЭГ, причем как при строгом учете толщины, так и в приближении 2D поверхностной проводимости с учетом электрически тонкой диэлектрической подложки. Получены новые ДУ для магнитоплазмонов. Показана возможность существования и получены условия для медленных и быстрых МП, а также прямых и обратных МП. В сильном магнитном поле, используемом для фокусировки тонкого ленточного пучка, тонкая и ровная проводящая пленка может выполнять роль ЗС с замедлениями от нескольких до нескольких десятков и более.

Финансирование работы. Работа поддержана Министерством образования и науки РФ (государственное задание FSRR-2023-0008).

Конфликт интересов. Автор заявляет, что у него нет конфликта интересов.

1. Ю. В. Алехин, М. П. Апин, А. А. Бурцев и др., *Сверхширокополосные лампы бегущей волны. Исследование в СВЧ-, КВЧ- и ТГц-диапазонах. Внедрение в производство*, под ред. Н. А. Бушуева, Радиотехника, М. (2015), 480 с.; ISBN 978-5-93108-126-7.
2. А. А. Бурцев, Ю. А. Григорьев, А. В. Данилушкин, И. А. Навроцкий, А. А. Павлов, К. В. Шумихин, ЖТФ **88**(3), 464 (2018) [A. A. Burtsev, Yu. A. Grigor'ev, A. V. Danilushkin, I. A. Navrotskii, A. A. Pavlov, and K. V. Shumikhin, Technical Physics **63**(3), 452 (2018); DOI: 10.1134/S1063784218030040.
3. J. Brion, R. Wallis, A. Hartstein, and E. Burstein, Phys. Rev. Lett. **28**, 1455 (1972); DOI: 10.1103/PhysRevLett.28.1455.
4. P. Kumar and V. K. Tripathi, J. Appl. Phys. **114**, 053101 (2013); DOI: 10.1063/1.4817091.
5. R. K. Srivastav and A. Panwar, Opt. Quantum Electron. **55**, 111 (2023); DOI: 10.1007/s11082-022-04299-y.
6. P. Kumar, M. Kumar, and V. Tripathi, Opt. Lett. **41**, 1408 (2016); DOI: 10.1364/OL.41.001408.
7. R. K. Srivastav and A. Panwar, Optik **264**, 169363(2022); DOI: 10.1016/j.ijleo.2022.169363.
8. X.-X. Liu, C.-F. Tsai, R.-L. Chern, and D. P. Tsai, Appl. Opt. **48**(16), 3102 (2009); DOI: 10.1364/AO.48.003102.
9. B. Gonzalez-Diaz, A. Garcia-Martin, G. Armelles, J. M. Garcia-Martin, C. Clavero, A. Cebollada, R. A. Lukaszew, J. R. Skuza, D. P. Kumah, and R. Clarke, Phys. Rev. B **76**, 153402 (2007); DOI: 10.1103/PhysRevB.76.153402.
10. M. V. Davidovich, Proc. SPIE **11066**, 1106614 (2019); DOI: 10.1117/12.2521234.
11. V. Ryzhii, A. A. Dubinov, T. Otsuji, V. Mitin, and M. S. Shur, J. Appl. Phys. **107**, 054505 (2010); DOI: 10.1063/1.3327212.
12. М. В. Давидович, Квантовая электроника **47**(6), 567 (2017) [M. V. Davidovich, Quantum Electron. **47**(6), 567 (2017); DOI: 10.1070/QEL16272].
13. М. В. Давидович, Оптика и спектроскопия **130**(10), 1520 (2022); DOI: 10.21883/EOS.2022.10.54863.3231-22.
14. Г. С. Сергеев, *Моделирование кинетических и термоэлектрических свойств антимонида индия*, Дисс. к.ф.-м.н., М. (2014).
15. И. И. Берченко, М. В. Пашковский, УФН **119**(2), 223 (1976) [Phys.-Uspekhi **19**(6), 462 (1976); DOI: 10.1070/PU1976v019n06ABEH005265].
16. D. W. Berreman, J. Opt. Soc. Am. **62**(4), 502 (1972); DOI: 10.1364/JOSA.62.000502.

17. М. В. Давидович, А. К. Кобец, К. А. Саяпин, Физика волновых процессов и радиотехнические системы **24**(3), 18 (2021); DOI: 10.18469/1810-3189.2021.24.3.18-27.
18. Ф. Ф. Менде, А. И. Спицын, *Поверхностный импеданс сверхпроводников*, Наукова думка, Киев (1985).
19. А. П. Виноградов, Е. С. Андрианов, А. А. Пухов, А. В. Дорофеев, А. А. Лисянский, УФН **182**(10), 1122 (2012) [A. P. Vinogradov, E. S. Andrianov, A. A. Pukhov, A. V. Dorofeenko, and A. A. Lisyansky, Phys.-Uspekhi **55**, 1046 (2012); DOI: 10.3367/UFNe.0182.201210j.1122].

Эволюция спинового порядка холловских ферромагнетиков при сильном смешивании уровней Ландау и $1 \leq \nu \leq 2$

А. С. Кореев^{+×1)}, П. С. Бережной^{*+}, А. Б. Ваньков⁺⁺, И. В. Кукушкин⁺⁺

⁺Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия

^{*}Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 101000 Москва, Россия

[×]Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет), 141701 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 25 октября 2023 г.

После переработки 19 декабря 2023 г.

Принята к публикации 19 декабря 2023 г.

В сильнокоррелированных двумерных электронных системах на основе гетероструктур MgZnO/ZnO выявлено необычное поведение спинового упорядочения в квантовом пределе при $1 \leq \nu \leq 2$. При изменении фактора заполнения и угловой ориентации магнитного поля в спектрах неупругого рассеяния света зарегистрированы характерные преобразования коллективных спиновых возбуждений, свидетельствующие о качественно разных режимах перестройки спиновой конфигурации системы – плавной деполяризации при $1 < \nu < 3/2$ с формированием спиновых текстур и, напротив, резкой ферромагнитной неустойчивости при некотором $3/2 < \nu \leq 2$. Также из сравнения с магнитотранспортными экспериментами [J. Falson, D. Maryenko, B. Friess et al., *Nature Phys.* **11**, 347 (2015)] оказалось, что исчезновение спиновых текстур при изменении угла наклона поля коррелирует с появлением несжимаемого состояния при $\nu = 3/2$.

DOI: 10.31857/S1234567824030078, EDN: spvbtm

В двумерных электронных системах (ДЭС) с сильным взаимодействием даже простейшие квантово-холловские состояния с целочисленными факторами заполнения вскрывают калейдоскоп многочастичных явлений – ферромагнитная неустойчивость стонеровского типа [1, 2], фермижидкостные перенормировки массы и спиновой восприимчивости для электронов проводимости [3–5], коллапс обменной энергии, магнитоэкситоны с необычными свойствами [6]. Тем не менее спиновая конфигурация состояний целочисленного квантового эффекта Холла (КЭХ) коллинеарна и определяется заполнением спиновых уровней Ландау (УЛ) электронами или квазичастицами. При отклонении от ферромагнитных холловских состояний магнитный порядок становится топологически нетривиальным. Известно, что вследствие конкуренции между обменным и зеемановским взаимодействием в ДЭС могут возникнуть спиновые текстуры скирмионного типа [7]. Их существование экспериментально подтверждено, например, в высококачественных ДЭС на основе GaAs как по ускоренной спиновой деполяризации ДЭС [8, 9], так и по возникновению в спектре низкоэнергети-

ческих коллективных возбуждений дополнительной спиновой моды [10, 11], свидетельствующей о нарушении спин-вращательной симметрии в системе. В практически столь же совершенных двумерных системах на основе ZnO и AlAs скирмионные текстуры энергетически невыгодны из-за больших значений зеемановской щели и подавленного масштаба обменной энергии [12]. С другой стороны, из-за усиленных кулоновских корреляций происходит перенормировка спинового и орбитального расщеплений между квазичастицами УЛ, и они могут зависеть от фактора заполнения, сжимаемости состояний, кулоновского смешивания УЛ. При сближении и пересечении разноименных спиновых УЛ может происходить преобразование спинового упорядочения между холловскими ферромагнетиками, условия которого в случае сильнодействующих ДЭС могут сильно искажаться в зависимости от фактора заполнения. В магнитотранспортном исследовании структур на основе MgZnO/ZnO с сильнодействующей ДЭС (параметр $r_s \sim 8$) обнаружена немонотонная зависимость критического угла наклона магнитного поля от фактора заполнения [13]. Она содержит участки как с резким переключением спиновой поляризации (например, при $1.7 < \nu \leq 2$), так и с качественно иным харак-

¹⁾e-mail: koreyev.alexis@yandex.ru

тером, проявляющимся в виде размытых областей на карте сопротивления при $\nu \sim 1.2-1.3$. Позже, в экспериментах по неупругому рассеянию света (НРС) [14] на аналогичных образцах и при тех же условиях $\nu \sim 1.2 \pm 0.15$ были выявлены необычные свойства спектра низжайших спиновых возбуждений с дополнительной низкоэнергетической модой. Это свидетельствует о формировании в системе неколлинеарного спинового порядка, как было ранее показано и на примере спиновых текстур ДЭС в GaAs [10, 11]. Таким образом, преобразование спинового порядка при нецелочисленных ν может идти по качественно разным сценариям, которые не объясняются только лишь перенормировкой ферми-жидкостных параметров, но подвержены влиянию остаточных кулоновских корреляций между квази-частицами. В данной работе эволюция спинового порядка в сильно взаимодействующей ДЭС при $1 \leq \nu \leq 2$ изучена в зависимости от ключевых параметров, влияющих на энергетические масштабы и иерархию УЛ - концентрации ДЭС, фактора заполнения, угла наклона магнитного поля. Для этого проведено зондирование спектра и дисперсии низжайших по энергии спиновых возбуждений методом НРС.

Исследования проводились на высококачественных гетероструктурах MgZnO/ZnO, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии [5]. Концентрации носителей в ДЭС составляли от 1.14 до $2.85 \times 10^{11} \text{ см}^{-2}$. Подвижности ДЭС в образцах находились в диапазоне $4-7 \times 10^5 \text{ см}^2/\text{Вс}$. Исследования проводились методом резонансного НРС с регулируемым импульсом передачи. Для фотовозбуждения полупроводниковой гетероструктуры использовался перестраиваемый по длине волны Ti-Sr лазер с резонансным удвоением частоты и при энергиях фотонов $\sim 3.4 \text{ эВ}$ в окрестности прямой оптической щели ZnO [15]. Рассеянный свет анализировался спектрометром в сочетании с азотно-охлаждаемой CCD-камерой. Импульс передачи в процессе НРС задавался однозначно угловой конфигурацией подвода к образцу световодов и находился в диапазоне $1.0-3.0 \times 10^5 \text{ см}^{-1}$. Для низкотемпературного эксперимента использовался криостат с откачкой паров He^3 и рабочей температурой $\sim 0.35 \text{ К}$. Образцы помещались на вращательный столик с возможностью изменения угла наклона образца в магнитном поле с точностью порядка 0.5° , а максимальное магнитное поле составляло 15 Тл . Спектральные линии НРС узнавались на фоне сигнала фотолуминесценции по признаку их фиксированного энергетического сдвига относительно положения лазера.

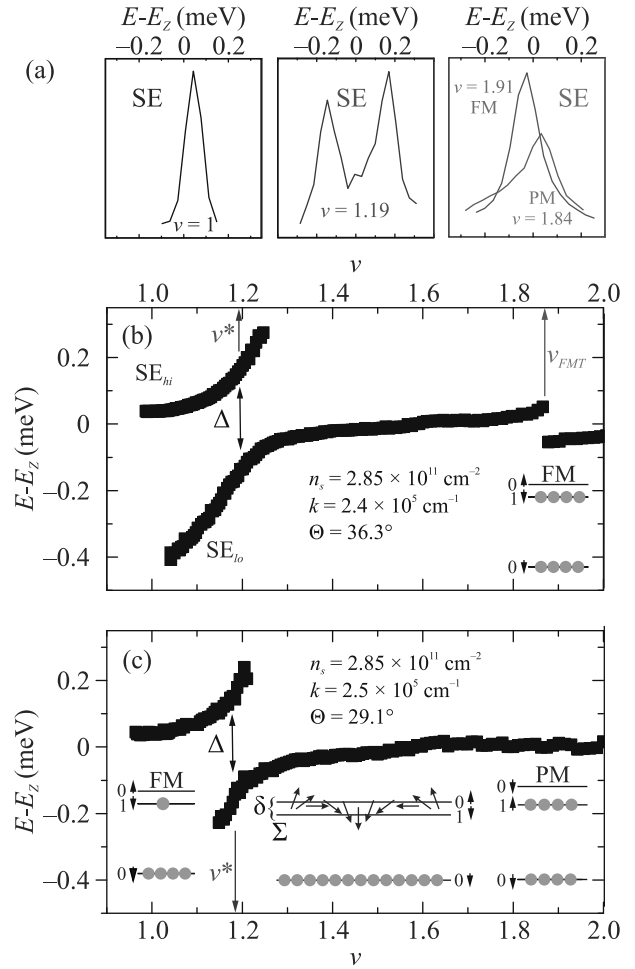


Рис. 1. (Цветной онлайн) – (а) Спектры НРС на спиновых экситонах при различных факторах заполнения. Экспериментальные параметры те же, что и для (b). На панелях (b) и (c) – зависимости многочастичных вкладов в энергию SE от фактора заполнения при различных углах наклона магнитного поля. Положение минимума расщепления Δ двух мод отмечено ν^* . Фактор заполнения, соответствующий ферромагнитному переходу, отмечен ν_{FMT} . Иллюстрации спиновых упорядочений различных фаз приведены на диаграммах в терминах заполнения квазичастицных УЛ

В фокусе внимания были спектры НРС на спиновых экситонах (SE) в пределах частично заполненных УЛ. На рисунке 1a показаны характерные спектры SE при ненулевом импульсе k и при трех факторах заполнения с качественно разными типами спинового упорядочения. При $\nu = 1$ коллинеарный холловский ферромагнетик поддерживает единственный ларморовский SE (спектр слева), с энергией выше E_z за счет k -дисперсии. В диапазоне $1.1 \lesssim \nu \lesssim 1.3$ в спектре появляется дополнительная низкоэнергетическая спиновая мода с $E < E_z$ (центральный спектр), что служит индикатором фор-

мирования неколлинеарного спинового порядка. На рисунке 1b, с энергии спиновых мод за вычетом одночастичного зеемановского расщепления построены как функции фактора заполнения в диапазоне $1 \leq \nu \leq 2$. Между спиновыми модами, обозначенными SE_{hi} и SE_{lo} , наблюдается антипересечение. Ранее было показано [14], что расталкивание мод имеет кулоновский характер – растет от переданного импульса и концентрации ДЭС. Такая картина возбуждений имеет односторонний характер при отклонении фактора заполнения от $\nu = 1$, что связано с особенностью заполнения электронами следующих спиновых УЛ. Наконец, при подходе к $\nu = 2$ картина может быть качественно разной – либо наблюдается плавная эволюция SE с $E = E_z$ вплоть до его исчезновения в парамагнитной фазе (рис. 1c); либо при некотором факторе заполнения $\nu = \nu_{FMT}$ резко меняется энергия и интенсивность SE (рис. 1a справа и рис. 1b), сигнализируя о переходе ДЭС в ферромагнитную фазу. Схема заполнения квазичастичных УЛ в обеих фазах показана в правой части рис. 1b, с (уровни $0\uparrow$ и $1\downarrow$ меняются местами). Инверсия положения уровней $0\uparrow$ и $1\downarrow$ может быть достигнута как увеличением угла наклона магнитного поля (случай рис. 1b), так и уменьшением концентрации ДЭС (из-за перенормировки спиновой восприимчивости).

В случае сильного смешивания УЛ и при факторе заполнения $\nu = 1+$ иерархия спиновых уровней уже оказывается инвертированной [13, 14], и начинает заполняться квазичастичный УЛ $1\downarrow$ (рис. 1c слева). Существует область промежуточных факторов заполнения в окрестности $\nu \sim 1.2$, когда спиновые уровни $0\uparrow$ и $1\downarrow$ почти вырождены, энергетическое расщепление между ними δ можно считать малым по сравнению с обменной энергией Σ , и потому оказываются энергетически выгодными спиновые текстуры (схематично показано на средней диаграмме рис. 1c).

При увеличении наклона магнитного поля картина коллективных возбуждений существенно меняется. Ферромагнитный фазовый переход сдвигается в сторону факторов заполнения $\nu_{FMT} < 2$ при углах, больших некоторого критического ($\Theta_{\nu=2}$). Для одного из образцов зависимость ν_{FMT} от угла наклона приведена круглыми символами на рис. 2a. Однако антипересечение спиновых мод SE_{hi} и SE_{lo} имеет фиксированный центральный фактор заполнения $\nu^* \approx 1.2$ вплоть до значительно больших углов наклона. Начиная с критического угла Θ_{c1} , расщепление мод Δ резко схлопывается (вставка к рис. 3), а начиная с угла $\Theta_{c2} > \Theta_{c1}$, сдвигается и положение центрального фактора заполнения ν^* (квадраты на рис. 2a). Этот результат количественно согласуется

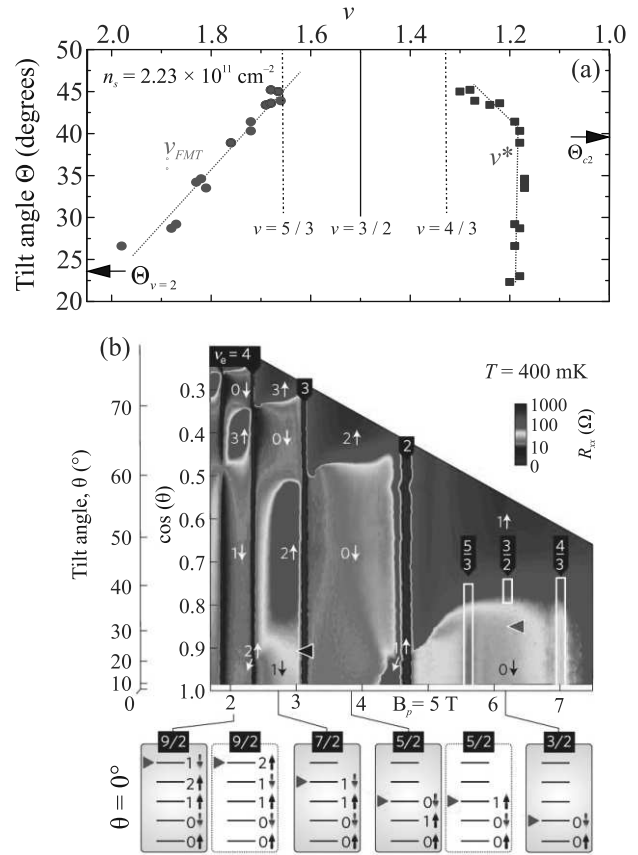


Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Зависимости факторов заполнения точки антипересечения ν^* (квадратные символы) и ферромагнитного перехода ν_{FMT} (круглые символы) от угла наклона магнитного поля. (b) – Магнитотранспортная карта, взятая из [13] для образца ZnO с $n_s = 2.3 \times 10^{11} \text{ см}^{-2}$. Важно: указанные направления спинов везде инвертированы (в оригинале взят противоположный знак g -фактора)

с результатами магнитотранспортных исследований близкого по параметрам образца [13]. Угловая эволюция ν_{FMT} при $\Theta > \Theta_{\nu=2}$ проявляется как резкая граница на фазовой диаграмме (рис. 2b) вблизи $1.7 < \nu < 2$. Со стороны $\nu < 3/2$ резкой границы нет, а вместо нее в некотором угловом диапазоне наблюдается размытая вертикальная полоса, означающая плавное изменение спиновой поляризации при $\nu \sim 1.2-1.3$. В текущем эксперименте идентифицирован характер такого преобразования – посредством формирования спиновых текстур. Похожая картина получается и для других образцов – на рис. 3 показаны зависимости от концентрации критических углов Θ_{c1} и Θ_{c2} в сравнении с аналогичной зависимостью для критического угла $\Theta_{\nu=2}$.

При углах, больше Θ_{c2} , антипересечение спиновых мод при $\nu < 3/2$ и резкий ферромагнитный переход более неразличимы, хотя при не слишком

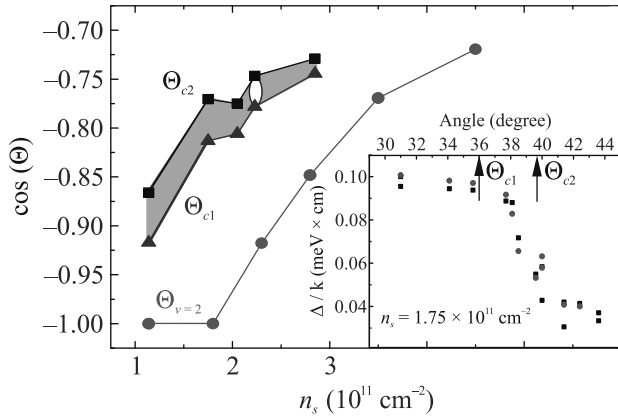


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость критических углов Θ_{c1} и Θ_{c2} от концентрации ДЭС в сравнении с аналогичной зависимостью для угла ферромагнитного перехода при $\nu = 2$. Цветом выделен угловой диапазон $\Theta_{c1} < \Theta < \Theta_{c2}$. Овалом обозначена область параметров, при которых в [13] было обнаружено несжимаемое состояние ДКЭХ $\nu = 3/2$. На вставке представлена зависимость расщепления спиновых мод (в виде Δ/k) от угла наклона магнитного поля, полученная на одном из образцов. Черные символы: $k = (2.2-2.62) \times 10^5 \text{ см}^{-1}$, красные: $k = (1.5-1.96) \times 10^5 \text{ см}^{-1}$

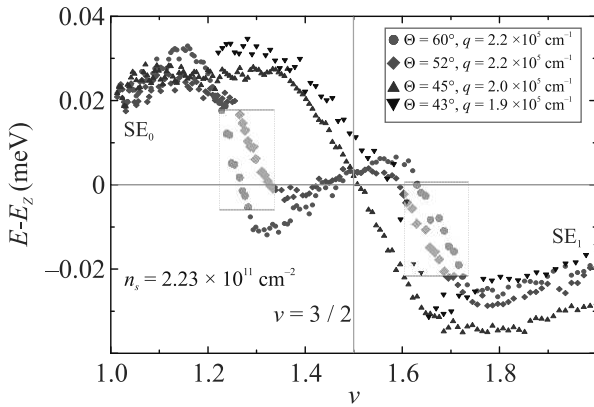


Рис. 4. (Цветной онлайн) Эволюция многочастичного вклада в энергию спиновых экситонов от фактора заполнения при углах, превышающих Θ_{c2} . Импульсы и концентрации ДЭС указаны. Пунктирными прямоугольниками очерчены области, где спектральные пики SE уширены, но тонкой структуры не разрешается

больших углах (например, 43° и 45° на рис. 4) остаются две соответствующие точки перегиба в зависимости энергии SE от ν . Если в этих областях и есть тонкая структура линий SE, то она не разрешается, а наблюдается лишь некоторое уширение пиков НРС. В расширяющейся с ростом угла области факторов заполнения $1 \leq \nu \lesssim 1.3$ многочастичный вклад в энергию SE положителен, практически постоянен и соответствует стабильной коллинеарной

ферромагнитной фазе. В диапазоне $1.7 \lesssim \nu < 2$ энергия SE также имеет стабильный отрицательный кулоновский сдвиг, соответствующий случаю двухкомпонентного холловского ферромагнетика $\nu = 2$ (как в [6]). Два граничных фактора заполнения в этой угловой зависимости (рис. 2а) близки соответственно к $\nu \approx 4/3$ и $\nu \approx 5/3$, что может сигнализировать об особой роли этих состояний дробного КЭХ в преобразовании спинового порядка (есть индикации и на карте магнитосопротивления в [13], рис. 2б). В отличие от стабильного поведения в двух предельных ферромагнитных фазах, SE резко перестраивается в окрестности $\nu \approx 3/2$ – его энергия утрачивает обменно-кулоновский вклад и сравнивается с зеемановской (рис. 4). Отсюда можно заключить, что в окрестности $\nu = 3/2$ при этих углах еще удерживается парамагнитное упорядочение. Наконец, при дальнейшем увеличении угла наклона поля ($\Theta = 52^\circ$ и 60° на рис. 4) энергия SE имеет положительный обменный вклад в постепенно расширяющемся диапазоне, накрывающем область $1 < \nu \leq 3/2$, т.е. энергетически выигрывает классический тип холловского ферромагнетика гейзенберговского типа с положительной спиновой жесткостью. Это же проявляется и в сопутствующем уменьшении величины отрицательного дисперсионного сдвига SE в окрестности $\nu = 2$ (из сравнения данных для $\Theta = 52^\circ$ и 60° при одинаковом импульсе). Измерение кривых при еще больших углах было технически затруднено, но указанный тренд к положительной спиновой жесткости холловского ферромагнетика вполне ожидаем при увеличении угла наклона и отдалении друг от друга спиновых УЛ $0\uparrow$ и $1\downarrow$.

Описанные симптомы спиновых трансформаций при нецелочисленных ν не укладываются в общепринятую картину пересечения квазичастичных УЛ. Прежде всего, зависимости всех обсуждаемых критических углов наклона поля от фактора заполнения (например, на карте магнитосопротивления с сильно немонотонной границей при $1 < \nu < 2$) связаны с соответствующим немонотонным изменением параметра перенормированной спиновой восприимчивости g^*m^* . Даже для целых $\nu = 1$ и $\nu = 2$ ее значения отличаются, поскольку для всех изученных образцов в пределе малых углов наклона Θ порядок УЛ $0\uparrow$ и $1\downarrow$ прямой при $\nu = 2$, но инвертированный при $\nu = 1$. Различия возникают в деталях диэлектрической поляризуемости ДЭС в этих состояниях КЭХ, влияющей на характер ферми-жидкостных перенормировок [16]. А в случае частично заполненных УЛ дополнительно включается механизм металлической экранировки кулоновского взаимодействия

за счет внутриуровневых флуктуаций плотности, и в результате перенормировка спиновой восприимчивости ферми-жидкости g^*m^* оказывается слабее, чем при целочисленных ν . Это сказывается в необходимости большего наклона магнитного поля для пересечения УЛ при отстройке ν от целых к полужелым.

Даже с учетом немонотонной зависимости g^*m^* упрощенная модель невзаимодействующих ферми-жидкостных квазичастиц не описывает систему при нецелочисленных ν . Роль остаточных корреляций между квазичастицами сказывается в качественно разном характере спиновых трансформаций при совпадении УЛ – в одном случае при $\nu = \nu_{FMT}$ имеет место резкий, лавинообразный спин-флип процесс, а в другом – в окрестности ν^* – плавная трансформация спинового упорядочения через образование текстур. Кроме того, вплоть до критического угла Θ_{c2} существует некий механизм, привязывающий условия образования неколлинеарного спинового порядка к фактору заполнения $\nu^* \approx 1.2$ (рис. 2а), и только после коллапса текстур начинается смещение ν^* в большую сторону. При дальнейшем увеличении угла речь уже не идет о спиновых текстурах, их размер, по-видимому значительно сокращается из-за расхождения энергий УЛ $0\uparrow$ и $1\downarrow$. Детальные механизмы данных спиновых превращений неясны, поэтому теоретическое описание спиновой конфигурации основного состояния ДЭС хотя бы в терминах взаимодействующих квазичастиц на перенормированных УЛ было бы крайне полезно.

Для одной из измеренных гетероструктур с концентрацией $n = 2.23 \times 10^{11} \text{ см}^{-2}$ угловой диапазон коллапсирования спиновых текстур $\Theta_{c1} < \Theta < \Theta_{c2}$ (отмечен эллипсом на рис. 3) совпадает до долей градуса с областью обнаружения несжимаемого состояния КЭХ при $\nu = 3/2$ в магнитотранспортных экспериментах (квантование сопротивления наблюдалось в [13] при $T \sim 20 \text{ мК}$).

В заключение, в сильнодействующих ДЭС на основе MgZnO/ZnO исследована эволюция спинового порядка при нецелочисленных факторах заполнения $1 \leq \nu \leq 2$ по поведению низкоэнергетических спиновых возбуждений в спектрах неупругого рассеяния света. Резкий ферромагнитный переход наблюдался при $\nu \gtrsim 1.7$ в зависимости от угла наклона поля и сопровождался скачком энергии спинового экситона. Качественно другое преобразование спинового порядка наблюдалось при $\nu < 3/2$ – в окрестности $1.1 \lesssim \nu \lesssim 1.3$ в спектре возбуждений кроме лармовского спинового экситона, имеется дополнительная спиновая мода с энергией, ниже зеемановской, что является симптомом нарушения спин-враща-

тельной симметрии в системе (образования спиновых текстур). Эта неколлинеарная спиновая конфигурация в системе существует до некоторого критического угла, зависящего от концентрации ДЭС. Получены зависимости критических углов исчезновения спиновых текстур от концентрации. При больших углах симптомы как спиновых текстур, так и ферромагнитного перехода пропадают, и система переходит в ферромагнитное состояние в широком диапазоне факторов заполнения. Оказывается симметричен по фактору с заполнения с центром на факторе $\nu = 3/2$, спиновая жесткость которого равна нулю.

Финансирование работы. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант # 22-12-00257).

Конфликт интересов. Авторы декларируют отсутствие конфликта интересов.

1. D. Maryenko, J. Falson, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, and M. Kawasaki, Phys. Rev. B **90**, 245303 (2014).
2. A. B. Van'kov, B. D. Kaysin, and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B **96**, 235401 (2017).
3. V. M. Pudalov, M. E. Gershenson, H. Kojima, N. Butch, E. M. Dizhur, G. Brunthaler, A. Prinz, and G. Bauer, Phys. Rev. Lett. **88**, 196404 (2002).
4. M. S. Hossain, M. K. Ma, K. A. Villegas Rosales, Y. J. Chung, L. N. Pfeiffer, K. W. West, K. W. Baldwin, and M. Shayegan, PNAS **117**(51), 32244 (2020).
5. J. Falson and M. Kawasaki, Rep. Prog. Phys. **81**, 056501 (2018).
6. А. Б. Ваньков, И. В. Кукушкин, Письма в ЖЭТФ **113**(2), 112 (2021).
7. S. L. Sondhi, A. Karlhede, S. A. Kivelson, and E. H. Rezayi, Phys. Rev. B **47**, 16419 (1993).
8. S. E. Barrett, G. Dabbagh, L. N. Pfeiffer, K. W. West, and R. Tycko, Phys. Rev. Lett. **74**, 5112 (1995).
9. E. H. Aifer, B. B. Goldberg, and D. A. Broido, Phys. Rev. Lett. **76**, 680 (1996).
10. Y. Gallais, J. Yan, A. Pinczuk, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, Phys. Rev. Lett. **100**, 086806 (2008).
11. I. K. Drozdov, L. V. Kulik, A. S. Zhuravlev, V. E. Kirpichev, I. V. Kukushkin, S. Schmult, and W. Dietsche, Phys. Rev. Lett. **104**, 136804 (2010).
12. A. B. Van'kov, B. D. Kaysin, S. Volosheniuk, and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B **100**, 041407(R) (2019).
13. J. Falson, D. Maryenko, B. Friess, D. Zhang, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, J. H. Smet, and M. Kawasaki, Nature Phys. **11**, 347 (2015).
14. A. B. Van'kov, A. S. Koreyev, P. S. Berezhnoy, and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B **106**, 245308 (2022).
15. A. B. Vankov, B. D. Kaysin, V. E. Kirpichev, V. V. Solov'yev, and I. V. Kukushkin, Phys. Rev. B **94**, 155204 (2016).
16. I. L. Aleiner and L. I. Glazman, Phys. Rev. B **52**, 11296 (1995).

Уравнения состояния твердых фаз CO_2 при мегабарных давленияхК. Д. Литасов⁺¹⁾, В. В. Бражкин⁺, Н. Е. Сагатов^{+,*}, Т. М. Инербаев^{+,×}⁺Институт физики высоких давлений им. Л. Ф. Верещагина РАН, 108840 Троицк, Москва, Россия^{*}Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия[×]Евразийский национальный университет им. Л. Н. Гумилева, 010008 Астана, Казахстан

Поступила в редакцию 30 ноября 2023 г.

После переработки 21 декабря 2023 г.

Принята к публикации 22 декабря 2023 г.

С помощью эволюционных методов предсказания кристаллических структур подтверждена стабильность фаз CO_2 при давлениях до 1600 ГПа. Стабильными фазами CO_2 являются фазы $I42d$ (до 279 ГПа), $P4_2/nmc$ (279–952 ГПа), $Pbcn$ (952–1018 ГПа) и $Pa\bar{3}$ (выше 1018 ГПа). С помощью первопринципных методов и высокотемпературных расчетов в квазигармоническом приближении в работе впервые были рассчитаны уравнения состояния стабильных фаз CO_2 до давлений около 1600 ГПа. Показано, что высокobarические фазы $P4_2/nmc$, $Pbcn$ и $Pa\bar{3}$ имеют довольно высокие модули сжатия (290–415 ГПа). Фазы с шестерной координацией атомов углерода $Pbcn$ и $Pa\bar{3}$ имеют более высокие значения коэффициента теплового расширения по сравнению с фазой $P4_2/nmc$.

DOI: 10.31857/S123456782403008X, EDN: spwayo

Введение. CO_2 является одним из главных компонентов системы C-O-H-N, которая является основополагающей при исследовании многих природных процессов, как в глубинах Земли, так и в космических объектах. Поэтому исследование физических свойств CO_2 в мультимегабарном (> 100 ГПа) интервале давлений является одной из принципиальных задач физики твердого тела, науках о Земле и химической космологии.

Наряду с водой, CO_2 остается одним из стабильных бинарных соединений (из жидких и газообразных) в системе C-O-H-N при давлениях до 400–500 ГПа [1, 2] согласно теоретическим предсказаниям кристаллических структур из первых принципов.

Эксперименты в ячейке с алмазными наковальнями и лазерным нагревом позволяют достаточно надежно охарактеризовать диаграммы состояния веществ до давлений 100–200 ГПа и в редких случаях – при более высоких давлениях. В случае CO_2 на фазовой диаграмме при давлениях до 120 ГПа установлено не менее 5 молекулярных фаз (некоторые обнаружены не во всех экспериментах и являются метастабильными), а также кристаллические полимерные и аморфные фазы сверхвысоких давлений [3, 4].

С помощью теоретических методов исследования проведен поиск стабильных структур фаз CO_2 , определены параметры уравнений состояния для неко-

торых из этих фаз и рассчитана линия плавления предсказанных фаз CO_2 . Данные статических экспериментов дополнены предсказаниями о стабильности структур с шестерной координацией углерода при давлениях около 1 ТПа и расчетами линии плавления фазы $\text{CO}_2\text{-V}$ [5–7].

Диаграмма состояния жидкого CO_2 была экспериментально исследована до давлений порядка 1 ТПа с помощью ударно-волновых экспериментов [8–12]. Предполагается, что в жидком состоянии CO_2 демонстрирует не менее сложные структурные превращения, что и в твердом состоянии [13]. При ударном сжатии молекулярная жидкая фаза CO_2 (L-I) стабильна до давлений около 40 ГПа [10], выше которого она превращается в полимерную жидкость с координацией атомов 3 и 4 (L-II) [9, 13]. Выше 100 ГПа CO_2 переходит в ионизированную фазу L-III [11].

В данной работе проведены расчеты по уточнению стабильности ранее найденных фаз высокого давления, а также впервые проведены расчеты P – V – T уравнений состояния стабильных фаз CO_2 в широком интервале давлений и температур.

Методы теоретических расчетов. Все расчеты проводились в рамках теории функционала плотности (DFT) в пакете программ VASP [14, 15]. Эффекты обменной корреляции рассматривались в приближении обобщенного градиента (GGA) по схеме PBE [16] или приближении локальной плотности (LDA). Электроны внутренних оболочек были

¹⁾e-mail: litasov@hppi.troitsk.ru

аппроксимированы с использованием псевдопотенциалов проекционных присоединенных волн (PAW), а валентные электроны были представлены с помощью базиса плоских волн с энергией обрезания 800 эВ. Валентные конфигурации были выбраны как $2s^2 2p^2$ и $2s^2 2p^4$ для С и О, соответственно. Зона Бриллюэна была разбита с помощью k -точек сетки Монкхорста–Пака [17] с шагом $0.2 \text{ \AA}^{-1}$. Поправки Ван-дер-Ваальса учитывались по методу DFT-D3 (IVDW = 11) [18]. Кроме псевдопотенциалов PBE, для сравнения использованы псевдопотенциалы SCAN [19], также имплементированные в VASP.

Предсказание кристаллических структур выполнялось с использованием метода случайной выборки, реализованного в пакете AIRSS [20, 21] и эволюционных алгоритмов, реализованных в пакете USPEX [22–24] при давлениях 300, 500, 800, 1000, 1500 и 2000 ГПа. Расчеты по предсказанию кристаллической структуры с использованием пакета USPEX проводились для 1–6 формульных единиц на элементарную ячейку. Размер первого поколения в расчетах составил 65 структур. После релаксации 55 % структур с наименьшими энтальпиями были отобраны и использованы для создания следующего поколения следующим образом: 40 % всех структур были созданы за счет наследственности, 15 % – за счет атомных мутаций, 10 % – за счет перестановок решетки и 35 % – случайным образом. В среднем при каждом давлении производилось и релаксировалось 35 поколений. Используя AIRSS, около 4000 структур были случайным образом сгенерированы и релаксированы при каждом давлении. Во всех расчетах по прогнозированию кристаллической структуры релаксация среднего качества проводилась с использованием сопряженного градиента. Настройки среднего качества были следующими: энергия отсечки плоской волны – 500 эВ; сетка отбора проб по k -точкам Монкхорста–Пака с шагом – $0.5 \text{ \AA}^{-1}$; Гауссово размытие с параметром $\sigma = 0.1 \text{ эВ}$.

Для учета температурного эффекта был использован метод решеточной динамики в квазигармоническом приближении. Для этой цели были рассчитаны частоты колебаний решетки с использованием метода конечных смещений, реализованного в программе PHONOPY [25]. Силовые константы в реальном пространстве были рассчитаны с использованием метода суперячейки и метода конечных смещений с суперячейкой $2 \times 2 \times 2$ и q -сеткой $31 \times 31 \times 31$ для всех структур. При этом использовались качественные настройки: энергия обрезания – 1000 эВ, шаг дискретизации сетки k -точек – $0.18 \text{ \AA}^{-1}$, $\sigma = 0.05 \text{ эВ}$.

Как правило, квазигармоническое приближение корректно работает до 0.5–0.75 температуры плавления кристалла, но также можно ожидать физически правильных качественных результатов даже вблизи температуры плавления [26, 27]. Также известно, что квазигармоническое приближение хорошо работает для систем с объемом ячейки менее $22 \text{ \AA}^3/\text{атом}$, а точность увеличивается с уменьшением атомного объема [28]. При высоких температурах и сверхвысоких давлениях, расхождение в результатах, полученных с помощью квазигармонического приближения и, например, молекулярной динамики становятся пренебрежимо малы [29, 30]. Это связано с тем, что вклад ангармонизмов существенно уменьшается с ростом давления. Следовательно, в нашем случае (давления выше 200 ГПа), использование квазигармонического приближения является приемлемым.

Параметры упругости фаз охарактеризованы через уравнение состояния Берча–Мурнагана третьего порядка, где давление определяется следующим выражением [31]:

$$P = 1.5 K_T [(z^{7/3} - z^{5/3}) \times (1 + 0.75(K'_T - 4)(z^{2/3} - 1))], \quad (1)$$

здесь K_T – изотермический модуль объемного сжатия, $z = V_{0T}/V$, V_{0T} – объем при 1 атм, V – объем при высоком давлении и K'_T – производная K_T по давлению.

Результаты и обсуждение. Проведенные расчеты по предсказанию структур при 300, 500, 800, 1000, 1200 и 1500 ГПа с использованием GGA-PBE почти полностью воспроизвели результаты работы [5] несмотря на то, что в оригинальной работе использовались другие методы предсказания структур (рис. 1). Использование дополнительных методов расчета LDA и SCAN приводит к близким результатам (табл. 1). Стабильными фазами CO₂ на разных интервалах давления от 100 до 1600 ГПа являются фазы с четверной координацией атомов углерода $I\bar{4}2d$ (или CO₂-V) (до 279 ГПа) и $P4_2/nmc$ (279–952 ГПа), а также фазы с шестерной координацией атомов углерода $Pbcn$ (952–1018 ГПа) и $Pa\bar{3}$ (выше 1018 ГПа) (см. также [5]). С учетом нулевых колебаний (при $T = 0 \text{ К}$) давление перехода $I\bar{4}2d$ – $P4_2/nmc$ не меняется, тогда как давления переходов $P4_2/nmc$ – $Pbcn$ и $Pbcn$ – $Pa\bar{3}$ немного понижаются до 932 и 1013 ГПа, соответственно (табл. 1).

Важно подчеркнуть, что в предыдущих работах никак не отмечалось, что структура $Pa\bar{3}$ – это структура пирита (FeS₂), а структурный переход от $Pbcn$ к $Pa\bar{3}$ также характерен для системы SiO₂, где этот

Таблица 1. Давления фазовых переходов фаз CO₂, рассчитанные разными методами

Фазовый переход	GGA-PBE (ГПа)	LDA (ГПа)	SCAN (ГПа)	[5]
Без учета нулевых колебаний (ZPE) фононов				
$I\bar{4}2d-P4_2/nmc$	279	262	288	285
$P4_2/nmc-Pbcn$	952	920	1008	968
$Pbcn-Pa\bar{3}$	1018	994	1045	1032
С учетом нулевых колебаний (ZPE) фононов				
$I\bar{4}2d-P4_2/nmc$	279	251	288	
$P4_2/nmc-Pbcn$	932	884	983	
$Pbcn-Pa\bar{3}$	1013	972	1043	

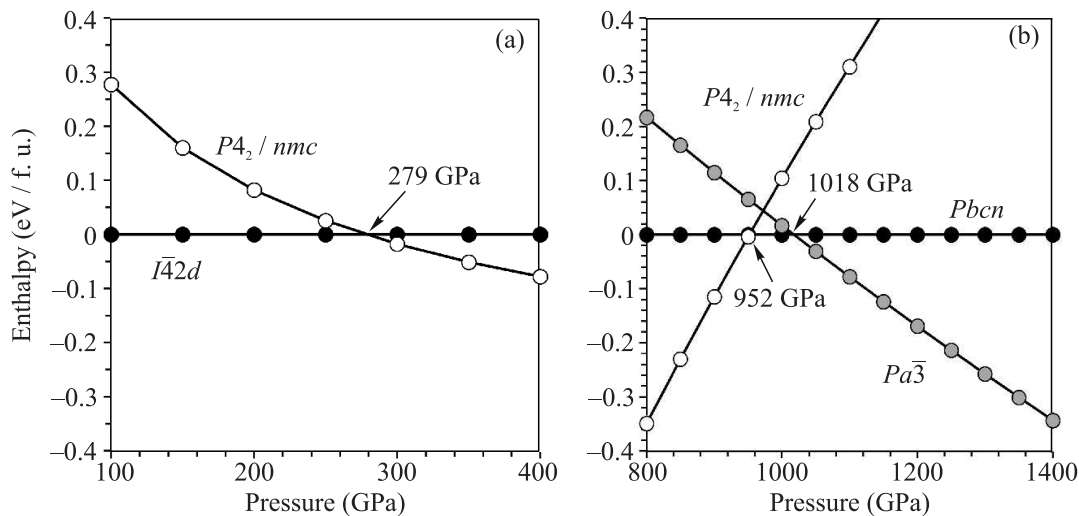


Рис. 1. Разница энthalпий фаз, рассчитанная с использованием GGA-PBE для наиболее стабильных модификаций CO₂ в области давлений фазовых переходов: (а) – 100–400 ГПа, значения энthalпий нормированы относительно CO₂- $I\bar{4}2d$ и (б) – 800–1400 ГПа, значения энthalпий нормированы относительно CO₂- $Pbcn$

переход наблюдается при давлении около 215 ГПа [32]. При этом $Pbcn$ – это структура α -PbO₂ (SiO₂-сейфертит). Как показано ниже, при высокой температуре для CO₂ обе PT -границы (в CO₂ и в SiO₂) имеют отрицательный наклон.

Для установленных стабильных фаз CO₂ были рассчитаны P – V – T уравнения состояния и термодинамические параметры. Данные, рассчитанные по уравнению состояния Берча–Мурнагана (ур. (1)) представлены в табл. 2. Для фаз $P4_2/nmc$, $Pbcn$ и $Pa\bar{3}$ рассчитанные модули всестороннего сжатия являются довольно высокими. Возможно, это связано с трудностями в определении V_0 при высоких давлениях, когда фаза не стабильна при 0 ГПа. Тем не менее представленные в табл. 2 данные корректно описывают кривые сжимаемости фаз CO₂ на выбранном интервале давлений.

Параметры сжимаемости, полученные по методу GGA-PBE, практически совпадают с LDA. Они отличаются только по объему при нулевых давлениях.

Объем ячейки, рассчитанный по методу LDA, меньше объема, рассчитанного по методу GGA-PBE на 5.4 % при 10 ГПа и на 2.3 % при 1000 ГПа. Данные, рассчитанные по методу SCAN, практически совпадают с GGA-PBE.

На рисунке 2 для фазы $I\bar{4}2d$ проведено сравнение с предыдущими данными. Показано хорошее соответствие данных LDA с экспериментальными данными [33] и данных GGA-PBE с экспериментальными данными [4, 34]. Обычно, для других фаз экспериментальная кривая располагается между GGA-PBE и LDA и для вычислений берется среднее значение объема при нулевом давлении.

Кривые сжимаемости для всех стабильных фаз CO₂ при давлениях до 1200 ГПа приведены на рис. 3. Здесь же показаны кривые, рассчитанные при высокой температуре (3000 К). При переходе $I\bar{4}2d$ – $P4_2/nmc$ объем ячейки понижается на 1 %, при переходе $P4_2/nmc$ – $Pbcn$ – на 4 %, а при переходе от $Pbcn$ – $Pa\bar{3}$ – на 2 %.

Таблица 2. Параметры уравнения состояния Берча–Мурнагана 3 порядка для фаз CO₂, рассчитанные при 0 К в различных интервалах давлений по методу GGA-PBE. Для фазы *I*4̄2d показаны также данные расчетов по методу LDA

Интервал давлений, ГПа	V_0 , Å ³ на ячейку	K_0 , ГПа	K'	RMS
<i>I</i> 4̄2d, GGA-PBE				
20–300	24.82	92.35	4.70	2.02
20–100	24.12	122.62	3.97	0.26
<i>I</i> 4̄2d, LDA				
20–300	23.50	95.07	5.03	2.00
20–100	22.79	130.60	4.14	0.43
<i>P</i> 4 ₂ / <i>nmc</i>				
200–1200	19.72	291.82	3.84	8.71
280–1200	19.39	314.96	3.80	6.13
<i>Pbcn</i>				
400–1200	17.24	415.42	3.76	3.68
800–1200	17.23	415.45	3.77	2.40
<i>Pa</i> 3̄				
420–1600	17.23	380.39	3.83	1.36
800–1600	17.23	380.40	3.83	0.51

RMS – среднеквадратичное отклонение.

Сравнение расчетных значений теплового расширения для стабильных фаз CO₂ (рис. 4, табл. 3) показывает, что высокобарические фазы *Pbcn* и *Pa*3̄ имеют более высокое тепловое расширение по сравнению с фазой *P*4₂/*nmc*, что может обуславливать отрицательный наклон границы перехода (см. ниже).

Таблица 3. Тепловое расширение фаз CO₂, (α , 10^{−6} К^{−1}), рассчитанное при 300 К и разных давлениях (без учета ангармонических колебаний)

Фаза	Давление, ГПа			
	100	300	500	1000
<i>I</i> 4̄2d	4.80	1.90	–	–
<i>P</i> 4 ₂ / <i>nmc</i>	–	1.67	0.95	0.42
<i>Pbcn</i>	–	–	2.34	0.66
<i>Pa</i> 3̄	–	–	2.81	0.71

Перед расчетом фазовой диаграммы CO₂ было проведено сравнение границы перехода CO₂-IV–CO₂-V (*I*4̄2d) с работой [35], где использовались сходные методы расчета. Отклонение границы находится в пределах 2 ГПа, что подтверждает точность выбранных методик расчета. Результаты расчета фазовой диаграммы CO₂ с помощью метода GGA-PBE показаны на рис. 5. Рассчитанная *PT*-граница *P*4₂/*nmc*–*Pbcn* хорошо согласуется с данными из работы [5]. Остальные *PT*-границы до этого не были исследованы. *PT*-граница *I*4̄2d–*P*4₂/*nmc* имеет небольшой отрицательный наклон, равный

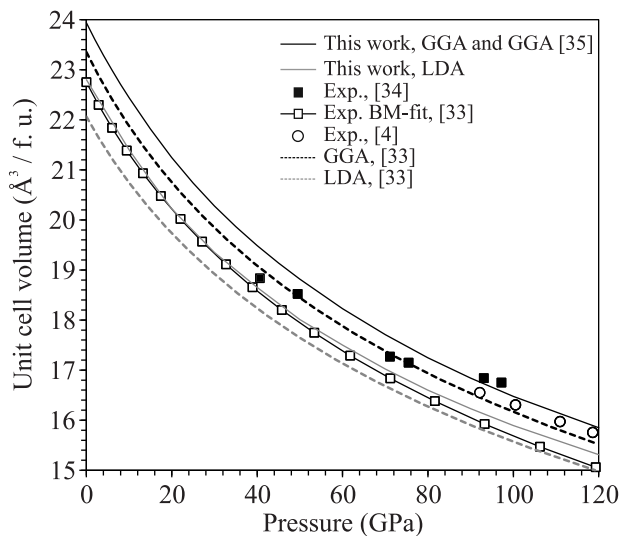


Рис. 2. Сравнение кривых сжимаемости фазы CO₂-*I*4̄2d с данными предыдущих теоретических [33, 35] и экспериментальных (Exp.) работ [4, 33–34]

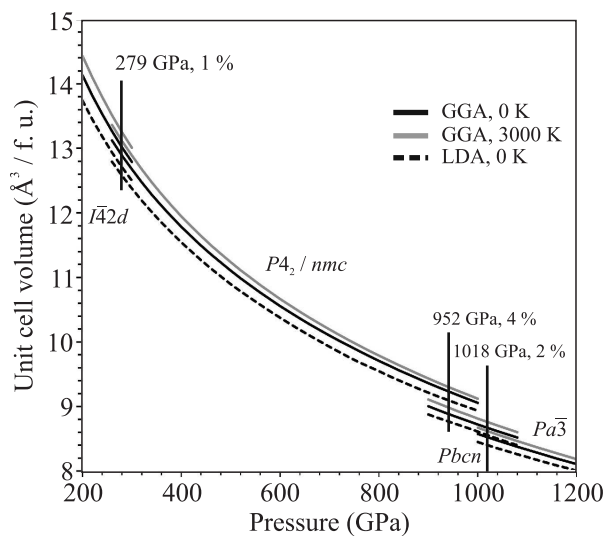


Рис. 3. Кривые сжимаемости фаз CO₂ в интервале давлений 200–1200 ГПа в области фазовых переходов, рассчитанные помощью методов GGA-PBE, LDA и GGA-PBE при 3000 К

–2 МПа/К. *PT* граница *P*4₂/*nmc*–*Pbcn* имеет отрицательный наклон равный –10 МПа/К при 0–1000 К, который увеличивается до –33 МПа/К при 4000–5000 К. *PT*-граница *Pbcn*–*Pa*3̄ имеет небольшой отрицательный наклон в среднем –3 МПа/К (рис. 5). Расчеты с помощью методик LDA и SCAN при высоких температурах немного (в пределах 10 ГПа) занижают и завышают давления перехода, соответственно.

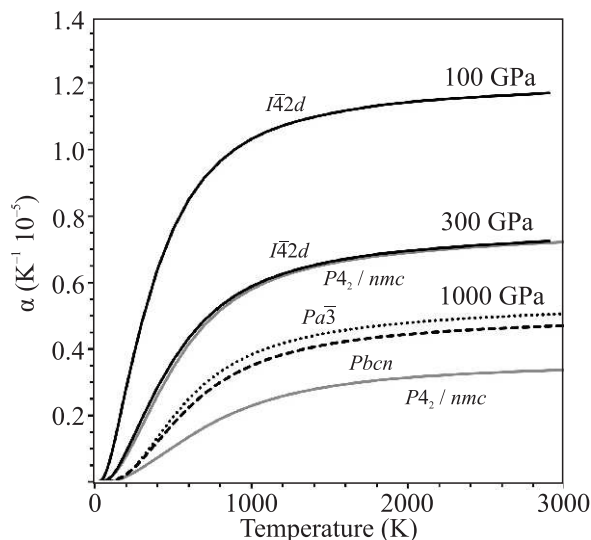


Рис. 4. Тепловое расширение фаз CO_2 , рассчитанное при 300 К и разных давлениях (без учета ангармонических колебаний)

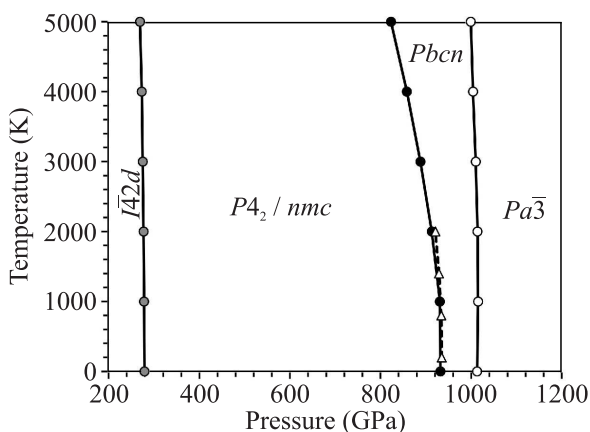


Рис. 5. Фазовая P - T диаграмма CO_2 , рассчитанная с помощью метода GGA-PBE. Пунктиром изображена граница $P4_2/nmc$ - $Pbcn$ воспроизведенная из данных в работе [5]

Таким образом, с помощью первопринципных методов и высокотемпературных расчетов в квазигармоническом приближении в работе впервые были рассчитаны уравнения состояния стабильных фаз CO_2 до давлений около 1600 ГПа. Показано, что высокобарические фазы $P4_2/nmc$, $Pbcn$ и $Pa\bar{3}$ имеют довольно высокие модули сжатия (290–415 ГПа). Фазы с шестерной координацией атомов углерода $Pbcn$ и $Pa\bar{3}$ имеют более высокие значения коэффициента теплового расширения по сравнению с фазой $P4_2/nmc$. Соответственно, границы перехода в районе 900–1000 ГПа имеют отрицательный наклон.

Финансирование работы. Исследование выполнено при финансовой поддержке научной программы Национального Центра Физики и Математики (НЦФМ), проект “Исследования в сильных и сверхсильных магнитных полях”.

Конфликт интересов. Авторы заявляют об отсутствии конфликтов интересов.

1. A. S. Naumova, S. V. Lepeshkin, P. V. Bushlanov, and A. R. Oganov, J. Phys. Chem. A **125**, 3936 (2021).
2. L. J. Conway, C. J. Pickard, and A. Hermann, Proc. Natl. Acad. Sci. **118**, e2026360118 (2021).
3. K. D. Litasov, A. F. Goncharov, and R. J. Hemley, Earth Planet. Sci. Lett. **309**, 318 (2011).
4. K. F. Dziubek, M. Ende, D. Scelta, R. Bini, M. Mezouar, G. Garbarino, and R. Miletich, Nat. Commun. **9**, 3148 (2018).
5. C. Lu, M. Miao, and Y. Ma, J. Amer. Chem. Soc. **135**, 14167 (2013).
6. A. M. Teweldeberhan, B. Boates, and S. A. Bonev, Earth Planet. Sci. Lett. **373**, 228 (2013).
7. C. J. Wu, D. A. Young, P. A. Sterne, and P. C. Myint, J. Chem. Phys. **151**, 224505 (2019).
8. В. Н. Зубарев, Г. С. Телегин, Доклады АН СССР **142**(2), 309 (1962).
9. W. J. Nellis, A. C. Mitchell, F. H. Ree, M. Ross, N. C. Holmes, R. J. Trainor, and D. J. Erskine, J. Chem. Phys. **95**, 5268 (1991).
10. G. L. Schott, Intl. J. High Pressure Res. **6**, 187 (1991).
11. L. E. Crandall, J. R. Rygg, D. K. Spaulding, T. R. Boehly, S. Brygoo, and P. M. Celliers, Phys. Rev. Lett. **125**, 165701 (2020).
12. L. E. Crandall, J. R. Rygg, D. K. Spaulding, M. F. Huff, M. C. Marshall, and D. N. Polsin, Phys. Plasmas **28**, 022708 (2021).
13. B. Boates, A. M. Teweldeberhan, and S. A. Bonev, Proc. Natl. Acad. Sci. **109**, 14808 (2012).
14. G. Kresse and J. Furthmuller, Comp. Mater. Sci. **6**, 15 (1996).
15. G. Kresse and J. Furthmuller, Phys. Rev. B **54**, 11169 (1996).
16. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, Phys. Rev. Lett. **77**, 3865 (1996).
17. H. K. Monkhorst and J. D. Pack, Phys. Rev. B **13**, 5188 (1976).
18. S. Grimme, J. Antony, S. Ehrlich, and H. Krieg, J. Chem. Phys. **132**, 15 (2010).
19. Y. Yao and Y. Kanai, J. Chem. Phys. **146**, 22 (2017).
20. C. J. Pickard and R. J. Needs, Phys. Rev. Lett. **97**, 045504 (2006).
21. C. J. Pickard and R. J. Needs, J. Phys. Condens. Matter **23**, 053201 (2011).

22. A. R. Oganov and C. W. Glass, *J. Chem. Phys.* **124**, 244704 (2006).
23. A. R. Oganov, A. O. Lyakhov, and M. Valle, *Acc. Chem. Res.* **44**, 227 (2011).
24. A. O. Lyakhov, A. R. Oganov, H. T. Stokes, and Q. Zhu, *Comp. Phys. Comm.* **184**, 1172 (2013).
25. A. Togo and I. Tanaka, *Scr. Mater.* **108**, 1 (2015).
26. L. N. Kantorovich, *Phys. Rev. B* **51**, 3520 (1995).
27. L. N. Kantorovich, *Phys. Rev. B* **51**, 3535 (1995).
28. L. C. Gong, B. Y. Ning, C. Ming, T. C. Weng, and X. J. Ning, *J. Phys. Condens. Matter* **33**, 085901 (2020).
29. M. Matsui, G. D. Price, and A. Patel, *Geophys. Res. Lett.* **21**, 1659 (1994).
30. A. Metsue and T. Tsuchiya, *Geophys. J. Int.* **190**, 310 (2012).
31. K. D. Litasov, P. I. Dorogokupets, E. Ohtani, Y. Fei, A. Shatskiy, I. S. Sharygin, P. N. Gavryushkin, S. V. Rashchenko, Y. V. Seryotkin, Y. Higo, K. Funakoshi, A. D. Chanyshiev, and S. S. Lobanov, *J. Appl. Phys.* **113**, 093507 (2013).
32. P. K. Das, C. E. Mohn, J. P. Brodholt, and R. G. Trønnes, *Amer. Mineral. J. Earth Planet. Mat.* **105**, 1014 (2020).
33. F. Datchi, B. Mallick, A. Salamat, and S. Ninet, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 125701 (2012).
34. Y. Seto, D. Nishio-Hamane, T. Nagai, N. Sata, and K. Fujino, *J. Phys. Conf. Ser.* **215**, 012015 (2010).
35. B. H. Cogollo-Olivo, S. Biswas, S. Scandolo, and J. A. Montoya, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 095701 (2020).

Особенности фторирования поверхности золота Au(111) с использованием молекул фторфуллеренов

С. И. Орешкин⁺*, М. Н. Петухов[×], Д. А. Музыченко⁺, В. И. Панов⁺, В. О. Суров⁺, А. В. Самородский⁺,
А. И. Орешкин⁺¹⁾

⁺ Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

^{*} Государственный астрономический институт им. П. К. Штернберга МГУ, 119234 Москва, Россия

[×] ICB, UMR 6303 CNRS-Université de Bourgogne, 21078 Dijon, France

Поступила в редакцию 26 ноября 2023 г.

После переработки 25 декабря 2023 г.

Принята к публикации 25 декабря 2023 г.

Продemonстрирована возможность использования молекул фторфуллерена C₆₀F₄₈ в качестве источника фтора в реакциях с участием золота Au(111). Методами сверхвысоковакуумной сканирующей туннельной микроскопии и рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии показано, что молекулы C₆₀F₄₈ теряют часть атомов фтора с течением времени, образуя молекулы со стехиометрическим составом, близким к конфигурации фторфуллерена C₆₀F₃₆, что подтверждено измерениями рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии. Взаимодействие фтора с поверхностью Au(111) происходит только под островками, сформированными молекулами фторфуллерена, потерявшими часть атомов фтора. Было показано, что молекула C₆₀F₁₈ не реагирует с поверхностью Au(111). При субмонослойном покрытии поверхности золота фторфуллереном C₆₀F₁₈, “herringbone” ($22 \times \sqrt{3}$) реконструкция, характерная для чистой поверхности Au(111), остается неизменной как в области, свободной от сформировавшихся островков фторфуллерена, так и под ними, а молекулы C₆₀F₁₈ сохраняют свою начальную конфигурацию с течением времени.

DOI: 10.31857/S1234567824030091, EDN: spxomd

1. Введение. Растущий интерес к изучению фторсодержащих материалов вызван недавним прогрессом в создании фторид-ионных аккумуляторных батарей с высокой объемной плотностью энергии [1, 2], где CuF₂ является потенциальным претендентом на роль катодного материала. Более того, несмотря на тот факт, что адсорбированные атомы галогенов на поверхности металлов являются хорошо изученной системой [3–7], для детального понимания механизма адсорбции фтора требуются дополнительные исследования. Данное обстоятельство вызвано сложностью приготовления источника фтора. Было лишь несколько попыток его практической реализации.

В работе [8] исследовались пленки фторидов металлов, полученные путем взаимодействия XeF₂ с поверхностями поликристаллических ванадия, железа и меди при комнатной температуре. Основным недостатком этого метода связан с очень высокой концентрацией атомов фтора (минимальная экспозиция по XeF₂ составила 20 Л). В работах [9] и [10] описан

источник фтора на основе CaF₂. В качестве электродов в этих работах использовались различные материалы: Pt, C, Au и Mo. При давлении в вакуумной системе $\sim 3 \times 10^{-7}$ Торр наилучшие результаты были получены при использовании анодов из C и Mo. В работе [11] было обнаружено, что использование пластин Au и оптимизация для работы в сверхвысоком вакууме позволяет производить молекулярный поток F₂, свободный от загрязнений, при сохранении базового давления в системе 8×10^{-11} Торр. Такой источник применялся для исследования процесса травления поверхности Si(100)–(2 × 1) фтором [12]. В [13] предложена новая конструкция источника фтора. Осаждение атомов F осуществлялось из электрохимической ячейки, модифицированной заменой Au-электродов на углеродные, чтобы избежать загрязнения, вызванные атомами Au, к которому чувствительна поверхность Si(111)–(7 × 7). Химические соединения фтора с металлами представляют большой интерес из-за возможности использования их необычных свойств в оптоэлектронике, электрооптике и в новых интересных областях физики (расщеп-

¹⁾e-mail: oreshkin@spmlab.phys.msu.ru

ление Рашбы, квантовый аномальный эффект Холла) [14, 15].

В работе [16] молекулы $C_{60}F_{18}$, осажденные на Au(111), исследовались методами сканирующей туннельной микроскопии/спектроскопии (СТМ/СТС) как при комнатной температуре, так и при температуре жидкого гелия. Показано, что при низкой температуре отдельные молекулы $C_{60}F_{18}$ могут иметь различную ориентацию, но при этом атомы фтора всегда направлены в сторону подложки. В работе [17] методом рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии с разрешением по энергии возбуждения исследована ориентация молекул $C_{60}F_{18}$, обладающих высоким дипольным моментом, на поверхности монокристалла Au(111). Анализ экспериментальных данных позволил определить ориентацию молекул относительно подложки, при этом ось симметрии молекулы наклонена на угол $\varphi = 45^\circ \pm 5^\circ$ относительно нормали к поверхности. Использование молекул фторфуллеренов в качестве источника фтора впервые рассматривалось в работах [18–21]. В работе [22] с помощью сканирующей туннельной микроскопии и фотоэлектронной спектроскопии изучены фундаментальные процессы, происходящие при комнатной температуре при приближении молекулы фторфуллера к поверхности металла. Авторы продемонстрировали, что целостность $C_{60}F_{48}$ на поверхности зависит от взаимодействия с конкретным металлом. В то время как на Au(111) молекула сохраняет свою химическую структуру, на более реакционноспособных поверхностях, таких как Cu(111) и Ni(111), молекулы, взаимодействующие с чистой металлической поверхностью, теряют атомы галогена и трансформируются в C_{60} . Как видно, фторирование поверхности Au(111) требует более детального изучения. Для использования молекул фторфуллеренов в качестве источника фтора необходимо учитывать, по крайней мере, два важных обстоятельства. Прежде всего, это энергия адсорбции атомов фтора на металлических поверхностях. Подробная информация представлена в [23]. Согласно результатам этой работы, энергия адсорбции атома фтора на поверхности Au(111) составляет -3.0 эВ на один атом. Во-вторых, принципиальную важность имеет энергия связи атома фтора в углеродном каркасе в зависимости от числа n добавленных атомов фтора [24]. Для молекулы $C_{60}F_{18}$ энергия связи атома фтора составляет -2.15 эВ/ат. или даже ниже (-2.8 эВ/ат.). Для молекулы $C_{60}F_{48}$ это значение может быть либо -1.5 эВ/ат., либо -1.1 эВ/ат. Таким образом, из теоретических данных можно сделать вывод, что использование молекулы $C_{60}F_{48}$ в качестве источника

фтора на поверхности Au(111) выглядит более предпочтительным. Некоторая погрешность в приведенных численных значениях для энергии связи атома фтора с углеродным остовом может быть обусловлена применяемым авторами алгоритмом расчета, где к начальной конфигурации CF_2 последовательно добавлялась пара атомов фтора. Для экспериментальной проверки этих данных в рамках нашей работы были использованы молекулы $C_{60}F_{18}$ и $C_{60}F_{48}$ для изучения возможной химической реакции фтора на поверхности Au(111) и целостности молекул фторфуллеренов.

2. Экспериментальная процедура. Измерения методами рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС) и СТМ проводились на двух разных экспериментальных установках, но при одних и тех же экспериментальных условиях. Все СТМ измерения проводились в сверхвысоком вакууме (СВВ) (с базовым давлением в системе 4×10^{-11} мбар) на установке СТМ (Omicron Nanotechnology) при комнатной температуре с использованием зондов, изготовленных из проволоки вольфрама методом электрохимического травления. Все представленные в работе СТМ изображения были получены в режиме постоянного тока. Во всех проведенных экспериментах туннельное напряжение V_t прикладывалось к образцу, а зонд СТМ был виртуально заземлен. Обработка изображений проводилась с помощью Nanotec WSxM [25]. Монокристалл Au(111) был эпитаксиально выращен на подложке слюды и очищен в условиях СВВ повторными циклами ионной (Ar^+) бомбардировки при 1 кэВ и отжига при 823 К в течение 2–3 ч. Осаждение молекул $C_{60}F_{18}$ проводилось из ячейки Кнудсена на чистую поверхность Au(111) при комнатной температуре и давлении в СВВ системе 1.8×10^{-10} Торр. Во всех экспериментах использовалась скорость осаждения 0.03 МС/мин. Здесь 1 МС (монослой) определяется как количество молекул, образующих плотноупакованный слой фторфуллера на поверхности Au(111).

Эксперимент РФЭС проводился в сверхвысоковакуумной камере с базовым давлением 1×10^{-10} Торр, оснащенной полусферическим анализатором Omicron EA 125 и источником рентгеновского излучения XR705 VG Microtech с двойным анодом, при комнатной температуре. В измерениях методом РФЭС использовалась линия мягкого характеристического рентгеновского излучения Al K_{α} . Во всех РФЭС-измерениях угол выхода электронов, попадающих в анализатор, был равен 30 градусов. Шкала энергии РФЭС была откалибрована по положению пика Au $4f_{7/2}$ (84.0 эВ). Для обработки

спектров РФЭС использовалось программное обеспечение CasaXPS [26]. Вакуумная камера, в которой проводились РФЭС измерения, была дополнительно оснащена сканирующим туннельным микроскопом. Калибровка источника фторфуллеренов проводилась по СТМ изображениям.

3. Основные результаты и их обсуждение.

3.1. $C_{60}F_{18}$ на поверхности Au(111). Степень покрытия поверхности Au(111) молекулами $C_{60}F_{18}$ была выбрана равной 0.5 МС. Непрерывные СТМ измерения поверхности Au(111) с нанесенными на нее молекулами $C_{60}F_{18}$ в течение 330 ч не выявили каких-либо изменений в морфологии поверхности. Типичное СТМ изображение представлено на рис. 1. От-

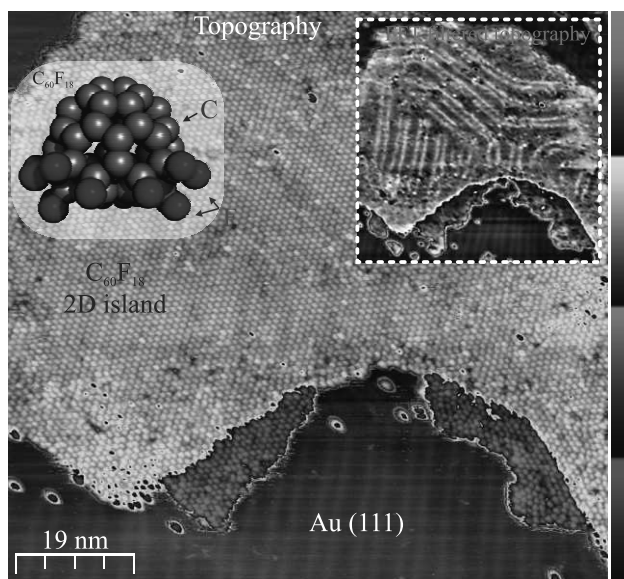


Рис. 1. (Цветной онлайн) Топографическое СТМ-изображение субмонослойного покрытия поверхности Au(111) молекулами фторфуллерена $C_{60}F_{18}$; $U_t = -1.8$ В; $I_t = 16$ пА; $95\text{ нм} \times 95\text{ нм}$; На вставке в правом верхнем углу показано это же изображение после фильтрации с использованием быстрого преобразования Фурье с целью визуализации $22 \times \sqrt{3}$ реконструкции золота Au(111). Общий вид молекулы $C_{60}F_{18}$ показан на вставке в верхнем левом углу

четливо выделяется $22 \times \sqrt{3}$ реконструкция поверхности Au(111), которая также явно прослеживается под островком, состоящим из молекул $C_{60}F_{18}$. Таким образом, можно сделать вывод, что поверхность Au(111) не подвержена воздействию фтора и, молекула $C_{60}F_{18}$ сохраняет свою целостность. Вставка к рис. 1 показывает топографическое СТМ изображение, из которого методом быстрого преобразования Фурье были удалены высокочастотные компоненты, отвечающие за гофрировку структуры фторфулле-

рена с целью визуализировать $22 \times \sqrt{3}$ реконструкцию золота Au(111). Все молекулы $C_{60}F_{18}$ имеют симметричную форму, что возможно только в том случае, если молекулы $C_{60}F_{18}$ ориентированы атомами фтора к поверхности золота. Почти все молекулы имеют одинаковую высоту на СТМ изображении, за исключением некоторых молекул, высота профиля которых на 0.5 ангстрем выше, что соответствует различию в ориентации молекулы фторфуллерена [16].

3.2. $C_{60}F_{48}$ на поверхности Au(111). На рисунке 2 показано СТМ-изображение фторфуллерена на

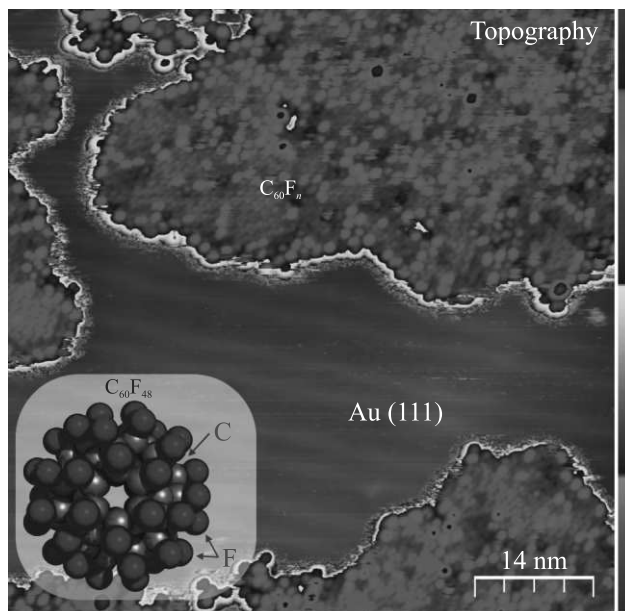


Рис. 2. (Цветной онлайн) Топографическое СТМ изображение субмонослойного покрытия поверхности Au(111) молекулами фторфуллерена $C_{60}F_{48}$, полученное через 72 ч после напыления; $U_t = 2.2$ В; $I_t = 14$ пА; $50\text{ нм} \times 50\text{ нм}$; наличие рефлексов различной интенсивности свидетельствует о распаде начальных молекул с образованием $C_{60}F_n$ ($n < 48$). На вставке показан общий вид молекулы $C_{60}F_{48}$

поверхности Au(111) (0.5 МС), полученное через 72 ч после осаждения молекул $C_{60}F_{48}$. Хорошо различима чистая реконструированная поверхность Au(111) с молекулярным островком на ней. Следует отметить отсутствие $22 \times \sqrt{3}$ реконструкции под островком в этом случае. Из-за равномерного распределения фтора на углеродном остоле, молекулы $C_{60}F_{48}$ на СТМ изображениях должны иметь симметричную форму, даже потеряв незначительное количество атомов фтора, например до конфигурации $C_{60}F_{46}$. Часть таких молекул все еще наблюдается на СТМ изображении. Появление пятен различной контраст-

ности позволило констатировать существенный распад молекул $C_{60}F_{48}$ с образованием молекул фторфуллерена с другим стехиометрическим составом. Хотя потеря атомов фтора молекулами $C_{60}F_{48}$ четко различима, мы не наблюдали какого-либо присутствия атомов фтора на поверхности Au(111), не занятой молекулярными островками, на которой по-прежнему наблюдалась $22 \times \sqrt{3}$ реконструкция. Наиболее вероятным объяснением этого факта является образование фторида золота AuF, который можно наблюдать только в газообразной фазе [27, 28].

Мы не наблюдаем $22 \times \sqrt{3}$ реконструкцию под молекулярным островком, как это было для молекул $C_{60}F_{18}$ на Au(111) при комнатной температуре. Следовательно, происходит некоторая поверхностная трансформация под островком, состоящим из молекул фторфуллерена. Возможно происходит встраивание атомов фтора в поверхностный слой золота, или происходит снятие исходной реконструкции поверхности Au(111) за счет физсорбции атомов фтора. Похожая ситуация была описана в [29], где авторы смогли наблюдать, что покинувшие фторфуллерен атомы F мигрируют под молекулярный островок в системе $C_{60}F_{48}$ /графен/SiC.

Для проверки данной гипотезы были проведены РФЭС-измерения для системы $C_{60}F_{48}$ -Au(111). Чистую поверхность золота обычно используют для задания энергетической шкалы фотоэлектронных спектров фторфуллеренов [30]. В случае многослойного осаждения (3 МС) спектр F 1s исследуемой молекулы имеет только один пик при энергии связи $E_B(F1s) = 687.3 \text{ эВ}$ (полная ширина на половине высоты: $\text{FWHM} = 1.75 \text{ эВ}$) (рис. 3). Такое же значение энергии связи было получено для $C_{60}F_{36}$ на поверхности золота [30]. Во всех РФЭС-измерениях угол выхода электронов, попадающих в анализатор, был равен 30 градусов. В связи с этим, фотоэлектроны, эмитированные из приповерхностной области, покрытой островками фторфуллерена, сильно ослабляются, поскольку их неупругий средний свободный пробег не превышает $6 \text{ \AA}$, что меньше размера молекулы фторфуллерена. Поэтому на спектре F 1s не наблюдается низкоэнергетическая составляющая в области энергий 682–685 эВ, ответственная за образование фторида металла. Разрушение исходной реконструкции поверхности Au(111), наблюдаемой в СТМ экспериментах, указывает на формирование буферного слоя, который вызван десорбцией атомов фтора с адсорбированных на поверхности Au(111) молекул $C_{60}F_{48}$. Образование газообразного фтора маловероятно из-за существенной разницы между энергией диссоциации – 1.63 эВ/атом ([31])

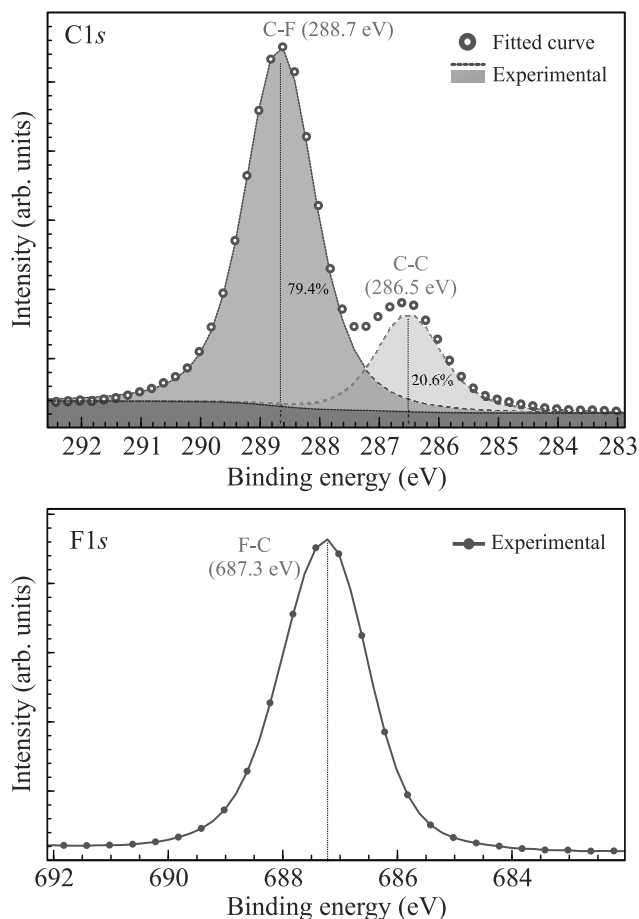


Рис. 3. (Цветной онлайн) РФЭС спектры F 1s и C 1s молекул $C_{60}F_{48}$ на поверхности Au(111); степень покрытия 3 МС

и энергией адсорбции атома фтора на поверхности Au(111) – 3.00 эВ/атом ([23]). В спектре C 1s молекулы $C_{60}F_{48}$ наблюдаются два пика, соответствующие связям C-C между атомами углерода (атомы C без присоединенного F) и связям C-F между углеродом и фтором (атомы C, связанные с F), при 286.5 и 288.7 эВ соответственно (рис. 3). Полученная энергия связи $E_B(C-F) = 288.7 \text{ эВ}$ аналогична значениям, найденным для $C_{60}F_{18}$ и $C_{60}F_{36}$ в работе [30]. Энергия связи компоненты спектра C-C равна $E_B(C-C) = 286.5 \text{ эВ}$, что выше, чем $E_B(C-C) = 286.3 \text{ эВ}$, полученная для $C_{60}F_{36}$. Имеется тенденция к увеличению энергии связи C-C с увеличением количества атомов фтора на углеродном остовете ($E_B(C-C) = 286.3 \text{ эВ}$ для $C_{60}F_{36}$ и $E_B(C-C) = 285.7 \text{ эВ}$ для $C_{60}F_{18}$). Относительная площадь двух компонент спектра C 1s на рис. 3 позволяет определить стехиометрию нанесенных молекул $C_{60}F_n$ по формуле:

$$n = \frac{60 \times I(C-F)}{I(C-C) + I(C-F)},$$

где $I(\text{C-C})$ и $I(\text{C-F})$ – интенсивности компонент спектра. Интенсивности пиков фотоэлектронной эмиссии для связей C-C и C-F, полученные аппроксимацией пиков спектра C 1s на рис. 3, дают стехиометрию $\text{C}_{60}\text{F}_{48}$ с экспериментальной точностью 2%. Важно отметить, что слабо различимый пик Au 4f смещается на 0.1 эВ в сторону большей энергии связи по отношению к чистой поверхности, что однако не выходит за пределы ошибки эксперимента. Таким образом, изменение работы выхода, в пределах погрешности, не наблюдается. Форма спектров при субмонослойном покрытии поверхности Au(111) молекулами $\text{C}_{60}\text{F}_{48}$ (СТМ-изображение на рис. 2) непосредственно после нанесения фторфуллеренов соответствует форме спектров при многослойном покрытии. Однако энергия связи исходного пика F 1s находится на уровне $E_B(\text{F}1s) = 686.9$ эВ (FWHM = 1.74 эВ), а спектр C 1s имеет две компоненты при $E_B(\text{C-C}) = 286.2$ эВ и $E_B(\text{C-F}) = 288.3$ эВ (рис. 4), что несколько ниже, чем в случае многослойного покрытия. Эти значения очень близки к энергиям связи, полученным в [32] и немного выше, чем энергии, определенные для субмонослоя $\text{C}_{60}\text{F}_{48}$ на Au(111) в [22]. Оценка стехиометрии молекулы по приведенной формуле дает $\text{C}_{60}\text{F}_{45\pm1}$, что явно ниже, чем в случае многослойного покрытия. Спектр C 1s нестабилен во времени, как это видно на рис. 4. Положения пиков, ответственных за формирование C-C и C-F связей, через 46 ч смещаются в сторону более низкой энергии связи (285.8 и 288.0 эВ, соответственно), и в спектре появляется пик с высокой энергией связи $E_B(\text{C-F}) = 289.9$ эВ (рис. 4, спектр C 1s), что указывает на сложный химический процесс с течением времени. Суммируя интенсивности двух пиков C-F при энергиях связи 289.9 эВ и 288.0 эВ, относящиеся к связям углерод-фтор, расчетная стехиометрия составляет $\text{C}_{60}\text{F}_{40\pm1}$. Эта стехиометрия молекул, очевидно, усреднена с учетом изменения кажущейся высоты молекул на СТМ-изображении (рис. 2). При этом спектр F 1s через 46 часов не меняет свою форму, а смещается в сторону меньшей энергии связи $E_B(\text{F}1s) = 686.7$ эВ (FWHM = 1.83 эВ) (рис. 4). Такое смещение пика F 1s по энергии на 0.2 эВ со временем также свидетельствует об уменьшении содержания фтора в осаждаемых молекулах. В спектре F 1s не наблюдается низкоэнергетической составляющей при 682 ÷ 685 эВ, ответственной за образование фторида металла, как это наблюдалось в случае субмонослойной адсорбции $\text{C}_{60}\text{F}_{48}$ на Cu(111), Ni(111) [22], Ag(111) [33] и Cu(001) [19]. На рисунке 5 показано СТМ-изображение высокого разрешения области, занятой молекулами фторфуллерена,

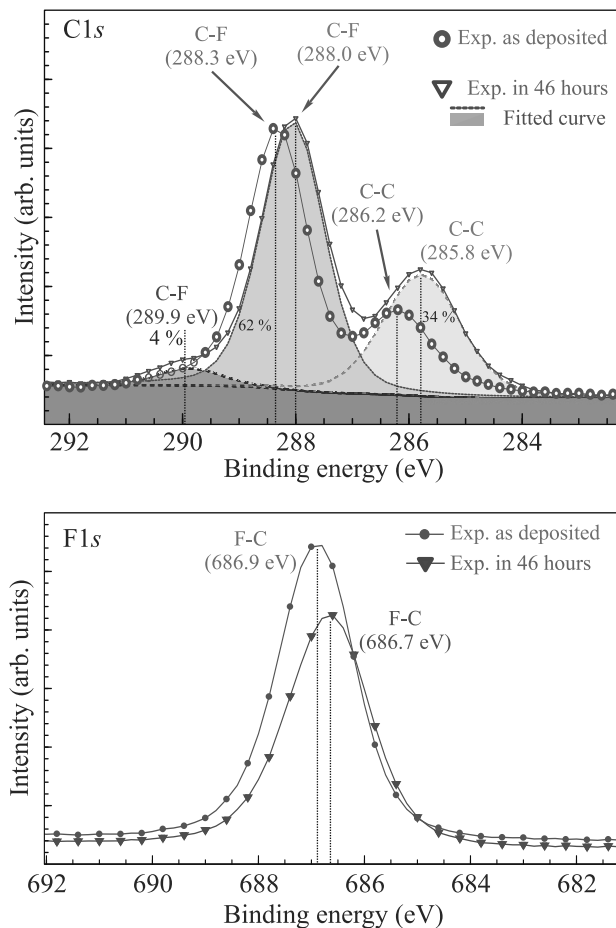


Рис. 4. (Цветной онлайн) РФЭС спектры F 1s и C 1s молекул на поверхности Au(111) при субмонослойном покрытии; непосредственно после напыления (красный) и спустя 46 ч (зеленый)

уже потерявшими значительную часть атомов фтора. Визуальное сравнение этого СТМ изображения с СТМ изображениями, полученными в работе [34], где авторы исследовали сверхструктуру, образованную молекулами $\text{C}_{60}\text{F}_{36}$ на поверхности Au(111), позволяет заключить, что наблюдаемое в нашей работе СТМ изображение имеет особенности СТМ изображения, характерные для фторфуллерена $\text{C}_{60}\text{F}_{36}$. Таким образом, полученные результаты СТМ подтвердили существование молекул фторфуллерена со стехиометрическим составом, близким к $\text{C}_{60}\text{F}_{36}$, что находится в хорошем соответствии с полученными результатами РФЭС, которые выявили существование молекул $\text{C}_{60}\text{F}_{40\pm1}$ через 46 часов после нанесения. Для демонстрации фазовых переходов в молекулярной пленке был проведен отжиг поверхности Au(111) с нанесенными на нее молекулами $\text{C}_{60}\text{F}_{48}$ до температуры 150° С в течение 60 мин (рис. 6). По-

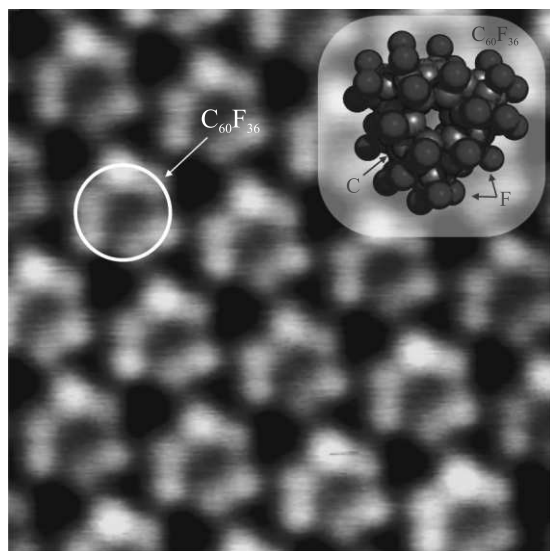


Рис. 5. (Цветной онлайн) Топографическое СТМ изображение высокого разрешения молекул $C_{60}F_{48}$, потерявших значительную часть атомов фтора; $U_t = 2.0$ В, $I_t = 15$ пА; $5 \text{ нм} \times 5 \text{ нм}$; Окружностью на СТМ изображении выделена одна молекула фторфуллерена. На вставке показан общий вид молекулы $C_{60}F_{36}$

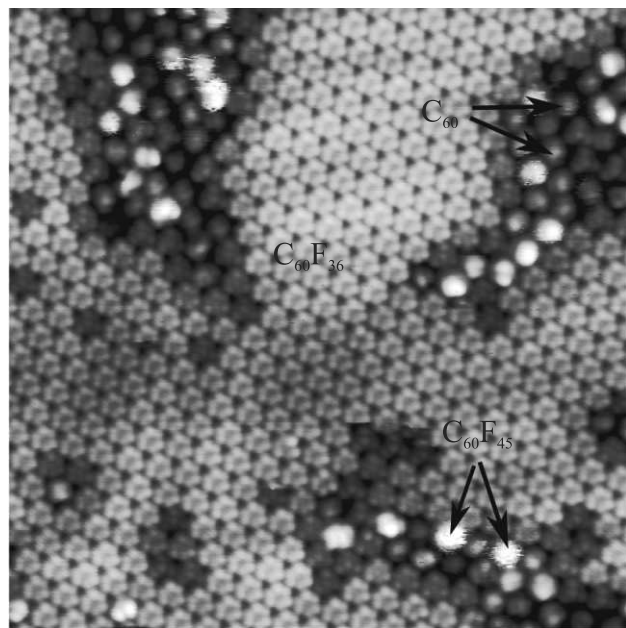


Рис. 6. (Цветной онлайн) Топографическое СТМ изображение поверхности Au(111) – $C_{60}F_{48}$ после отжига в течение 60 мин при температуре $T = 150^\circ\text{C}$; $U_t = 2.0$ В, $I_t = 15$ пА; $24 \times 24 \text{ нм}$; Детальные пояснения к обозначениям на рисунке см. в тексте

сле отжига практически все молекулы внутри исходного молекулярного острова теряют часть атомов фтора, образуя большую область с упорядочен-

ными молекулами, близкими по стехиометрическому составу к $C_{60}F_{36}$ (на рис. 6 обозначены как $C_{60}F_{36}$). Остаточная концентрация молекул фторфуллерена на поверхности Au(111), потерявших лишь малую часть атомов фтора, незначительна (наиболее яркие пятна на (рис. 6)). Согласно проведенным РФЭС измерениям для субмонослойного покрытия поверхности Au(111) фуллереном $C_{60}F_{48}$, мы обозначили эти молекулы на СТМ изображении как $C_{60}F_{45}$. Круглые рефлексы с наименьшей интенсивностью на СТМ-изображении, скорее всего, отвечают за молекулы фторфуллерена, близкие по своему стехиометрическому составу к C_{60} (обозначены на рис. 6 как C_{60}). Утверждать об окончательном распаде молекул фторфуллерена на атомы фтора и C_{60} было бы некорректно, так как энергия компоненты в спектре РФЭС, ответственной за образование С-С связи, была определена равной 285.1 эВ после нагрева поверхности Au(111)- $C_{60}F_{48}$ до температуры 195°C . Для молекулы C_{60} эта энергия должна быть равной 284.7 эВ [30].

4. Заключение. Изучена адсорбция молекул фторфуллерена $C_{60}F_{18}$ на поверхности Au(111). Установлено, что при комнатной температуре молекула $C_{60}F_{18}$ стабильна, и не теряет атомы фтора. Поверхность золота остается неизменной (с четко выраженной “herringbone” реконструкцией) даже под островками, состоящими из молекул $C_{60}F_{18}$. Любое взаимодействие атомов F с Au нарушило бы наблюдаемую реконструкцию. Поэтому можно утверждать, что взаимодействия атомов фтора с поверхностью Au(111) не происходит, если в качестве источника фтора использовать молекулы $C_{60}F_{18}$. Этот экспериментальный факт находится в хорошем согласии с теоретическими расчетами [23, 24]. Использование молекул $C_{60}F_{48}$ в качестве источника фтора позволяет наблюдать распад фторфуллерена при субмонослойном покрытии поверхности уже при комнатной температуре. Молекулы $C_{60}F_{48}$ теряют часть атомов фтора с течением времени, образуя молекулы со стехиометрическим составом, близким к конфигурации $C_{60}F_{36}$, что подтверждается РФЭС измерениями. Снятие исходной реконструкции поверхности Au(111) происходит только под островками, сформированными молекулами фторфуллерена, потерявшими часть атомов фтора. Показано, что в приведенном случае для фторирования поверхности Au(111) в качестве источника фтора можно использовать фторфуллерен $C_{60}F_{48}$.

А. И. Орешкин искренне благодарен Р. З. Бахтину за плодотворные дискуссии и предоставление образцов фторфуллеренов.

5. Финансирование работы. Работа была финансово поддержана Российским научным фондом. Проект # 22-22-00571.

6. Конфликт интересов. У авторов нет конфликта интересов.

1. H. Nakano, T. Matsunaga, T. Mori, K. Nakanishi, Y. Morita, K. Ide, K. Okazaki, Y. Orikasa, T. Minato, K. Yamamoto, Z. Ogumi, and Y. Uchimoto, *Chem. Mater.* **33**(1), 459 (2021).
2. D. Zhang, T. Yoshinari, K. Yamamoto, Y. Kitaguchi, A. Ochi, K. Nakanishi, H. Miki, S. Nakanishi, H. Iba, T. Watanabe, T. Uchiyama, Y. Orikasa, K. Amezawa, and Y. Uchimoto, *ACS Appl. Energy Mater.* **4**(4), 3352 (2021).
3. B. V. Andryushechkin, V. V. Cherkez, T. V. Pavlova, G. M. Zhidomirov, and K. N. Eltsov, *Surf. Sci.* **608**, 135 (2013).
4. V. V. Cherkez, V. V. Zheltov, C. Didiot, B. Kierren, Y. Fagot-Revurat, D. Malterre, B. V. Andryushechkin, G. M. Zhidomirov, and K. N. Eltsov, *Phys. Rev. B* **93**, 045432 (2016).
5. J. Orts, R. Gómez, J. Feliu, A. Aldaz, and J. Clavilier, *The Journal of Physical Chemistry* **100**(6), 2334 (1996).
6. J. Orts, R. Gómez, J. Feliu, A. Aldaz, and J. Clavilier, *Langmuir* **13**(11), 3016 (1997).
7. B. V. Andryushechkin, V. V. Cherkez, V. M. Shevlyuga, and K. N. Eltsov, *Physics of Wave Phenomena* **18**(3), 172 (2010).
8. S. R. Qiu, and J. A. Yarmoff, *Phys. Rev. B* **63**(11), 115409 (2001).
9. E. Bechtold, *Appl. Surf. Sci.* **7**, 231 (1981).
10. J. W. Coburn, *J. Vac. Sci. Technol.* **8**, 372 (1971).
11. K. S. Nakayama, T. Sakurai, and J. H. Weaver, *J. Vac. Sci. Technol. A* **18**(5), 2606 (2000).
12. K. S. Nakayama and J. H. Weaver, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 3210 (1999).
13. Y. Fujikawa, S. Kuwano, K. S. Nakayama, T. Nagao, J. T. Sadowski, R. Z. Bakhtizin, T. Sakurai, Y. Asari, J. Nara, and T. Ohno, *The Journal of Chemical Physics* **129**, 234710 (2008).
14. Y. Hu, Y. Guo, Y. Wang, Z. Chen, X. Sun, J. Feng, T. M. Lu, E. Wertz, and J. Shi, *J. Mater. Res.* **32**, 3992 (2017).
15. X. Huang, L. Yan, Y. Zhou, Y. Wang, H. Z. Song, and L. Zhou, *J. Phys. Chem. Lett.* **12**, 525 (2021).
16. K. Bairagi, A. Bellec, R. G. Chumakov, K. A. Menshikov, J. Lagoute, C. Chacon, Y. Girard, S. Rousset, V. Repain, A. M. Lebedev, L. P. Sukhanov, N. Yu. Svechnikov, and V. G. Stankevich, *Surf. Sci.* **641**, 248 (2015).
17. V. K. Makarov, R. G. Chumakov, A. M. Lebedev, and V. G. Stankevich, *Crystallography Reports* **67**(6), 969 (2022).
18. A. I. Oreshkin, D. A. Muzychenko, S. I. Oreshkin, V. I. Panov, R. Z. Bakhtizin, and M. N. Petukhov, *The Journal of Physical Chemistry C* **122**(42), 24454 (2018).
19. M. N. Petukhov, A. I. Oreshkin, D. A. Muzychenko, and S. I. Oreshkin, *The Journal of Physical Chemistry C* **124**(1), 347 (2020).
20. A. I. Oreshkin, D. A. Muzychenko, S. I. Oreshkin, V. A. Yakovlev, P. Murugan, S. S. Chandrasekaran, V. Kumar, and R. Z. Bakhtizin, *Nano Res.* **11**, 2069 (2018).
21. A. I. Oreshkin, D. A. Muzychenko, S. I. Oreshkin, V. I. Panov, R. Z. Bakhtizin, and M. N. Petukhov, *JETP Lett.* **111**, 357 (2020).
22. R. Palacios-Rivera, D. C. Malaspina, N. Tessler, O. Solomeshch, J. Faraudo, E. Barrena, and C. Ocal, *Nanoscale Adv.* **2**, 4529 (2020).
23. A. Migani and F. Illas, *J. Phys. Chem. B* **110**, 11894 (2006).
24. G. van Lier, M. Cases, C. P. Ewels, R. Taylor, and P. Geerlings, *J. Org. Chem.* **70**(5), 1565 (2005).
25. I. Horcas, R. Fernández, J. Gómez-Rodríguez, J. Colchero, J. Gómez-Herrero, and A. M. Baro, *Rev. Sci. Instrum.* **78**, 013705 (2007).
26. N. Fairley, V. Fernandez, M. Richard-Plouet, C. Guillot-Deudon, J. Walton, E. Smith, D. Flahaut, M. Greiner, M. Biesinger, S. Tougaard, D. Morgan, and J. Baltrusaitis, *Applied Surface Science Advances* **5**, 100112 (2021).
27. F. Mohr, *Gold Bulletin* **37**, 164 (2004).
28. C. J. Evans and M. C. Gerry, *Journal of the American Chemical Society* **122**(7), 1560 (2000).
29. S. L. Wong, H. Huang, Y. Wang, L. Cao, D. Qi, I. Santos, W. Chen, and A. Thyne Shen Wee, *ACS Nano* **5**, 7662 (2011).
30. V. M. Mikoushkin, V. V. Shnitov, V. V. Bryzgalov, Yu. S. Gordeev, O. V. Boltalina, I. V. Goldt, S. L. Molodtsov, and D. V. Vyalikh, *Tech. Phys. Lett.* **35**, 256 (2009).
31. J. J. DeCorpo, R. P. Steiger, J. L. Franklin, and J. L. Margrave, *The Journal of Chemical Physics* **53**(3), 936 (1970).
32. R. Mitsumoto, T. Araki, E. Ito et al. (Collaboration), *J. Phys. Chem. A* **102**, 552 (1998).
33. E. Barrena, R. Palacios-Rivera, A. Babuji, L. Schio, M. Tormen, L. Floreano, and C. Ocal, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **24**(4), 2349 (2022).
34. T. K. Shimizu, J. Jung, T. Otani, Y. K. Han, M. Kawai, and Y. Kim, *ACS Nano* **6**(3), 2679 (2012).

Управление динамическими режимами наноразмерного сверхпроводящего интерферометра¹⁾

И. А. Терещенко^{+,*}, М. М. Хренов^{+,*}, Н. В. Кленов^{+,×,2)}, О. В. Тихонова^{+,*}

⁺ Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

^{*} Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына МГУ, 119991 Москва, Россия

[×] ВНИИА им. Духова, 101000 Москва, Россия

Поступила в редакцию 30 октября 2023 г.

После переработки 18 января 2024 г.

Принята к публикации 18 января 2024 г.

Найдено аналитическое решение, описывающее динамические процессы в наноразмерном сверхпроводящем интерферометре с пренебрежимо малыми индуктивностями, включенном в высокочастотный резонатор. Проанализировано влияние нелинейности в системе, а также воздействие внешней параметрической накачки. В широком диапазоне проведен скрининг обнаруженных динамических режимов исследуемой наноструктуры и получены их положения на плоскости параметров. Продемонстрировано существенное влияние фазовых эффектов на эволюцию системы и выявлены фазовые соотношения, позволяющие управлять интенсивностью сигнала на выходе. Обнаруженные эффекты открывают новые возможности для разработки и тестирования базовых элементов современных вычислительных квантовых систем.

DOI: 10.31857/S1234567824030108, EDN: sqigii

Введение. Системы с джозефсоновскими контактами (ДК), интегрированные в волноводы (резонаторы), – важная часть современных квантовых вычислительных систем, а также прорывных фундаментальных экспериментов. Простейший пример – сверхпроводящий наноразмерный интерферометр (СКВИД; вид сверху на структуру при тонкопленочной реализации, расчет растекания токов, эквивалентная схема и типовая микрофотография представлены на рис. 1). Подобные системы используют, например, для настройки связи между искусственными атомами через резонатор и анализа их состояний, исследования динамического эффекта Казимира и т.п. [1–6]. В таких применениях даже эпизодическое превышение критического значения для протекающего через элемент тока ведет к формированию импульсов напряжения и провоцирует “квазичастичное отравление” сверхпроводниковых квантовых регистров. Эти требования практики заставляют вернуться к анализу мало-диссипативных динамических процессов в интерферометре [7, 8] и возможностей управления ими, в том числе и под действием квазимонохроматического излучения (“накачки”) [9].

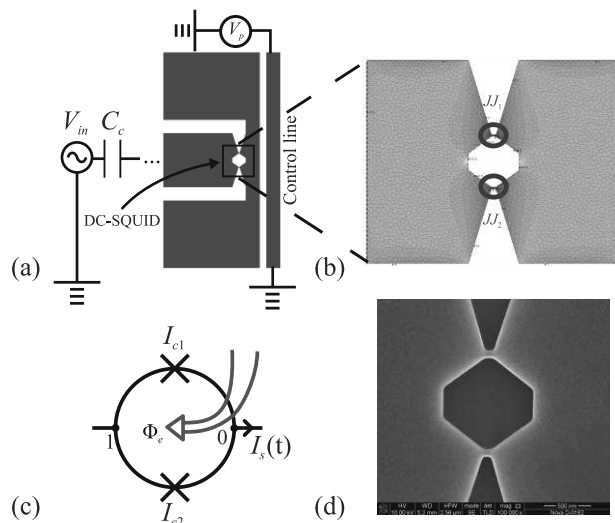


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Топология двухконтактного СКВИДа, включенного в копланарный волновод с контрольной линией для задания магнитного потока накачки в кольцо интерферометра; (б) – моделирование растекания токов в СКВИДа в программном пакете 3D-MLSI [10, 11]; (с) – схема двухконтактного СКВИДа с пренебрежимо малой геометрической индуктивностью под действием внешнего магнитного потока Φ_e ; (д) – снимок наноразмерного СКВИДа в сканирующем электронном микроскопе

¹⁾ См. дополнительный материал к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru.

²⁾ e-mail: nvklenov@mail.ru

Также поиск аналитического решения “уравнения движения” для наноразмерного интерферометра в резонаторе под действием переменного сигнала “накачки” представляет интерес из-за необходимости перехода в ряде случаев к рассмотрению поведения системы в квантовом режиме (причем по законам квантовой механики может быть описана как наноструктура, так и поле в резонаторе) [12]. В данной работе найдено аналитическое решение, описывающее динамические процессы в наноразмерном сверхпроводящем интерферометре с пренебрежимо малыми индуктивностями и в широком диапазоне проведен скрининг обнаруженных динамических режимов в зависимости от значений параметров исследуемой наносистемы.

Модель. В центре нашего исследования двухконтактный интерферометр – тонкопленочное сверхпроводящее кольцо с двумя “слабыми местами”, выполненным в виде сужений. Схематическое изображение примера физической реализации СКВИДа, интегрированного в сверхпроводящий резонатор с возможностью подведения магнитного сигнала “накачки”, представлено на рис. 1а (синим цветом показаны участки сверхпроводящей тонкой пленки). Протекающий через интерферометр транспортный ток, I_S , создается источником входного сигнала, V_{in} . Дополнительно действующее на интерферометр магнитное поле накачки прилагается при помощи элемента “Control line”. Описанный дизайн в последнее время востребован экспериментаторами из-за своей простоты и совместимости с технологическими решениями, используемыми в сверхпроводниковых квантовых вычислениях (см., например, [13]).

Для анализа растекания тока в рассматриваемых сверхпроводящих тонкопленочных структурах ($t \ll l$, $t \sim \lambda_L$, где t – толщина сверхпроводника, l – характерный планарный размер пленки, λ_L – лондоновская глубина) мы численно решали уравнения Лондонов с использованием метода конечных элементов [10]. Из результатов таких расчетов на рис. 1b видно, что в сверхпроводящем контуре формируются два “слабых места” – джозефсоновских контакта – из-за того, что плотность тока в сужениях, выделенных рамками, превышает критическое значение [14, 15]. Кроме того, использование программного пакета 3D-MLSI [10, 11] позволило на основе полученного пространственного распределения рассчитать матрицу индуктивностей, причем индуктивность петли рассматриваемого интерферометра оказалась порядка 0.65 пГн. Так как критический ток джозефсоновских контактов примерно равен $I_{C1} = I_{C2} \approx 25$ мкА (рис. 1c), значение безраз-

мерной индуктивности петли интерферометра составило $\beta_l = \frac{2\pi L I_{C1}}{\Phi_0} = 0.05 \ll 1$. Это позволяет рассматривать СКВИД в приближении малости безразмерной индуктивности β_l и ввести его полную фазу $\varphi(t)$ [16, 17]. Эта величина, определяемая разностью фаз комплексного параметра порядка в противоположных “концах” интерферометра (“1” и “0” на рис. 1c), играет роль обобщенной координаты. В таком случае поведение системы аналогично поведению одиночного ДК (т.е. нелинейного осциллятора), полный критический ток которого зависит от величины внешнего магнитного потока Φ_e . Полный сверхток через такой интерферометр может быть записан в следующем виде:

$$I_S(t) = I_c \cos(\varphi_e) \sin(\varphi(t)), \quad (1)$$

где $\varphi_e = \pi(\Phi_e/\Phi_0)$ – “внешняя фаза”, $\Phi_0 = h/2e$ – квант магнитного потока, Φ_e – задаваемый внешний магнитный поток. Если внешний поток задается гармонической функцией с определенной частотой, система является параметрическим элементом с потоковой накачкой по отношению к внешнему сигналу [18, 19]. В данной работе аналитически исследуется динамика системы под действием гармонических сигнала и накачки в рамках модели с шунтирующими емкостью и нормальным сопротивлением (RCSJ) [8, 9].

Полное уравнение динамики рассматриваемой системы под действием гармонического сигнала $I_s(\tau)/I_c = i_s \cos \Omega\tau$ и накачки внешним магнитным потоком $\varphi_e(\tau) = \varphi_0 + \varepsilon \cos(\Omega_p\tau + \Delta)$ удобно исследовать в безразмерном виде:

$$\ddot{\varphi} + \alpha\dot{\varphi} + \cos(\varphi + \varepsilon \cos(\Omega_p\tau + \Delta)) \sin \varphi = i_s \cos \Omega\tau, \quad (2)$$

где производные берутся по безразмерному времени $\tau = t\omega_{\text{plasma}}$, частоты $\Omega = \omega/\omega_{\text{plasma}}$ нормированы на плазменную частоту $\omega_{\text{plasma}} = \sqrt{2eI_c/(\hbar C)}$, $\alpha = (1/R)\sqrt{\hbar I_c/(2e)}$, C и R – емкость и сопротивление СКВИДа соответственно, ε – нормированная амплитуда переменной составляющей $\varphi_e(\tau)$ частоты Ω_p , Δ – сдвиг фазы накачки относительно сигнала. Для малой амплитуды накачки ($\varepsilon \ll 1$) справедливо следующее разложение:

$$\begin{aligned} \cos[\varphi_0 + \varepsilon \cos(\Omega_p\tau + \Delta)] &\cong \\ &\cong \cos \varphi_0 - \sin \varphi_0 \varepsilon \cos(\Omega_p\tau + \Delta). \end{aligned}$$

Поскольку выбор постоянной составляющей внешней фазы φ_0 произволен, уравнение динамики (2) можно переписать в следующей форме:

$$\ddot{\varphi} + \alpha\dot{\varphi} + [1 + \varepsilon \cos(\Omega_p\tau + \Delta)] \sin \varphi = i_s \cos \Omega\tau. \quad (3)$$

Анализ различных динамических режимов. Рассмотрим сначала влияние внешней параметрической накачки при условии малости собственной нелинейности в системе. Оставляя только линейные по φ слагаемые и вводя собственную частоту осциллятора $\omega_0 = 1$, получим уравнение, описывающее динамику джозефсоновского осциллятора с затуханием под действием внешней параметрической накачки:

$$\ddot{\varphi} + \alpha \dot{\varphi} + [1 + \varepsilon \cos(\Omega_p \tau + \Delta)] \omega_0^2 \varphi = i_s \cos \Omega \tau. \quad (4)$$

Отдельный интерес представляет резонансный случай, при котором частота подаваемого сигнала совпадает с собственной частотой осциллятора $\Omega = \omega_0$, а частота накачки в 2 раза больше ($\Omega_p = 2\omega_0$), так что имеет место параметрический резонанс. Для данной задачи было найдено аналитическое решение, имеющее следующий вид:

$$\begin{aligned} \varphi[\tau] = & \cos[\omega_0 \tau] (A + \mu_1 e^{k_1 \tau} + \mu_2 e^{k_2 \tau}) + \\ & + \sin[\omega_0 \tau] (B + \eta_1 \mu_1 e^{k_1 \tau} + \eta_2 \mu_2 e^{k_2 \tau}), \end{aligned} \quad (5)$$

где

$$k_{1,2} = \frac{-4\omega_0^2 \alpha \pm \sqrt{-4\omega_0^2 \alpha^4 + \varepsilon^2 \alpha^2 \omega_0^4 + 4\varepsilon^2 \omega_0^6}}{2(\alpha^2 + 4\omega_0^2)}, \quad (6)$$

а коэффициенты $\mu_1, \mu_2, \eta_1, \eta_2, A, B$ могут быть найдены из начальных условий (подробный вывод представлен в дополнительных материалах к статье).

Анализ полученного решения позволяет выявить существование различных режимов динамики системы в зависимости от соотношения параметров α и $\frac{\omega_0 \varepsilon}{2}$ (см. рис. 2). Фактически возникает конкуренция

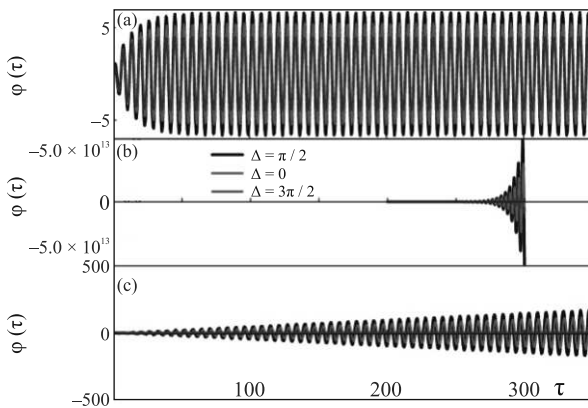


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость джозефсоновской фазы от нормированного времени $\phi(\tau)$ для: (а) – стационарного режима ($\alpha = 0.2, \varepsilon = 0.25$); (б) – режима экспоненциального роста колебаний ($\alpha = 0.1, \varepsilon = 0.5$); (с) – режима линейного роста ($\alpha = 0.25, \varepsilon = 0.5$); $i_s = 1$

процессов параметрического усиления и затухания в системе. Так, в случае сильного затухания, однородное решение полностью затухает, и в результате на больших временах “выживут” лишь колебания с постоянным значением амплитуды, поддерживаемые подаваемым входным сигналом. Примеры динамических процессов в таком стационарном режиме представлены на рис. 2а для нескольких значений фазы накачки Δ . При более сильной накачке система сама генерирует экспоненциально возрастающие колебания, амплитуда которых зависит от входного сигнала, причем параметрическая генерация будет происходить в любом случае, даже при его отсутствии (см. рис. 2б). Выделенным случаем является выполнение точного равенства $\alpha = \frac{\omega_0 \varepsilon}{2}$, что соответствует компенсации затухания усилением, вызываемым накачкой. Для данного режима, представленного на рис. 2с, характерен бесконечный линейный рост амплитуды колебаний (режим аналогичен резонансному раскачиванию амплитуды колебаний осциллятора внешней силой в отсутствие затухания). Следует отметить, что в данном случае линейный рост амплитуды происходит для всех фаз, кроме $\Delta = \frac{3\pi}{2}$, при которой реализуются только затухающие решения для амплитуд осцилляций в (5) за исключением частного решения с постоянной амплитудой. В данном режиме при такой фазе накачки достигается абсолютный минимум величины сигнала на выходе.

Аналитическое решение уравнения (4) было получено и в условиях, когда частота подаваемого сигнала Ω отличается от собственной частоты системы, однако условие параметрического резонанса сохраняется: $\Omega_p = 2\Omega$.

В данном случае общее решение было получено в следующей форме:

$$\begin{aligned} \varphi[\tau] = & (\delta_1 \exp(\gamma_1 \tau) + \delta_2 \exp(\gamma_2 \tau) + A_0) \cos(\Omega \tau) + \\ & + (\delta_1 \chi_1 \exp(\gamma_1 \tau) + \delta_2 \chi_2 \exp(\gamma_2 \tau) + B_0) \sin(\Omega \tau), \end{aligned} \quad (7)$$

где параметры γ_1 и γ_2 имеют достаточно сложный вид, а коэффициенты $\delta_1, \delta_2, \chi_1, \chi_2, A_0$ и B_0 могут быть найдены из начальных условий (подробный вывод представлен в дополнительных материалах к статье). Из анализа общего решения, аналогично резонансному случаю, можно выявить наличие трех динамических режимов для разных значений параметра:

$$K_0 = 4\alpha^2 \left(\frac{\Omega}{\omega_0} \right)^2 + 4 \left(\omega_0 - \frac{\Omega^2}{\omega_0} \right)^2 - \varepsilon^2 \omega_0^2. \quad (8)$$

Так, если $K_0 > 0$, то действительные части экспоненциальных коэффициентов γ_1 и γ_2 отрицательны, и со

временем решение достигает постоянной амплитуды осцилляций, что соответствует стационарному режиму. Если $K_0 < 0$, то γ_1 и γ_2 имеют разные знаки, реализуется режим экспоненциального роста. В случае, когда $K_0 = 0$, $\gamma_1 = 0$, а $\gamma_2 < 0$, имеет место режим линейного роста. Полученное выражение для параметра K_0 позволяет построить 2D-распределение для иллюстрации характера динамики системы в зависимости от параметра накачки и частоты подаваемого сигнала при фиксированном коэффициенте затухания (см. рис. 3).

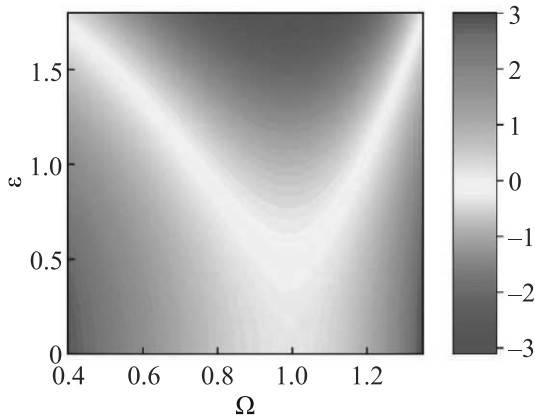


Рис. 3. (Цветной онлайн) 2D-распределение параметра K_0 в зависимости от величины накачки ε и частоты подаваемого сигнала Ω при фиксированном коэффициенте затухания $\alpha = 0.2$

Из рисунка 3 видно, что при не слишком малой накачке с ростом частоты подаваемого сигнала смена динамического режима происходит четыре раза вне зависимости от величины параметра α . Действительно, при больших отстройках имеет место выход на стационарный режим, который с приближением к резонансной частоте сменяется режимом линейного роста. В окрестности же резонанса наблюдается режим экспоненциального роста. В случае малой интенсивности накачки данный режим не достигается из-за большой роли затухания в системе. В областях частот, значительно отстроенных от резонанса, реализуется стационарный режим.

Влияние фазы накачки Δ на динамику системы. Важным параметром, определяющим динамику системы и позволяющим управлять ею, является фаза накачки Δ . Проанализируем влияние этой фазы в резонансном случае. Для иллюстрации найденных особенностей системы были построены 2D-распределения $|\varphi(\Delta, \tau)|$ для режима экспоненциального роста (рис. 4а) и стационарного режима (рис. 4б).

Видно, что в каждом из рассматриваемых режимов существуют определенные значения фазы Δ , при которых реализуется локальный экстремум выходного сигнала $\varphi[\tau]$. Так, из рис. 4 видно, что для обоих режимов наибольшее значение функции $\varphi[\tau]$ наблюдается преимущественно при фазе $\Delta = \frac{\pi}{2}$, в то время как в окрестности фазы $\Delta = \frac{3\pi}{2}$ достигается минимум. Данный результат также хорошо согласуется с зависимостями $\varphi[\tau]$, представленными на рис. 2, для различных Δ .

Для более детального анализа влияния фазы накачки были построены 2D-распределения амплитуды экспоненциально возрастающего и ограниченного решения, представленные на рис. 5, в зависимости от параметра накачки ε и фазы накачки Δ при фиксированном значении коэффициента затухания α .

В случае отсутствия затухания в системе наблюдается только экспоненциальный рост решения из-за параметрического резонанса. При этом была обнаружена такая фаза накачки $\Delta_{\min}$, при которой реализуется минимум амплитуды выходного сигнала $\varphi(\tau)$. В случае малых амплитуд накачки она может быть найдена из следующего уравнения:

$$2 = \varepsilon \cos(\Delta_{\min}) \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{1 + \sin(\Delta)} \right). \quad (9)$$

Анализ данного уравнения показал, что величина искомой $\Delta_{\min}$ оказывается близка к $\frac{3\pi}{2}$. Как следствие, выполнено соотношение $\frac{1}{1 + \sin(\Delta_{\min})} \gg \frac{1}{2}$, и уравнение (9) принимает вид:

$$2 = \varepsilon \cos(\Delta_{\min}) - 2 \sin(\Delta_{\min}). \quad (10)$$

Решение данного уравнения приводит к следующему выражению для фазы накачки, обеспечивающей минимальную амплитуду решения в режиме экспоненциального роста:

$$\Delta_{\min} = \arcsin \left(\frac{\varepsilon}{\sqrt{\varepsilon^2 + 4}} \right) - \arcsin \left(\frac{2}{\sqrt{\varepsilon^2 + 4}} \right). \quad (11)$$

Для сравнения со случаем ненулевого параметра затухания, эта зависимость нанесена на 2D-распределение, см. рис. 5а.

При наличии затухания в системе в режиме экспоненциального роста $\alpha < \left(\frac{\omega_0 \varepsilon}{2} \right)$ зависимость $\Delta_{\min}(\varepsilon)$ ведет себя аналогично случаю отсутствия затухания (см. рис. 5а). Параметр затухания α следующим образом влияет на пороговые значения амплитуд накачки, обеспечивающие реализацию данного режима: с его ростом критическая фаза $\Delta = \frac{3\pi}{2}$ достигается при все больших амплитудах накачки.

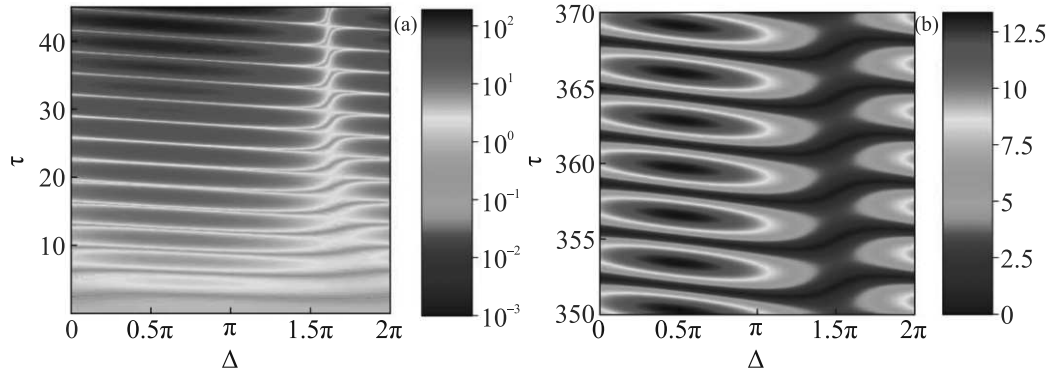


Рис. 4. (Цветной онлайн) 2D-распределение модуля зависимости $\varphi[\tau]$ от времени и фазы накачки Δ при фиксированных параметрах в случае: (a) – режима экспоненциального роста ($\alpha = 0.1$, $\varepsilon = 0.5$); (b) – стационарного режима ($\alpha = 0.2$, $\varepsilon = 0.25$). $i_S = 1$, $\omega_0 = 1$

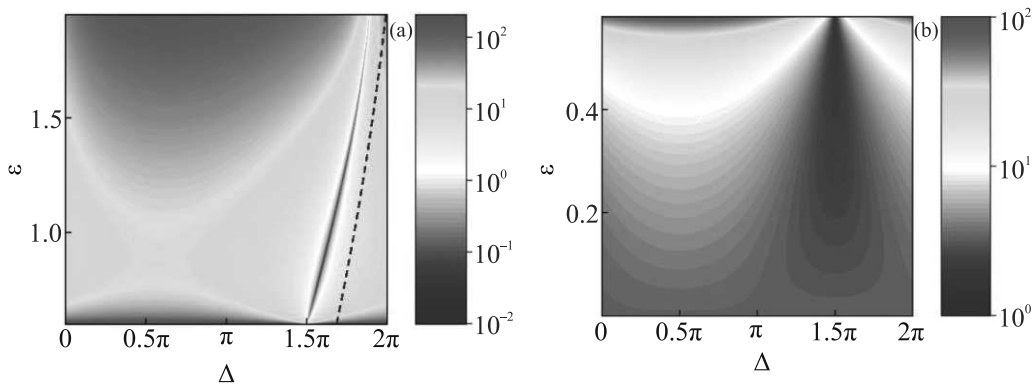


Рис. 5. (Цветной онлайн) 2D-распределение амплитуды решения (5), соответствующего: (a) – режиму экспоненциального роста и (b) – стационарному режиму в зависимости от амплитуды накачки ε и фазы накачки Δ при $\alpha = 0.3$ в момент времени $\tau = 13$

Для меньших же амплитуд накачки имеет место стационарный режим, которому соответствует ограничение решения по абсолютному значению, минимум которого, как видно из рис. 5b, достигается при $\Delta = \frac{3\pi}{2}$. Максимум амплитуды решения в этом случае реализуется при фазах в широкой окрестности $\frac{\pi}{2}$, поскольку спад амплитуды происходит очень плавно. Существование двух локальных экстремумов, реализующихся при $\Delta = \frac{\pi}{2}$ (максимум) и при $\Delta = \frac{3\pi}{2}$ (минимум), легко увидеть из уравнения:

$$-\frac{\varepsilon}{2} \sin(\Delta) \cos(\Delta) + \cos(\Delta) \left(\frac{\alpha}{\omega_0} + \frac{\varepsilon}{2} \sin(\Delta) \right) = 0. \quad (12)$$

Также было обнаружено, что в отличие от резонансного случая, условия минимума выходного сигнала существенно зависят как от величины ненулевой частотной отстройки, так и от ее знака. На рисунках 6 и 7 приведены 2D-распределения, аналогичные пред-

ставленным на рис. 5, но полученные для различных значений частоты входного сигнала.

Как видно, существенный сдвиг максимума и минимума амплитуды решения наблюдается при уменьшении входной частоты по сравнению с резонансным значением. Также претерпевает существенное изменение и зависимость этих условий от амплитуды накачки. В режиме экспоненциального роста зависимость $\Delta_{\min}(\varepsilon)$ берет свое начало не из точки $\Delta = \frac{3\pi}{2}$, а из точки, которая сдвигается либо в сторону π , либо 2π в зависимости от знака отстройки частоты, что хорошо видно на рис. 6 и 7. Таким образом, возникает возможность управлять выходным сигналом на практике за счет варьирования частотной отстройки. Дополнительный анализ показал, что увеличение затухания в системе до некоторой степени препятствует смещению начала зависимости $\Delta_{\min}(\varepsilon)$ с удалением частоты от резонанса.

При слабой накачке наступает стационарный режим (см. рис. 6b и 7b). Отметим, что в отличие от ре-

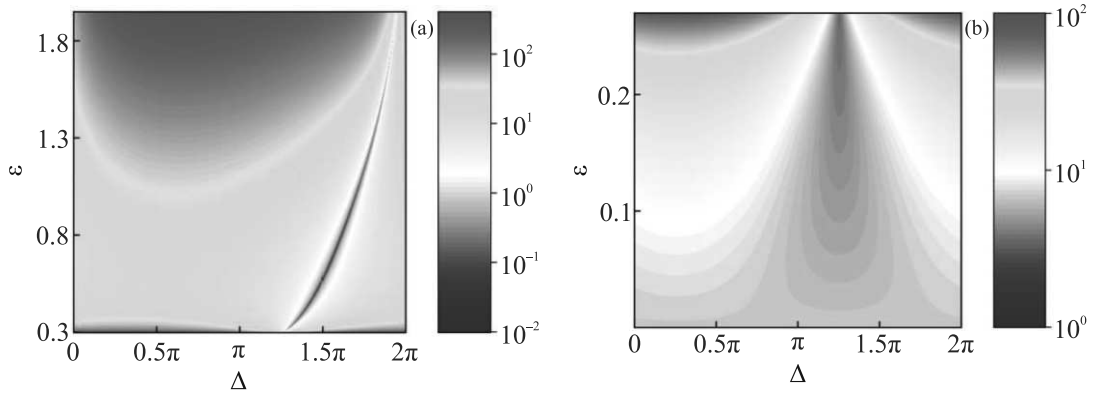


Рис. 6. (Цветной онлайн) 2D-распределение амплитуды решения (7), соответствующего: (а) – режиму экспоненциального роста и (б) – стационарному режиму в зависимости от амплитуды накачки ε и фазы накачки Δ при $\alpha = 0.1$ в момент времени $\tau = 13$ при $\alpha = 0.1$, $\Omega = 1.05$, $i_s = 1$, $\omega_0 = 1$

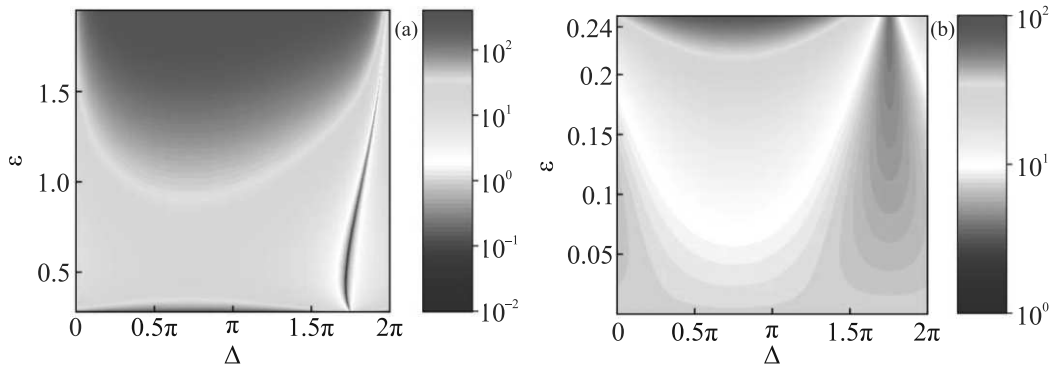


Рис. 7. (Цветной онлайн) 2D-распределение амплитуды решения (7), соответствующего: (а) – режиму экспоненциального роста и (б) – стационарному режиму в зависимости от амплитуды накачки ε и фазы накачки Δ в момент времени $\tau = 13$ при $\alpha = 0.1$, $\Omega = 0.95$, $i_s = 1$, $\omega_0 = 1$

зонансного случая, в случае ненулевой частотной отстройки пороговое значение амплитуды накачки ε_0 , отделяющее стационарный режим от режима экспоненциального роста, оказывается не равно нулю даже при отсутствии затухания в системе:

$$\varepsilon_0 = \frac{2\sqrt{\alpha^2\Omega^2 + \Omega^4 - 2\Omega^2\omega_0^2 + \omega_0^4}}{\omega_0^2}. \quad (13)$$

В стационарном режиме положение фазы, характеризующей минимум или максимум выходного сигнала, уже перестает зависеть от амплитуды накачки (см. рис. 6b и 7b). Для этого случая было найдено аналитическое выражение для фазы $\Delta_{\max}$, при которой наблюдается максимум выходного сигнала:

$$\Delta_{\max} = \begin{cases} \pi - \arctan\left[\frac{\alpha\Omega}{1-\Omega^2}\right], & \Omega < 1, \\ -\arctan\left[\frac{\alpha\Omega}{1-\Omega^2}\right], & \Omega > 1. \end{cases} \quad (14)$$

Из формулы (14) видно, что величина фазы, приводящей к максимуму выходной амплитуды, суще-

ственно зависит от частоты входного сигнала и коэффициента затухания, но не определяется амплитудой накачки. В пределе резонансного случая $\Delta_{\max} \rightarrow \frac{\pi}{2}$, в то время как при наличии значительной частотной отстройки $\Delta_{\max} \rightarrow \pi$ или 2π в случаях ее положительного или отрицательного значения, соответственно. При этом, чем ниже коэффициент затухания, тем резче при некоторой отстройке происходит переход от одного значения фазы к другому. Величина фазы, при которой реализуется минимум амплитуды выходящего сигнала, как и в резонансном случае, сдвинута на π относительно фазы максимума.

Обнаружение гистерезиса в системе, не обладающей параметрической накачкой. Учет нелинейности в системе первоначально проводился при отсутствии параметрической накачки. Было показано, что в условиях малых входных токов применимо и оказывается достаточным разложение нелинейного слагаемого $\sin \varphi$ в ряд Тейлора до третьего порядка включительно, причем для сохранения общ-

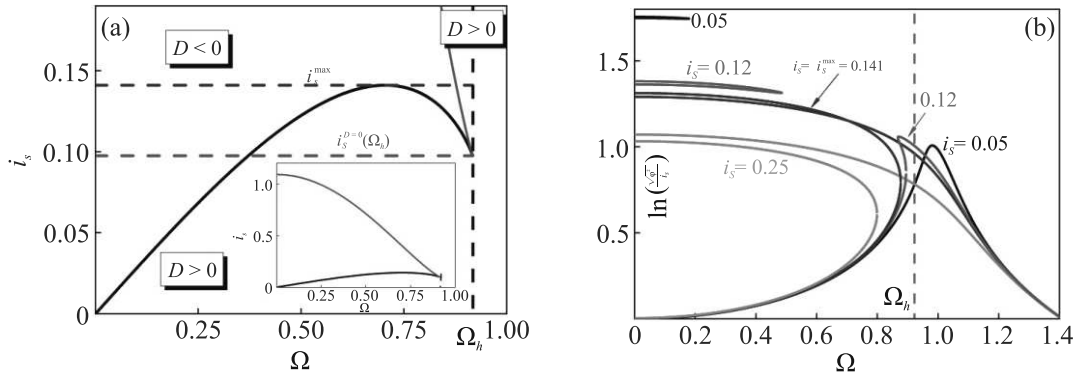


Рис. 8. (Цветной онлайн) (a) – Зависимость $i_{sD=0}(\Omega)$ при $\alpha = 0.1$, $\beta = \frac{1}{6}$ с обозначением $i_{sD=0}(\Omega_h) = 0.09758$, $i_{s\max} = 0.14118$; (b) – АЧХ при $\alpha = 0.1$, $\beta = \frac{1}{6}$ для различных значений амплитуды подаваемого сигнала.

ности коэффициент разложения для наивысшего порядка был обозначен как $(-\beta)$. В этом случае уравнение (3) принимает следующий вид:

$$\ddot{\varphi} + \alpha\dot{\varphi} + \varphi\omega_0^2 - \beta\varphi^3 = i_s \cos \Omega\tau. \quad (15)$$

Для нахождения аналитического решения использовалось представление $\varphi[\tau] = \frac{\tilde{\varphi}}{2}e^{i\Omega\tau} + \frac{\tilde{\varphi}^*}{2}e^{-i\Omega\tau}$, которое после подстановки в (17), приводит к следующему уравнению на квадрат модуля амплитуды $|\tilde{\varphi}|^2$:

$$|\tilde{\varphi}|^2 \alpha^2 \Omega^2 + \left(\omega_0^2 - \Omega^2 - \frac{3\beta}{4} |\tilde{\varphi}|^2 \right)^2 |\tilde{\varphi}|^2 = i_s^2. \quad (16)$$

Окончательно для искомой функции $\chi = |\tilde{\varphi}|^2$ получаем следующее кубическое уравнение:

$$\chi^3 - \frac{8}{3\beta}(1 - \Omega^2)\chi^2 + \frac{16}{9\beta^2}(\alpha^2\Omega^2 + (1 - \Omega^2)^2)\chi - \frac{16i_s^2}{9\beta^2} = 0. \quad (17)$$

Анализ решений позволяет выделить различные случаи. Если дискриминант кубического уравнения $D > 0$, то уравнение будет иметь один действительный корень, в то время как в случае отрицательного дискриминанта уравнение будет иметь три действительных решения, что соответствует случаю наличия гистерезиса в системе. Таким образом, зная зависимость дискриминанта уравнения (17) от таких параметров, как i_s , Ω , α , и β , можно легко определить, когда в системе возможно наблюдение гистерезиса. Для построения так называемой “карты” значений дискриминанта было найдено решение уравнения $D(i_s, \Omega, \alpha, \beta) = 0$, которое определяет связь входного сигнала i_s и частоты Ω и характеризуется двумя ветвями:

$$i_{sD=0,1,2} = \frac{2\sqrt{2}}{9\sqrt{\beta}} \times \sqrt{(1 - \Omega^2)(9\alpha^2\Omega^2 + (1 - \Omega^2)^2) \mp \tilde{\Omega}}, \quad (18)$$

$$\tilde{\Omega} = \sqrt{(-3\alpha^2\Omega^2 + (1 - \Omega^2)^2)^3}.$$

Получим условие действительности значений функции $i_{sD=0}$ (20) в зависимости от частоты Ω , которое оказалось одинаковым для обеих ветвей:

$$\Omega \leq \Omega_h = \frac{\sqrt{3\alpha^2 + 2 - \sqrt{3}\alpha\sqrt{(3\alpha^2 + 4)}}}{\sqrt{2}}. \quad (19)$$

Неравенство (19) определяет диапазон частот, при которых подкоренное выражение внутреннего корня в формуле (18) неотрицательно. Таким образом, выделена область значений частоты подаваемого сигнала, при которых в принципе возможен гистерезис. На рисунке 8а построены обе ветви зависимости (18), разграничивающие области отрицательного и положительного значений дискриминанта (сплошная кривая) с учетом полученного частотного ограничения. Гистерезис возможен только при $D < 0$. Важно отметить, что вторая ветвь решения (18) накладывается более сильное ограничение по частоте сверху чем Ω_h для высоких амплитуд входного сигнала, все сильнее “загибаясь” в область малых частот, так что для сигналов, с амплитудой чуть выше единичной, гистерезис уже не наблюдается (см. вставку на рис. 8а).

Из рисунка 8а хорошо видно, что существуют три характерные области значений амплитуды тока, при которых гистерезис наблюдается либо на одном интервале из диапазона возможных частот, либо на двух частотных интервалах, либо же на всех областях частот, удовлетворяющих условию (19).

Так, при малых амплитудах $i_s < i_{sD=0}(\Omega_h)$ гистерезис образуется в области малых значений частот, причем с увеличением амплитуды тока i_s данный частотный диапазон становится шире, что хорошо подтверждается амплитудно-частотной характеристикой (АЧХ), представленной на рис. 8b для

$i_s = 0.05$. Видно, что каждому значению частоты из диапазона $\Omega \in [0; 0.17971)$ соответствуют три точки на АЧХ. Однако соответствующие ветви решений на рис. 8b оказываются очень близко друг к другу.

В случае, когда $i_{sD=0}(\Omega_h) < i_s < i_{s\max}$, гистерезис образуется в области как малых частот, так и близких к граничной Ω_h . Однако, вторая ветвь уравнения (18) приводит к дополнительному более сильному ограничению входного сигнала по частоте. В этом случае обнаружен интересный эффект вырезания частотного интервала, для которого характерно отсутствие гистерезиса. При этом, чем выше значение амплитуды тока, тем вырезанный интервал меньше. Более того, при $i_s = i_{s\max}$ такого вырезанного интервала вовсе нет. Данный случай весьма интересен, так как значение амплитуды тока $i_{s\max}$ является пороговым: для всех значений $i_s > i_{s\max}$ гистерезис наблюдается на всей области возможных частот подаваемого сигнала, допустимых для гистерезиса. В этом режиме ветви решений, представленных на рис. 8b, уже существенно расходятся, и гистерезис заметно проявляется. Для больших значений частоты $D > 0$, и гистерезис уже не имеет места. Примечательно, что именно при $i_s = i_{s\max}$ кривая АЧХ, не имеющая разрывов, имеет максимальную высоту. Аналитическая формула для определения $i_{s\max}$ была найдена в результате приравнивания производной выражения (20) по Ω к нулю:

$$i_{s\max} = \frac{\sqrt{-621\alpha^6 + 108\alpha^4 + 1296\alpha^2 + 64} - \sqrt{(9\alpha^2 - 4)^6}}{72\sqrt{\beta}}. \quad (20)$$

Обсудим влияние затухания на обнаруженные эффекты. Оказалось, что увеличение затухания в системе существенно укорачивает диапазон допустимых частот и сильно поднимает критическое значение тока $i_{s\max}$, при этом режим с наличием “вырезанного” частотного интервала наблюдается в очень узком диапазоне амплитуд входного тока. В результате, для слабых входных сигналов гистерезис может иметь место только на малых частотах, но очень слабо проявляется. Для высоких значений амплитуды входных сигналов возникает сильное ограничение по частоте сверху. Фактически, область параметров, обеспечивающих заметное проявление эффекта гистерезиса, существенно уменьшается.

Таким образом, удалось показать, что в системе с кубической нелинейностью, не обладающей параметрической накачкой, возникает гистерезис на АЧХ. Показано, что его возникновение, а также связанные

с ним эффекты сильно зависят от исходных параметров системы; были получены диапазоны параметров реализации гистерезиса в зависимости от частоты подаваемого сигнала и его амплитуды.

Отметим также, что одновременное воздействие и нелинейности, и параметрической накачки в системе может приводить к очень сильному усилению и “раскачке” выходного сигнала. Этот режим лежит за рамками рассмотрения данной статьи. Однако при достаточно слабой накачке наличие затухания в системе будет приводить к ограничению выходного тока по амплитуде, и будет иметь место режим с гистерезисом, аналогичный описанному выше, но характеризующийся другими значениями параметров.

Заключение. В данной работе было найдено аналитическое решение, описывающее динамические процессы в наноразмерном сверхпроводящем интерферометре, включенном в высокочастотный резонатор. Детально проанализировано влияние кубической нелинейности в системе, а также воздействие внешней параметрической накачки. Найдены диапазоны параметров для реализации стационарного режима, а также режимов экспоненциального и линейного роста. Продемонстрировано существенное влияние фазы накачки на динамику системы. Выявлены фазовые соотношения, обеспечивающие максимальное усиление или подавление сигнала на выходе. Показана возможность управления выходящим сигналом за счет варьирования частотной отстройки, что крайне важно для проектирования элементов микроволновых квантовых систем. Обнаружен гистерезис на амплитудно-частотных характеристиках и выявлены диапазоны параметров, обеспечивающих его реализацию.

Авторы признательны Сергею Лисицыну за помощь в изготовлении образцов и Игорю Соловьеву за плодотворные обсуждения.

Финансирование работы. Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект # 22-79-10018); И. Т. благодарит фонд “Базис” (грант # 23-2-1-33-1).

Конфликт интересов. Н. В. Кленов заявляет об участии в проекте НИТУ “МИСиС”, “Приоритет-2030”; авторы заявляют об отсутствии других конфликтов интересов; все источники компенсации затрат приведены в предыдущем разделе.

1. V. A. Vozhakov, M. V. Bastrakova, N. V. Klenov, I. I. Soloviev, W. V. Pogosov, D. V. Babukhin, A. A. Zhukov, and A. M. Satanin, *Phys.-Uspekhi* **65**, 421 (2022).

2. M. V. Bastrakova, N. V. Klenov, V. I. Ruzhickiy, I. I. Soloviev, and A. M. Satanin, *Supercond. Sci. Technol.* **35**(5), 055003 (2022).
3. D. V. Popolitova, N. V. Klenov, I. I. Soloviev, S. V. Bakurskiy, and O. V. Tikhonova, *Beilstein J. Nanotechnol.* **10**(1), 1548 (2019).
4. C. M. Wilson, G. Johansson, A. Pourkabirian, M. Simoen, J. R. Johansson, T. Duty, F. Nori, and P. Delsing, *Nature* **479**(7373), 376 (2011).
5. R. Assouly, R. Dassonneville, T. Peronnin, A. Bienfait, and B. Huard, *Nature Phys.* **19**, 1418 (2023).
6. A. Bilmes, S. Zanker, A. Heimes, M. Marthaler, G. Schon, G. Weiss, A. V. Ustinov, and J. Lisenfeld, *Phys. Rev. B* **96**(6), 064504 (2017).
7. I. I. Soloviev, N. V. Klenov, A. E. Schegolev, S. V. Bakurskiy, and M. Yu. Kupriyanov, *Supercond. Sci. Technol.* **29**(9), 094005 (2016).
8. V. E. Manucharyan, E. Boaknin, M. Metcalfe, R. Vijay, I. Siddiqi, and M. Devoret, *Phys. Rev. B* **76**, 014524 (2007).
9. P. Bunyk, K. Likharev, and D. Zinoviev, *Int. J. High Speed Electron. Syst.* **11**(01), 257 (2001).
10. M. M. Khapaev, A. Y. Kidiyarova-Shevchenko, P. Magnelind, and M. Y. Kupriyanov, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **11**(1), 1090 (2001).
11. M. M. Khapaev, M. Y. Kupriyanov, E. Goldobin, and M. Siegel, *Supercond. Sci. Technol.* **16**(1), 24 (2002).
12. U. C. Mendes, S. Jezouin, P. Joyez, B. Reulet, A. Blais, F. Portier, C. Mora, and C. Altimiras, *Phys. Rev. Applied* **11**, 034035 (2019).
13. D. S. Yakovlev, I. A. Nazhestkin, N. G. Ismailov, S. V. Egorov, V. N. Antonov, and V. L. Gurtovoi, *Symmetry* **15**(2), 550 (2023).
14. V. Bosboom, J. J. W. van der Vegt, M. Yu. Kupriyanov, and A. A. Golubov, *Supercond. Sci. Technol.* **34**(11), 115022 (2021).
15. V. Ruzhickiy, S. Bakurskiy, M. Kupriyanov, N. Klenov, I. Soloviev, V. Stolyarov, and A. Golubov, *Nanomaterials* **13**, 1873 (2023).
16. K. M. Sundqvist, S. Kintas, M. Simoen, P. Krantz, M. Sandberg, C. M. Wilson, and P. Delsing, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 102603 (2013).
17. P. Krantz, Y. Reshitnyk, W. Wustmann, J. Bylander, S. Gustavsson, W. D. Oliver, T. Duty, V. Shumeiko, and P. Delsing, *New J. Phys.* **15**(10), 105002 (2014).
18. T. Yamamoto, K. Inomata, M. Watanabe, K. Matsuba, T. Miyazaki, W. D. Oliver, Y. Nakamura, and J. S. Tsai, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 042510 (2008).
19. D. J. Parker, M. Savytskyi, W. Vine, A. Laucht, T. Duty, A. Morello, A. L. Grimsom, and J. J. Pla, *Phys. Rev. Applied* **17**, 034064 (2022).

Фотоиндуцированная нелинейная динамика сильно коррелированных систем со спиновым кроссовером: автокаталитический спиновый переход

Ю. С. Орлов^{+,1)}, С. В. Николаев^{+,*}, Н. Н. Паклин⁺

⁺ Сибирский федеральный университет, 660041 Красноярск, Россия

^{*} Институт физики им. Л. В. Киренского, Федеральный исследовательский центр “Красноярский научный центр” Сибирского отделения РАН, 660036 Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 7 ноября 2023 г.

После переработки 1 декабря 2023 г.

Принята к публикации 7 декабря 2023 г.

Рассмотрены нелинейные явления типа реакции Белоусова–Жаботинского (автокаталитические осцилляции заселенности высокоспинового и низкоспинового многоэлектронных состояний иона переходного металла) в открытых системах со спиновым кроссовером вблизи бистабильности. Проанализированы условия, при которых возможно экспериментальное наблюдение автокаталитических осцилляций намагниченности в магнитоупорядоченных системах со спиновым кроссовером.

DOI: 10.31857/S123456782403011X, EDN: sqsmef

1. Системы со спиновым кроссовером (СК) включают обширный класс веществ: металлоорганические комплексы, органические радикалы, неорганические соли, оксиды переходных металлов и в большинстве случаев имеют более полувековую историю изучения, но неустанно привлекают внимание исследователей из разных областей: физики, химии, биологии, медицины. В первую очередь это обусловлено развитием и появлением новых экспериментальных возможностей. Например, создание сверхсильных магнитных полей и сверхвысоких давлений, развитие спектроскопии накачки–зондирования (*pump-probe*) с высоким временным разрешением, наноструктурирование и т.д. В литературе имеются теоретические и экспериментальные исследования нелинейных явлений (в том числе автокаталитических осцилляций типа реакции Белоусова–Жаботинского заселенности многоэлектронных состояний иона переходного металла) в открытых СК системах [1–15]. Большинство подобных исследований касаются слабомагнитных металлоорганических комплексов. Вопрос о формировании пространственно-временных диссипативных структур в магнитоупорядоченных системах (оксидах переходных металлов [16]) вблизи спиновой бистабильности в литературе до сих пор не обсуждался и остается открытым. Основное новшество таких систем состоит в том, что спонтанное (самопроизвольное) формирование в них диссипативных

структур не является результатом истинной диффузии вещества (как при наблюдении структур Тьюринга в гидродинамике или биологии), а скорее из-за эффективной диффузии концентраций низкоспиновых (LS) и высокоспиновых (HS) многоэлектронных состояний. В настоящей работе приводятся результаты теоретического моделирования механизмов формирования таких пространственно-временных образований, возникающих в сильно неравновесных условиях. Они соответствуют форме надмолекулярного когерентного поведения огромного числа ионов переходного металла, при которой возможны временные и пространственные осцилляции макроскопической заселенности многоэлектронных термов с разной мультиплетностью и намагниченности.

2. Для определенности рассмотрим случай $S_{HS} = S = 2$ и $S_{LS} = 0$, что соответствует $3d^6$ электронной конфигурации иона переходного металла (например, FeO, $(\text{Mg}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{O}$), и для описания кооперативных явлений (взаимодействий) в СК системах будем использовать эффективный гамильтониан [17, 18]

$$\hat{H} = -\frac{1}{2}J_\tau \sum_{\langle i,j \rangle} \hat{\tau}_i^z \cdot \hat{\tau}_j^z + \frac{1}{2}(\varepsilon_S - k_B T \ln g) \sum_i \hat{\tau}_i^z + \frac{1}{2}J_S \sum_{\langle i,j \rangle} \hat{S}_i \cdot \hat{S}_j. \quad (1)$$

Здесь первое слагаемое, записанное в представлении псевдоспинового векторного оператора $\hat{\tau}$, описывает межйонное упругое взаимодействие, мик-

¹⁾ e-mail: jso.krasn@mail.ru

роскопическое происхождение которого обусловлено электрон-фононным взаимодействием. Оператор проекции псевдоспина $\hat{\tau}^z$ принимает два собственных значения $\tau^z = \pm 1$ (“+1” соответствует HS состоянию, “-1” реализуется в случае LS состояния). J_τ – параметр упругого взаимодействия. Ионные радиусы катионов в LS и HS состояниях отличаются достаточно сильно (разница около 10%), кроме того, электронно-колебательное (вибронное) взаимодействие приводит к зависимости длины связи металл – лиганд от электронного HS/LS состояния [19] (спиновый переход $LS \rightarrow HS$ приводит к увеличению объема координационного комплекса), поэтому более выгодным по энергии является ферромагнитное (FM) псевдоспиновое упорядочение. Второе слагаемое содержит одноионную энергию многоэлектронных состояний в кристаллическом поле. Спиновая щель $\varepsilon_S = E_{HS} - E_{LS}$ определяется как разность энергий термов HS и LS состояний и зависит от величины кристаллического поля $10Dq = \Delta$. В отсутствие всех кооперативных взаимодействий, при $\varepsilon_S < 0$ (слабое кристаллическое поле, $\Delta < \Delta_C$) основным является HS-состояние, а при $\varepsilon_S > 0$ (сильное кристаллическое поле, $\Delta > \Delta_C$) реализуется основное LS состояние. В точке кроссовера $\varepsilon_S = \varepsilon_C = 0$. Критическое значение Δ_C определяется внутрионным хундовским взаимодействием. $g = g_{HS}/g_{LS}$ – отношение кратностей вырождения HS (g_{HS}) и LS (g_{LS}) состояний. Поскольку оператор проекции псевдоспина по определению принимает только два собственных значения, для учета разной кратности вырождения HS и LS состояний второе слагаемое в (1) содержит вклад, зависящий от температуры. Третье слагаемое описывает межатомное обменное взаимодействие. J_S – параметр обменного взаимодействия.

3. Большинство оксидов переходных металлов при нормальном давлении проявляют антиферромагнитное (AFM) спиновое упорядочение, поэтому в приближении среднего поля (MF) гамильтониан (1) принимает вид (FM – для псевдоспина, AFM для спина)

$$\hat{H}_{MF} = D_\tau \sum_i \hat{\tau}_i^z + D_S \sum_i \hat{S}_i^z + H_0. \quad (2)$$

В (2) мы использовали обозначения $D_\tau = \Delta_{\text{eff}} - zJ_\tau\tau$, $D_S = zJ_S m$, $H_0 = \frac{1}{2}zJ_\tau N\tau^2 + \frac{1}{2}zJ_S Nm^2$, где $m = \langle \hat{S}^z \rangle$ – намагниченность подрешетки (здесь и ниже угловые скобки $\langle \dots \rangle$ обозначают термодинамическое среднее), $\tau = \langle \hat{\tau}^z \rangle$, $\Delta_{\text{eff}} = \frac{1}{2}(\varepsilon_S - k_B T \ln g)$, z – число ближайших соседей.

Решая задачу на собственные значения

$$\hat{H}_{MF} |\psi_k\rangle = E_k |\psi_k\rangle, \quad (3)$$

где $|\psi_k\rangle = C_{LS}|LS\rangle + C_{HS}|HS\rangle$ – собственные состояния гамильтониана $\hat{H}_{MF}$, и используя решения, отвечающие минимуму свободной энергии $F = -k_B T \ln Z$, где

$$Z = e^{-\beta H_0} \left(e^{\beta D_\tau} + e^{-\beta D_\tau} \frac{\text{sh} \left[\left(S + \frac{1}{2} \right) \beta D_S \right]}{\text{sh}(\beta D_S/2)} \right) \quad (4)$$

– статистическая сумма ($\beta = 1/k_B T$), можно вычислить термодинамические средние, входящие в $\hat{H}_{MF}$:

$$m = \frac{1}{Z} \sum_k \langle \psi_k | \hat{S}^z | \psi_k \rangle e^{-E_k \beta},$$

$$\tau = \frac{1}{Z} \sum_k \langle \psi_k | \hat{\tau}^z | \psi_k \rangle e^{-E_k \beta}.$$

Тем самым при решении (3) мы имеем дело с самосогласованной задачей нахождения собственных состояний и собственных значений эффективного гамильтониана в приближении среднего поля.

На рисунке 1 представлены рассчитанные фазовые диаграммы заселенности HS состояния $n_{HS} = \frac{\tau+1}{2}$ (слева) и намагниченности m (справа) в координатах температура T – спиновая щель ε_S . Здесь и ниже температура приведена в единицах температуры Нееля $T_N = zJ_S \frac{S(S+1)}{3}$, а спиновая щель – в единицах обменного интеграла J_S . Видно, что из-за наличия кооперативного взаимодействия J_S в системе сохраняется основное HS состояние вплоть до $\varepsilon_S = \varepsilon_S^C \approx 5J_S$, несмотря на то, что в одноионной картине при $\varepsilon_S > 0$ основным является LS состояние. Увеличение критического ε_S^C за счет кооперативных эффектов вполне понятно, так как обменное взаимодействие J_S стабилизирует HS состояние, понижая его энергию. При $\varepsilon_S > \varepsilon_S^C$ основное AFM (HS) состояние сменяется диамагнитным LS состоянием, DM (LS) (рис. 1b). Упругое взаимодействие J_τ в отличие от обменного J_S не приводит к увеличению ε_S^C , но так же, как и J_S , трансформирует плавный спиновый кроссовер в фазовый переход 1-го рода при низких температурах.

На диаграммах (рис. 1) видно существование особой точки: трикритической точки (ε_S^*, T^*) , в которой линия фазового перехода 2-го рода непрерывно переходит в линию фазового перехода 1-го рода. На рисунке 1 черными сплошными линиями показана область метастабильных состояний. На вставках рис. 1 показаны сечения вдоль красной штриховой линии.

4. Рассмотрим теперь СК-систему в тепловом контакте с термостатом с температурой T_R и в поле внешнего излучения интенсивности I_0 , приводящего к фототермическому разогреву системы. Изменение ее температуры T во времени t можно задать уравнением

$$\frac{\partial T}{\partial t} = -\alpha(T - T_R) + I \left(1 + (\rho_0 - 1) \frac{\tau + 1}{2} \right) - \frac{\Delta H_\tau}{C_p} \frac{\partial \tau}{\partial t} - \frac{\Delta H_S}{C_p} \frac{\partial m}{\partial t}. \quad (5)$$

Здесь первое слагаемое в правой части описывает связь с термостатом (α – коэффициент связи). Второе слагаемое обусловлено поглощением внешнего излучения. $I = I_0 \frac{a_{LS} M}{C_p m_a}$, где C_p – молярная теплоемкость, M – молярная масса, m_a – масса образца, $a_{HS(LS)}$ – коэффициенты поглощения в HS(LS) состоянии, $\rho_0 = a_{HS}/a_{LS}$. Два последних слагаемых определяют изменение температуры при изменении энтальпии (спиновой ΔH_S и орбитальной ΔH_τ) в результате спинового перехода. $\Delta H = \Delta H_\tau + \Delta H_S = T_{eq} \Delta S$, где $T_{eq} = \frac{\varepsilon_S}{k_B \ln g}$ (температура, при которой $n_{HS} = n_{LS}$), $\Delta S = R \ln g$ – изменение энтропии (R – молярная газовая постоянная).

В неравновесном состоянии изменение намагниченности m и термодинамического среднего τ можно описать с помощью релаксационного уравнения

$$\frac{\partial \xi}{\partial t} = -\Gamma_\xi \frac{\partial F}{\partial \xi}, \quad (6)$$

где $\xi = m, \tau$. Или с учетом (4)

$$\frac{\partial m}{\partial t} = -z \Gamma_S J_S \left(m + e^{-\beta D_\tau} S B_S (\beta S D_S) \times \frac{sh \left[\left(S + \frac{1}{2} \right) \beta D_S \right]}{e^{\beta D_\tau} sh (\beta D_S / 2) + e^{-\beta D_\tau} sh \left[\left(S + \frac{1}{2} \right) \beta D_S \right]} \right), \quad (7)$$

$$\frac{\partial \tau}{\partial t} = -z \Gamma_\tau J_\tau \left(\tau + \frac{e^{\beta D_\tau} sh (\beta D_S / 2) - e^{-\beta D_\tau} sh \left[\left(S + \frac{1}{2} \right) \beta D_S \right]}{e^{\beta D_\tau} sh (\beta D_S / 2) + e^{-\beta D_\tau} sh \left[\left(S + \frac{1}{2} \right) \beta D_S \right]} \right), \quad (8)$$

где

$$B_S (\beta S D_S) = \frac{(2S + 1)}{2S} cth \left[\frac{(2S + 1)}{2S} \beta S D_S \right] - \frac{1}{2S} cth \left(\frac{1}{2S} \beta S D_S \right)$$

– функция Бриллюэна.

Уравнения (5), (7) и (8) для термодинамических средних величин являются макроскопическими.

Фактически при их выводе пренебрегается всеми возникающими временными корреляторами. Такое рассмотрение правомерно, если установление термодинамического равновесия существенно быстрее характерных времен изменения параметров m , n_{HS} и T . В противном случае необходимо рассматривать непосредственно динамику квантовых состояний. Как мы увидим ниже, характерный период автокаталитических осцилляций T_A находится по порядку величины от десятых до единиц секунды (в зависимости от используемых параметров и начальных условий), что гораздо больше характерных времен спин-решеточной релаксации, спин-орбитального или обменного взаимодействия, магнитной прецессии и любых других процессов изменения намагниченности в среде, происходящих на пикосекундных временах [21–23]. В то же время, характерное время релаксации $HS \rightleftharpoons LS$ в системах со спиновым кроссовером сильно зависит от рассматриваемого соединения, но в большинстве случаев речь идет о наносекундных временах, а время фототермического разогрева соответствует микросекундному масштабу [24].

На рисунке 2 приведен результат решения системы (5), (7), (8) при $T_R = 35$ K, $\varepsilon_S = 17.5 J_S$ (показано красной штриховой линией на рис. 1), $I = 800$ K · c⁻¹ и набора параметров, взятых из работы [1], где приводится их анализ и оценка из экспериментальных данных: $\Gamma_S = 5 \cdot 10^{-2}$ K⁻¹ · c⁻¹, $\Gamma_\tau = 5 \cdot 10^{-1}$ K⁻¹ · c⁻¹, $\alpha = 7$ c⁻¹, $a_{LS} = 0.4$, $a_{HS} = 0.3$, $\Delta H_S / C_p = 636$ K, $\Delta H_\tau / C_p = 320$ K. Видно, что в открытой неравновесной системе устанавливается стационарный режим автокаталитических колебаний намагниченности m , заселенности многоэлектронного HS состояния n_{HS} и температуры T образца (рис. 2). Из всех трех характеристик намагниченность является наименее инертной и практически мгновенно откликается на изменения заселенности и температуры. В промежутке времени от t_1 до t_2 (рис. 2а) m уменьшается, при этом n_{HS} практически не меняется, т.е. происходит перераспределение заселенности между HS-подуровнями с разной проекцией спина вследствие изменения температуры. В интервале от t_2 до t_3 n_{HS} наряду с T резко уменьшается, но остается выше порога протекания, поэтому намагниченность растет. Рост намагниченности продолжается и в интервале от t_3 до $t_1 + T_A$, несмотря на то, что температура в этом интервале существенно не меняется, но n_{HS} увеличивается. Таким образом, есть два механизма изменения намагниченности – 1) перераспределение между HS состояниями с разной проекцией и 2) изменение соотношения между HS и LS состояниями.

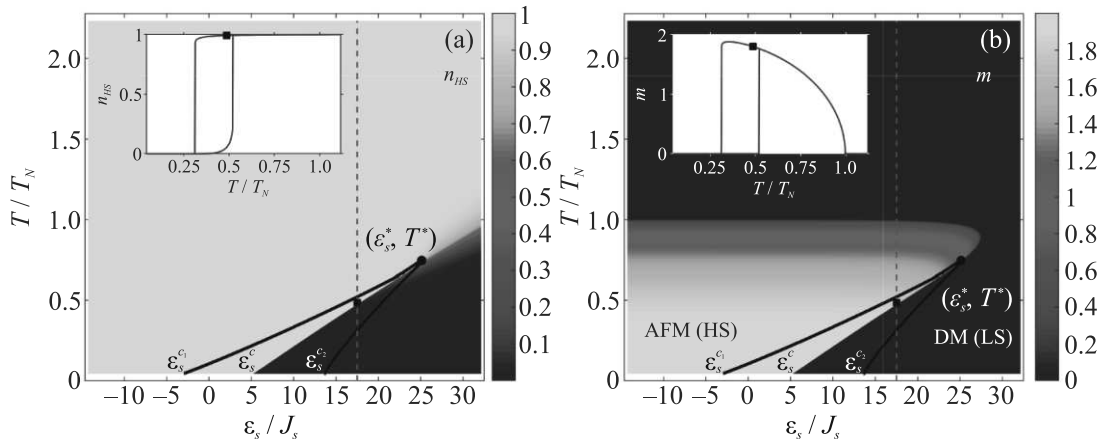


Рис. 1. (Цветной онлайн) Рассчитанные фазовые диаграммы заселенности HS состояния n_{HS} (a) и намагниченности m (b). На вставках показаны температурные зависимости n_{HS} (a) и m (b) при $\varepsilon_s = 17.5J_s$, отмеченной красной штриховой линией. Расчеты были выполнены при $z = 4$; $J_s = 28$ K [20] и $g = 1100$, $J_\tau = 38$ K [1]. В точке $(T = T_0 = 0.48T_N, \varepsilon_s = 17.5J_s)$, отмеченной квадратом и используемой ниже в качестве начальной, $n_{HS} = n_{HS,0} = 0.99$ (a), $m = m_0 = 1.8$ (b)

Физический механизм возникновения осцилляций заселенности спиновых состояний (термов с различной мультиплетностью), намагниченности и температуры можно понять из следующих соображений. В промежутке времени от t_1 до t_2 заселенность n_{HS} (рис. 2b) близка единице и практически не меняется со временем. Поскольку $a_{HS} < a_{LS}$, в этот промежуток времени система меньшего всего получает энергии от внешнего излучения. Из-за связи с резервуаром ($T_R = 35$ K $\approx 0.16T_N$) в промежутке времени от t_2 до t_3 температура, а вместе с ней и заселенность резко уменьшаются (рис. 2b, c). Понижение температуры ниже равновесной $T_0 = 0.48T_N$ (отмеченной квадратом на рис. 1 и заданной в качестве начальной для решения системы уравнений (5), (7) и (8)) приводит к росту намагниченности (несмотря на уменьшение, n_{HS} остается выше порога протекания). В промежутке времени от t_3 до $t_1 + T_A$ температура практически не меняется и остается ниже равновесной T_0 (рис. 2c), что приводит к росту намагниченности (рис. 2a). В свою очередь рост намагниченности за счет кооперативного обменного взаимодействия J_s “тянет за собой” заселенность n_{HS} (рис. 2b), стремясь вернуть ее в равновесное значение $n_{HS,0} = 0.99$ (начальное значение, отмеченное квадратом на рис. 1), близкое к единице. Уменьшение n_{HS} (увеличение $n_{LS} = 1 - n_{HS}$) приводит к увеличению поглощения внешнего излучения и, как следствие, температуры после момента времени t_3 . В свою очередь рост температуры приводит к уменьшению намагниченности после момента времени t_1 . Далее процесс повторяется.

Автокаталитические осцилляции возможны вблизи бистабильности, когда по обе стороны фазового перехода 1-го рода существует граница области перегретых и переохлажденных метастабильных состояний. В нашем случае они имеют место при $\varepsilon_s^{C1} < \varepsilon_s < \varepsilon_s^{C2}$ (рис. 1). При $\varepsilon_s^{C1} < \varepsilon_s < \varepsilon_s^{C2}$ (рис. 1) есть только одна (верхняя по температуре) граница, поэтому автокаталитические осцилляции в этом случае становятся невозможными.

Кроме решений, показанных на рис. 2, существует другой тип решений с уменьшением намагниченности до нуля, но с сохранением автокаталитических осцилляций n_{HS} и T (рис. 3). Отличия обусловлены выбором других начальных условий: $m_0 = 1.5$, $n_{HS,0} = 0.5$, $T_0 = 0.36T_N$ и параметров: $a_{HS} = 0.13$, $\Delta H_S/C_P = 97$ K, $\Delta H_\tau/C_P = 5$ K (значения a_{LS} , Γ_S , Γ_τ и α остались прежними). На рисунке 3 видно, что незатухающие осцилляции n_{HS} могут сосуществовать с затухающими колебаниями m , что связано с двумя возможными механизмами изменения намагниченности, описанными выше. Результаты расчета показывают, что наличие осцилляций n_{HS} , которые исследовались без учета магнитной подсистемы при аналогичных параметрах в работе [1], еще не означает наличия соответствующих автокаталитических осцилляций намагниченности, что следует учитывать при постановке эксперимента.

На рисунке 4 представлена траектория движения системы в фазовом пространстве m , n_{HS} и T для случаев, показанных на рис. 2 (4a) и 3 (4b). Видно, что для первого типа решений (рис. 2) траектория выходит на предельный цикл (рис. 4a), а для второго

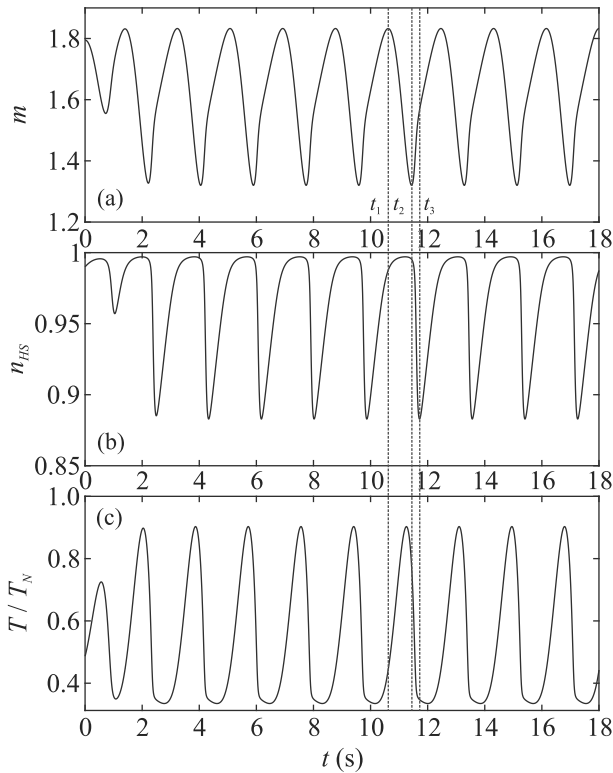


Рис. 2. (Цветной онлайн) Временная зависимость намагниченности m (a), заселенности многоэлектронного HS состояния n_{HS} (b) и температуры T образца (c), полученная в результате численного решения системы уравнений (5), (7), (8) с начальными условиями $m_0 = 1.8$, $n_{HS,0} = 0.99$ и $T_0 = 0.48T_N$, соответствующими термодинамически равновесному состоянию, отмеченному квадратом на рис. 1. Вертикальные штриховые линии проведены для удобства сравнения и соответствуют моментам времени t_1 , t_2 и t_3

(рис. 3) предельный цикл лежит в плоскости $m = 0$ (рис. 4b).

5. Таким образом, для формирования автокаталитических осцилляций необходимо наличие нелинейности (что обеспечивается бистабильностью) и положительной обратной связи – три последних слагаемых в правой части уравнения (5). Важно отметить, что в автокаталитических реакциях типа Белоусова–Жаботинского в самой системе имеются нелинейные механизмы, обеспечивающие периодический переход из одного состояния в другое. В данной работе нелинейные уравнения имеют совсем другой вид. Именно наличие обратной связи приводит к неустойчивости и возникающим осцилляциям, которые, однако, не возникнут без внешнего излучения, осуществляющего термический разогрев и обеспечивающего именно ненулевую скорость изменения m и n_{HS} . В нашем случае процесс можно назвать автокаталитическим,

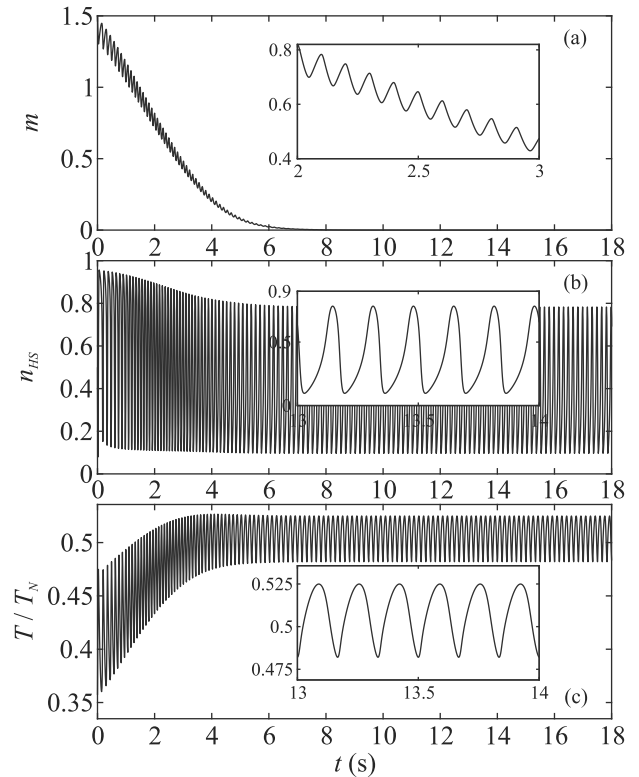


Рис. 3. (Цветной онлайн) Временная зависимость намагниченности m (a), заселенности многоэлектронного HS состояния n_{HS} (b) и температуры T образца (c), полученная в результате численного решения системы уравнений (5), (7), (8) с начальными условиями $m_0 = 1.5$, $n_{HS,0} = 0.5$ и $T_0 = 0.36T_N$. На вставках показаны зависимости в увеличенном масштабе

если понимать его, как самоускоряющийся или самоподдерживающийся.

Из-за сильной взаимосвязи электронных, магнитных и структурных степеней свободы, явление спинового кроссовера сопряжено с довольно сильным изменением объема V кристаллической решетки. Наряду с регулярной составляющей коэффициента теплового расширения, обусловленной ангармонизмом колебаний решетки, существует аномальный вклад, возникающий из-за вибронного взаимодействия [19]. Поэтому в более общем случае уравнения (5), (7), (8) следует дополнить уравнением движения для V . Учет изменения объема может несколько повлиять на процесс формирования осцилляций намагниченности в магнитоупорядоченных системах со спиновым кроссовером в силу эффекта магнитострикции и сделать его физическое содержание богаче. Используя уравнение Берча–Мурнагана, можно напрямую связать изменение V с заселенностью n_{HS} [25]. Но в силу малости магнитострикции в рассматриваемых

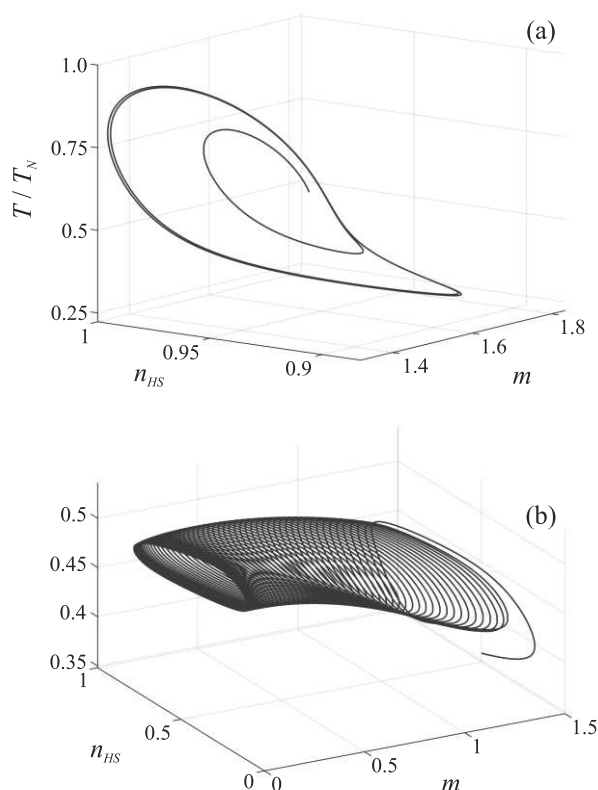


Рис. 4. (Цветной онлайн) Траектория движения системы в фазовом пространстве m , n_{HS} и T для случаев, показанных на рис. 2а и 3б

веществах учет изменения объема существенно не изменит полученных результатов.

6. Финансировании работы. Исследование выполнено за счет средств гранта Российского научного фонда # 22-22-20007, Красноярского краевого фонда науки “Нелинейная динамика и фотоиндуцированные динамические фазовые переходы в сильно коррелированных системах со спиновым кроссовером”.

7. Конфликт интересов. Конфликт интересов отсутствует.

1. K. Boukheddaden, M. Paez-Espejo, F. Varret, and M. Sy, *Phys. Rev. B* **89**, 224303 (2014).
2. F. Varret, M. Paez-Espejo, and K. Boukheddaden, *Europhysics Letters* **104**, 27003 (2013).
3. A. Slimani, F. Varret, K. Boukheddaden, D. Garrot, H. Oubouchou, and S. Kaizaki, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 087208 (2013).
4. M. Sy, F. Varret, K. Boukheddaden, G. Bouchez, J. Marrot, S. Kawata, and S. Kaizaki, *Angewandte Chemie International Edition* **53**(29), 7539 (2014).

5. M. Paez-Espejo, M. Sy, F. Varret, and K. Boukheddaden, *Phys. Rev. B* **89**, 024306 (2014).
6. M. Sy, D. Garrot, A. Slimani, M. Paez-Espejo, F. Varret, and K. Boukheddaden, *Angewandte Chemie International Edition* **55**(5), 1755 (2016).
7. T. Nishihara, A. Bousseksou, and K. Tanaka, *Opt. Express* **21**, 31179 (2013).
8. K. Boukheddaden, M. Sy, and F. Varret, *Advanced Theory and Simulations* **1**(9), 1800080 (2018).
9. M. Sy and K. Boukheddaden, *The Journal of Physical Chemistry C* **124**(51), 28093 (2020).
10. Y. Singh, K. Affes, N.-I. Belmouri, and K. Boukheddaden, *Materials Today Physics* **27**, 100842 (2022).
11. M. Ndiaye, Y. Singh, H. Fourati, M. Sy, B. Lo, and K. Boukheddaden, *J. Appl. Phys.* **129**, 153901 (2021).
12. H. Fourati, M. Ndiaye, M. Sy, S. Triki, G. Chastanet, S. Pillet, and K. Boukheddaden, *Phys. Rev. B* **105**, 174436 (2022).
13. K. Boukheddaden, H. Fourati, Y. Singh, and G. Chastanet, *Magnetochemistry* **5**(2), 21 (2019).
14. M. Sy, R. Traiche, H. Fourati, Y. Singh, F. Varret, and K. Boukheddaden, *J. Phys. Chem. C* **122**(36), 20952 (2018).
15. H. Fourati, G. Bouchez, M. Paez-Espejo, S. Triki, and K. Boukheddaden, *Crystals* **9**(1), 46 (2019).
16. I. S. Lyubutin and A. G. Gavriliuk, *Phys.-Uspekhi* **52**, 989 (2009).
17. K. Boukheddaden, I. Shteto, B. Hoo, and F. Varret, *Phys. Rev. B* **62**, 14796 (2000).
18. J. Nasu, T. Watanabe, M. Naka, and S. Ishihara, *Rev. B* **93**, 205136 (2016).
19. Y. S. Orlov, V. A. Dudnikov, A. E. Sokolov, T. M. Ovchinnikova, N. P. Shestakov, and S. G. Ovchinnikov, *JETP Lett.* **115**, 615 (2022).
20. M. J. R. Hoch, S. Nellutla, J. van Tol, E. S. Choi, J. Lu, H. Zheng, and J. F. Mitchell, *Phys. Rev. B* **79**, 214421 (2009).
21. A. Kirilyuk, A. V. Kimel, and T. Rasing, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2731 (2010).
22. A. M. Kalashnikova, A. V. Kimel, and R. V. Pisarev, *Phys. Usp.* **58**, 969 (2015).
23. A. V. Kimel, A. Kirilyuk, P. A. Usachev, R. V. Pisarev, A. M. Balbashov, and Th. Rasing, *Nature* **435**, 655 (2005).
24. E. Collet and P. Guionneau, *Comptes Rendus Chimie* **21**(12), 1133 (2018).
25. Y. S. Orlov, S. V. Nikolaev, A. I. Nesterov, and S. G. Ovchinnikov, *JETP Lett.* **105**, 771 (2017).

Подавление сверхпроводящих флуктуаций в многозонных сверхпроводниках как механизм повышения критической температуры (Миниобзор)

А. В. Красавин^{a, b1)}, А. В. Вагов^b, А. С. Васенко^{b, c}, В. С. Столяров^{d, e, f}, А. А. Шаненко^b

^aНациональный исследовательский ядерный университет МИФИ, 115409 Москва, Россия

^bНациональный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 101000 Москва, Россия

^cОтделение теоретической физики им. И. Е. Тамма, Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

^dНациональный исследовательский университет “Московский институт стали и сплавов”, 119049 Москва, Россия

^eЦентр перспективных методов мезофизики и нанотехнологий, Национальный исследовательский университет “Московский физико-технический институт”, 141700 Долгопрудный, Россия

^fВсероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н. Л. Духова, 127055 Москва, Россия

Поступила в редакцию 22 ноября 2023 г.

После переработки 4 декабря 2023 г.

Принята к публикации 7 декабря 2023 г.

Сочетание сильно связанных пар носителей заряда и слабых сверхпроводящих флуктуаций является важным условием достижения высокотемпературной сверхпроводимости. Обзор посвящен реализации этого условия в многозонных сверхпроводниках, при котором сильносвязанные пары носителей заряда в мелкой зоне проводимости (уровень Ферми близок ко дну/потолку зоны) сосуществуют с обычными, слабо флуктуирующими куперовскими парами, формирующимися в глубокой зоне. В результате джозефсоновского обмена парами между конденсатами в разных зонах такая система характеризуется высокой критической температурой когерентности, обусловленной наличием сильносвязанных пар и подавлением сверхпроводящих флуктуаций. Это подавление не требует никаких особых условий и является практически полным даже при наличии слабой джозефсоновской связи мелкой зоны со стабильным конденсатом глубокой зоны.

DOI: 10.31857/S1234567824030121, EDN: sqssqt

1. Введение.

1.1. Многозонные сверхпроводники. Объяснение явления сверхпроводимости и исследование возможностей для его использования являются одними из главных задач современной физики конденсированного состояния. Несмотря на то, что в настоящий момент нет законченной универсальной теории сверхпроводимости, применимой для любых материалов, физика твердого тела добилась значительных успехов в понимании свойств и технологических применениях традиционных сверхпроводников, к которым относятся металлы и сплавы, переходящие в сверхпроводящее состояние при очень низких температурах (менее 30 K).

Не относящиеся к этой категории сверхпроводники часто называют нетрадиционными. Они, как пра-

вило, имеют более сложную кристаллическую структуру и могут обладать механизмами спаривания, отличными от стандартной теории сверхпроводимости Бардина–Купера–Шриффера (БКШ) [1]. По сравнению со сверхпроводниками, описываемыми теорией БКШ, такие материалы часто имеют более высокие критические температуры, что дает возможность практического применения в более доступных условиях охлаждения. Одним из распространенных материалов такого типа являются купратные сверхпроводники [2], основанные на соединениях оксида меди. Купратные сверхпроводники имеют критические температуры, достигающие до 133 K при нормальном давлении. Однако механизмы сверхпроводимости в этих материалах не до конца понятны, что делает их изучение областью активных исследований [3–7].

Зонная структура многих из таких соединений имеет схожую конфигурацию [8], схематически по-

¹⁾e-mail: avkrasavin@gmail.com

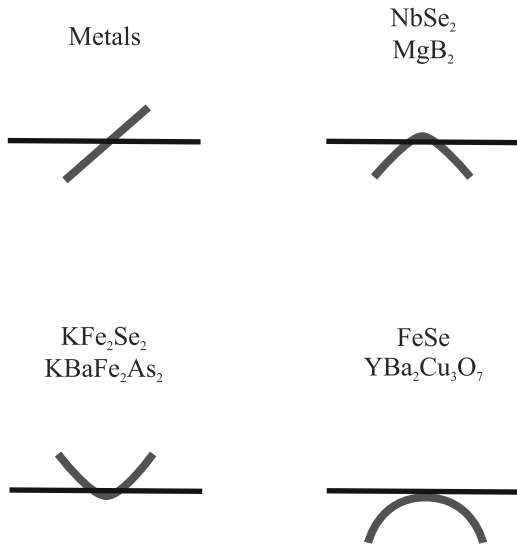


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематичное изображение зонной структуры некоторых сверхпроводящих соединений в сравнении с зонной структурой металлов

казанную на рис. 1. Их отличительной особенностью является наличие мелкой зоны, для которой уровень Ферми близок ко дну/потолку зоны. Такая зонная структура является характерной для окрестности фазового перехода Лифшица, при котором меняется топология Ферми-поверхности [9, 10]. В настоящем обзоре показывается, что данная конфигурация зонной структуры может привести к значительному повышению критической температуры сверхпроводящего перехода. Эта возможность достигается за счет взаимодействия сильносвязанных пар носителей заряда, формирующихся в мелкой зоне, с обычными куперовскими парами, существующими в других, глубоких зонах сверхпроводника.

Такой механизм применим ко многим соединениям, где возникает многозонная или многощелевая сверхпроводимость — когда амплитуды сверхпроводящих щелей на разных листах поверхности Ферми сильно различаются. Это может происходить, например, из-за разной размерности зон, как в случае MgB_2 , из-за наличия отталкивающих межзонных парных взаимодействий, как в случае большинства сверхпроводников на основе железа, или из-за появления множественных карманов на поверхности Ферми, обусловленных кристаллической симметрией, как в $\text{FeSe}_x\text{Te}_{1-x}$ [11]. В таких соединениях перекрестное спаривание между зонами, как правило, подавлено в силу большой разницы волновых функций. Поэтому с хорошей точностью зонные конденсаты образуются за счет куперовского спаривания носителей в каждой из зон по отдельности.

В многозонных системах большее число степеней свободы конденсатной волновой функции делает возможными квантовые эффекты, которые не могут реализоваться в однозонных сверхпроводниках. Ключевой характеристикой является возможность интерференции между зонными конденсатами. Как будет показано, эта интерференция может приводить к явлению экранирования флуктуаций сверхпроводящего параметра порядка, что открывает прямую дорогу к повышению критической температуры.

1.2. Теория среднего поля и флуктуации. На протяжении многих десятилетий теория БКШ является мощным инструментом исследования сверхпроводимости. Являясь по своей сути теорией среднего поля, теория БКШ особенно успешна при описании сверхпроводящего перехода в традиционных сверхпроводниках. В этих материалах флуктуации сверхпроводящего параметра порядка не играют существенной роли практически во всем интервале температур — критическая область, где они существенны, является очень узкой [12, 13] и практически недостижима для эксперимента. Напротив, во многих сверхпроводящих материалах с высокой критической температурой (высокотемпературные сверхпроводники — ВТСП) эта область может сильно расширяться.

Сверхпроводящие флуктуации — это случайные изменения волновой функции конденсата (сверхпроводящего параметра порядка), задающего макроскопические свойства сверхпроводящего состояния. В традиционных материалах, описываемых теорией БКШ, такие флуктуации пренебрежимо малы, так что случайные отклонения параметра порядка ниже критической температуры практически ничтожны, что соответствует идеальной сверхпроводимости. Однако в высокотемпературных сверхпроводниках флуктуации остаются заметными и сильно ниже критической температуры, приводя к значительному отклонению от сверхпроводящего поведения, выражающемуся в появлении ненулевого удельного сопротивления. Для таких соединений становится актуальным вопрос влияния флуктуаций на критическую температуру перехода — они приводят к ее сильному понижению.

Флуктуации сверхпроводящего параметра порядка являются одним из основных факторов, подавляющих сверхпроводимость при температурах ниже критической температуры среднего поля T_{c0} . Хотя при температурах $T < T_{c0}$ появляются куперовские пары, переход в сверхпроводящее состояние происходит при более низкой критической температуре $T_c < T_{c0}$. В интервале $T_c < T < T_{c0}$ система на-

ходится в так называемом псевдощелевом состоянии [3, 5, 7], характеризующемся отсутствием когерентности куперовских пар. Роль флуктуаций усиливается с понижением размерности системы, так что для квазиодномерных материалов $T_c \ll T_{c0}$, см., например, [14–16].

Сдвиг критической температуры из-за флуктуаций, однако, не является универсальным свойством всех сверхпроводящих материалов. Таким образом, изучение механизмов воздействия флуктуаций на сверхпроводящее состояние, а также разработка стратегий, способных их контролировать, является важным аспектом в решении задачи о повышении критической температуры сверхпроводимости.

Механизм повышения критической температуры, представленный в этом обзоре, основан на взаимодействии двух зон в многозонном сверхпроводнике. Предполагается, что система близка к переходу Лифшица, поскольку одна из этих двух зон является мелкой. Сверхпроводящий конденсат в ней находится между режимом слабо связанных куперовских пар (БКШ) и режимом сильно связанных молекул (Бозе–Эйнштейна конденсат – БЭК). Такой режим получил название БКШ–БЭК кроссовер [17, 18, 19–24], и он характеризуется высокой среднеполевой критической температурой и большими флуктуациями. Вторая зона в этой системе предполагается глубокой и находится в обычном режиме БКШ со слабосвязанными куперовскими парами, который характеризуется низкой критической температурой и слабыми сверхпроводящими флуктуациями. Оказывается, что взаимодействие между зонами подавляет сильные флуктуации в мелкой зоне, но критическая температура всей системы остается на уровне среднеполевой T_{c0} температуры мелкой зоны.

Многозонный механизм подавления флуктуаций рассматривается в этом обзоре применительно к сверхпроводникам с обычным s -волновым спариванием, как в стандартной теории БКШ. Тем не менее, подобный эффект ожидается и в системах со спариванием d -типа. Кроме того, мы ограничиваемся исследованием двухзонной системы, которая рассматривается как прототип многозонного сверхпроводника. Весь формализм легко обобщается на случай большего числа зон проводимости, а качественные выводы остаются прежними.

2. Флуктуации в двухзонном сверхпроводнике.

2.1. Микроскопическое описание системы. Анализ двухзонного (в общем случае многозонного) сверхпроводника с обычным спариванием с

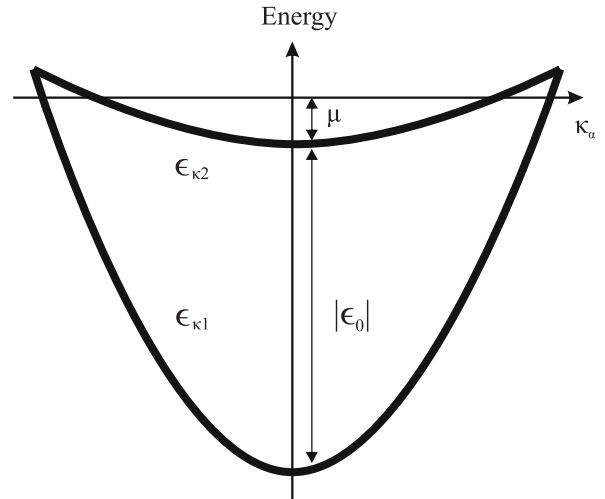


Рис. 2. Схематичное изображение зонной структуры, рассматриваемой в работе. Глубокая зона $\nu = 1$ является трехмерной или квазидвумерной, зона $\nu = 2$ является мелкой и низкоразмерной. Соответствующие законы дисперсии имеют вид $\epsilon_{k1} = \epsilon_0 + \sum_{\alpha} \frac{\hbar^2 k_{\alpha}^2}{2m_1} - \mu$, $\epsilon_{k2} = \sum_{\beta} \frac{\hbar^2 k_{\beta}^2}{2m_2} - \mu$; $|\mu| \ll |\epsilon_0|$

s -симметрией в каждой зоне базируется на использовании стандартного обобщения модели БКШ на ситуацию с несколькими типами носителей заряда. Напомним, что в рамках такого обобщения куперовское спаривание описывается взаимодействием

$$V_{BCS} = - \sum_{\nu, \nu'} g_{\nu\nu'} \int d\mathbf{r} \psi_{\nu\uparrow}^{\dagger} \psi_{\nu\downarrow}^{\dagger} \psi_{\nu'\downarrow} \psi_{\nu'\uparrow}, \quad (1)$$

где $\psi_{\nu\sigma}^{\dagger} \equiv \psi_{\nu\sigma}^{\dagger}(\mathbf{r})$ и $\psi_{\nu\sigma} \equiv \psi_{\nu\sigma}(\mathbf{r})$ – операторы носителей заряда в зоне ν ($\nu = 1, 2$); g – матрица рассеяния, $g_{\nu\nu'} = g_{\nu'\nu}$, а само выражение (1) получено при стандартном предположении, что элементы матрицы g слабо зависят от импульса, и этой зависимостью можно пренебречь.

В приближении среднего поля и в отсутствие примесей (в так называемом “чистом пределе”) и межзонного спаривания гамильтониан сверхпроводящей системы записывается в виде [25, 26]

$$H = \sum_{\nu} \int d\mathbf{r} \left[\psi_{\nu\sigma}^{\dagger} T_{\nu}(\mathbf{r}) \psi_{\nu\sigma} + \left(\psi_{\nu\uparrow}^{\dagger} \psi_{\nu\downarrow}^{\dagger} \Delta_{\nu}(\mathbf{r}) + \text{H.c.} \right) \right] + (\Delta, g^{-1} \Delta), \quad (2)$$

где $T_{\nu}(\mathbf{r})$ – одночастичный оператор энергии, а функции щелей для двухзонной системы представлены в векторном виде $\Delta \equiv (\Delta_1, \Delta_2)^T$ со скалярным произведением $(A, B) \equiv \sum_{\nu} A_{\nu}^* B_{\nu}$, так что последний член в уравнении (2) в явном виде записывается как

$$(\Delta, g^{-1}\Delta) = \frac{1}{G} \int d\mathbf{r} [g_{22}|\Delta_1|^2 + g_{11}|\Delta_2|^2 + g_{12}(\Delta_1^*\Delta_2 + \Delta_2^*\Delta_1)], \quad (3)$$

где $G = g_{11}g_{22} - g_{12}^2$. В уравнениях (2) и (3) функции щелей удовлетворяют уравнению самосогласования среднего поля

$$\Delta_\nu = \sum_{\nu'} g_{\nu\nu'} \langle \psi_{\nu'\uparrow} \psi_{\nu'\downarrow} \rangle, \quad (4)$$

где $\langle \dots \rangle$ обозначает аномальные средние (функции Грина) полевых операторов. Отсутствие межзонного куперовского спаривания означает, что в этом выражении присутствуют только средние от операторов с одинаковыми индексами зон ν .

В этом обзоре мы рассмотрим специальные конфигурации зонной структуры двухзонного сверхпроводника, схематичное изображение которых показано на рис. 2. Одна из зон, скажем, $\nu = 1$, является трехмерной (3D) или квази-двумерной (Q2D) и “глубокой”, т.е. ее минимум (дно зоны) расположен далеко от уровня Ферми, $|\epsilon_0| \ll \mu$. Вторая зона ($\nu = 2$) является квазиодномерной (Q1D) или квазидвумерной (Q2D) и “мелкой”, т.е. уровень Ферми расположен относительно близко ко дну зоны. В такой системе сверхпроводящий конденсат представляет собой когерентную смесь БКШ конденсата, формирующегося в глубокой зоне, и конденсата в режиме БКШ-БЭК кроссовера в мелкой зоне. В режиме БКШ-БЭК кроссовера размер куперовской пары сравним со средним расстоянием между частицами, $\xi \sim 1/k_F$, где k_F – импульс Ферми, или, что равнозначно, характерная энергия спаривания имеет порядок энергии Ферми, $\Delta \sim E_F$. Состояния же БКШ и БЭК характеризуются неравенствами $k_F\xi \gg 1$ и $k_F\xi \ll 1$, соответственно. Впервые БКШ-БЭК кроссовер был экспериментально получен в системе ультрахолодных ферми-газов (см., например, [27]), для которых межчастичное взаимодействие возможно регулировать при помощи резонанса Фешбаха [28]. В твердотельных системах настройка кроссовера представляет собой намного более сложную задачу, связанную с варьированием соотношения Δ/E_F путем химического инжиниринга, допирования, изменения подложки материала и прочих атрибутов системы.

2.2. Функционал свободной энергии. Для вычисления флуктуационных коррекций необходимо получить свободную энергии системы в виде функционала от функций щелей Δ_ν . Вклад флуктуаций затем учитывается усреднением релевантных физических величин по случайным вариациям щелевых функций Δ_ν со статистическим весом Гиббса

для свободной энергии. Вычисления с использованием выражений, полученных в рамках микроскопической теории БКШ, слишком сложны для практического использования. В случае одной зоны обычно ограничиваются несколькими наиболее важными членами разложения свободной энергии – функционалом Гинзбурга–Ландау (ГЛ) [29]. Такой подход вполне оправдан, особенно, в случае, когда флуктуации исследуются вблизи критической температуры перехода T_{c0} .

Для двухзонного сверхпроводника можно сделать такое же разложение, оставляя в нем только те вклады для каждой зоны, которые соответствуют стандартной теории ГЛ. Вблизи критической температуры T_{c0} соответствующий функционал получается с помощью микроскопического гамильтониана (2) путем разложения термодинамического потенциала по малым параметрам, которыми являются функции щели Δ_ν . Получение данного разложения для каждой зоны двухзонной модели полностью аналогично однозонному варианту [29]. В результате получается следующее выражение для свободной энергии (см., например, [30–32]):

$$F = \int d\mathbf{r} \left[\sum_\nu f_\nu + (\Delta, \mathcal{L}\Delta) \right],$$

$$f_\nu = a_\nu |\Delta_\nu|^2 + \frac{b_\nu}{2} |\Delta_\nu|^4 + \sum_i \mathcal{K}_\nu^{(i)} |\nabla_i \Delta_\nu|^2,$$

$$\mathcal{L} = g^{-1} - \begin{bmatrix} \mathcal{A}_1 & 0 \\ 0 & \mathcal{A}_2 \end{bmatrix}. \quad (5)$$

Здесь коэффициенты $a_\nu, b_\nu, \mathcal{K}_\nu^{(i)}, \mathcal{A}_\nu$ зависят от размерности соответствующей зоны и ее микроскопических параметров, индекс i пробегает ее пространственные координаты, а магнитное поле равно нулю. Полевая поправка к температурным флуктуациям рассматривается ниже, в конце раздела.

2.3. Эффективный однокомпонентный функционал свободной энергии. Для вычислений, использующих функционал F , заданный уравнением (5), можно выделить наибольший вклад флуктуаций вблизи критической температуры сверхпроводящего фазового перехода. Для этого сначала вспомним, что последняя в рамках приближения среднего поля (T_{c0}) определяется из решения линеаризованного уравнения самосогласования (4), которое дается выражением

$$\mathcal{L}\Delta = 0. \quad (6)$$

Данное уравнение имеет нетривиальное решение при условии

$$\det[\mathcal{L}] = 0. \quad (7)$$

Из этого условия находится среднеполевая критическая температура T_{c0} . В общем случае существуют два решения, из которых следует выбрать наибольшую T_{c0} – это решение соответствует минимуму свободной энергии. Щелевые функции, соответствующие этому решению, удовлетворяют соотношению

$$\Delta(\mathbf{r}) = \eta_+ \psi(\mathbf{r}), \quad \eta_+ = \begin{pmatrix} 1 \\ S \end{pmatrix}, \quad (8)$$

где $\psi(\mathbf{r})$ – некоторая функция координат, и величина S определена как

$$S = \frac{g_{22} - G\mathcal{A}_1}{g_{12}}. \quad (9)$$

Следует заметить, что уравнение (8) не является единственным выбором собственного вектора η_+ , соответствующего нулевому собственному значению матрицы $\mathcal{L}$, поскольку нормировка этого вектора не имеет значения.

Если теперь мы выберем вектор, ортогональный к η_+ , в виде

$$\eta_- = \begin{pmatrix} -S \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (10)$$

то произвольный вектор параметра порядка можно представить в виде суммы [33, 34]

$$\Delta(\mathbf{r}) = \psi(\mathbf{r})\eta_+ + \phi(\mathbf{r})\eta_-, \quad (11)$$

где функции $\psi(\mathbf{r})$ и $\phi(\mathbf{r})$ – две различные флуктуационные моды, отвечающие этим векторам.

В терминах ψ и ϕ свободная энергия F в уравнении (5) разбивается на следующие три вклада:

$$F = \int d\mathbf{r} (f_\psi + f_\phi + f_{\psi\phi}), \quad (12)$$

где первые два члена дают независимые вклады каждой из мод, а третий – энергия их взаимодействия.

Первый вклад f_ψ имеет вид стандартного функционала ГЛ [29, 35]

$$f_\psi = a_\psi |\psi|^2 + \frac{b_\psi}{2} |\psi|^4 + \sum_i \mathcal{K}_\psi^{(i)} |\nabla_i \psi|^2, \quad (13)$$

где коэффициенты даются усреднением по зонным вкладам [33, 34, 36, 37]:

$$a_\psi = \sum_\nu \eta_{+,\nu}^2 a_\nu, \quad b_\psi = \sum_\nu \eta_{+,\nu}^4 b_\nu, \quad \mathcal{K}_\psi^{(i)} = \sum_\nu \eta_{+,\nu}^2 \mathcal{K}_\nu^{(i)}. \quad (14)$$

Вклад f_ϕ в уравнении (12) также имеет вид уравнения (13), где $\psi(\mathbf{r})$ меняется на $\phi(\mathbf{r})$, а соответствующие коэффициенты даются выражениями [33, 34, 36, 37]

$$a_\phi = a_\phi^{(0)} + \sum_\nu \eta_{-,\nu}^2 a_\nu, \quad b_\phi = \sum_\nu \eta_{-,\nu}^4 b_\nu, \quad \mathcal{K}_\phi^{(i)} = \sum_\nu \eta_{-,\nu}^2 \mathcal{K}_\nu^{(i)}, \quad (15)$$

где $a_\phi^{(0)}$ имеет вид

$$a_\phi^{(0)} = (\eta_-, \mathcal{L}\eta_-) = \frac{g_{12}(1 + S^2)^2}{GS}. \quad (16)$$

В свою очередь, функционал $f_{\psi\phi}$ в (12) описывает взаимодействие двух мод.

Вкладами f_ϕ и $f_{\psi\phi}$ можно пренебречь, поскольку мода ϕ не является критической. Это следует из наличия $a_\phi^{(0)} \neq 0$ в выражении для коэффициента a_ϕ в уравнении (15). Из уравнения (9) следует, что S – действительная величина, и, следовательно, константа $a_\phi^{(0)}$ в общем случае отлична от нуля при $T \rightarrow T_{c0}$. Это приводит к тому, что характеристическая длина $\xi_\phi^{(i)} = \sqrt{\mathcal{K}_\phi^{(i)}/a_\phi}$ моды ϕ не является критической (расходящейся) вблизи T_{c0} . Следовательно, единственной модой, отвечающей за критическое поведение системы, является ψ с расходящейся характеристической длиной $\xi_\psi^{(i)} = \sqrt{\mathcal{K}_\psi^{(i)}/a_\psi}$, поскольку коэффициент $a_\psi \rightarrow 0$ при $T \rightarrow T_{c0}$. Мода ϕ вносит несущественные поправки, которыми можно пренебречь вблизи T_{c0} .

Флуктуационная часть F , таким образом, может быть аппроксимирована с использованием всего одной моды ψ с функционалом энергии, задаваемым уравнением (13). Факт наличия в системе двух взаимодействующих зон отражается в их вкладах в коэффициенты a_ψ, b_ψ и $\mathcal{K}_\psi^{(i)}$ в уравнении (14). Таким образом, уравнение (13) определяет эффективную теорию ГЛ для двухзонной системы. Заметим, что эта теория имеет единственный параметр порядка ψ в полном соответствии с теорией фазовых переходов Ландау для равновесного случая рассматриваемой системы (см. обсуждение в работах [38–41]). Флуктуации этого параметра порядка являются критическими и доминируют вблизи фазового перехода. Заметим, что учет некретических флуктуаций по ϕ может приводить к некоторым изменениям в коэффициентах функционала f_ψ , однако эти поправки не могут являться значительными ввиду некретического характера флуктуационной моды ϕ и, соответственно, ими можно пренебречь.

3. Флуктуационный сдвиг критической температуры.

3.1. *Общие замечания.* Величина T_{c0} , полученная решением линеаризованного уравнения для щели (6), дает критическую температуру в рамках среднего поля. Реальная температура сверхпроводящего перехода T_c будет всегда ниже T_{c0} из-за термических флуктуаций, т.е. происходит флуктуационный сдвиг критической температуры. Его можно оценить, воспользовавшись тем, что эффективный функционал свободной энергии (13) системы имеет однокомпонентный параметр порядка, что позволяет использовать результаты для флуктуационных поправок для обычной однокомпонентной теории ГЛ. Однако следует помнить, что одна и та же компонента ψ описывает флуктуации параметра порядка сразу в обеих зонах, согласно $\delta\Delta_1 = \delta\psi$, $\delta\Delta_2 = S\delta\psi$, и, таким образом, $\delta\Delta_1$ и $\delta\Delta_2$ не являются независимыми. Благодаря этому факту некоторые качественные выводы легко сделать уже из самого вида функционала и его коэффициентов в уравнении (14).

Например, если весовой фактор очень мал, $S \ll 1$, то щель второй зоны $\Delta_2 \rightarrow S\psi$ практически не дает вклада в свободную энергию F , и тогда сверхпроводящие свойства полностью определяются зоной $\nu = 1$. В случае, когда весовой фактор $S \gg 1$, реализуется противоположный предел, и решающим является вклад зоны $\nu = 2$. Кроссовер между этими двумя предельными случаями происходит в диапазоне значений $S \sim 1$, где вклад одной зоны постепенно заменяется вкладом другой. Существенным, однако, является то, что коэффициенты функционала энергии, задаваемые уравнением (14), зависят от S по-разному. Это приводит к разной зависимости физических характеристик системы от S . Как следствие, интервал кроссовера между двумя предельными режимами зависит от того, какая физическая величина нас интересует.

В частности, флуктуации и критическая температура имеют разные зависимости от параметров системы. Это и является основной причиной, почему возможно одновременно увидеть сильное возрастание критической температуры, которое определяется влиянием одной (мелкой) зоны, и одновременно подавление флуктуаций, которое имеет место из-за преобладающего влияния другой (глубокой) зоны. Вопрос заключается в том, возможно ли найти область значений параметров системы, при которых снижение критической температуры T_c из-за флуктуаций по сравнению со среднеполевым значением T_{c0} не является слишком существенным, в то время как среднеполевая температура еще не уменьшилась

при переходе к режиму доминирующей глубокой зоны. Можно показать, что такая ситуация действительно наблюдается в широком интервале параметров для многих конфигураций зонной структуры с одной мелкой зоной.

Влияние термических флуктуаций на критическую температуру сверхпроводящего перехода можно грубо оценить из параметра Гинзбурга–Леванюка (известного также, как число Гинзбурга)

$$Gi = 1 - \frac{T_{Gi}}{T_{c0}}, \quad (17)$$

где T_{Gi} – температура, при которой вклад в теплоемкость, обусловленный флуктуациями, становится равным значению теплоемкости, рассчитанному в приближении среднего поля. Физически это означает, что в интервале температур $T_{Gi} < T < T_{c0}$ влияние флуктуаций существенно.

Число Гинзбурга находится путем вычисления теплоемкости системы с использованием функционала энергии (13). Качественная оценка [42] дает следующий результат:

$$Gi \propto \left(\frac{T_{c0}}{E_F} \right)^{\frac{2(D-1)}{4-D}}, \quad (18)$$

где E_F – энергия Ферми, а D – размерность пространства. Более точные вычисления для изотропного случая при $D = 3$ и $D = 2$ дают [12, 13]

$$Gi_{3D} = \frac{1}{32\pi^2} \frac{T_{c0} b_\psi^2}{a'_\psi \mathcal{K}_\psi^3}, \quad Gi_{2D} = \frac{1}{4\pi} \frac{b_\psi n_z}{a'_\psi \mathcal{K}_\psi}, \quad (19)$$

где $a'_\psi \equiv da_\psi/dT$, и изотропия системы подразумевает равенство коэффициентов при градиентных членах $\mathcal{K}_\psi = \mathcal{K}_\psi^{(i)}$. В случае $D = 2$ подразумевается вырождение вдоль направления z , и n_z – это фактор, который учитывает плотность состояний вдоль этого направления. Переход к анизотропному случаю в выражениях (19) осуществляется путем замены $\mathcal{K}_\psi^3 \rightarrow \mathcal{K}_\psi^{(x)} \mathcal{K}_\psi^{(y)} \mathcal{K}_\psi^{(z)}$ для $D = 3$ и $\mathcal{K}_\psi \rightarrow \sqrt{\mathcal{K}_\psi^{(x)} \mathcal{K}_\psi^{(y)}}$ для $D = 2$.

Предположение $T_c \sim T_{Gi}$ дает грубую оценку флуктуационного сдвига температуры перехода $\delta T_c = T_{c0} - T_c$. Более точные расчеты соотношения между δT_c и числом Гинзбурга можно сделать, например, воспользовавшись ренорм-групповым анализом для однокомпонентной теории с функционалом энергии (13) [13], либо, как в случае $D = 2$, можно применить критерий Нельсона–Костерлица, связывающий температуру фазового перехода Березинского–Костерлица–Таулесса [43] с числом

Гинзбурга. Ниже мы разберем подробно следующие важные примеры, когда рассматриваемая двухзонная система имеет 1) квази-одномерную (Q1D) и трехмерную зоны (3D), 2) квази-одномерную и квази-двумерную зоны (Q1D + Q2D) и 3) две квази-двумерные зоны (Q2D + Q2D).

3.2. Q1D + 3D. Общий механизм подавления флуктуаций и повышения критической температуры особенно наглядно проявляется, если в системе есть квазиодномерная (Q1D) зона. Квазиодномерные зоны характеризуются наличием расходящихся особенностей ван Хофа на краях зоны. Если химический потенциал оказывается вблизи этой особенности, что реализуется, например, если система находится вблизи перехода Лифшица, то это приводит к большой плотности одночастичных состояний на поверхности Ферми и, соответственно, к большим значениям среднестатистической критической температуры T_{c0} . Размер пар в этой зоне резко уменьшается и, таким образом, реализуется режим БКШ–БЭК кроссовера. Однако большие флуктуации в Q1D системе полностью или значительно подавляют сверхпроводимость.

Как оказывается, обмен парами с 3D зоной способен подавить флуктуации и восстановить сверхпроводимость. В самом деле, при таком взаимодействии между зонами вклад флуктуаций определяется эффективным 3D функционалом (13), где коэффициенты даются формулами (14). В этих выражениях зонные коэффициенты для трехмерной зоны БКШ-типа со сферически симметричной поверхностью Ферми имеют стандартный вид [44]

$$\begin{aligned} A_1 &= N_1 \ln \left(\frac{2e^{\gamma} \hbar \omega_c}{\pi T_{c0}} \right), \quad a_1 = \frac{N_1}{T_{c0}} (T - T_{c0}), \\ b_1 &= \frac{7\zeta(3)}{8\pi^2} \frac{N_1}{T_{c0}^2}, \quad \mathcal{K}_1^{(i)} = \mathcal{K}_1 = \frac{\hbar^2 v_1^2}{6} b_1, \end{aligned} \quad (20)$$

где изотропия системы, как уже указывалось выше, означает равенство коэффициентов $\mathcal{K}_1^{(i)}$ для всех направлений i , N_1 обозначает плотность состояний зоны $\nu = 1$, $\hbar \omega_c$ – обрезание по энергии (далее будем считать это энергетическим масштабом для всех энергетических величин), γ – постоянная Эйлера, $\zeta(x)$ – дзета-функция Римана, а характеристическая скорость электронов равна скорости Ферми $v_1 = \sqrt{2(\mu - \epsilon_{0,1})/m_1}$, где m_ν – эффективная масса.

Для Q1D зоны мы полагаем, что химический потенциал лежит рядом с ее дном, и поэтому коэффициенты могут быть выражены лишь с помощью интегралов, которые нужно вычислять численно,

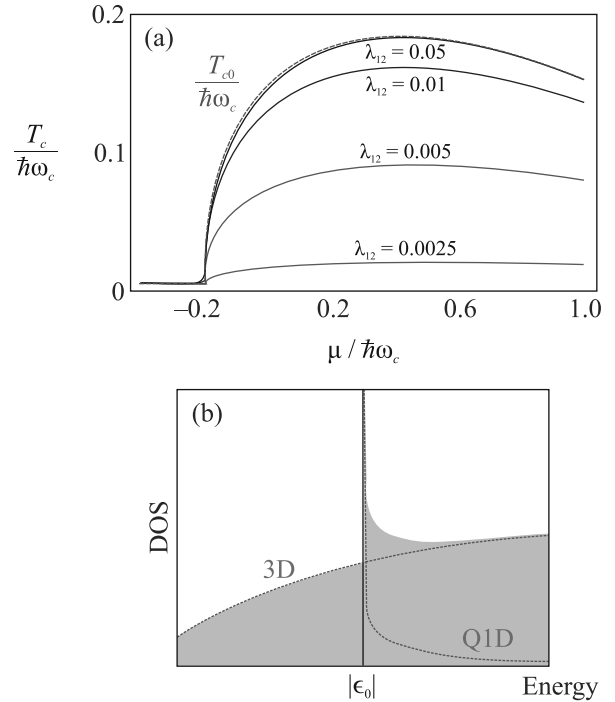


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Критическая температура с учетом флуктуаций как функция химического потенциала для значений межзонного взаимодействия $\lambda_{12} = 0.0025; 0.005; 0.01; 0.05$ при $\lambda_{11} = 0.18; \lambda_{22} = 0.2$. Красной штриховой линией показана критическая температура T_{c0} . (б) – Схематичное изображение зависимости плотности состояний в двухзонной 3D + Q1D системе. Красными штриховыми линиями показана плотность состояний невзаимодействующих зон. Адаптировано из [33]

$$\begin{aligned} A_2 &= N_2 \int_{-\tilde{\mu}}^1 dy \frac{\text{th}(y/2\tilde{T}_{c0})}{y\sqrt{y+\tilde{\mu}}}, \\ a_2 &= -\tau \frac{N_2}{2\tilde{T}_{c0}} \int_{-\tilde{\mu}}^1 dy \frac{\text{sch}^2(y/2\tilde{T}_{c0})}{\sqrt{y+\tilde{\mu}}}, \\ b_2 &= \frac{N_2}{4\hbar^2\omega_c^2} \int_{-\tilde{\mu}}^1 dy \frac{\text{sch}^2(y/2\tilde{T}_{c0})}{y^3\sqrt{y+\tilde{\mu}}} \left[\text{sh} \left(\frac{y}{\tilde{T}_{c0}} \right) - \frac{y}{\tilde{T}_{c0}} \right], \\ \mathcal{K}_2^{(x)} &= \hbar^2 v_2^2 \frac{N_2}{8\hbar^2\omega_c^2} \int_{-\tilde{\mu}}^1 dy \frac{\sqrt{y+\tilde{\mu}}}{y^3} \text{sch}^2(y/2\tilde{T}_{c0}) \\ &\times \left[\text{sh} \left(\frac{y}{\tilde{T}_{c0}} \right) - \frac{y}{\tilde{T}_{c0}} \right], \quad \mathcal{K}_2^{(y)} = \mathcal{K}_2^{(z)} = 0, \end{aligned} \quad (21)$$

где мы ввели величину, описывающую близость к переходу $\tau = 1 - T/T_{c0}$, а также, для удобства, используем безразмерные переменные $\tilde{T}_{c0} = T_{c0}/\hbar \omega_c$ и $\tilde{\mu} = \mu/\hbar \omega_c$. Заметим, что эффективная скорость v_2 и плотность состояний N_2 в выражениях для Q1D зоны определяются величиной обрезания по энергии, $v_2 = \sqrt{2\hbar \omega_c/m_2}$ и $N_2 = n_y n_z / 4\pi \hbar v_2$. Здесь мы предполагаем, что вклад направлений y, z в плотность од-

ночастичных состояний Q1D зоны описывается некоторыми постоянными n_y и n_z , которые задаются размерами зоны Бриллюэна. Поскольку зона $\nu = 2$ является квазиодномерной, то $\mathcal{K}_\psi^{(y,z)} \neq \mathcal{K}_\psi^{(x)}$ и, следовательно, функционал (13) является анизотропным.

Далее мы воспользуемся известным результатом, получаемым с помощью ренорм-группы [13], согласно которому флуктуационный сдвиг критической температуры для трехмерного функционала ГЛ (13) равен

$$\frac{T_{c0} - T_c}{T_c} = \frac{8}{\pi} \sqrt{\text{Gi}}, \quad (22)$$

где число Гинзбурга для трехмерного анизотропного сверхпроводника дается выражением (см. пояснение после уравнения (19))

$$\text{Gi} = \frac{1}{32\pi^2} \frac{T_{c0} b_\psi^2}{a'_\psi \mathcal{K}_\psi^{(x)} \mathcal{K}_\psi^{(y)} \mathcal{K}_\psi^{(z)}}. \quad (23)$$

Это выражение удобно представить в виде

$$\text{Gi} = \text{Gi}_1 \frac{(1 + S^4 b_2/b_1)^2}{(1 + S^2 a_2/a_1)(1 + S^2 \mathcal{K}_2^{(x)}/\mathcal{K}_1^{(x)})}, \quad (24)$$

где Gi_1 – число Гинзбурга для 3D зоны $\nu = 1$, задаваемое уравнением (19), в котором коэффициенты $a'_\psi, b_\psi, \mathcal{K}_\psi$ заменяются на $a'_1, b_1, \mathcal{K}_1$, так что

$$\text{Gi}_1 = \frac{1}{32\pi^2} \frac{T_{c0} b_1^2}{a'_1 \mathcal{K}_1^3} = \frac{27\pi^4}{14\zeta(3)} \left(\frac{T_{c0}}{\mu + |\epsilon_0|} \right)^4. \quad (25)$$

Мы можем количественно оценить его значение как $\text{Gi}_1 = 10^{-10}$, что примерно соответствует середине диапазона значений, типичных для трехмерных сверхпроводников $\text{Gi}_{3D} \simeq 10^{-16} \div 10^{-6}$ [12]. Отношение N_2/N_1 можно принять равным единице, что близко к экспериментальным оценкам этого отношения $N_2/N_1 \sim 1$ во многих многозонных сверхпроводящих материалах, см., например, [45]. Остаются, таким образом, параметры внутри- и межзонных взаимодействий g_{11}, g_{22} и g_{12} , которые будут определять критическую температуру. Отметим, что для вычислений удобно вводить безразмерные константы взаимодействий $\lambda_{\nu\nu'} = g_{\nu\nu'} \sqrt{N_\nu N_{\nu'}}$.

На рисунке 3а показана типичная зависимость критических температур T_{c0} и T_c от химического потенциала вблизи дна квазиодномерной зоны, рассчитанная в работах [33, 34, 37]. Для расчетов выбраны значения $\lambda_{11} = 0.18$ и $\lambda_{22} = 0.2$, однако качественный характер полученных зависимостей сохраняется и для других значений констант внутризонного спаривания, характерных для традиционных сверхпроводников [44]. Значения константы межзонного взаимодействия λ_{12} выбираются согласно $\lambda_{12} < 0.05$, принимая во внимание, что соотношение $\lambda_{12} \ll \lambda_{11}, \lambda_{22}$

является стандартным для многих двузонных сверхпроводников, см., например, таблицу констант взаимодействия в работе [45]. Химический потенциал варьируется вблизи края Q1D зоны и точно пересекает дно зоны при $\mu = 0$.

На рисунке 3а видно, что при достаточно низких значениях химического потенциала ($\mu \lesssim -0.2$) вклад Q1D зоны отсутствует, и T_{c0} , определяемая трехмерной зоной, имеет достаточно малое значение, близкое к таковым в традиционных сверхпроводящих материалах. При приближении химического потенциала ко дну Q1D зоны ($\mu \simeq 0$) T_{c0} резко возрастает из-за сингулярности ван Хова в плотности состояний, см. рис. 3б.

Отметим, что увеличение T_{c0} начинается раньше касания дна Q1D зоны химическим потенциалом, примерно при $\mu \simeq -0.2$. Это обусловлено, во-первых, влиянием энергии связи куперовских пар, которую можно оценить в области возрастания критической температуры как $\max(T_{c0}) \simeq 0.2$ и которая размывает поверхность Ферми. При конечных же температурах работает температурное размытие поверхности Ферми, которое также контролируется величиной $\max(T_{c0}) \simeq 0.2$. Для больших значений химического потенциала ($\mu > \hbar\omega_c$) влияние сингулярности в плотности состояний становится менее существенным, и T_{c0} уменьшается по закону $1/\sqrt{\mu}$ (что характерно для Q1D зоны), пока не достигает значения, определяемого 3D зоной. На рисунке 3а зависимость среднеполевой критической температуры T_{c0} от μ показана для $\lambda_{12} = 0.05$. Однако эта зависимость остается практически неизменной во всем рассматриваемом интервале $\lambda_{12} \ll \lambda_{11}, \lambda_{22}$. Следовательно, для этого интервала межзонного взаимодействия свойства двухзонного сверхпроводника, рассчитанные в рамках теории среднего поля, полностью определяются Q1D зоной.

Напротив, зависимость критической температуры T_c , учитывающей флуктуации, сильно зависит от λ_{12} . Действительно, при “выключении” межзонного взаимодействия $\lambda_{12} \rightarrow 0$ флуктуации подавляют сверхпроводимость. Ситуация меняется при увеличении λ_{12} . Из рисунка 3а видно, что даже чрезвычайно малое межзонное взаимодействие $\lambda_{12} \simeq 0.01$ позволяет вывести T_c практически на уровень его среднеполевого значения T_{c0} .

Этот расчет показывает, что обмен куперовскими парами со стабильным трехмерным конденсатом позволяет подавить сильные флуктуации, присущие квазиодномерным системам. Несмотря на то, что в реальных системах в силу различных факторов зонная картина может быть несколько отлична от пред-

ставленной на рис. 2, что может привести к некоторому ослаблению эффекта подавления флуктуаций, рассмотренный механизм является физически общим и приводит к существенному увеличению критической температуры сверхпроводящего перехода, если химический потенциал находится вблизи края квазидвумерной зоны.

3.3. Q1D + Q2D. Известно, что роль флуктуаций усиливается в низкоразмерных образцах [13]. Поэтому можно ожидать, что механизм подавления флуктуаций, рассмотренный в предыдущем разделе для взаимодействующих трехмерной и квазидвумерной зон, будет гораздо менее эффективен, если вместо трехмерной зоны в сверхпроводнике присутствует квазидвумерная зона. В этом разделе мы рассмотрим случай взаимодействия глубокой квазидвумерной (Q2D) и мелкой квазидвумерной (Q1D) зон и покажем, что в действительности механизм подавления флуктуаций остается почти таким же эффективным, как и в случае трехмерной зоны.

Для Q1D зоны ($\nu = 2$) коэффициенты разложения функционала свободной энергии (5) даны в уравнении (21), а для глубокой Q2D зоны ($\nu = 1$) можно получить следующие выражения: [46]

$$A_1 = N_1 \ln \left(\frac{2e^{\gamma} \hbar \omega_c}{\pi T_{c0}} \right), \quad a_1 = \frac{N_1}{T_{c0}} (T - T_{c0}),$$

$$b_1 = \frac{7\zeta(3)}{8\pi^2} \frac{N_1}{T_{c0}^2}, \quad \mathcal{K}_1^{(x,y)} = \mathcal{K}_1 = \frac{7\zeta(3)}{32\pi^2} \frac{N_1 \hbar^2 v_1^2}{T_{c0}^2}, \quad (26)$$

где N_1 – плотность состояний зоны, которая включает в себя фактор n_z , появляющийся ввиду вырождения по оси z для Q2D зоны (для Q1D зоны мы имеем такой же фактор n_z , учитывающий вклад в плотность состояний от направления z и фактор n_y , необходимый для учета направления y), $v_1 = \sqrt{2(\mu - \epsilon_{0,1})/m_1}$, а $\mathcal{K}_1^{(z)} = 0$.

Соответствующее число Гинзбурга для анизотропной двухзонной системы запишется в виде (см. пояснение после уравнения (19))

$$\text{Gi} = \frac{T_{c0} b_{\psi} n_z}{4\pi a'_{\psi} \sqrt{\mathcal{K}_{\psi}^{(x)} \mathcal{K}_{\psi}^{(y)}}}. \quad (27)$$

Как и в предыдущем случае, мы принимаем во внимание, что коэффициенты функционала (14) содержат вклад обеих зон, и перепишем число Гинзбурга для системы двух зон (27) в виде

$$\text{Gi} = \text{Gi}_1 \frac{1 + S^4 b_2/b_1}{(1 + S^2 a'_2/a'_1) \sqrt{1 + S^2 \mathcal{K}_2^{(x)}/\mathcal{K}_1^{(x)}}}, \quad (28)$$

где Gi_1 – это число Гинзбурга глубокой Q2D зоны с $\nu = 1$, которое получается из уравнения (27) заменой

коэффициентов $a'_{\psi}, b_{\psi}, \mathcal{K}_{\psi}$ на $a'_1, b_1, \mathcal{K}_1$. Эта замена позволяет получить

$$\text{Gi}_1 = \frac{T_{c0} b_1 n_z}{4\pi a'_1 \mathcal{K}_1^2} = \frac{T_{c0}}{\mu + |\epsilon_0|}. \quad (29)$$

Так как $b_1 \propto n_z$, $a'_1 \propto n_z$ и $\mathcal{K}_1^{(i)} \propto n_z$, значение числа Гинзбурга не зависит от фактора n_z .

Для расчета температуры сверхпроводящего перехода T_c нашей эффективной Q2D системы можно использовать критерий Нельсона–Костерлица [43], согласно которому флуктуационный сдвиг критической температуры вычисляется как

$$\frac{T_{c0} - T_c}{T_c} = 4\text{Gi}, \quad (30)$$

где T_c – температура фазового перехода Березинского–Костерлица–Таулесса [47]. Можно также воспользоваться методом ренорм-группы, который дает для $D = 2$ [13]

$$\frac{T_{c0} - T_c}{T_c} = 2\text{Gi} \ln(1/4\text{Gi}). \quad (31)$$

Важно подчеркнуть, что отличие результата ренорм-группового анализа (31) от выражения Нельсона–Костерлица (30) становится существенным только при $\delta T_c/T_c \lesssim 0.001$, когда T_c и T_{c0} практически неразличимы. Кроме того, надо заметить, что выражение (31) справедливо лишь при $(T_{c0} - T_c)/T_c \lesssim 0.1$. Ниже используются оба варианта расчета T_c , которые приводят к очень близким результатам. В частности, данные на рис. 4 и 5 получены с помощью формулы (30), в то время как результаты, представленные в следующем разделе на рис. 6, основаны на уравнении (31).

На рисунке 4а показаны зависимости критических температур T_{c0} и T_c (рассчитанной согласно формуле (30)) как функций химического потенциала для констант межзонного взаимодействия $\lambda_{11} = 0.24$, $\lambda_{22} = 0.2$ и малых значений константы межзонного взаимодействия $\lambda_{12} = 0.002; 0.005$. Глубина квазидвумерной зоны $\nu = 1$ выбрана равной $|\epsilon_0| = 300$, что задает энергию Ферми данной зоны $E_F \approx 300$, так как $\mu \ll |\epsilon_0|$. Это значение энергии Ферми соответствует реалистичным микроскопическим параметрам для традиционных одноэлементных сверхпроводников [48]. Например, для алюминия $E_F \approx 350$, а для свинца $E_F \approx 1000$.

Несмотря на общий тренд на возрастание роли флуктуаций при понижении размерности системы, сравнение рис. 3 и 4 показывает, что для механизма подавления сверхпроводящих флуктуаций, рас-

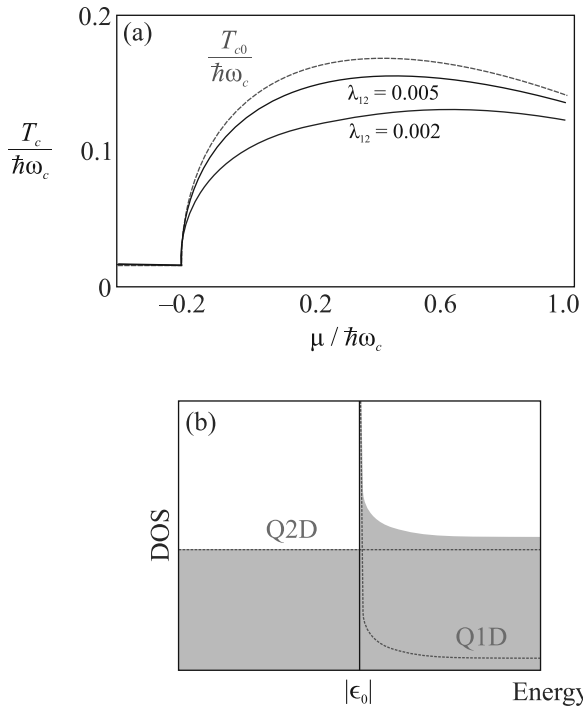


Рис. 4. (Цветной онлайн) (a) – Критическая температура с учетом флуктуаций как функция химического потенциала, рассчитанная для значений межзонного взаимодействия $\lambda_{12} = 0.002; 0.005$ при $\lambda_{11} = 0.24$; $\lambda_{22} = 0.2$. Красной штриховой линией показана среднеполевая критическая температура T_{c0} . Отношение эффективных масс в двух зонах $m_2/m_1 = 1$. (b) – Схематичное изображение зависимости плотности состояний в двухзонной Q2D + Q1D системе. Красными штриховыми линиями показаны плотности состояний невзаимодействующих зон. Адаптировано из [34]

смаатриваемого в этом обзоре, понижение размерности глубокой зоны с $D = 3$ до $D = 2$ не играет существенной роли. Наибольшие различия в T_c для систем Q1D + 3D и Q1D + Q2D достигают всего лишь 30 % для значений $\mu = 0.2 \div 0.6$. Такая относительно слабая зависимость T_c от размерности зоны $\nu = 1$ возникает из-за схожей картины плотности состояний (ср. рис. 3b и 4b), а также из-за характера зависимости $(T_{c0} - T_c)/T_c$ от числа Гинзбурга: несмотря на то, что число Гинзбурга Gi_{2D} для 2D зоны на несколько порядков больше такового для 3D зоны Gi_{3D} , сдвиг критической температуры в уравнении (30) линейен по Gi_{2D} и зависит как квадратный корень от Gi_{3D} в уравнении (22), что делает сдвиг $T_{c0} - T_c$ сопоставимым для этих двух случаев.

Предыдущие результаты были получены в предположении $|\epsilon_0| \gg \hbar\omega_c$, что является хорошим приближением для традиционных однокомпонентных сверхпроводников. В многозонных сверхпроводящих

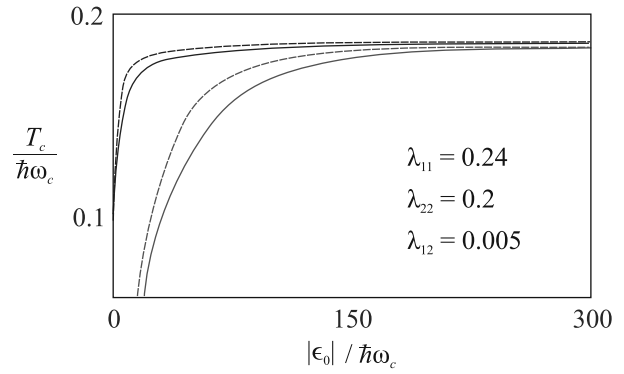


Рис. 5. (Цветной онлайн) Критическая температура с учетом флуктуаций в зависимости от глубины $|\epsilon_0|$ высокоразмерной зоны. Синим цветом показаны результаты для системы Q1D + 3D, красным – для системы Q1D + Q2D. Сплошные линии соответствуют равным эффективным массам носителей в зонах, штриховые – отношению масс $m_1/m_2 = 4$, $\mu = 0.4$. Адаптировано из [34]

соединениях энергия Ферми может быть на один или два порядка меньше этого значения, $E_F \lesssim 10\hbar\omega_c$ [17, 18, 21].

На рисунке 5 показана зависимость критической температуры с учетом флуктуаций от глубины зоны $\nu = 1$ при значении химического потенциала, отвечающего максимуму T_c (снова используется (30)). Для малых значений $|\epsilon_0|$ критическая температура довольно сильно отличается от среднеполевого значения $T_{c0} \approx 0.18$, однако быстро приближается к нему при увеличении $|\epsilon_0|$. Причиной сильного отличия T_c от T_{c0} при малых $|\epsilon_0|$ является уменьшение длины когерентности в глубокой зоне 1, что приводит к увеличению Gi_1 , и, соответственно, усилению флуктуаций в этой зоне.

Штриховыми линиями на рис. 5 показана та же зависимость $T_c(|\epsilon_0|)$, но для разных эффективных масс носителей в зонах, $m_1/m_2 = 4$. Видно, что изменение эффективной массы меняет зависимости лишь количественно, несколько сдвигая область сильных флуктуаций в зону меньших значений $|\epsilon_0|$.

3.4. Q2D + Q2D. Случай взаимодействия двух квазидвумерных зон также очень интересен, так как поверхности Ферми многих многозонных материалов имеют квазидвумерный характер [18]. Как и раньше, мы считаем, что одна из этих зон ($\nu = 1$) – глубокая, а другая ($\nu = 2$) – мелкая. В данном случае мы не будем иметь значительное повышение плотности состояний вблизи края мелкой зоны. Тем не менее, в этом случае конденсат мелкой зоны также может находиться в режиме БКШ–БЭК кроссовера, и меха-

низм подавления флуктуаций и стабилизации кроссовера будет эффективен при условии слабой связи с глубокой зоной.

Для глубокой Q2D зоны $\nu = 1$ коэффициенты разложения в функционале энергии (5) приведены в уравнении (26). Для мелкой Q2D зоны $\nu = 2$ они имеют тот же вид для всех коэффициентов, за исключением коэффициента при градиентном члене, который в этом случае записывается как [46]

$$\mathcal{K}_2 = \frac{3\zeta(2)}{8\pi^2} \frac{N_2 \hbar^2 v_2^2}{T_{c0}^2}, \quad (32)$$

где, как и раньше, N_2 обозначает плотность состояний этой зоны, а характерная скорость $v_2 = \sqrt{2T_{c0}/m_2}$ определяется критической температурой.

Заметим, что в данном случае мы можем в явном виде найти решение уравнения (7) для среднеполевой критической температуры [49]:

$$T_{c0} = \frac{2e\gamma}{\pi} \hbar \omega_c \exp \left[-\frac{\lambda_{22} - \lambda_{12} \chi^{1/2} S}{\lambda_{11} \lambda_{22} - \lambda_{12}^2} \right], \quad (33)$$

где $\chi = N_2/N_1$, $\lambda_{\nu\nu'} = g_{\nu\nu'} \sqrt{N_\nu N_{\nu'}}$, а величину S , найденную из уравнений (7) и (9), удобно переписать в виде

$$S = \frac{\chi^{-1/2}}{2\lambda_{12}} \left[\lambda_{22} - \lambda_{11} + \sqrt{(\lambda_{22} - \lambda_{11})^2 + 4\lambda_{12}^2} \right]. \quad (34)$$

Флуктуационный сдвиг критической температуры находится на этот раз с помощью уравнения (31). Число Гинзбурга для эффективной Q2D системы дается выражением (27), которое переписывается аналогично уравнению (28) как

$$\begin{aligned} \text{Gi} = \text{Gi}_1 \frac{1 + S^4 b_2/b_1}{(1 + S^2 a_2'/a_1')} \frac{1}{\sqrt{1 + S^2 \mathcal{K}_2^{(x)}/\mathcal{K}_1^{(x)}}} \times \\ \times \frac{1}{\sqrt{1 + S^2 \mathcal{K}_2^{(y)}/\mathcal{K}_1^{(y)}}}, \end{aligned} \quad (35)$$

где, как и в предыдущем параграфе, Gi_1 – число Гинзбурга для глубокой Q2D зоны.

Численные результаты для полученных выражений, сделанные в пределе $v_2 \gg v_1$ для параметров $\lambda_{11} = 0.12$, $\lambda_{22} = 0.15$ и $N_1 = N_2$, показаны на рис. 6 в виде цветной фазовой диаграммы состояния системы на плоскости $\lambda_{12} - T$ (температура приведена относительно температуры перехода глубокой зоны $T_{c0,1}$, взятой без межзонного взаимодействия). На диаграмме рис. 6 линиями показаны T_{c0} и T_c как функции λ_{12} . Последние рассчитаны для нескольких

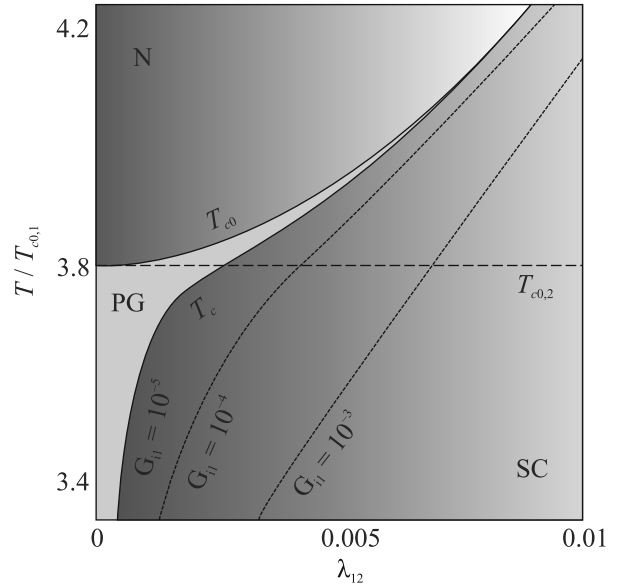


Рис. 6. (Цветной онлайн) Фазовая диаграмма на плоскости $T - \lambda_{12}$ и критическая температура сверхпроводящего перехода, посчитанная в приближении среднего поля (T_{c0}) и с учетом флуктуаций (T_c), как функции амплитуды межзонного взаимодействия λ_{12} для сверхпроводника с двумя квазидвумерными зонами. Красная зона SC – сверхпроводящее состояние ($T < T_c$), синяя N – нормальное состояние ($T > T_{c0}$), розовая PG – область флуктуаций пар ($T_c < T < T_{c0}$). Зависимость $T_c(\lambda_{12})$ показана для различных значений числа Гинзбурга глубокой зоны $\nu = 1$. Горизонтальная штриховая линия показывает среднеполевую критическую температуру в мелкой зоне $\nu = 2$ при отсутствии спаривания. Адаптировано из [36]

значений Gi_1 глубокой зоны. На диаграмме красным показана область сверхпроводящего состояния SC ($T < T_c$), синим – область нормального состояния N ($T > T_{c0}$), розовым – область флуктуаций или псевдощели PG ($T_{c0} < T < T_c$).

Результаты расчета показывают, что и в этом случае флуктуации практически полностью подавляются даже при чрезвычайно малых значениях константы межзонного взаимодействия λ_{12} . Так же, как и раньше, этот эффект выражен тем сильнее, чем слабее амплитуда флуктуаций в глубокой зоне. Например, для глубокой зоны с числом Гинзбурга $\text{Gi}_1 = 10^{-5}$ область существования псевдощели становится пренебрежимо малой при $\lambda_{12} \gtrsim 0.001$, и критическая температура T_c становится практически равной среднеполевой критической температуре мелкой зоны $T_{c0,2}$. Заметим, что оценка интервала значений межзонного взаимодействия для многозонных сверхпроводящих материалов дает $0.005 \lesssim \lambda_{12} \lesssim 0.4$ [45].

3.5. Флуктуации магнитного поля. В заключение этого раздела упомянем, что в дополнение к флуктуациям параметра порядка необходимо также учесть флуктуации магнитного поля. Расчет соответствующих вкладов в флуктуационный сдвиг критической температуры был представлен в работе [50]. Результаты вычислений показали, что сдвиг критической температуры (22) для 3D зоны приобретает дополнительный вклад

$$\frac{T_{c0} - T_c}{T_c} = \frac{8}{\pi} \sqrt{Gi} + \frac{4}{\pi \kappa^2} \sqrt{Gi}. \quad (36)$$

Следовательно, учет полевых флуктуаций не приводит к изменению корневой зависимости сдвига от Gi , меняя только коэффициент при ней.

Для 2D учет флуктуаций поля в рамках анализа методом ренорм-группы приводит к следующему выражению для сдвига критической температуры:

$$\frac{T_{c0} - T_c}{T_c} = 2Gi \ln \frac{1}{4Gi} + \frac{Gi}{2\kappa^2} \ln \frac{1+y}{Gi+y}, \quad (37)$$

где Gi – параметр Гинзбурга для 2D зоны, величина y вычисляется как

$$y = \frac{Gi}{\kappa^2} \ln \frac{1}{Gi}, \quad (38)$$

а κ – параметр Гинзбурга–Ландау. Это более сложное выражение, чем уравнение (31). Тем не менее, учитывая тот факт, что для малых значений Gi $y \ll 1$, получим, что в этом случае основной вклад в сдвиг критической температуры имеет ту же функциональную зависимость от Gi , что и выражение (31), только с другим числовым коэффициентом.

Таким образом, учет флуктуаций поля хотя и несколько увеличивает сдвиг критической температуры количественно, но не меняет основной вывод об эффективном механизме подавления флуктуаций за счет межзонного взаимодействия. Заметим, что из выражений (36) и (37) видно, что вклад флуктуаций поля пренебрежимо мал для сверхпроводников II рода с $\kappa \gg 1$.

4. Материалы. В предыдущих разделах было показано, что наличие в сверхпроводнике двух взаимодействующих одночастичных зон, “мелкой” и “глубокой”, приводит к подавлению флуктуаций и стабилизации режима БКШ–БЭК кроссовера в мелкой зоне, с возможным значительным увеличением критической температуры. Последнее происходит, если при этом мелкая зона имеет повышенную плотность состояний, например, из-за сингулярности ван Хофа в квази-одномерной зоне. Сингулярность одночастичных состояний ведет к резкому повышению средне-полевой критической температуры, соответствующей

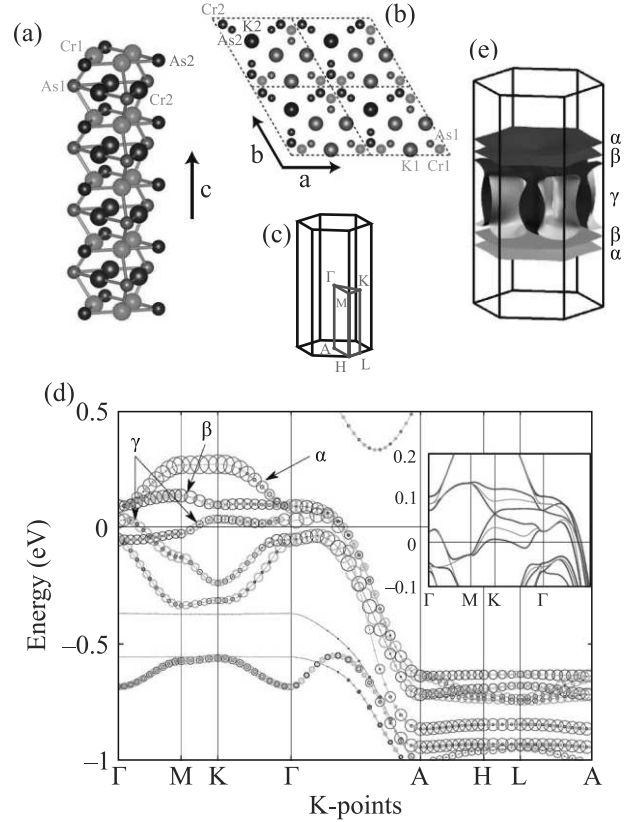


Рис. 7. (Цветной онлайн) Кристаллическая и зонная структура квазиодномерного сверхпроводника $K_2Cr_3As_3$. (a) – Субнанотрубка с двойными стенками $[(Cr_3As_3)^{2-}]_\infty$; (b) – Вид сверху на четыре элементарные ячейки. Взято из [51]. (c) – Первая зона Бриллюэна. (d) – Зонная структура. На вставке показано сравнение релятивистских (фиолетовые линии) и нерелятивистских (серые линии) результатов. Размер красных, синих и зеленых кружков пропорционален вкладам орбиталей d_{z^2} , $d_{x^2-y^2}$ и d_{xy} , соответственно. Орбитали, имеющие состояния вблизи поверхности Ферми, обозначены буквами α, β, γ ; (e) – поверхность Ферми, состоящая из двух квазиодномерных (α, β) и одного трехмерного (γ) листов. Взято из [52]

образованию куперовских пар в этой зоне, а взаимодействие с глубокой зоной стабилизирует ее, подавляя флуктуации. Существенной деталью такого механизма подавления флуктуаций является то, что он становится эффективен уже при очень малом межзонном взаимодействии. Заметим, что повышение плотности состояний также возможно при наличии в системе плоской зоны.

Предложенный механизм не очень чувствителен к деталям зонной структуры и может быть реализован в различных материалах, коль скоро их зонная структура удовлетворяет условиям, описанным вы-

ше. В настоящее время имеется довольно много соединений, в которых данные требования могут удовлетворяться.

4.1. Квазиодномерные материалы. Очевидными кандидатами на реализацию выше указанного механизма являются материалы с выраженной квазиодномерной структурой, и соответственно, с сингулярностью в плотности состояний. Хорошо известно, что в чисто одномерных системах с короткодействующими взаимодействиями тепловые и квантовые флуктуации препятствуют формированию дальнего порядка при конечных температурах, что является препятствием для возникновения сверхпроводимости. Ситуация меняется, если между отдельными одномерными системами имеется поперечное взаимодействие, т.е. вся система в целом является квазиодномерной. Примерами таких квазиодномерных сверхпроводящих систем являются бехгардовские соли $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ [16], структуры на основе селенида молибдена $\text{M}_2\text{Mo}_6\text{Se}_6$ ($\text{M} = \text{Tl}, \text{In}$) [53], литий-молибденовая бронза $\text{Li}_{0.9}\text{Mo}_6\text{O}_{17}$ [54].

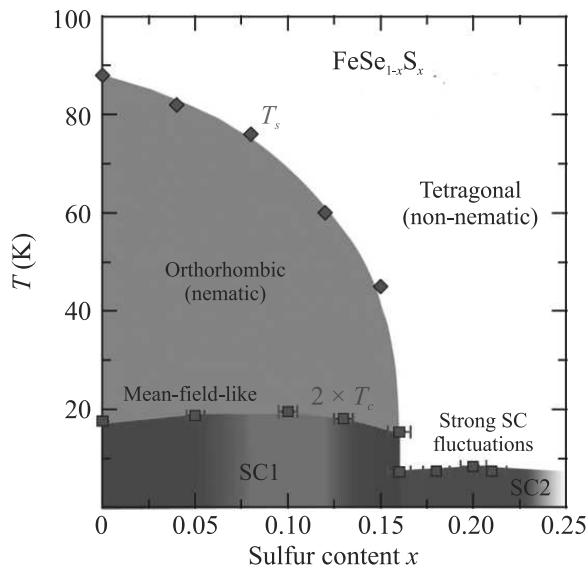


Рис. 8. (Цветной онлайн) Экспериментально полученная фазовая диаграмма для соединения $\text{FeSe}_{1-x}\text{S}_x$ в координатах “уровень допирования–температура”. Красные квадраты и синие ромбы соответствуют температуре T_c свехпроводящего и температуре T_s нематического фазовых переходов, соответственно. При критическом уровне допирования $x_c \approx 0.17$ происходит резкий скачок T_c , свидетельствующий о перестройке основного состояния сверхпроводящей фазы. Взято из [24]

С точки зрения механизма подавления флуктуаций, рассматриваемого в разделе 2, именно наличие поперечного взаимодействия между одномерными

структурами приводит к формированию электронных зон большей размерности, способных подавить флуктуации в квазиодномерных зонах и обеспечить появление сверхпроводимости в системе. По всей видимости, этот механизм в полной мере реализуется в пниктидах хрома $\text{M}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$, ($\text{M} = \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}$) – семействе материалов, сверхпроводимость в которых была обнаружена в 2015 г. [55–57].

$\text{K}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ при комнатной температуре имеет гексагональную кристаллическую решетку с постоянными $a = 9.98 \text{ \AA}$ и $c = 4.23 \text{ \AA}$ (см. рис. 7а и б). Примечательными структурными единицами этого кристалла являются одномерные отрицательно заряженные “цепи” $[(\text{Cr}_3\text{As}_3)^{2-}]_\infty$, которые представляют собой двустенные субнанотрубки с внешним диаметром 0.58 нм. Эти субнанотрубки хорошо отделены друг от друга цепочками противополононов калия, в связи с чем взаимодействие между отдельными субнанотрубками является существенно более слабым по сравнению с взаимодействиями внутри субнанотрубки; в этом смысле данный материал является действительно квазиодномерным.

Расчеты из первых принципов (рис. 7с–е) показывают, что состояния вблизи энергии Ферми заняты в основном $3d$ -электронами хрома, и поверхность Ферми состоит из двух Q1D-листов и одного 3D-листа. Подобная зонная структура характерна и для других представителей семейства; кроме того, у $\text{Cs}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ добавляется еще один Q1D-лист на поверхности Ферми [58].

Температура сверхпроводящего перехода понижается при замене калия в составе соединения на более тяжелые элементы. Если для $\text{K}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ $T_c = 6.1 \text{ K}$, то для $\text{Rb}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ она составляет 4.8 K [56], а для $\text{Cs}_2\text{Cr}_3\text{As}_3$ – 2.2 K [57]. Такое изменение критической температуры объясняется разным расстоянием между субнанотрубками в этих соединениях. В соединениях на основе рубидия и хрома это расстояние, соответственно, на 3 и 6 % больше по сравнению с соединением на основе калия. Это приводит к ослаблению взаимодействия между субнанотрубками и, как следствие, к понижению критической температуры.

Как видно, представляются весьма обещающими дальнейшие эксперименты с выше указанными квазиодномерными многозонными сверхпроводниками в контексте возможной настройки положения химического потенциала для достижения условий значительного повышения критической сверхпроводящей температуры. Такая настройка может достигаться различными способами, например, путем химического инжиниринга, посредством большого дав-

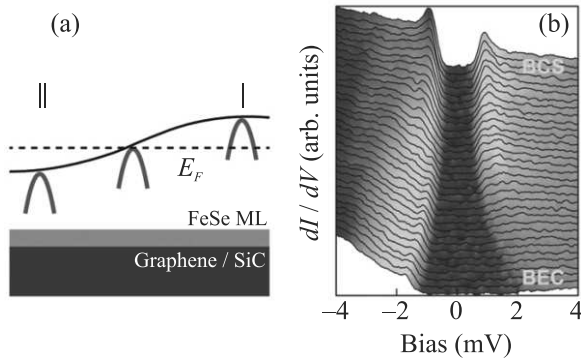


Рис. 9. (Цветной онлайн) Реализация БКШ–БЭК-кроссовера в реальном пространстве в монослое FeSe на подложке из графена. (a) – Смещение зонной структуры относительно уровня Ферми (штриховая линия), обусловленное различным упорядочением слоев графена в подложке. Область I соответствует БКШ, область II – БЭК. (b) – Пространственно разрешенный спектр dI/dV , измеренный вдоль штриховой линии на панели (a). Адаптировано из [59]

ления или допирования. В этой связи стоит упомянуть недавние весьма интересные результаты расчетов из первых принципов, которые продемонстрировали возможность наблюдения перехода Лифшица в соединении $\text{KCr}_3\text{As}_3\text{H}_x$ при изменении интеркаляции водорода [60].

4.2. Сверхпроводники на основе железа. На наш взгляд, сверхпроводники на основе железа являются на данный момент наиболее перспективными системами для реализации механизма подавления сверхпроводящих флуктуаций. В целом ряде работ предпринимались попытки объяснить нетипичные свойства купратных ВТСП наличием БКШ–БЭК-кроссовера из-за больших запрещенных зон и низкой концентрации носителей заряда в этих соединениях (см., например, [61]), однако, по всей видимости, сверхпроводимость в купратных ВТСП имеет другую природу [62].

4.2.1. Монослой FeSe. Как уже было сказано в разделе 2, в режиме бозе-эйнштейновского конденсата (или режиме сильной связи) температура образования пар T_{c0} и реальная температура сверхпроводящего перехода T_c четко разделены. В диапазоне между T_{c0} и T_c куперовские пары также существуют, создавая большие сверхпроводящие флуктуации и обедняя низкоэнергетическую плотность состояний, что приводит к формированию псевдощели.

Монослой FeSe имеет очень небольшие дырочные и электронные карманы на поверхности Ферми, и отношение величины сверхпроводящей энергетической щели к энергии Ферми достигает значе-

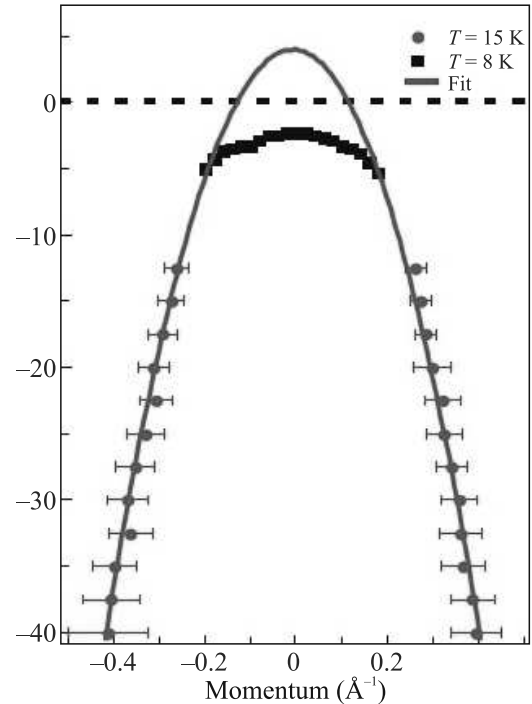


Рис. 10. (Цветной онлайн) Дисперсия квазичастиц в БКШ–БЭК-кроссовере при температуре выше и ниже критической для $\text{FeSe}_x\text{Te}_{1-x}$. Взято из [65]

ний $\Delta/E_F \approx 0.3 \div 1.0$ [20, 63], что, по всей видимости, соответствует режиму БКШ–БЭК-кроссовера. С другой стороны, измерения сканирующей туннельной спектроскопии не обнаружили образования псевдощели выше T_c [21].

Эти результаты подразумевают, что сверхпроводимость в FeSe не просто описывается картиной обычного перехода БКШ–БЭК. Важным аспектом является влияние многозонной электронной структуры, которая, помимо отношения Δ/E_F , может иметь и другие факторы, влияющие на свойства кроссовера.

В работе [24] при помощи измерения теплоемкости, магнитного крутящего момента и сканирующей туннельной спектроскопии с высоким разрешением была получена фазовая диаграмма монослоя FeSe, легированного серой, в зависимости от уровня допирования (рис. 8). Вид фазовой диаграммы указывает на то, что сверхпроводящий переход реализуется по сценарию, не описываемому теорией среднего поля. Одним из главных результатов эксперимента является отсутствие псевдощели в СТС-спектрах при температурах выше T_c . Предполагается, что ключевыми факторами, определяющими свойства кроссовера в $\text{FeSe}_{1-x}\text{S}_x$, является многозонный характер поверхности Ферми, а также близость к переходу Лифши-

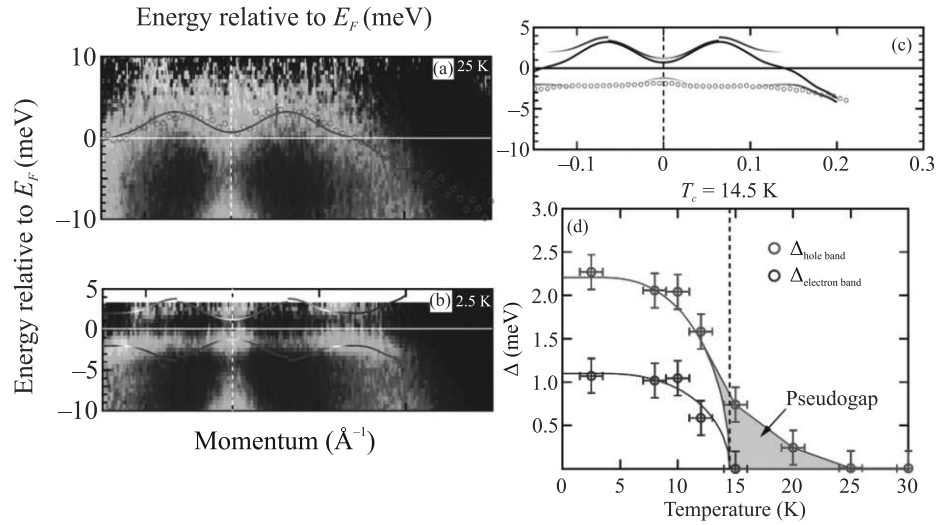


Рис. 11. (Цветной онлайн) Спектры ARPES для $\text{FeTe}_{0.6}\text{Se}_{0.4}$ выше (а) и ниже (б) критической температуры. Сплошная красная кривая на панели (а) – результат фитирования дисперсионной кривой, отмеченной кругами. Сплошные кривые на панели (б) отвечают дисперсии квазичастиц в нормальном состоянии, а также для сверхпроводящей щели $\Delta(k) = 2$ мэВ для дырочной зоны и $\Delta(k) = 1$ мэВ для электронной зоны. (с) – Дисперсионные кривые из панелей (а) и (б) на одном графике. (d) – Температурная зависимость сверхпроводящей щели для электронной и дырочной зон. Красным цветом показана область псевдощели. Взято из [66]

ца, реализующегося при критическом уровне допирования $x_c \approx 0.17$.

Монослой FeSe является очень перспективным материалом для реализации БКШ–БЭК-кроссовера также ввиду того, что энергия Ферми в этом соединении, составляющая всего несколько мэВ, может точно и относительно легко варьироваться числом слоев подложки из графена [22], а также геометрией их упорядочения. В работе [23] состояние кроссовера было получено в монослое FeSe , размещенном на подложке из трехслойного графена, упорядочение слоев в котором было различным в разных местах подложки (ABA и ABC). Это приводило к пространственному изменению работы выхода в графене, что вызывало смещение пика дырочной дисперсионной кривой в FeSe (рис. 9а). Плотность состояний, измеренная вдоль штриховой линии при помощи сканирующей туннельной спектроскопии, в области I образца имеет щель, характеризующуюся электрон-дырочной симметрией, свойственной БКШ. При движении из области I в область II электрон-дырочная симметрия нарушается, и плотность состояний принимает вид ступенчатой функции, характерной для кроссовера [64]. Сообщается, что в работе было достигнуто значение $\Delta/E_F \simeq 0.3$.

4.2.2. Объемные образцы. В работе [17] при помощи фотоэлектронной спектроскопии с угловым разрешением впервые было обнаружено, что соединения

на основе FeSe , а именно, $\text{FeSe}_x\text{Te}_{1-x}$ характеризуются наличием БКШ–БЭК-кроссовера.

На рисунке 10 показана дисперсионная зависимость одной из зон вблизи уровня Ферми $E_F = 4 \pm 2.5$ мэВ, измеренная при температурах, соответствующих нормальному и сверхпроводящему состояниям образца. Дисперсионная кривая вдали от уровня Ферми была получена из импульсного распределения (отмечена красными точками на рис. 10). Она является идентичной для обеих температур $T = 8 \text{ K} < T_c$ и $T = 15 \text{ K} > T_c$ и хорошо аппроксимируется квадратичной зависимостью (показана красной линией). В области малых энергий и низких температур дисперсия была получена из энергетического распределения (черные точки на рис. 10). Минимальная щель была обнаружена в Γ -точке, ее значение $\Delta = 2.3 \pm 0.3$ мэВ дает $\Delta/E_F \sim 0.5$, что свидетельствует о сильном взаимодействии в $\text{FeSe}_x\text{Te}_{1-x}$ и реализации БКШ–БЭК-кроссовера (в случае, если бы зона находилась в состоянии БЭК, минимум щели был бы расположен в k_F).

В работе [18] при помощи лазерной спектроскопии со сверхвысоким лазерным разрешением был исследован сверхпроводник $\text{FeTe}_{0.6}\text{Se}_{0.4}$. Из описания результатов эксперимента следует, что эта система фактически реализует механизм, рассмотренный в разделе 2. Было обнаружено, что сверхпроводимость реализуется в виде когерентной смеси куперов-

ских пар в дырочной зоне и БКШ–БЭК-кроссовера в электронной зоне.

Рисунок 11 показывает спектр квазичастиц для температур ниже и выше критической. Количественный анализ спектров позволяет заключить, что электронная зона характеризуется малой щелью, однако находится в режиме сильной связи (БКШ–БЭК-кроссовера). Дырочная зона, напротив, обладает большей щелью и находится в режиме относительно слабой связи (БКШ). На панели (с) рис. 11 показана совмещенная зонная структура для температур, выше и ниже критической. Примечательно, что дырочная и электронная зоны сливаются на этой зонной картине, что является свидетельством взаимодействия зон и электрон-дырочного перемешивания независимо от силы взаимодействия в этих зонах.

На рисунке 11d показана зависимость сверхпроводящей щели для каждой из зон в зависимости от температуры. В эксперименте отчетливо наблюдалась псевдощель для дырочной зоны, которая быстро уменьшалась при появлении щели в электронной зоне. Однако, в сильном противоречии с теорией БКШ–БЭК-кроссовера для однозонных сверхпроводников, псевдощель не удалось обнаружить для электронной зоны. Такое поведение псевдощели находится в согласии с механизмом подавления флуктуаций, рассмотренным выше.

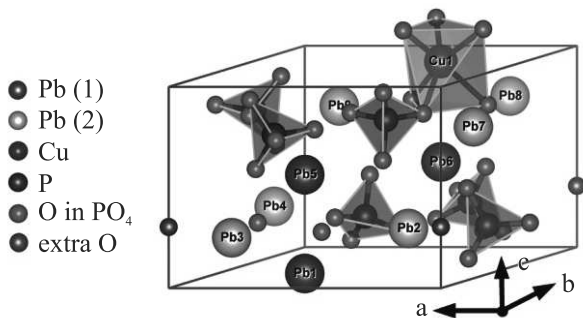


Рис. 12. (Цветной онлайн) Кристаллическая структура LK-99. Атомы меди, замещающие свинец, образуют треугольную подрешетку. Взято из [71]

4.3. Другие соединения. В заключение упомянем некоторые другие соединения, наблюдение БЭК–БКШ кроссовера в которых, на наш взгляд, является перспективным для реализации механизма подавления флуктуаций.

В работе [67] путем изменения плотности носителей реализован кроссовер БКШ–БЭК в хлориде нитрида циркония, легированном электронами двумерном сверхпроводнике. Фазовая диаграмма, полученная в результате одновременных измерений удельно-

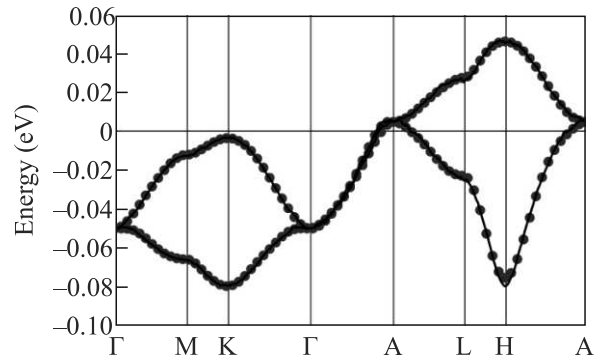


Рис. 13. (Цветной онлайн) Зонная структура LK-99 вблизи уровня Ферми. Взято из [71]

го сопротивления и туннельных спектров при ионном стробировании, демонстрирует псевдощелевую фазу в режиме низкого легирования. Соотношение температуры сверхпроводящего перехода и температуры Ферми в пределе низкой плотности носителей соответствует теоретической верхней границе, ожидаемой в режиме кроссовера. Эта система, таким образом, довольно просто реализует двумерный переход БКШ–БЭК.

В работе [68] кроссовер БКШ–БЭК был реализован на органическом проводнике с треугольной решеткой κ – (BEDT- TTF)₄Hg_{2.89}Br₈. Параметром, регулирующим кроссовер, в этом случае являлось внешнее давление, изменяющее кулоновское взаимодействие между носителями.

В июле 2023 г. появились сообщения об открытии нового сверхпроводящего соединения (LK-99), обладающего экстремально высокой температурой сверхпроводящего перехода, превышающей комнатную [69, 70]. LK-99 является апатитом, легированным медью, и имеет химическую формулу $\text{Pb}_{10-x}\text{Cu}_x(\text{PO}_4)_6\text{O}$, $0.9 < x < 1.1$. Элементарная ячейка этой кристаллической структуры показана на рис. 12. Экспериментальные попытки воспроизвести результаты из [69, 70] привели к неоднозначным результатам, но, в общем и целом, не увенчались успехом. Некоторые экспериментальные группы подтвердили наблюдение левитации [72], в то время как другие сообщили о ее отсутствии [73]. Некоторые эксперименты подтверждают скачок проводимости, о котором сообщается в оригинальных работах, однако при другой температуре [74], тогда как другие обнаруживают, что материал является изолятором и демонстрирует парамагнитное поведение [75]. В настоящий момент научное сообщество относится к сообщению об обнаружении комнатной сверхпроводимости в LK-99 с сильным скептицизмом [76].

Тем не менее, в свете рассмотренного выше механизма подавления флуктуаций соединение ЛК-99 заслуживает, на наш взгляд, пристального внимания. Действительно, согласно расчетам зонной структуры, в этом материале активными являются две зоны. Одна из этих зон (см. рис. 13) является плоской вблизи своего края, а это приводит к сильному увеличению соответствующей плотности состояний. В результате среднеполевая температура куперовского спаривания может быть существенно повышена, но только если химический потенциал находится вблизи края плоской зоны, делая ее мелкой. При этом неизбежные температурные флуктуации в этой мелкой зоне могут быть подавлены за счет обмена парами с другой зоной. Заметим, что положение химического потенциала существенно зависит от наличия примесей и беспорядка, причем в случае плоской зоны с ее почти сингулярным характером плотности состояний относительно небольшое изменение этих факторов может радикально изменять параметры сверхпроводящего спаривания и, соответственно, температуры сверхпроводящего перехода, вплоть до полного подавления сверхпроводимости.

5. Заключение. В настоящем обзоре мы показываем, что сосуществование в сверхпроводящем материале двух взаимодействующих одночастичных зон, одна из которых мелкая, а другая – нет, может привести к подавлению температурных флуктуаций и стабилизации режима БКШ–БЭК кроссовера в мелкой зоне. В случае, если такая мелкая зона имеет большую плотность одночастичных состояний, например, из-за сингулярности ван Хофа в квазиодномерной зоне, или из-за плоского края, можно ожидать, что механизм подавления флуктуаций приведет к значительному повышению критической температуры. Из-за подавленных флуктуаций она приблизится к своему значению, полученному в теории среднего поля. Существенной деталью такого механизма подавления флуктуаций является то, что он становится эффективным уже при очень малом межзонном взаимодействии, когда критическая температура еще определяется мелкой зоной.

Рассмотренный механизм не чувствителен к деталям зонной структуры и может быть реализован в широком классе многозонных материалов. Ожидается, что он будет работать в ситуации, когда в материале сосуществуют больше двух зон, если, по крайней мере, одна из них мелкая, а взаимодействие между ними не очень сильное.

В настоящее время имеется довольно много материалов, в которых подобный механизм стабилизации БКШ–БЭК кроссовера и повышения критиче-

ской температуры может работать. К ним, в частности, относятся материалы с квазиодномерной структурой и материалы на основе железа. Существенный ингредиент таких материалов – наличие зон с плоским дном и положение уровня Ферми рядом с плоской частью зоны, что приводит к значительному повышению плотности состояний и, соответственно, константы куперовского спаривания. Добиться нужного положения химического потенциала в материале возможно различными способами, например, при помощи химического инжиниринга, небольшим изменением структуры посредством прикладывания внешнего давления или легирования [60].

Нужно отметить, что в рамках теории БКШ существует еще один механизм повышения критической температуры – путем уширения энергетического окна для куперовского спаривания, или частоты обрезания ω_c . В настоящем обзоре мы не рассматриваем этот механизм повышения критической температуры, только заметим, что он будет действовать параллельно с подавлениями флуктуаций за счет взаимодействия нескольких зон.

Финансирование работы. Работа выполнена в рамках программы “Приоритет 2030” НИЯУ МИФИ, а также поддержана Министерством науки и высшего образования РФ (проект государственного задания #FSWU-2023-0031). Аркадий Шаненко и Алексей Вагов благодарят программу фундаментальных исследований НИУ ВШЭ, при поддержке которой были проведены расчеты сдвига критической температуры. Василий Столяров благодарит за поддержку Российский Научный Фонд (грант # 21-72-30026 <https://rscf.ru/en/project/21-72-30026>) и Министерство науки и высшего образования РФ (проект государственного задания #FSMG-2023-0014).

Конфликт интересов. Авторы заявляют об отсутствии конфликтов интересов.

1. J. Bardeen, L.N. Cooper, and J.R. Schrieffer, Phys. Rev. B **108**, 1175 (1957).
2. J.G. Bednorz and K.A. Müller, Zeitschrift für Physik B Condensed Matter **64**, 189 (1957).
3. V.J. Emery and S.A. Kivelson, Nature **374**, 434 (1995).
4. M. Buchanan, Nature **409**, 8 (2001).
5. M.V. Sadovskii, Phys.-Uspekhi **44**, 515 (2001).
6. C. Varma, Nature **468**, 184 (2010).
7. S.I. Vedenev, Phys.-Uspekhi **64**, 890 (2021).
8. S. Borisenko, Nature Materials **12**, 600 (2013).
9. I.M. Lifshitz, JETP **38**, 1569 (1969).
10. G.E. Volovik, Low Temp. Phys. **43**, 47 (2017).
11. A.I. Coldea and M.D. Watson, Annu. Rev. Condens. Matter Phys. **9**, 125 (2018).

12. J. Ketterson and S. Song, *Superconductivity*, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom (1999).
13. A. Larkin and A. Varlamov, *Theory of Fluctuations in Superconductors*, Oxford University Press, Oxford, USA (2005).
14. K. B. Efetov and A. I. Larkin, Soviet Physics JETP **39**, 1129 (1974).
15. L. P. Gor'kov and I. E. Dzyaloshinskii, Soviet Physics JETP **40**, 198 (1975).
16. D. Jérôme, A. Mazaud, M. Ribault, and K. Bechgaard, Journal de Physique Lettres **41**, 95 (1980).
17. Y. Lubashevsky, E. Lahoud, K. Chashka, D. Podolsky, and A. Kanigel, Nature Physics **8**, 309 (2012).
18. K. Okazaki, Y. Ito, Y. Ota, Y. Kotani, T. Shimojima, T. Kiss, S. Watanabe, C.-T. Chen, S. Niitaka, T. Hanaguri, H. Takagi, A. Chainani, and S. Shin, Sci. Rep. **4**, (2014).
19. S. Kasahara, T. Watashige, Y. K. T. Hanaguri, T. Yamashita, Y. Shimoyama, Y. Mizukami, R. Endo, H. Ikeda, A. Kazushi, T. Terashima, S. Uji, T. Wolf, H. von Löhneysen, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. **111**, 16309 (2014).
20. S. Rinott, K. B. Chashka, A. Ribak, E. D. L. Rienks, A. Taleb-Ibrahimi, P. L. Fevre, F. Bertran, M. Randeria, and A. Kanigel, Sci. Adv. **3**, e1602372 (2017).
21. T. Hanaguri, S. Kasahara, J. Böker, I. Eremin, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, Phys. Rev. Lett. **122**, 077001 (2019).
22. W. Huang, H. Lin, C. Zheng, Y. Yin, X. Chen, and S.-H. Ji, Phys. Rev. B **103**, 094502 (2021).
23. H. Lin, W. Huang, G. Rai, Y. Yin, L. He, Q.-K. Xue, S. Haas, S. Kettemann, X. Chen, and S.-H. Ji, Phys. Rev. B **107**, 104517 (2023).
24. Y. Mizukami, M. Haze, O. Tanaka, K. Matsuura, D. Sano, J. Böker, I. Eremin, S. Kasahara, Y. Matsuda, and T. Shibauchi, Commun. Phys. **6**, 183 (2023).
25. H. Suhl, B. T. Matthias, and L. R. Walker, Phys. Rev. Lett. **3**, 552 (1959).
26. V. A. Moskalenko, Phys. Met. Metallogr. **8**, 25 (1959).
27. M. Greiner, C. A. Regal, and D. S. Jin, Nature **426**, 537 (2003).
28. I. Bloch, J. Dalibard, and W. Zwerger, Rev. Mod. Phys. **80**, 885 (2008).
29. L. P. Gor'kov, JETP **36**, 1918 (1959).
30. H. Doh, M. Sigrist, B. K. Cho, and S.-I. Lee, Phys. Rev. Lett. **83**, 5350 (1999).
31. I. Askerzade, A. Gencer, and N. Güçlü, Supercond. Sci. Technol. **15**, L13 (2002).
32. I. Askerzade, A. Gencer, and N. Güçlü, Supercond. Sci. Technol. **15**, L17 (2002).
33. T. T. Saraiva, P. J. F. Cavalcanti, A. Vagov, A. S. Vasenko, A. Perali, L. Dell'Anna, and A. A. Shanenko, Phys. Rev. Lett. **125**, 217003 (2020).
34. A. A. Shanenko, T. T. Saraiva, A. Vagov, A. S. Vasenko, and A. Perali, Phys. Rev. B **105**, 214527 (2022).
35. V. L. Ginzburg and L. D. Landau, JETP **20**(12), 1064 (1950).
36. L. Salasnich, A. A. Shanenko, A. Vagov, J. A. Aguiar, and A. Perali, Phys. Rev. B **100**, 064510 (2019).
37. T. T. Saraiva, L. I. Baturina, and A. A. Shanenko, J. Phys. Chem. Lett. **12**, 11604 (2021).
38. B. T. Geilikman, R. O. Zaitsev, and V. Z. Kresin, Fizika Tverdого Tela **9**(3), 821 (1967).
39. V. Z. Kresin, Journal of Low Temperature Physics **11**, 519 (1973).
40. J. Geyer, R. M. Fernandes, V. G. Kogan, and J. Schmalian, Phys. Rev. B **82**, 104521 (2010).
41. A. A. Shanenko, M. V. Milošević, F. M. Peeters, and A. V. Vagov, Phys. Rev. Lett. **106**, 047005 (2011).
42. A. Z. Pokrovskii and V. L. Patashinskii, *Fluctuation Theory of Phase Transitions*, Pergamon Press, Oxford, USA (1999).
43. D. R. Nelson and J. M. Kosterlitz, Phys. Rev. Lett. **39**, 1201 (1977).
44. A. L. Fetter and J. D. Walecka, *Quantum Theory of Many-Particle Systems*, Dover Publications, N.Y., USA (2003).
45. A. Vagov, A. A. Shanenko, M. V. Milošević, V. M. Axt, V. M. Vinokur, J. A. Aguiar, and F. M. Peeters, Phys. Rev. B **93**, 174503 (2016).
46. S. Wolf, A. Vagov, A. A. Shanenko, V. M. Axt, A. Perali, and J. A. Aguiar, Phys. Rev. B **95**, 094521 (2017).
47. J. M. Kosterlitz and D. J. Thouless, Journal of Physics C: Solid State Physics **6**, 1181 (1973).
48. P. G. de Gennes, *Superconductivity Of Metals And Alloys*, CRC Press, N.Y., USA (1999).
49. A. Vagov, A. A. Shanenko, M. V. Milošević, V. M. Axt, and F. M. Peeters, Phys. Rev. B **86**, 144514 (2012).
50. A. Cappellaro and L. Salasnich, Sci. Rep. **10**, 9088 (2020).
51. H. Z. Zhi, T. Imai, F. L. Ning, J.-K. Bao, and G.-H. Cao, arXiv:1501.00713, 2015.
52. C. C. Hao Jiang, Guanghan Cao, arXiv:1412.1309 (2015).
53. R. Brusetti, P. Monceau, M. Potel, P. Gougeon, and M. Sergent, Solid State Commun. **66**(2), 181 (1988).
54. J.-F. Mercure, A. F. Bangura, X. Xu, N. Wakeham, A. Carrington, P. Walmsley, M. Greenblatt, and N. E. Hussey, Phys. Rev. Lett. **108**, 187003 (2012).
55. J.-K. Bao, J.-Y. Liu, C.-W. Ma, Z.-H. Meng, Z.-T. Tang, Y.-L. Sun, H.-F. Zhai, H. Jiang, H. Bai, C.-M. Feng, Z.-A. Xu, and G.-H. Cao, Phys. Rev. X **5**, 011013 (2015).
56. Z.-T. Tang, J.-K. Bao, Y. Liu, Y.-L. Sun, A. Ablimit, H.-F. Zhai, H. Jiang, C.-M. Feng, Z.-A. Xu, and G.-H. Cao, Phys. Rev. B **91**(2), 020506(R) (2015).

57. Z.-T. Tang, J.-K. Bao, Z. Wang, H. Bai, H. Jiang, Y. Liu, H.-F. Zhai, C.-M. Feng, Z.-A. Xu, and G.-H. Cao, *Science China Materials* **58**(1), 16 (2015).
58. C. Xu, N. Wu, G.-X. Zhi, B.-H. Lei, X. Duan, F. Ning, C. Cao, and Q. Chen, *npj Computational Materials* **6**(1), 30 (2020).
59. H. Lin, W. Huang, G. Rai, Y. Yin, L. He, Q.-K. Xue, S. Haas, S. Kettemann, X. Chen, and S.-H. Ji, *arXiv:2209.00758*, 2023.
60. S.-Q. Wu, C. Cao, and G.-H. Cao, *Phys. Rev. B* **100**, 155108 (2019).
61. J. Ranninger and J. M. Robin, *Phys. Rev. B* **53**, R11961 (1996).
62. J. Sous, Y. He, and S. A. Kivelson, *npj Quantum Mater.* **8**, 25 (2023).
63. T. Terashima, N. Kikugawa, A. Kiswandhi et al. (Collaboration), *Phys. Rev. B* **90**, 144517 (2014).
64. Q. Chen, J. Stajic, S. Tan, and K. Levin, *Phys. Rep.* **412**, 1 (2005).
65. Y. Lubashevsky, E. Lahoud, K. Chashka, D. Podolsky, and A. Kanigel, *arXiv:1107.1487* (2012).
66. K. Okazaki, Y. Ito, Y. Ota, Y. Kotani, T. Shimojima, T. Kiss, S. Watanabe, C.-T. Chen, S. Niitaka, T. Hanaguri, H. Takagi, A. Chainani, and S. Shin, *arXiv:1307.7845* (2014).
67. Y. Nakagawa, Y. Kasahara, T. Nomoto, R. Arita, T. Nojima, and Y. Iwasa, *Science* **372**, 190 (2021).
68. Y. Suzuki, K. Wakamatsu, J. Ibuka, H. Oike, T. Fujii, K. Miyagawa, H. Taniguchi, and K. Kanoda, *Phys. Rev. X* **12**, 011016 (2022).
69. S. Lee, J.-H. Kim, and Y.-W. Kwon, *arXiv:2307.12008* (2023).
70. S. Lee, J. Kim, H.-T. Kim, S. Im, S. An, and K. H. Auh, *arXiv:2307.12037* (2023).
71. L. Si, M. Wallerberger, A. Smolyanyuk, S. di Cataldo, J. M. Tomczak, and K. Held, *arXiv:2308.04427* (2023).
72. H. Wu, L. Yang, B. Xiao, and H. Chang, *arXiv:2308.01516* (2023).
73. K. Kumar, N. K. Karn, Y. Kumar, and V. P. S. Awana, *arXiv:2308.03544* (2023).
74. Q. Hou, W. Wei, X. Zhou, Y. Sun, and Z. Shi, *arXiv:2308.01192*.
75. Y. Jiang, S. B. Lee, J. Herzog-Arbeitman, J. Yu, X. Feng, H. Hu, D. Călugăru, P. S. Brodale, E. L. Gormley, M. G. Vergniory, C. Felser, S. Blanco-Canosa, C. H. Hendon, L. M. Schoop, and B. A. Bernevig, *arXiv:2308.05143* (2023).
76. D. Garisto, *Nature* **620**, 705 (2023).

Magnetic eigenmodes in chains of coupled φ_0 -Josephson junctions with ferromagnetic weak links

G. A. Bobkov⁺, I. V. Bobkova^{+*1)}, A. M. Bobkov⁺

⁺Moscow Institute of Physics and Technology, 141700 Dolgoprudny, Russia

^{*}National Research University Higher School of Economics, 101000 Moscow, Russia

Submitted 17 November 2023

Resubmitted 2 December 2023

Accepted 9 December 2023

DOI: 10.31857/S1234567824030133, EDN: sszvaq

Introduction. By now it is well established that by hybridizing superconducting and ferromagnetic orders intriguing physics emerges and new device functionality can be achieved, which is inaccessible in conventional systems. One of actively studied types of interaction between the magnetic and superconducting subsystem can be realized under the presence of inversion symmetry breaking via the magnetoelectric effect, which provides a direct coupling between a supercurrent or a phase of superconducting condensate and a magnetic moment, thus opening up broad prospects for various options for controlling magnetization using supercurrent [1]. One of the most well-studied realizations of the magnetoelectric coupling is the so-called φ_0 -superconductor/ferromagnet/superconductor (S/F/S) Josephson junction [1].

Further it was demonstrated [2, 3] that if the φ_0 - S/F/S JJs are coupled into a Josephson chain, there is a long-range interaction between them. It was also shown that such a chain manifests properties of n -level system, where the energies of the levels are only determined by projections of the total magnetic moment $\sum \mathbf{M}_i$, where $\mathbf{M}_i$ is a magnetic moment of i -th JJ, onto the easy magnetic axis. It resembles an atom in a Zeeman field, but the role of the field is played by the magnetoelectric coupling. It is interesting that, unlike the Zeeman effect in the atom, the relative order of energies of different states is controlled by phase difference between the external superconducting leads.

In this work we study eigen magnetic excitations in a system of magnets, which are weak link of coupled φ_0 - S/F/S JJs and interact via the superconducting condensate. It is shown that due to the long-range interaction between the magnets the energies of the eigenmodes can depend on the equilibrium magnetic configuration of all the magnets. The eigenfrequencies are controlled

via the external superconducting phase. The eigenvectors of these modes, that is the distribution of oscillations of different magnets for a given mode, are also investigated.

System and model. We consider a linear chain of N coupled φ_0 - S/F/S JJs. The mutual orientation of the easy axis and the spin-orbit induced effective field (directed along the y -axis) determines behavior of the eigenmodes. For this reason in this work we consider two different orientations of the easy-axis: along the y -direction and along the z -direction. The current-phase relation (CPR) of a separate S/F/S junction takes the form $I = I_c \sin(\chi_i - \varphi_0)$. The energy of the system consists of Josephson energies of all junctions and easy axis anisotropy energies of all magnets:

$$E = \sum_{i=1}^N \left[\frac{\hbar I_{c,i}}{2e} (1 - \cos(\psi_i - \psi_{i-1} - \varphi_{0,i})) - \frac{K_i V_{F,i}}{2} (\mathbf{m}_i \mathbf{e}_i)^2 \right], \quad (1)$$

where the first term is the Josephson energy E_J and the second term is the magnetic anisotropy energy E_M . ψ_i is a phase of i -th superconductor.

Magnetic eigenmodes. The eigenfrequencies and eigenmodes of coupled system of magnetic moments $\mathbf{m}_i$ can be found in a quite standard way from the Landau–Lifshitz–Gilbert equation. The torque from the supercurrent can be accounted for via an additional contribution to $\mathbf{H}_{\text{eff}}$ as $\mathbf{H}_{\text{eff},J} = -(1/MV_F)dE_J/d\mathbf{m}$ [4–7].

If the easy axis is along the y -direction, the total effective field acting on each of the magnets $\mathbf{H}_{\text{eff}}^i = \mathbf{H}_{\text{eff},M}^i + \mathbf{H}_{\text{eff},J}^i$ is also along the y -direction and takes the form

$$\mathbf{H}_{\text{eff}}^i = \frac{K}{M} \left[m_{yi} + \frac{r E_J^0}{2 E_M^0} \sin \Phi \right] \mathbf{e}_y. \quad (2)$$

With this effective field we obtain the following eigenfrequencies:

¹⁾e-mail: ivbobkova@mail.ru

$$\omega_{\pm} = \gamma \frac{K}{M} \left(1 \pm \frac{r E_J^0}{2 E_M^0} \sin \Phi \right). \quad (3)$$

The eigenfrequencies $\omega_{\pm}$ are plotted in Fig. 1a as functions of ψ_N . As it was found in [3], we can change stable magnetic configuration of the system by varying ψ_N . With such a change, the eigenfrequencies will experience a jump, as it is seen in Fig. 1a. The eigenmodes, corresponding to a given eigenfrequency can be chosen as independent oscillations of separate magnets.

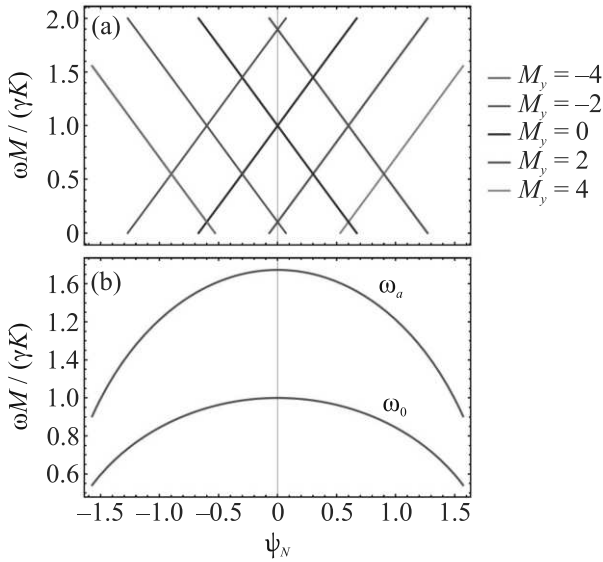


Fig. 1. (Color online) Eigenfrequencies of magnons as functions of the external phase ψ_N . (a) – Magnetic easy axis is along the y -axis. There are two eigenfrequencies $\omega_{\pm}$ for a magnetic configuration corresponding to a given y -projections M_y of the total magnetic moment. (b) – Magnetic easy axis is along the z -axis. There are only two eigenfrequencies, acoustic mode ω_a and optic mode ω_o , which are the same for all magnetic configurations. Parameters $N = 4$, $r = 0.3$, $E_M^0/E_J^0 = 0.025$ for the both panels

Now let us consider the case when the easy axis is along the z -axis. For each of the magnets we move to a local reference frame determined by three mutually orthogonal unit vectors $\mathbf{e}_x$, $\mathbf{e}_{\parallel} \equiv \mathbf{m}_i^0$, $\mathbf{e}_{\perp} = \mathbf{e}_{\parallel} \times \mathbf{e}_x$, where $\mathbf{m}_i^0$ is the unit vector along the equilibrium direction of a given magnet and $\delta \mathbf{m}_i$ is due to its excitation. We denote the angle between the vectors $\mathbf{e}_z$ and $\mathbf{e}_{\parallel}$ as α_i^0 . The angle between $\mathbf{m}_i = \mathbf{m}_i^0 + \delta \mathbf{m}_i$ and $\mathbf{e}_z$ is $\alpha_i = \alpha_i^0 + \delta \alpha_i$. Then we can write $\mathbf{H}_{\text{eff}}^i = H_{\text{eff},\parallel}^i \mathbf{e}_{\parallel} + H_{\text{eff},\perp}^i \mathbf{e}_{\perp}$ with

$$H_{\text{eff},\parallel}^i \approx \frac{K}{M} \left[\cos^2 \alpha_i^0 + \frac{r E_J^0}{2 E_M^0} \sin \alpha_i^0 \sin \Phi \right] \quad (4)$$

and

$$H_{\text{eff},\perp}^i \approx \lambda_0 \delta \alpha_i + \lambda_1 \cos \alpha_i^0 \sum_{j=1}^N \delta \alpha_j \cos \alpha_j^0, \quad (5)$$

where $\Phi = (1/N)[\psi_N - r \sum_{i=1}^N \sin \alpha_i^0]$, $\lambda_0 = (K/M) \sin^2 \alpha_i^0$ and $\lambda_1 = -(r^2 E_J^0 / V_F M N) \cos \Phi \cos^2 \alpha_i^0$.

Since there are two stable solutions $\mathbf{m}_i^0 = (0, m_{y,st}, \pm \sqrt{1 - m_{y,st}^2})^T$, we can write that $\sin \alpha_i^0$ is the same for all magnets $\sin \alpha_i^0 \equiv \sin \alpha^0$ and $\cos \alpha_i^0 = \sigma_i \cos \alpha^0$, where $\sigma_i = \pm 1$. Then the effective field $H_{\text{eff},\parallel}^i \equiv H_{\text{eff},\parallel}$ is also the same for all the magnets. The resulting eigenfrequencies neglecting α take the form:

$$\omega_a = \gamma \sqrt{H_{\text{eff},\parallel} (H_{\text{eff},\parallel} - \lambda_0 - N\lambda)}, \quad (6)$$

$$\omega_o = \gamma \sqrt{H_{\text{eff},\parallel} (H_{\text{eff},\parallel} - \lambda_0)}. \quad (7)$$

The eigenfrequencies depend on the external phase difference ψ_N via α^0 and via the dependence on Φ in λ_1 . The frequencies are plotted in Fig. 1b as functions of ψ_N . Since in the case when the easy axis is along the z -axis there is no splitting of the equilibrium spectra for different M_y , in contrast to the case of easy y -axis, here we can see only one branch for each of the frequencies.

Funding. The work has been supported by the Russian Science Foundation grant # 22-42-04408, <https://rscf.ru/project/22-42-04408/>.

Conflict of interest. The authors declare no competing interests.

This is an excerpt of the article “Magnetic eigenmodes in chains of coupled φ_0 -Josephson junctions with ferromagnetic weak links”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023604013

1. I. V. Bobkova, A. M. Bobkov, and M. A. Silaev, J. Phys. Condens. Matter **34**, 353001 (2022).
2. G. A. Bobkov, I. V. Bobkova, and A. M. Bobkov, Phys. Rev. B **105**, 024513 (2022).
3. G. A. Bobkov, I. V. Bobkova, and A. M. Bobkov, arXiv:2310.16543 [cond-mat.supr-con].
4. M. Nashaat, I. V. Bobkova, A. M. Bobkov, Y. M. Shukrinov, I. R. Rahmonov, and K. Sengupta, Phys. Rev. B **100**, 054506 (2019).
5. F. Konschelle and A. Buzdin, Phys. Rev. Lett. **102**, 017001 (2009).
6. Y. M. Shukrinov, I. R. Rahmonov, K. Sengupta, and A. Buzdin, Appl. Phys. Lett. **110**, 182407 (2017).
7. C. Guarcello and F. Bergeret, Phys. Rev. Appl. **13**, 034012 (2020).

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

П И С Ь М А
В
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

том 119

Выпуск 4

25 февраля 2024

*Журнал издается под руководством
Отделения физических наук РАН*

Главный редактор В. М. Пудалов

Заместители главного редактора
Г. Е. Воловик, В. П. Пастухов

Зав. редакцией *И. В. Подыниглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

Web-страница <http://www.jetpletters.ru>

Интернет-версия английского издания
<http://www.springerlink.com/content/1090-6487>

Оптический захват и перемещение микрочастиц ближним полем блоховских поверхностных волн в полимерных волноводах

В. О. Бессонов, А. Д. Розанов, А. А. Федянин¹⁾

Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 11 декабря 2023 г.

После переработки 29 декабря 2023 г.

Принята к публикации 31 декабря 2023 г.

Захват и перемещение микрочастиц при помощи ближнего поля волноводных мод позволяет реализовать стабильные и компактные интегрально-оптические платформы для манипулирования, сортировки и исследования одиночных микрообъектов. В данной работе исследована возможность оптического манипулирования при помощи блоховских поверхностных волн, распространяющихся в полимерных волноводах на поверхности одномерного фотонного кристалла и локализирующих свет у поверхности волновода. Проведено численное моделирование оптических сил, действующих на сферическую микрочастицу со стороны фундаментальной волноводной моды блоховской поверхностной волны. Методом двухфотонной лазерной литографии изготовлены волноводы из полимера SU-8 на поверхности одномерного фотонного кристалла. Экспериментально продемонстрировано перемещение полистироловой микрочастицы вдоль волновода при возбуждении в нем блоховской поверхностной волны.

DOI: 10.31857/S1234567824040013, EDN: sypgvx

Метод управления микро- и нанообъектами при помощи света, называемый оптическим пинцетом, уже несколько десятилетий активно применяется в биологии и физике, в частности, для измерения сил на уровне фемтоньютон, исследования одиночных клеток и вязкоупругих характеристик сред на микромасштабе [1]. Захват частиц происходит за счет возникновения трехмерной ловушки, образуемой градиентными силами в области перетяжки жестко сфокусированного лазерного излучения [2]. При этом область манипулирования частицей ограничена размером пятна и глубиной фокуса лазерного излучения. Для перемещения частиц необходимо перемещать ловушку или использовать структурированные пучки, что сопряжено с применением громоздких объективов и оптических схем, работающих в свободном пространстве [3–5]. В связи с этим в последнее время активно развиваются методы оптического управления, использующие эванесцентные поля поверхностных электромагнитных волн [6–8] и волноводных мод в волноводах разных типов [9–12]. Концепция интегральной оптики позволяет создавать оптические силы на больших расстояниях, ограниченных только потерями в волноводах, а также реализовывать одновременное манипулирование при помощи множества плотно упакованных волноводных систем, значительно удешевляя метод и уве-

личивая гибкость и стабильность управления микрообъектами.

Для эффективного управления необходимо, чтобы электрическое поле волны локализовалось у поверхности волноводной структуры, что реализуется в случае возбуждения поверхностных электромагнитных волн. В частности, успешный захват и перемещение частиц был продемонстрирован при помощи поверхностных плазмон-поляритонов, возбуждаемых как на чистых металлических пленках [13, 14], так и в металлических волноводах [15]. Однако, распространение плазмонов всегда сопровождается омическими потерями, что сокращает их длину свободного пробега до десятков микрон и ограничивает их использование для биологических применений из-за нагрева. Другой тип поверхностных электромагнитных волн – блоховские поверхностные волны (БПВ), которые могут распространяться по поверхности одномерных фотонных кристаллов (ФК) по аналогии с поверхностными плазмон-поляритонами в металлических пленках [16, 17]. Благодаря использованию диэлектрических материалов, длина свободного пробега БПВ может достигать сантиметров в видимом диапазоне [18], а возможность настройки закона дисперсии БПВ за счет толщин и материалов слоев ФК [19] позволяет возбуждать их в широком спектральном диапазоне от ультрафиолетового [20] до терагерцового [21]. Недавно было показано, что БПВ может распространяться вдоль полимерной по-

¹⁾e-mail: fedyanin@nanolab.phys.msu.ru

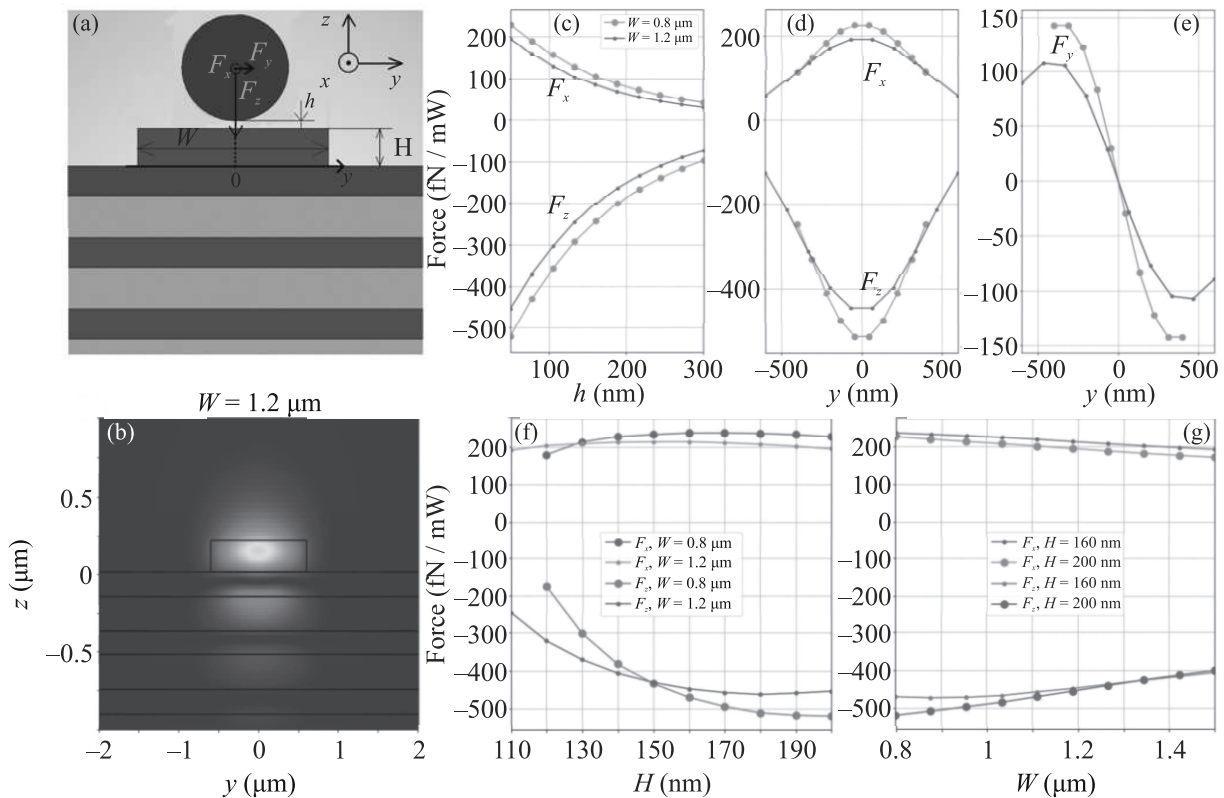


Рис. 1. (Цветной онлайн) Численное моделирование. (а) – Схема исследуемой системы. Сферическая частица расположена в воде над волноводом на поверхности одномерного фотонного кристалла. Волноводные моды БПВ распространяются вдоль оси x . (б) – Распределение электрического поля в TE_{00} моде БПВ, распространяющейся по волноводу высотой $H = 180 \text{ nm}$ и шириной $W = 1.2 \mu\text{m}$. (с), (д), (е) – Зависимости проекций силы, действующей на частицу со стороны TE_{00} моды БПВ, от величины зазора h между частицей и волноводом и положения частицы относительно центра волновода при $h = 50 \text{ nm}$. (ф), (г) – Зависимости проекций силы от высоты и ширины волновода при величине зазора $h = 50 \text{ nm}$

лоски на поверхности ФК, выполняющей роль волновода [22–25]. В результате на основе БПВ было реализовано множество элементов полимерной двумерной интегральной оптики [26, 27], включая интерферометры [28], элементы ввода/вывода излучения [29] и микролазеры [30]. Также БПВ может использоваться для оптического захвата, перемещения и агрегации частиц [8, 31–33]. Однако, в этих работах БПВ возбуждалась на чистой поверхности ФК и имела характерную ширину пучка несколько десятков микрон.

В данной работе исследуется возможность захвата и движения микрочастицы при помощи БПВ, распространяющейся в полимерном волновод микронной ширины на поверхности ФК. Проведено численное моделирование сил, действующих на частицу со стороны БПВ в зависимости от параметров волновода. Методом двухфотонной лазерной литографии изготовлены полимерные волноводы на поверхности

ФК и продемонстрировано движение полистироловой частицы диаметром $1 \mu\text{m}$ вдоль волновода при возбуждении фундаментальной моды БПВ.

Численное моделирование и эксперимент проводились для длины волны излучения 638 nm . Схема исследуемой системы представлена на рис. 1а. Сферическая полистироловая частица с показателем преломления 1.59 и диаметром $1 \mu\text{m}$ расположена в водной среде (показатель преломления 1.333) на расстоянии h от волновода. Волновод из полимера SU-8 с показателем преломления 1.58 поддерживает распространение фундаментальной моды БПВ вдоль оси x . Одномерный фотонный кристалл состоит из четырех пар слоев SiO_2 толщиной 223 nm и Ta_2O_5 толщиной 156 nm с показателями преломления 1.478 и 2.135 , соответственно. Параметры фотонного кристалла рассчитаны таким образом, чтобы БПВ не могла существовать на чистой поверхности и возбуждалась только в волновод. Для таких параметров

ФК волновод является одномодовым в диапазоне ширины W от 0.8 до 1.2 мкм и диапазоне высот H от 110 до 200 нм. При этом эффективный показатель преломления фундаментальной TE_{00} моды БПВ варьируется от 1.34 до 1.37, что очень близко к показателю преломления воды и обеспечивает локализацию поля БПВ на верхней поверхности волновода, а также эффективное проникновение поля в водную среду над волноводом (рис. 1b).

Численные расчеты проводились методом конечных разностей во временной области при помощи программного продукта Lumerical FDTD Solutions. Значения силы, действующей на частицу со стороны поля БПВ, вычислялись путем интегрирования компонент тензора напряжений Максвелла [34]. На рисунке 1 показаны зависимости проекций силы от положения частицы относительно волновода высотой 180 нм, нормированные на мощность излучения в БПВ. Из рисунка 1с видно, что градиентная сила F_z увеличивается с уменьшением зазора между частицей и волноводом, таким образом прижимая частицу к волноводу. Движущая сила F_x также увеличивается с уменьшением зазора, при этом ее характерные значения на порядок больше, чем для случая классической волноводной моды в волновод из SU-8 на кварцевой подложке [9]. Максимальные значения сил F_x и F_z достигаются при положении частицы в центре волновода (рис. 1d), в то время как сила F_y , действующая поперек волновода, зануляется. Рисунок 1е показывает, что при сдвиге частицы от центра волновода F_y увеличивается, возвращая частицу к центру, таким образом обеспечивая совместно с силой F_z устойчивый захват частицы. Во всех случаях наблюдается уменьшение максимального значения силы при увеличении ширины волновода, что связано с уменьшением глубины проникновения поля БПВ во внешнюю среду. Также расчет показал, что сила F_z уменьшается более чем в 2 раза при уменьшении высоты волновода H с 150 до 110 нм и слабо меняется в диапазоне высот 150–200 нм, в то же время F_x практически не зависит от высоты волновода и меняется в пределах 10 % (рис. 1f). Величина силы также слабо зависит от ширины волновода, монотонно уменьшаясь на 20 % при увеличении ширины с 0.8 до 1.5 мкм. Таким образом, в эксперименте по перемещению частиц имеет смысл использовать волноводы высотой не менее 150 нм и шириной, соответствующей одномодовому режиму. Численные оценки длины пробега TE_{00} моды БПВ составили от 100 мкм для волновода с $H = 150$ нм и $W = 0.8$ мкм, до 370 мкм для волновода с $H = 200$ нм и $W = 1.2$ мкм.

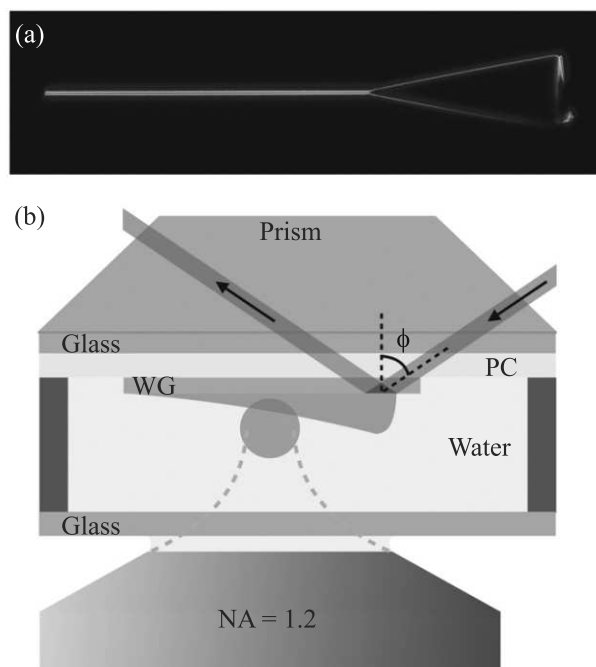


Рис. 2. (Цветной онлайн) Экспериментальный образец и установка. (a) – Изображение волноводной структуры, напечатанной на поверхности ФК, полученное методом темнопольной микроскопии. (b) – Схема эксперимента. PC – фотонный кристалл, WG – волновод. Желтыми пунктирными линиями показан пучок оптического пинцета, при помощи которого частица подносится к волноводу

Образцы фотонных кристаллов были изготовлены методом магнетронного напыления на стеклянной (BK-7) подложке толщиной 170 мкм. Волноводные структуры на поверхности фотонного кристалла изготавливались методом двухфотонной лазерной литографии в тонких пленках фоторезиста SU-8 2015 (Microchem), толщина которых определяла высоту волноводов и выбиралась в диапазоне от 150 до 200 нм. Методика изготовления образцов подробно описана в работах [28, 35, 36]. Волноводная структура (рис. 2а) состояла из заводящего треугольника длиной 80 мкм с основанием 26 мкм, на котором фокусируется излучение накачки, и прямого волновода, длина которого варьировалась от 95 до 140 мкм. При помощи скотча и покровного стекла толщиной 150 мкм вокруг волноводов формировалась ячейка, которая заполнялась водным раствором со следующим составом: додецилсульфат натрия – поверхностно-активное вещество (ПАВ) – с концентрацией 0.01 моль/л для устранения прилипания микрочастиц к поверхности волновода и ФК; азид натрия с концентрацией 0.02 % для предотвращения образования бактерий в растворе; полистироловые

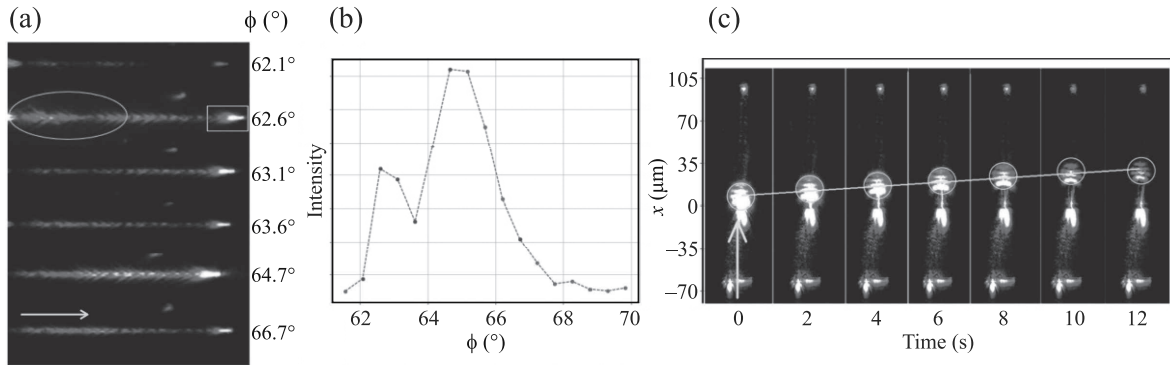


Рис. 3. (Цветной онлайн) Экспериментальные результаты (a) – Изображения рассеяния БПВ, возбуждаемых в волноводе с $H = 180$ нм и $W = 1.2$ мкм при разных углах падения. Белый эллипс обозначает местоположение и размеры пятна излучения накачки. Белый прямоугольник обозначает область, с которой детектируется рассеянное излучение. (b) – Зависимость интенсивности рассеянного на конце волновода излучения от угла падения. (c) – Серия изображений частицы над волноводом с $H = 150$ нм и $W = 0.8$ мкм, сделанных с промежутком 2 с. Желтыми кругами обозначено пятно света, рассеянного частицей, которая перемещается вдоль волновода под действием поля БПВ

сферические частицы с диаметром 1 мкм и концентрацией 1 мкг/мл. Возбуждение мод БПВ в волноводах осуществлялось в схеме Кречманна (рис. 2b) путем фокусировки TE -поляризованного излучения в область заводящего треугольника или волновода в пятно размером 20×50 мкм. Для этого ячейка помещалась на стеклянную призму через иммерсионное масло. Излучение непрерывного диодного лазера с длиной волны 638 нм заводилось на образец со стороны призмы под углом падения ϕ , который мог перестраиваться в диапазоне 58° – 70° . Визуализация образца, а также рассеянного волноводом и частицами лазерного излучения осуществлялась при помощи водно-иммерсионного объектива (числовая апертура 1.2, фокусное расстояние 3 мм), установленного со стороны покровного стекла, и КМОП-матрицы. Этот же объектив использовался для формирования оптической ловушки на длине волны 1064 нм, при помощи которой осуществлялся оптический захват одиночных микрочастиц и их перенос к поверхности волновода.

Для возбуждения БПВ в схеме Кречманна необходимо выполнить условие фазового синхронизма $n_{pr} \sin \phi = n_{eff}^{BSW}$ [29], где n_{eff}^{BSW} – эффективный показатель преломления моды БПВ и $n_{pr} = 1.516$ – показатель преломления материала призмы. Поскольку эффективный показатель преломления моды должен быть больше показателя преломления воды, угол падения излучения на ФК должен превышать угол полного внутреннего отражения на границе раздела призма/вода, который составляет 61.5° . С другой стороны, для эффективной перекачки энергии излучения в БПВ угловая ширина пучка должна быть сравнима с угловой шириной резонанса БПВ,

которая определяется ее длиной свободного пробега [37, 38]. Следовательно, размер пучка накачки вдоль волновода должен быть сравним с длиной свободного пробега БПВ, которая составляет 100–400 мкм для изготавливаемых волнопроводов. В эксперименте использовался пучок диаметром 20 мкм, который из-за наклонного падения растягивался вдоль волновода до 50 мкм, а его расходимость составляла 1.45° . Таким образом, малая расходимость пучка позволяла селективно возбуждать волноводные моды БПВ, располагая пучок непосредственно в области волновода, и подбирая угол падения излучения в соответствии с условием фазового синхронизма. На рисунке 3a представлен пример исследования модового состава волновода с размерами $H = 180$ нм и $W = 1.2$ мкм. Пятно накачки устанавливалось на волноводе правее треугольника и проводилось измерение сигнала, рассеянного на конце волновода, в зависимости от угла падения излучения на образец. На графике на рис. 3b видно два максимума при углах падения 62.6° и 65° , соответствующих возбуждению двух разных мод БПВ в волноводе. Используя формулу фазового синхронизма, можно получить значения эффективных показателей преломления мод, которые составили $n_{eff}^{TE_{00}} = 1.373$ и $n_{eff}^{TE_{01}} = 1.345$. Согласно расчетам, для волновода с указанными параметрами $n_{eff}^{TE_{00}} = 1.371$ и $n_{eff}^{TE_{01}} = 1.333$. Таким образом можно сделать вывод, что в эксперименте возбуждаются TE_{00} и TE_{01} моды БПВ, однако их эффективные показатели преломления превышают расчетные. Это может быть связано с погрешностями в размерах волнопроводов, возникающими при их изготовлении, а также с образованием пленки ПАВ толщиной несколько десятков нанометров на поверхности вол-

новода, поскольку используемая концентрация ПАВ немного превышает критическую концентрацию мицеллообразования [39]. Например, увеличение ширины волновода на 100 нм, а высоты на 20 нм приводят к значениям эффективных показателей преломления мод БПВ $n_{\text{eff}}^{TE_{00}} = 1.378$ и $n_{\text{eff}}^{TE_{01}} = 1.342$ близким к полученным в эксперименте.

Для эксперимента по захвату и перемещению частиц полем БПВ важно, чтобы в волноводах возбуждалась только TE_{00} мода. В случае распространения сразу нескольких мод, возникает многомодовая интерференция, которая приводит к изменению распределения ближнего поля БПВ в зависимости от координаты вдоль волновода [28]. В этом случае равномерное движение частицы вдоль волновода скорее всего невозможно, и задача требует отдельного рассмотрения. Таким образом, эксперимент проводился для волноводов с минимальной расчетной высотой $H = 150$ нм и шириной $W = 0.8$ мкм, в которых одномодовый режим будет сохраняться даже при наличии отмеченных выше добавок к размерам. При положении пятна накачки на волноводе было определено, что в волноводе поддерживается только одна мода с эффективным показателем преломления $n_{\text{eff}} = 1.339$. Далее пятно накачки перемещалось в область треугольника, в которой БПВ генерировались со всей площади пятна и фокусировались в волновод за счет отражений от границ треугольника. При помощи оптического пинцета производился захват любой микрочастицы в поле зрения объектива и ее перенос к волноводу. Частица помещалась на расстояние 5 мкм от соединения треугольника с волноводом, после чего ловушка отключалась. На рисунке 3с представлены изображения рассеянного излучения накачки, полученные через равные интервалы времени в первые 12 с после отключения ловушки. Видно, что возбуждаемая в волноводе БПВ обеспечивает устойчивое движение микрочастицы строго вдоль волновода. Суммарно частица двигалась в течение 66 с и переместилась на 65 мкм до того, как сместилась с волновода из-за теплового движения. Средняя скорость движения в первые несколько секунд составила 2.2 мкм/с и постепенно уменьшалась по мере удаления частицы от начала волновода из-за затухания БПВ. Используя закон Стокса с поправкой к силе вязкого трения, связанной с дополнительным гидродинамическим сопротивлением вблизи поверхности [40], из скорости движения частицы можно оценить движущую силу, которая составила $F_x = 47$ фН для предполагаемого расстояния между частицей и волноводом $h = 50$ нм. Исходя из расчетов, представленных на рис. 1, соот-

ветствующую мощность моды БПВ можно оценить как 0.2 мВт.

Таким образом, в работе показана возможность устойчивого захвата и перемещения микрочастицы вдоль полимерного волновода на поверхности одномерного фотонного кристалла при возбуждении в нем фундаментальной моды блоховской поверхностной волны. Численно показано, что при мощности излучения в моде 1 мВт характерная величина движущей силы блоховской поверхностной волны для полистироловой сферической частицы диаметром 1 мкм составляет 100–200 фН, что на порядок больше чем в случае обычной волноводной моды в полимерном волноводе на кварцевой подложке. Экспериментально реализована исследуемая система и продемонстрировано движение микрочастицы вдоль волновода микронной ширины со скоростью 2.2 мкм/с.

Авторы выражают благодарность Д. А. Шилкину и К. Р. Сафронову за помощь в проведении экспериментов и полезные дискуссии.

Финансирование работы. Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 22-22-00874.

Конфликт интересов. Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. G. Volpe, O. M. Maragò, H. Rubinsztein-Dunlop et al. (Collaboration), J. Phys. Photonics **5**, 022501 (2023).
2. A. Ashkin, J. M. Dziedzic, J. E. Bjorkholm, and S. Chu, Opt. Lett. **11**, 288 (1986).
3. Ю. В. Пичугина, А. С. Мачихин, Фотоника **14**, 254 (2020).
4. С. П. Котова, Н. Н. Лосевский, А. М. Майорова, С. А. Самагин, Известия Российской академии наук. Серия физическая **87**, 1682 (2023).
5. A. B. Stilgoe, T. A. Nieminen, and H. Rubinsztein-Dunlop, Nature Photon. **16**, 346 (2022).
6. M. L. Juan, M. Righini, and R. Quidant, Nature Photon. **5**, 349 (2011).
7. Y. Ren, Q. Chen, M. He, X. Zhang, H. Qi, and Y. Yan, ACS Nano **15**, 6105 (2021).
8. D. A. Shilkin, E. V. Lyubin, I. V. Soboleva, and A. A. Fedyanin, Opt. Lett. **40**, 4883 (2015).
9. B. S. Schmidt, A. H. J. Yang, D. Erickson, and M. Lipson, Opt. Express **15**, 14322 (2007).
10. A. H. J. Yang, S. D. Moore, B. S. Schmidt, M. Klug, M. Lipson, and D. Erickson, Nature **457**, 71 (2009).
11. S. Gaugiran, S. Gétin, J. M. Fedeli, G. Colas, A. Fuchs, F. Chatelain, and J. Dérourard, Opt. Express **13**, 6956 (2005).
12. S. Lin, E. Schonbrun, and K. Crozier, Nano Lett. **10**, 2408 (2010).

13. V. Garcés-Chávez, R. Quidant, P. J. Reece, G. Badenes, L. Torner, and K. Dholakia, *Phys. Rev. B* **73**, 085417 (2006).
14. Y. Zhang, C. Min, X. Dou, X. Wang, H. P. Urbach, M. G. Somekh, and X. Yuan, *Light Sci. Appl.* **10**, 59 (2021).
15. K. Wang, E. Schonbrun, P. Steinvurzel, and K. B. Crozier, *Nano Lett.* **10**, 3506 (2010).
16. P. Yeh, A. Yariv, and A. Y. Cho, *Appl. Phys. Lett.* **32**, 104 (1978).
17. A. Sinibaldi, N. Danz, E. Descrovi, P. Munzert, U. Schulz, F. Sonntag, L. Dominici, and F. Michelotti, *Sens. Actuators B Chem.* **174**, 292 (2012).
18. B. Vosoughi Lahijani, N. Descharmes, R. Barbey, G. D. Osowiecki, V. J. Wittwer, O. Razskazovskaya, T. Südmeyer, and H. P. Herzig, *Adv. Opt. Mater.* **10**, 2102854 (2022).
19. К. Р. Сафронов, В. О. Бессонов, А. А. Федянин, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 360 (2021) [K. R. Safronov, V. O. Bessonov, and A. A. Fedyanin, *JETP Lett.* **114**, 321 (2021)].
20. R. Badugu, J. Mao, S. Blair, D. Zhang, E. Descrovi, A. Angelini, Y. Huo, and J. R. Lakowicz, *J. Phys. Chem. C* **120**, 28727 (2016).
21. C. Zhang, Q. Liu, X. Peng, Z. Ouyang, and S. Shen, *Nanophotonics* **10**, 3879 (2021).
22. E. Descrovi, T. Sfez, M. Quaglio, D. Brunazzo, L. Dominici, F. Michelotti, H. P. Herzig, O. J. Martin, and F. Giorgis, *Nano Lett.* **10**, 2087 (2010).
23. T. Sfez, E. Descrovi, L. Yu, D. Brunazzo, M. Quaglio, L. Dominici, W. Nakagawa, F. Michelotti, F. Giorgis, O. J. F. Martin, and H. P. Herzig, *J. Opt. Soc. Am. B* **27**, 1617 (2010).
24. D. A. Shilkin, K. R. Safronov, A. D. Rozanov, V. O. Bessonov, and A. A. Fedyanin, *Moscow University Physics Bulletin* **78**, 179 (2023).
25. Е. А. Безус, *Известия Российской академии наук. Серия физическая* **86**, 6 (2022).
26. L. Yu, E. Barakat, T. Sfez, L. Hvozdar, J. Di Francesco, and H. P. Herzig, *Light Sci. Appl.* **3**, e124 (2014).
27. R. Wang, H. Xia, D. Zhang, J. Chen, L. Zhu, Y. Wang, E. Yang, T. Zang, X. Wen, G. Zou, P. Wang, H. Ming, R. Badugu, and J. R. Lakowicz, *Nat. Commun.* **8**, 14330 (2017).
28. K. R. Safronov, D. N. Gulkin, I. M. Antropov, K. A. Abrashitova, V. O. Bessonov, and A. A. Fedyanin, *ACS Nano* **14**, 10428 (2020).
29. K. R. Safronov, V. O. Bessonov, D. V. Akhremenkov, M. A. Sirotin, M. N. Romodina, E. V. Lyubin, I. V. Soboleva, and A. A. Fedyanin, *Laser Photonics Rev.* **16**, 2100542 (2022).
30. Y.-C. Lee, Y.-L. Ho, B.-W. Lin, M.-H. Chen, D. Xing, H. Daigneji, and J.-J. Delaunay, *Nat. Commun.* **14**, 6458 (2023).
31. D. A. Shilkin, E. V. Lyubin, and A. A. Fedyanin, *ACS Photonics* **9**, 211 (2022).
32. F. Lu, L. Gong, Y. Kuai, X. Tang, Y. Xiang, P. Wang, and D. Zhang, *Photonics Res.* **10**, 14 (2022).
33. Д. А. Шилкин, А. А. Федянин, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 157 (2022) [D. A. Shilkin and A. A. Fedyanin, *JETP Lett.* **115**, 136 (2022)].
34. D. A. Shilkin, E. V. Lyubin, M. R. Shcherbakov, M. Lapine, and A. A. Fedyanin, *ACS Photonics* **4**, 2312 (2017).
35. K. A. Abrashitova, D. N. Gulkin, K. R. Safronov, N. G. Kokareva, I. M. Antropov, V. O. Bessonov, and A. A. Fedyanin, *Appl. Sci. (Switzerland)* **8**, 63 (2018).
36. М. Д. Апарин, Т. Г. Балуйн, М. И. Шарипова, М. А. Сиротин, Е. В. Любин, И. В. Соболева, В. О. Бессонов, А. А. Федянин, *Известия Российской академии наук. Серия физическая* **87**, 807 (2023).
37. I. V. Soboleva, V. V. Moskalenko, and A. A. Fedyanin, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 123901 (2012).
38. F. I. Baida and M.-P. Bernal, *Commun. Phys.* **3**, 86 (2020).
39. A. Dominguez, A. Fernandez, N. Gonzalez, E. Iglesias, and L. Montenegro, *J. Chem. Educ.* **74**, 1227 (1997).
40. Y. Kazoe and M. Yoda, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 124104 (2011).

Enhancement of terahertz radiation from saccharide solutions induced by femtosecond laser pulses

Ch. Chang⁺, T. Shen⁺¹⁾, H. Wang⁺, H. Li^{*}, T. Wang^{*}, J. Liu⁺, G. He⁺, Y. Zhang⁺, L. Li⁺

⁺Faculty of Information Engineering and Automation, Kunming University of Science and Technology, 650500 Kunming, China

^{*}The Greater Bay Area Branch of Aerospace Information Research Institute, Chinese Academy of Sciences, 510700 Guangzhou, China

Submitted 7 December 2023

Resubmitted 6 January 2024

Accepted 6 January 2024

DOI: 10.31857/S1234567824040025, EDN: szniis

Liquid is a promising candidate for terahertz radiation induced by femtosecond laser pulses, since it has advantages of higher molecular density, lower ionization potential and better self-healing properties compared with gases [1]. To achieve a better radiation performance, optimization approaches such as two-color excitation schemes [2], double-pulse excitation schemes [3] have been proposed. It is noteworthy that the electric field of terahertz radiation in air plasma can be enhanced with 10 times by changing excitation conditions from single-color scheme to two-color scheme. While in liquid water, however, enhancement with only 11 % can be achieved [4]. Since improvements of laser conditions have limited influence on terahertz radiation, exploration of better liquid medium is another way to optimize the performance of terahertz sources.

In this work, an enhancement of terahertz radiation from saccharide solutions induced by femtosecond laser pulses is demonstrated, and the characteristics of terahertz radiation from saccharide solutions of different types and concentrations are investigated. The trends of radiated terahertz power as a function of pump laser power for saccharide solutions including starch solution, maltose solution, sucrose solution, and glucose solution are shown in Fig. 1a. From the Figure 1 it is found that the starch solution shows the best terahertz radiation property. Maltose solution and sucrose solution radiate terahertz waves with approximately the same radiant power. Glucose solution radiates the weakest terahertz waves. Different kinds of saccharide have diverse molecular structures and different relative molecular masses, which are responsible for the different radiation properties. Glucose is a monosaccharide with a relative molecular mass of 180.16. Sucrose and maltose belong to disaccharides and have a relative molecular mass of 342.30.

Starch is a polysaccharide and the relative molecular mass of it is higher than the disaccharide. It can be inferred that saccharide solutions with a higher relative molecular mass tend to radiate stronger terahertz waves.

The influence of solution concentration on terahertz radiation is investigated in the subsequent experiments. As shown in Fig. 1b, terahertz radiations from four kinds of saccharide solution increase at the beginning. The fastest rate of increase is observed for polysaccharides (starch), followed by disaccharides (maltose and sucrose), and the slowest is for monosaccharides (glucose). Therefore, Starch reaches the optimum value first and then begins to decline. It is followed by maltose and sucrose which reach their maximum values at 30 %. No maximum value for glucose is observed within researchable range. In the first phase, the increasing concentration of saccharide and density of solution are responsible for the upward trend. However, when the concentration reaches a certain level, a good liquid flow can hardly be obtained because of the viscosity changes, and ultimately leads to a decrease in radiated power after the maximum value. Therefore, it can be inferred that the dependences of terahertz radiation on solution concentration is a combined effect of solution density and liquid viscosity. It should be noted that the viscosity of the saccharide increases as its concentration increases, resulting in its inability to form a good liquid line. Therefore, the concentration range can be investigated in this study is 0–35 % for glucose, maltose and sucrose, while with only 0–10 % for starch.

Funding. This research was funded by the National Natural Science Foundation of China (61971208), Yunnan Fundamental Research Projects (202301AV070003), Major Science and Technology Projects in Yunnan Province (202302AG050009), the Key Research and Development Program of Guangdong Province (# 2019B090917007), and the Science and

¹⁾e-mail: shentao@kust.edu.cn

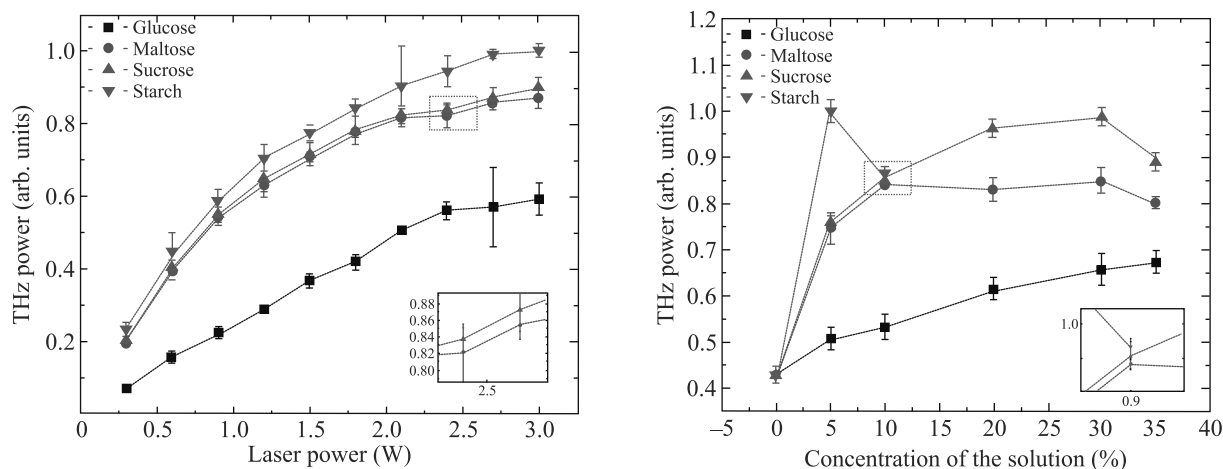


Fig. 1. (Color online) Experimental results of terahertz radiation from different saccharide solutions as a function of: (a) – laser power and (b) – solution concentration

Technology Planning Project of Guangdong Province (# 2019B090909011).

Conflict of interest. The authors declare that they have no conflicts of interest.

This is an excerpt of the article “Enhancement of terahertz radiation from saccharide solutions induced by femtosecond laser pulses”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023603949

1. Q. Jin, K. Williams, Y. E. J. Dai, and X.-C. Zhang, Appl. Phys. Lett. **111**(7), 071103 (2017); <https://doi.org/10.1063/1.4990824>.
2. H. Li, Y. Zhang, W. Sun, X. Wang, S. Feng, P. Han, J. Ye, and Y. Zhang, Opt. Express **28**(4), 4810 (2020); <https://doi.org/10.1364/OE.386092>.
3. Y. E. Q. Jin, and X.-C. Zhang, Appl. Phys. Lett. **115**, 101101 (2019); <https://doi.org/10.1063/1.5119812>.
4. Q. Jin, J. Dai, Y. E. J. Dai, and X.-C. Zhang, Appl. Phys. Lett. **113**, 261101 (2018); <https://doi.org/10.1063/1.5064644>.

High-fidelity and robust stimulated Raman transition with parameter-modulated optimal control

X.-X. Wu⁺, S. Li^{+*1)}, J. Zhou^{×1)}, Z.-Y. Xue^{+*1)}

⁺Key Laboratory of Atomic and Subatomic Structure and Quantum Control (Ministry of Education), and School of Physics, South China Normal University, 510006 Guangzhou, China

^{*}Guangdong Provincial Key Laboratory of Quantum Engineering and Quantum Materials, Guangdong-Hong Kong Joint Laboratory of Quantum Matter, and Frontier Research Institute for Physics, South China Normal University, 510006 Guangzhou, China

[×]School of Electrical and Opto-Electronic Engineering, West Anhui University, 237012 Luán, China

Submitted 22 December 2023

Resubmitted 10 January 2024

Accepted 13 January 2024

DOI: 10.31857/S1234567824040037, EDN: syjbbh

High-fidelity quantum manipulation is of great importance in the field of quantum optics, quantum computing, and quantum simulation [1, 2]. Quantum information transmission between two quantum states in a quantum system or among different quantum systems is of fundamental importance in quantum information science [3]. However, direct quantum state transmission is impossible in most cases, and thus one needs to consult to a intermediate quantum bus [4, 5]. When the bus has long enough coherence time, quantum information transmission can be achieved by resonant coupling. However, for quantum bus with short coherence time, quantum information transmission is implemented by the stimulated Raman transition (SRT) [6–8] technique, i.e., using a two-photon resonant process to avoid the influence of the intermediate bus by decreasing its population. But the two-photon process is a second-order coupling effect that will result in the unwanted Stark shift [9], leading to the imperfect transmission.

Here, we propose a new method that parameter-modulated amplitudes and phases are optimized to realize high-fidelity and robust SRT with optimal control. We employ optimal control algorithms to design pulse parameters of the SRT process to optimize the fidelity of the transmission, which is further confirmed by numerical simulations using optimized parameters. Our methods unfreeze the second-order coupling induced Stark-shift effect of the SRT process and provide a promising way for high-fidelity and robust quantum control toward high-order coupling effect.

To address the problem that the coupling with large detuning between two energy levels can cause unwanted Stark shift, we introduce parameter-modulated Rabi frequencies $\Omega_{0,1}(t)$ and the phases $\phi_{0,1}(t)$ to the system, as shown in Fig. 1a. In this way, it is possible to compen-

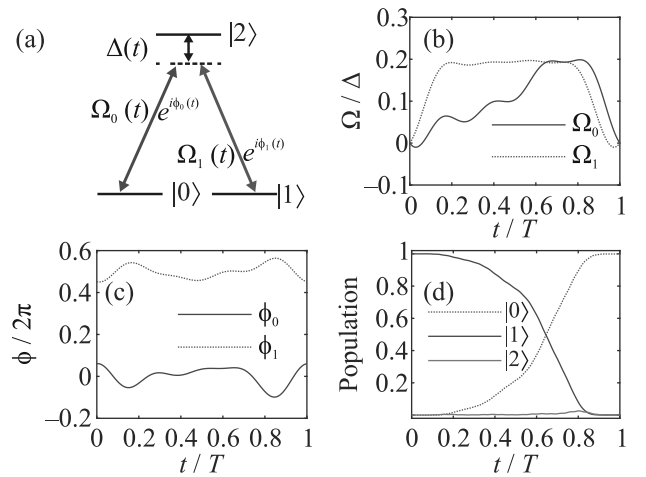


Fig. 1. (Color online) Illustration of our scheme. (a) – Λ -type three-level systems with parameter-modulated Rabi frequencies $\Omega_{0,1}(t)$ and the phases $\phi_{0,1}(t)$. (b) and (c) – Optimal amplitudes and phases of the pulses in relation to time respectively. (d) – The population of each state of the optimized SRT process under decoherence

sate the Stark-shift effect of the SRT process, because parameter-modulated Rabi frequencies and the phases can effectively generate extra phase accumulations. The Hamiltonian of the system in the rotating-wave approximation is written in the basis of $\{|0\rangle, |1\rangle, |2\rangle\}$ as

¹⁾e-mail: lisai15056881230@163.com; jianzhou8627@163.com; zyxue83@163.com

$$H(t) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & \Omega_0(t)e^{i\phi_0(t)} \\ 0 & 0 & \Omega_1(t)e^{i\phi_1(t)} \\ \Omega_0(t)e^{-i\phi_0(t)} & \Omega_1(t)e^{-i\phi_1(t)} & \Delta(t) \end{pmatrix}. \quad (1)$$

Then, we proceed to implement high-fidelity population transfer of the SRT process. Without loss of generality, we set detuning $\Delta(t)$ as a definite constant Δ and parameterize the Rabi frequencies $\Omega_{0,1}(t)$ and the phases $\phi_{0,1}(t)$ using Fourier series up to N th order as:

$$\begin{aligned} \Omega_i(t) &= \sum_{n=1}^N a_{i_n} \sin \frac{2n\pi t}{T} + b_{i_n} (1 - \cos \frac{2n\pi t}{T}), \\ \phi_i(t) &= \sum_{n=1}^N c_{i_n} \sin \frac{2n\pi t}{T} + d_{i_n} \cos \frac{2n\pi t}{T}, \end{aligned} \quad (2)$$

where T is the total evolution time, the expansion factors $\{a_{i_n}, b_{i_n}, c_{i_n}, d_{i_n}\}$ are free parameters for the parameterization of the Rabi frequencies $\Omega_{0,1}(t)$ and the phases $\phi_{0,1}(t)$, and index $i = \{0, 1\}$, $n = 1 : N$ are referred to control pulses and expansion orders, respectively. The above expansion of pulse envelopes is chosen based on the practical consideration that the drives are inactive at the time boundaries for $\Omega_i(0) = \Omega_i(T) = 0$. This parameterization allows us to introduce optimization algorithm to modulate pulses, thereby converting the problem of control pulse design into an optimization process.

Here, Covariance Matrix Adaptation Evolution Strategy [10], a stochastic and derivative-free approach, is employed for numerical optimization. It generates M arrays of candidate parameters, denoted by $\{\lambda_m = (a_{i_n}^m, b_{i_n}^m, c_{i_n}^m, d_{i_n}^m), m = 1 : M\}$ and selects some of them as parent parameters by the cost function values to generate new iterations. Here, we optimize the population transfer of the SRT process by defining the cost function as the state infidelity. The infidelity of the population transfer of the SRT process is calculated by [11]

$$O(\lambda_m) = 1 - \text{Tr} \left[\sqrt{\sqrt{\rho(\lambda_m)} \rho_0 \sqrt{\rho(\lambda_m)}} \right], \quad (3)$$

where ρ_0 is the density matrix of the target state and $\rho(\lambda_m)$ corresponds to the actual final state controlled by parameters λ_m . Here, we chose the expansion order truncated to $N = 4$, which gives 16 free parameters for each pulse. The Rabi frequencies $\Omega_{0,1}(t)$ and the phases $\phi_{0,1}(t)$ of the control pulses for the optimized solution to cost function of Eq. (3) are plotted in Fig. 1b and c, respectively. Furthermore, numerical result is shown in Fig. 1d, where the state fidelity of the optimized SRT process can realize more higher fidelity of 99.91 % than the conventional SRT process.

In conclusion, we proposed an optimal control method by modulating the amplitude and phase parameters to effectively improve the fidelity and the robustness of the SRT. Our scheme can effectively compensate for the Stark-shift effect and achieve both high fidelity and robust population transfer under the realistic environments. The detail simulation results show that our parameter-modulated method can achieve precise population transfer between coupled spin states and maintain high fidelity despite decoherence. Therefore, our scheme has potential applications for high-fidelity and robust quantum control toward high-order coupling effect.

Funding. This work was supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant # 12275090 and 12304554), the Guangdong Provincial Key Laboratory (Grant # 2020B1212060066), the Project funded by China Postdoctoral Science Foundation (Grant # 2023M741240), the Anhui Provincial Natural Science Foundation (Grant # 2008085MA20), and the Research Foundation for Advanced Talents of WXC (Grant # WGKQ2021004).

Conflict of interest. The authors declare that they have no conflict of interest.

This is an excerpt of the article “High-fidelity and robust stimulated Raman transition with parameter-modulated optimal control”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal with DOI: 10.1134/S002136402360413X

1. P. Král, I. Thanopoulos, and M. Shapiro, *Rev. Mod. Phys.* **79**, 53 (2007).
2. M. Saffman, T. G. Walker, and K. Mølmer, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2313 (2010).
3. D. O. Soares-Pinto, *Physica B Condens. Matter* **653**, 414510 (2023).
4. N. V. Vitanov, A. A. Rangelov, B. W. Shore, and K. Bergmann, *Rev. Mod. Phys.* **89**, 015006 (2017).
5. S. Guérin and H. Jauslin, *Adv. Chem. Phys.* **125**, 147 (2003).
6. J. Bateman, A. Xuereb, and T. Freegerde, *Phys. Rev. A* **81**, 043808 (2010).
7. K. Moler, D. S. Weiss, M. Kasevich, and S. Chu, *Phys. Rev. A* **45**, 342 (1992).
8. F. Böhm, N. Nikolay, S. Neinert, C. E. Nebel, and O. Benson, *Phys. Rev. B* **104**, 035201 (2021).
9. T. Rickes, L. P. Yatsenko, S. Steuerwald, T. Halfmann, B. W. Shore, N. V. Vitanov, and K. Bergmann, *J. Chem. Phys.* **113**, 534 (2000).
10. N. Hansen, arXiv preprint arXiv:1604.00772 (2016).
11. M. Nielsen and I. Chuang, *Quantum Computation and Quantum Information: 10th Anniversary Edition*, Cambridge University Press, Cambridge (2010).

Структурная микромодификация алмаза фемтосекундными лазерными импульсами через оптический контакт с нелинейной сильнорефрактивной иммерсионной средой

Е. В. Кузьмин¹⁾, Г. К. Красин⁺, Ю. С. Гулина⁺, П. А. Данилов⁺, Д. А. Помазкин⁺, А. В. Горевой⁺,
С. В. Кузнецов^{*}, В. В. Воронов^{*}, В. Ю. Ковалев⁺, С. И. Кудряшов⁺, А. О. Левченко⁺, Э. В. Караксина[×],
В. С. Ширяев[×]

⁺Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

^{*}Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

[×]Институт химии высокочистых веществ им. Г. Г. Девярых РАН, 603951 Н. Новгород, Россия

Поступила в редакцию 28 декабря 2023 г.

После переработки 11 января 2024 г.

Принята к публикации 11 января 2024 г.

Фемтосекундными лазерными импульсами через оптический контакт с сильнорефрактивной иммерсионной средой из сульфида цинка произведена запись считываемой фотолуминесцентной микрометки в объеме алмаза. Показано влияние сильнорефрактивной иммерсионной среды на положение и размер конфокальной области при считывании луминесцентной микрометки. Установлено, что основным механизмом нелинейного ослабления лазерного излучения в исследуемых материалах является умеренное двухфотонное поглощение, и определены его коэффициенты. Продemonстрирована применимость сульфида цинка как оптически-согласованной сильнорефрактивной иммерсионной среды для лазерной записи и считывания фотолуминесцентной микромаркировки алмаза. После впрессовывания алмаза в пластину сульфида цинка методом высокотемпературной пластической деформации в атмосфере аргона оптическая спектрофотометрия и рентгенофазовый анализ обнаруживают заметное помутнение иммерсионного материала вследствие поверхностного пиролиза, частично сохраняющее возможность считывания фотолуминесцентных микрометок.

DOI: 10.31857/S1234567824040049, EDN: sznvfq

1. Натуральные драгоценные камни, в том числе алмазы, до своей огранки зачастую имеют случайную, неправильную форму, которая при прохождении через нее сфокусированного лазерного пучка приводит к существенному искажению его профиля. Использование иммерсионной среды, за счет практически одинакового показателя преломления, позволяет “перенести” границу раздела алмаз/воздух с неровной естественной поверхности алмаза, на заведомо гладкую поверхность иммерсия/воздух, что позволяет минимизировать возникающие искажения. Поэтому прозрачные диэлектрические среды с высоким показателем преломления (сильной рефракцией) часто используются как иммерсионные материалы для управляемого ввода визуализирующего излучения подсветки или даже мощного лазерного излучения в исследуемые или модифицируемые объекты, например, в неограниченные алмазы в среднем инфракрасном (ИК) диапазоне [1]. Одна-

ко в видимом диапазоне задача иммерсионного ввода пока не решена, поскольку в этом случае из-за большего соотношения ширины прямой запрещенной зоны и энергии фотона сильнее проявляются оптические нелинейности [2], к числу которых можно отнести, например, генерацию высших гармоник, само(де)фокусировку и многофотонное поглощение [3–5], численные коэффициенты для которых обычно неизвестны. В случае алмазов, сильнорефрактивная иммерсионная среда позволяет реализовать фемтосекундную лазерную микромаркировку в объеме неограниченных камней при правильном подборе материала и толщины иммерсионного слоя. Для этого требуется оценка оптической нелинейности иммерсионной среды и управление параметрами сильнофокусированного лазерного излучения для его контролируемого ввода в объем алмаза.

Настоящая работа направлена на поиск оптимальной иммерсионной среды, согласующейся по диапазону прозрачности с алмазом, так как использовавшийся ранее в качестве иммерсионной среды

¹⁾e-mail: kuzmine@lebedev.ru

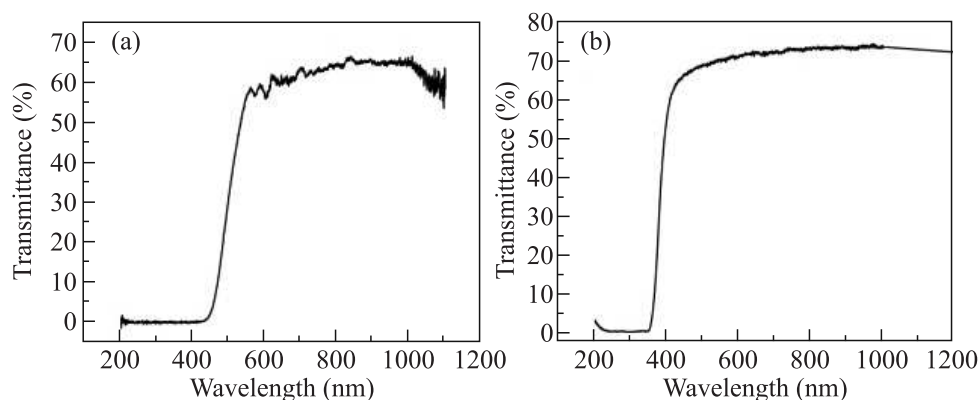


Рис. 1. Спектры пропускания образцов в видимой и ближней ИК области: (а) – алмаз; (б) – ZnS

ZnSe прозрачен, только начиная с 500 нм [6]. В качестве сильнорефрактивной иммерсии в этой работе использовался образец ZnS. Проведена его характеристика, включающая измерения пропускания в видимой области, коэффициента многофотонного поглощения, рентгенофазовый анализ, а также исследования фотолюминесценции. Показано успешное использование ZnS в качестве иммерсионного материала через оптический контакт с алмазом при проведении фемтосекундной лазерной микромаркировки (запись и считывание фотолюминесцентных микрометок). Опробовано впрессовывание алмаза в материал иммерсии методом высокотемпературной пластической деформации в атмосфере аргона с последующим исследованием возможности записи и считывания фотолюминесцентных микрометок.

2. В качестве образца для люминесцентной микромаркировки использовался желтоватый синтетический CVD алмаз NDT1 Ia + Ib типа, имеющий форму пластины ($5 \times 5 \times 1 \text{ мм}^3$), с содержанием точечных дефектов: $C_{1130} \approx 145 \text{ ppm}$ и $A_{1282} \approx 116 \text{ ppm}$ согласно измерениям поглощения в ИК области, проведенным на фурье-спектрометре Vertex V-70 (Bruker, USA). Спектр пропускания образца в видимой и ближней ИК областях спектра был зарегистрирован на спектрофотометре СФ-2000 (ЛОМО, Россия) (рис. 1а).

В качестве иммерсионной среды использовались полированные с двух сторон прозрачные поликристаллические образцы ZnS (показатель преломления $n = 2.4$ на длине волны 515 нм), полученные CVD методом и имеющие форму диска диаметром 25 мм и толщиной 3 мм. Экспериментальные измерения коэффициента нелинейного пропускания исследуемых образцов (алмаз и ZnS), были выполнены на фемтосекундном волоконном Yb-лазере Satsuma (Amplitude systems, France), по

методике Z-scan [7]. Лазер работал в режиме генерации второй гармоники $\lambda = 515 \text{ нм}$, а длительность лазерных импульсов составляла $\tau = 300 \text{ фс}$. Для фокусировки лазерного излучения использовался микрообъектив с числовой апертурой $NA = 0.55$ и рабочим отрезком $WD = 7 \text{ мм}$, что позволило сфокусировать излучение в глубине исследуемого образца.

Микромодификация алмаза производилась на твердотельном Yb-лазере ТЕМА-150DUO (Авеста, Россия), имеющем следующие параметры излучения: длина волны $\lambda = 525 \text{ нм}$; длительность импульса $\tau = 150 \text{ фс}$; максимальная мощность $W_{\text{max}} = 3 \text{ Вт}$; частота следования импульсов $\nu = 80 \text{ МГц}$. Для фокусировки лазерного излучения на глубину 150 мкм под поверхность алмаза применялся объектив, использовавшийся при измерении нелинейного пропускания ($50\times$, $NA = 0.55$). Модификация алмаза производилась в виде массива точек с одинаковыми параметрами облучения (мощность $W = 2 \text{ Вт}$, время выдержки в точке $t = 1 \text{ с}$) через оптический контакт с иммерсионным материалом.

Считывание фотолюминесцентных меток было выполнено на 3D сканирующем конфокальном микроскопе (CONFOTEC MR520, SOL Instruments, Беларусь) при комнатной температуре с использованием объектива, примененного при записи. Возбуждение люминесценции происходило встроенным лазером с длиной волны 532 нм, а считывание проводилось при помощи фотоумножителя и гальванометрического сканатора.

Запись дифрактограмм проводилась на рентгеновском дифрактометре Bruker D8 Discover A25 DaVinci Design с радиусом гониометра 280 мм, использующем в качестве источника излучения керамическую рентгеновскую трубку Siemens KFL. Обработка рентгенографических спектров осуществля-

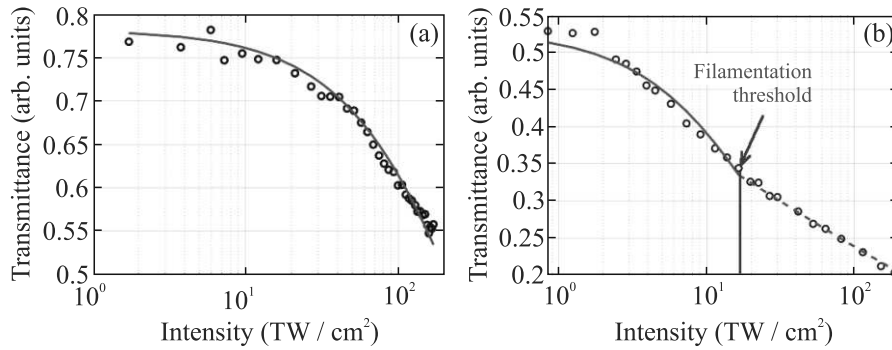


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость коэффициента нелинейного пропускания от интенсивности для: (а) – образца ZnS; (б) – алмаза. “о” – экспериментальные данные; “—” – теоретически рассчитанные значения по формуле (1); “- - -” – теоретически рассчитанные значения по формуле (2)

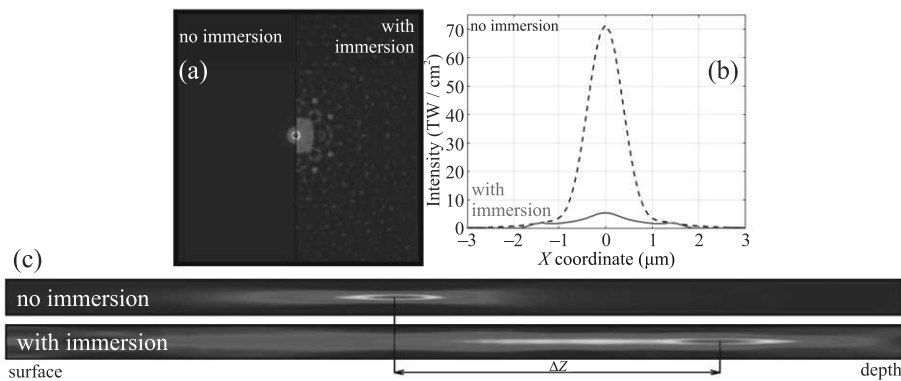


Рис. 3. (Цветной онлайн) Сравнение: (а) – рассчитанных размеров конфокальных пятен; (б) – плотностей мощностей, и (с) – глубины фокусировки при наложении высокоиндексной иммерсионной среды

лась в программе EVA версия 2.1., а расшифровка была выполнена с использованием базы данных JCPDS PDF-2 версия 2011 года. Индексирование спектров и определение параметров элементарной ячейки было проведено с помощью программы TOPAS v.4.2.

3. В видимом и ближнем ИК диапазоне область пропускания алмаза начинается уже с 440 нм, а пропускание на основных длинах волн фотолуминесцентной маркировки (515 и 1030 нм) составляет 40 и 64 % соответственно (рис. 1а), тогда как область пропускания ZnS начинается с 350 нм, а пропускание для 515 и 1030 нм составляет 69 и 73 % (рис. 1б). Такие свойства допустимы для материала, предлагаемого к использованию в качестве сильнорефрактивной иммерсионной среды: поскольку при микромодификации запись люминесцентных меток производится в объеме алмаза через толщу иммерсионного материала, то используемый иммерсионный материал должен обладать меньшим поглощением, чем алмаз, чтобы излучение распространялось через него без поглощения.

Так как при записи люминесцентных меток энергия лазерных импульсов может быть достаточно высокой, то при прохождении излучения могут задействоваться механизмы как линейного, так и нелинейного поглощения, возникающего вследствие многофотонного поглощения и последующей генерации плазмы.

Коэффициент нелинейного пропускания образца, обусловленный многофотонным поглощением, зависит от интенсивности как [8]

$$T_{MFA}(I) = \frac{T_0}{(1 + (n-1)\beta_n 2z_R(1-R)^{n-1} I^{(n-1)})^{\frac{1}{n-1}}}, \quad (1)$$

где T_0 – линейный коэффициент пропускания образца, учитывающей потери на отражение на двух гранях и линейное поглощение, $z_R = n_0 \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ – длина Рэлея, λ – длина волны лазерного излучения, n_0 – показатель преломления исследуемого материала, $w_0 = \frac{\lambda f'}{\pi w(0)}$ – радиус фокального пятна, $w(0)$ – радиус лазерного пучка перед фокусирующей системой, f' – фокусное расстояние, β_n – коэффициент

n -фотонного поглощения среды, R – коэффициент отражения на границе раздела воздух-среда. В результате аппроксимации экспериментальных данных выражением (1) с различными значениями n наименьшая величина остаточной ошибки была получена при $n = 2$, что соответствует двухфотонному поглощению. Для образца ZnS коэффициент двухфотонного поглощения составил $\beta_2 = 0.5 \pm 0.01 \text{ см/ТВт}^2$ (рис. 2а), а для алмаза – $\beta_2 = 11 \pm 1.2 \text{ см/ТВт}^2$ (рис. 2б). При превышении порога филаментации в алмазе ($\approx 20 \text{ ТВт/см}^2$ [9]), сопровождающегося генерацией субкритической плазмы в фокальной области, поглощение приобретает линейный характер и может быть аппроксимировано выражением вида:

$$T_{pl}(I) \propto \exp(-\alpha_{pl} I^{c_1} c_2), \quad (2)$$

где α_{pl} – коэффициент поглощения плазмы, $c_{1,2}$ – константы.

Таким образом, для обоих образцов основным механизмом ослабления ультракоротких лазерных импульсов в исследуемом диапазоне интенсивностей является двухфотонное поглощение, что согласуется с шириной запрещенной зоны в ZnS (ширина запрещенной зоны $\Delta E = 3.5 - 3.9 \text{ эВ}$, энергия фотона $E = 2.4 \text{ эВ}$) и соответствует поглощению на азотных центрах окраски в алмазе [10].

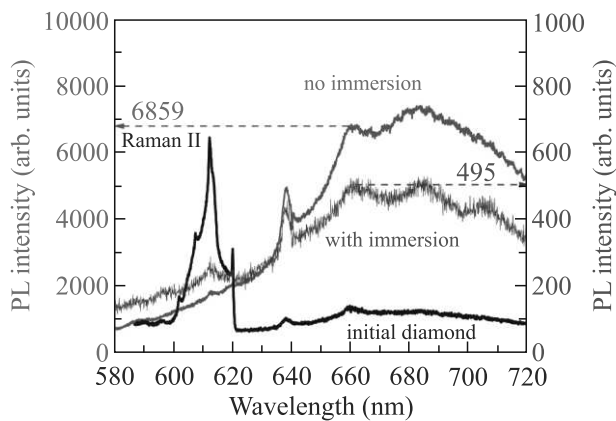


Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектры люминесценции записанной микрометки, зарегистрированные без использования иммерсионного материала (красный) и при его использовании (синий). Черная линия – спектр люминесценции немодифицированного алмаза, снятый без иммерсионной пластины (не в масштабе)

Согласно численному моделированию (Zemax), наложение иммерсионного материала поверх алмаза методом оптического контакта значительно изменяет размер конфокального пятна (рис. 3а) и его положение (Δz на рис. 3с) за счет роста сферической

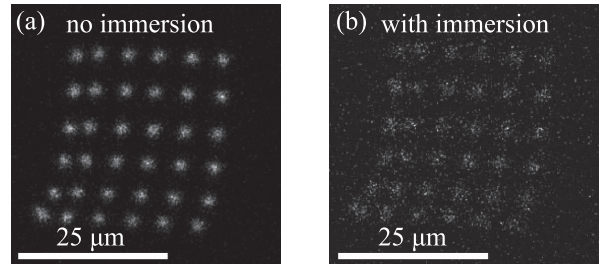


Рис. 5. Массив фотолюминесцентных микрометок, зарегистрированный при помощи конфокального микроскопа (возбуждение 532 нм, люминесценция на длине волны 650 нм): (а) – без наложения; (б) – с наложением иммерсионной пластины

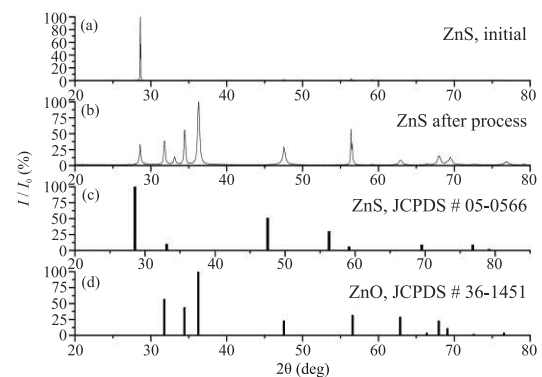


Рис. 6. Рентгенофазовый анализ образцов: (а) – исходный образец ZnS до внедрения алмаза; (б) – периферийная область образцы ZnS после внедрения алмаза; (в) – карточка из рентгенографической базы данных для ZnS JCPDS # 05-0566; (д) – карточка из рентгенографической базы данных для ZnO JCPDS # 36-1451

абберации, что приводит к уменьшению плотности мощности в лазерном пятне (рис. 3б).

В результате нагрева и других лазерно-индуцированных процессов при микромодификации в алмазе происходит перераспределение азота в оптически активные (азотно-вакансионные) центры, например, в 2NV (бесфононная линия (БФЛ) – 503.2 нм) и NV0 (БФЛ – 575 нм), что проявляется в появлении широкой полосы люминесценции в диапазоне 640–700 нм (рис. 4), вызванной фононными повторениями.

Значительное уменьшение пиковой интенсивности люминесценции (≈ 13 раз), вызванное увеличением размера подсвеченной области, однако, не влияет на возможность считывания массива, что показано на рис. 5. Массивы люминесцентных микрометок, снятые в объеме алмаза без использования иммерсии и с наложенной на алмаз методом оптического контакта пластиной ZnS, получены в одинаковых усло-

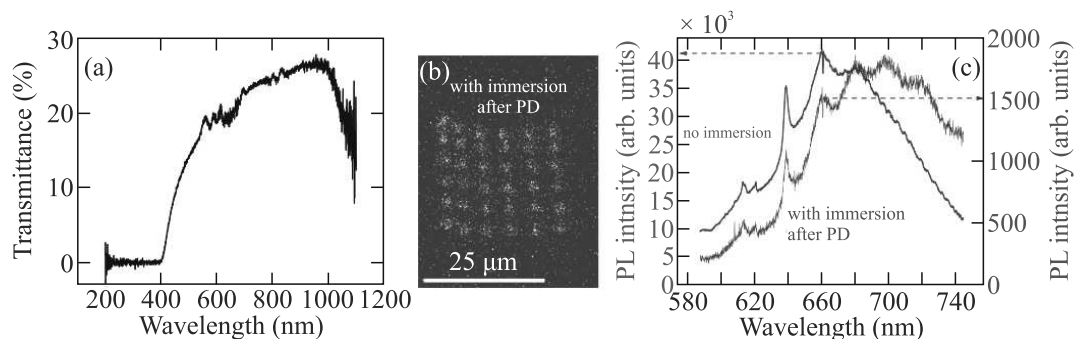


Рис. 7. (а) – Спектр пропускания образца ZnS в видимой области, снятый после процесса горячей пластической деформации. (b) – Снимок массива люминесцентных микрометок на длине волны 650 нм, сделанный через иммерсию, подвергнувшуюся процессу пластической деформации. (с) – Сравнение спектров люминесценции микрометки, зарегистрированных через иммерсию, подвергнувшуюся процессу пластической деформации, и без иммерсии

виях и при одинаковых настройках микроскопа. Снижение контрастности единичной метки, вызванное наложением иммерсии, может быть легко компенсировано увеличением времени выдержки или числа сканирований при съемке.

Проведение фотолюминесцентного сканирования в натуральных неограниченных алмазах позволяет оценить внутренние напряжения кристаллической решетки, а также локализовать точечные дефекты в кристалле, что может быть весьма полезно при огранке. При исследовании неограниченных алмазов метод оптического контакта становится неприменим, так что оптимальным решением является внедрение алмаза в иммерсионную среду методом горячей пластической деформации [6]. При нагреве образца и приложении к нему давления ($T \approx 700^\circ\text{C}$; $P \approx 1.9\text{ МПа}$), происходит помутнение кристалла ZnS, изменение его оптических свойств, что может иметь различную природу. Для оценки возможных изменений фазового состава, происходящих с образцом при проведении процесса пластической деформации, в периферийной области (зона без внедренного алмаза) был выполнен рентгенофазовый анализ образцов (РФА).

На рентгенограмме исходного ZnS (рис. 6а) следует отметить один наиболее интенсивный рентгенографический рефлекс на 28.6° по кристаллографическому направлению (100). Интенсивность остальных рентгенографических рефлексов, представленных на рис. 6а, значительно уменьшена, но они совпадают с данными рентгенографической базы данных для кубической модификации ZnS JCPDS # 05-0556 (рис. 6с). Превалирование интенсивности рефлекса, соответствующего ориентации (100), является характерным для поликристаллического ZnS, выращенного методом CVD, структура которого характеризу-

ется текстурой [11]. Рассчитанный параметр решетки для фазы исходного ZnS $a = 5.399(1)\text{ \AA}$ близок к параметру решетки ZnS кубической модификации из рентгенографической базы данных $a = 5.406\text{ \AA}$ (JCPDS # 05-0556).

После проведения процесса внедрения алмаза в образец ZnS рентгенограмма изменилась (рис. 6b): помимо фазы ZnS, выявлена фаза оксида цинка (рис. 6d), интенсивность рефлексов которой выше, чем у исходного материала. Ее появление связано с тем, что несмотря на проведение процесса пластической деформации в токе аргона, образец находился в открытой, а не герметичной печи. Были рассчитаны параметры решетки для фазы ZnO ($a = 3.250(5)\text{ \AA}$, $c = 5.207(6)\text{ \AA}$) и фазы ZnS ($a = 5.407(4)\text{ \AA}$), которые сходятся с данными рентгенографической базы данных ($a = 3.249\text{ \AA}$, $c = 5.20661\text{ \AA}$).

На рисунке 7а приведен спектр поглощения ZnS в видимой области для образца, прошедшего процедуру пластической деформации. Видно, что в образце происходит как значительное смещение начала полосы пропускания (до 400 нм), так и значительное уменьшение пропускания на важных для люминесцентной маркировки длинах волн, до 15 и 23 % (515 и 1030 нм соответственно). Несмотря на значительное снижение интенсивности прошедшего излучения, экспериментально измеренное нелинейное поглощение образца повышается не так сильно ($\beta_2 = 1.7 \pm \pm 0.18\text{ см}^2/\text{ТВт}^2$), при этом считывание записанной в алмазе люминесцентной микрометки также остается возможным (рис. 7b). Как видно на рис. 7с, снижение пропускания образца сказывается на снижении регистрируемой люминесценции отдельной микрометки, при этом, в отличие от пропускания, снижающегося в 2.6 раза (с 40 до 15 %) при проведении пластической деформации, интенсивность регистрируемо-

го пика люминесценции (660 нм) падает значительно сильнее – в 27 раз.

4. В заключение, успешно проведенная многофотонная фемтосекундная микромаркировка (модификация и считывание) алмаза на длине волны 525 нм через оптический контакт с пластиной ZnS подтверждает применимость данного метода и, в частности, сульфида цинка, как возможного материала для твердотельной иммерсии. Проведенное считывание микромаркировки через ZnS, претерпевший высокотемпературную пластическую деформацию в атмосфере аргона, несмотря на помутнение иммерсионной среды, подтверждает применимость метода при анализе неограниченных алмазов и камней сложной формы.

Финансирование работы. Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект # 21-79-30063).

Конфликт интересов. Авторы не имеют конфликта интересов.

1. R. A. Khmel'nitsky, O. E. Kovalchuk, Y. S. Gulina, A. A. Nastulyavichus, G. Y. Kriulina, N. Y. Boldyrev,

- S. I. Kudryashov, A. O. Levchenko, and V. S. Shiryaev, *Diam. Relat. Mater.* **128**, 109278 (2022).
2. Д. В. Сизмин, *Нелинейная оптика*, учеб. пособие, изд. СаоФТИ, Саров (2015).
3. P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118 (1961).
4. С. А. Ахманов, А. П. Сухоруков, Р. В. Хохлов, *Успехи физических наук* **93**, 1 (1967).
5. Н. Б. Делоне, *Соросовский образовательный журнал* **3**, 75 (1996).
6. Н. А. Смирнов, А. О. Левченко, С. В. Кузнецов, А. Б. Егоров, В. В. Шутов, П. А. Данилов, А. А. Настулявичус, С. И. Кудряшов, А. А. Ионин, *Оптика и спектроскопия* **131**, 2 (2023).
7. E. W. van Stryland and M. Sheik-Bahae, *Proc. SPIE* **10291**, 488 (1997).
8. Ю. С. Гулина, *Оптика и спектроскопия* **130**, 4 (2022).
9. Y. Gulina, J. Zhu, G. Krasin, E. Kuzmin, and S. Kudryashov, *Photonics* **10**(10), 1177 (2023).
10. Y. Dumeige, F. Treussart, R. Alleaume, T. Gacoin, J.-F. Roch, and P. Grangier, *J. Lumin.* **109**(2), 61 (2004).
11. Э. В. Караксина, *Получение и свойства поликристаллического сульфида цинка для ИК оптики, автореферат докт. дисс.*, Нижний Новгород (2004).

Атомный чип и дифракционная решетка для лазерного охлаждения атомов иттербия¹⁾

А. П. Вялых^{+∇2)}, П. И. Скакуненко^{*о}, М. В. Шишова^{+×}, А. В. Семенко⁺, А. Е. Афанасьев^{+*},
Г. С. Белотелов⁺, Д. В. Сутырин⁺, В. И. Балыкин^{*}

⁺ФГУП “Всероссийский научно-исследовательский институт физико-технических и радиотехнических измерений”,
141570 Менделеево Россия

^{*}Институт спектроскопии РАН, 108840 Троицк, Москва, Россия

[×]Московский государственный технический университет имени Н. Э. Баумана, 105005 Москва, Россия

^оМосковский физико-технический институт, 141701 Долгопрудный, Россия

[∇]Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, 115409 Москва, Россия

Поступила в редакцию 25 декабря 2023 г.

После переработки 12 января 2024 г.

Принята к публикации 13 января 2024 г.

В работе изучена возможность использования атомного чипа и дифракционной решетки с целью формирования компактной магнитооптической ловушки для нейтральных атомов иттербия, которая может быть использована при постройке компактных атомных интерферометров и оптических стандартов частоты на ультрахолодных атомах. Для определения первоначальных требований к упомянутым элементам нами проведен эксперимент по лазерному охлаждению изотопов ^{171}Yb и ^{174}Yb в первичной магнитооптической ловушке. Представлены результаты расчетов конструкции атомного чипа, формирующего градиент магнитного поля вплоть до 60 Гс/см. Рассчитаны оптимальные конфигурации дифракционной решетки, позволяющие формировать как первичную, так и вторичную магнитооптическую ловушку.

DOI: 10.31857/S1234567824040050, EDN: szotjc

1. Введение. Ультрахолодные атомы (УХА) активно изучаются во многих лабораториях мира. Это связано с их потенциальными применениями в области квантовых вычислений [1], квантовой метрологии [2], фундаментальной физики [3] и других областях [4–6]. Для достижения предельных параметров по чувствительности УХА используются в атомных интерферометрах (АИ). На их базе уже продемонстрированы гравиметры [7], градиометры [8], гироскопы [9] и оптические стандарты частоты [4]. Точность и чувствительность таких приборов демонстрирует показатели, которые превосходят “классические” аналоги [4, 10]. Это позволяет использовать такие приборы не только для прикладных задач, но и для ряда фундаментальных проблем, например, для детектирования гравитационных волн [11].

Как правило, для построения атомных интерферометров используется атом рубидия, который относится к щелочным металлам. Данный подход от-

личается относительной простотой получения УХА и их дальнейшего использования. При использовании УХА с целью построения оптических стандартов частоты (ОСЧ), как правило, используются атомы других групп периодической системы. Основными в этой области являются атомы Sr и Yb. Использование данных атомов связано с их метрологическими характеристиками, такими как, наличие в оптическом диапазоне спектра переходов с узкими спектральными линиями (называемые также “часовыми”) и их нечувствительность к тепловому излучению. Однако, использование таких атомов влечет за собой усложнение экспериментальных комплексов. По этой причине, развитие атомных интерферометров с использованием атомов Sr и Yb затруднено. Только недавно были рассмотрены [12, 13], а в случае атомов Sr были проведены первые экспериментальные исследования [14] по созданию атомных интерферометров.

Атомы щелочноземельных металлов обладают рядом характеристик, делающих их интересными не только для использования в ОСЧ, но и в атомной интерферометрии. Во-первых, их нулевой угловой мо-

¹⁾См. дополнительный материал к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru

²⁾e-mail: vyalykh@vniiftri.ru

мент в основном состоянии 1S_0 делает эти атомы менее чувствительными, по сравнению с атомами щелочных металлов, к возмущениям, вызванным флуктуациями магнитных полей. Во-вторых, наличие переходов в ультрафиолетовом или близком к нему диапазоне спектра (461 нм для Sr, 399 нм для Yb) позволит увеличить передаваемый атому в атомном интерферометре импульс, что необходимо для увеличения чувствительности. В-третьих, наличие “часового” перехода позволяет создать АИ с крайне низким уровнем фазовых шумов [15] для прецизионных измерений гравитации.

Основой при создании АИ и ОСЧ на УХА являются магнитооптические ловушки (МОЛ), в которых атомы охлаждаются до температур в несколько мК. Для построения ОСЧ такие атомы далее используются в оптических решетках для прецизионной спектроскопии [16, 17]. При создании АИ, атомы, которые освобождаются из МОЛ, взаимодействуют с различными импульсами лазерного излучения. При свободном падении атомов в гравитационном потенциале, например, по картине интерференции, возможно определение ускорения свободного падения. Точность измерений будет определяться стандартным квантовым пределом [18]. По этой причине МОЛ должна формировать атомный ансамбль с большим количеством атомов при минимальной температуре. Помимо этого, с целью построения компактных приборов, которые могут быть размещены на подвижных платформах, габариты МОЛ должны быть минимальными [19].

МОЛ состоит из двух принципиальных элементов (рис. 1): (1) магнитное поле и (2) лазерное поле. В лазерном поле происходит охлаждение атомов. Кроме того, охлаждаемые атомы испытывают на себе действие силы, которая зависит от координаты. Это позволяет произвести концентрацию атомов в определенной пространственной точке. Достичь этого возможно при использовании неоднородного магнитного поля.

В классических трехмерных МОЛ (рис. 1а, б) градиент магнитного поля создается двумя катушками в анти-Гельмгольцевской конфигурации (рис. 1а). Минусом такого подхода являются большие габариты и высокое энергопотребление, что является следствием необходимости создания градиентов магнитных полей 10–50 Гс/см в зависимости от атомов, которые необходимо охлаждать в МОЛ. Лазерное охлаждение организовано с использованием шести лучей (рис. 1б), что требует наличия в вакуумной камере шести окон для осуществления оптического доступа. Помимо этого, необходимо осуществлять контроль

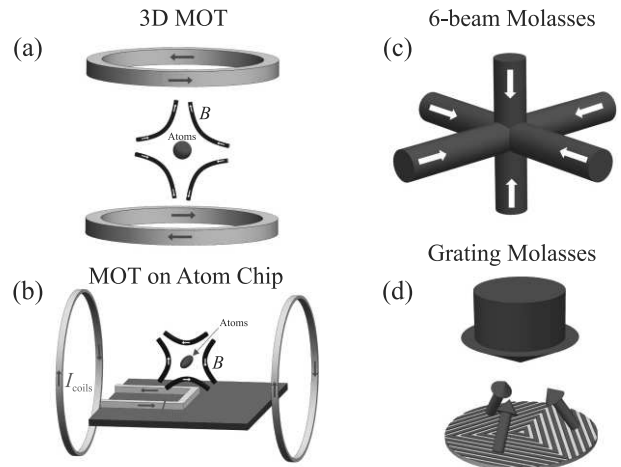


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Классический способ создания квадрупольного магнитного поля для МОЛ – две магнитные катушки в антигельмгольцевской конфигурации. (б) – Создание квадрупольного магнитного поля при помощи атомного чипа. U-образный провод с током в совокупности с внешним однородным магнитным полем (создаваемым небольшими гельмгольцевскими катушками) создает квадрупольное магнитное поле. (с) – Классический способ заведения лазерного излучения в МОЛ – шесть лазерных лучей. (д) – Четырехлучевая МОЛ, формируемая одним лазерным лучом, который дифрагирует на отражательной дифракционной решетке

интенсивности и поляризации каждого из лучей для достижения оптимальных параметров по температуре и количеству атомов в МОЛ.

Для построения транспортируемых версий ОСЧ и АИ каждый из элементов МОЛ может быть оптимизирован по габаритам с использованием планарных технологий. Для построения требуемой конфигурации магнитных полей может быть использован атомный чип (рис. 1с) [20]. В основе использования атомных чипов лежит возможность создания высоких градиентов магнитных полей, которые реализуются вблизи токопроводящих микропроводов. При этом, данный подход не требует высокого потребления мощности [21], что является преимуществом при создании компактных устройств. В свою очередь, для формирования конфигурации лазерных полей, необходимой для охлаждения атомов, могут быть использованы конусные отражатели [22], наклонные призмы [23] или дифракционные решетки [24]. В последнем случае используется планарная технология (рис. 1д), что дает не только меньшие габариты, но и возможность совмещения с атомным чипом для создания единой системы формирования МОЛ. Это было продемонстрировано в работе [25] на атомах рубидия.

В данной работе впервые на основе экспериментальных данных будет рассмотрена возможность использования дифракционных решеток и атомных чипов с целью формирования компактной МОЛ для атомов иттербия. Компактная МОЛ позволит создавать транспортируемые АИ и ОСЧ, реализовав преимущества иттербия – наличие сверхузкого “часового” перехода, низкую чувствительность к возмущениям магнитными полями, увеличенный импульс, передаваемый атомам в АИ.

2. Экспериментальное определение требуемых параметров магнитного поля и параметров лазерного излучения для атомов Yb в МОЛ. Охлаждение и локализацию атомов иттербия можно проводить в две стадии [26]. Вначале происходит охлаждение в “первичной” МОЛ, образованной градиентом магнитного поля и лазерным излучением на длине волны $\lambda_B = 399$ нм, соответствующей переходу $^1S_0 - ^1P_1$. Данный переход характеризуется относительно большой шириной ($\Gamma_s/2\pi \simeq 28$ МГц), что определяет доплеровский предел охлаждения $T_D \approx 1$ мК. Для получения более низких температур необходимо использовать интеркомбинационный переход $^1S_0 - ^3P_1$ с шириной линии $\Gamma_s/2\pi \simeq 182$ кГц на длине волны $\lambda_G = 556$ нм для формирования “вторичной” МОЛ. Доплеровский предел для такого перехода составляет значение $T_D \approx 1$ мК. Необходимость работы с двухчастотным лазерным излучением накладывает дополнительные требования на планарную дифракционную решетку и атомный чип. Помимо этого, для формирования МОЛ атомов Yb используются, как правило, высокие градиенты магнитных полей, вплоть до 50 Гс/см. Это накладывает требования для атомного чипа.

Для определения параметров магнитного и лазерных полей, которые необходимы для расчета атомного чипа и планарной дифракционной решетки, было проведено экспериментальное исследование с трехмерной МОЛ. Ключевыми параметрами являются градиент магнитного поля (ГМП), суммарная интенсивность лазерных лучей МОЛ, а также соотношение между интенсивностями каждого из этих лучей. Первый параметр является ключевым при разработке атомного чипа, остальные – при разработке планарной дифракционной решетки. Критериями нахождения оптимальных значений данных параметров являются достижение наибольшего количества атомов, захваченных в МОЛ, и наименьшей их температуры. Метод расчета количества атомов и их температуры, основанный, в том числе на выкладках [27], а также подробности эксперименталь-

ной установки представлены в дополнительных материалах.

Определение оптимальных параметров магнитного поля производилось в первичной МОЛ для изотопов ^{174}Yb и ^{171}Yb . На рисунке 2а представлена зависимость количества атомов от величины ГМП A . Видно, что для атомов ^{174}Yb ГМП должен составлять значение большее чем $A = 25$ Гс/см, и $A = 26$ Гс/см для атомов ^{171}Yb .

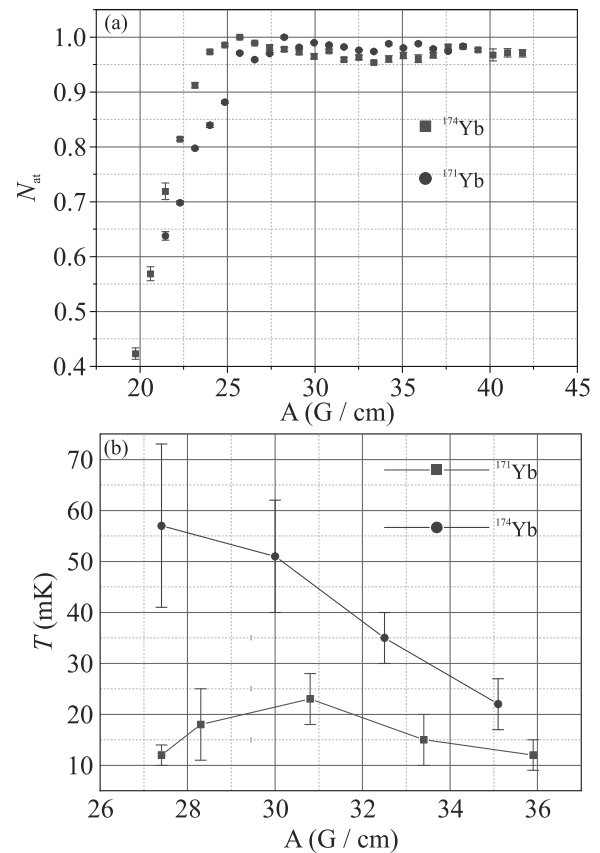


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость количества атомов, захваченных в первичную МОЛ, от величины ГМП A для ^{174}Yb (красные квадраты) и ^{171}Yb (синие круги). График отнормирован: для ^{174}Yb нормировка составляет $16 \cdot 10^6$, а для ^{171}Yb – $3 \cdot 10^6$. (б) – Зависимость температуры T облака атомов ^{171}Yb и ^{174}Yb от величины ГМП A

Измерение температуры атомов в МОЛ, проводилось при суммарной интенсивности лазерных лучей порядка $2I_s$ (I_s – интенсивность насыщения, для перехода $^1S_0 - ^1P_1$ составляет значение 63 мВт/см^2). Результаты, представленные на рис. 2б показывают, что при одинаковых условиях атомы ^{171}Yb охлаждаются до меньшей температуры, чем ^{174}Yb . Так атомы ^{171}Yb удалось охладить до температуры 12 ± 3 мК при ГМП $A = 27.4$ Гс/см. Атомы ^{174}Yb были охла-

ждены до $T = 22 \pm 5$ мК при $A = 35.1$ Гс/см. Из графика (рис. 2b) для ^{174}Yb видна тенденция к уменьшению температуры при увеличении градиента магнитного поля. Меньшая температура, полученная для атомов ^{171}Yb , обусловлена структурой магнитных подуровней нечетных изотопов [28] и характерна для таких систем.

Трехмерная МОЛ, образованная двумя катушками с токами в антигельмгольцевской конфигурации, обладает выделенной осью, направленной по оси соединяющей катушки. В данном направлении градиент магнитного поля выше, чем в перпендикулярных направлениях. По этой причине оптимальная интенсивность лазерного излучения, распространяющегося по центральной оси, будет отличаться от оптимальной интенсивности излучения, распространяющегося по двум другим осям. Для определения оптимальных параметров интенсивности, позволяющих достичь наибольшего количества локализованных атомов при минимальной температуре, проводилось исследование как суммарной интенсивности пучков МОЛ I_{sum} , так и соотношения между интенсивностями центрального пучка и двух боковых. Последний параметр эквивалентен отношению мощности какого-либо из двух боковых лучей МОЛ P_{side} и мощности центрального луча P_{center} : $P_{\text{side}}/P_{\text{center}}$. Количество атомов в МОЛ измерялось для этих параметров из определенного диапазона.

На рисунке 3а представлена диаграмма зависимости количества атомов ^{171}Yb в первичной МОЛ (N_{at}) в зависимости от суммарной интенсивности охлаждающих лучей по отношению к интенсивности насыщения (I_{sum}/I_s) и соотношения мощностей боковых лучей к мощности луча, распространяющегося по оси, соединяющей магнитные катушки ($P_{\text{side}}/P_{\text{center}}$). Измерения проводились при значении ГМП равным 27.4 Гс/см, определенном ранее в качестве оптимального. Видно, что максимальное количество атомов, достигнутое в эксперименте, составило значение $N_{\text{at}} = 3 \times 10^6$ при суммарной интенсивности в области охлаждения $I_{\text{sum}} = 1.6I_s$. Центр области с максимальным количеством захваченных атомов соответствует отношению $P_{\text{side}}/P_{\text{center}} \approx 1.5$. Непрерывной линией обозначена оптимальная область интенсивностей и отношения мощностей при которой формируется МОЛ. При увеличении ГМП происходит увеличение данной области. На рисунке 3а пунктиром представлена область оптимальных параметров при увеличении ГМП до 30.0 Гс/см. При этом центр данной области смещается к значениям отношения мощностей $P_{\text{side}}/P_{\text{center}} \approx 2$, что объясни-

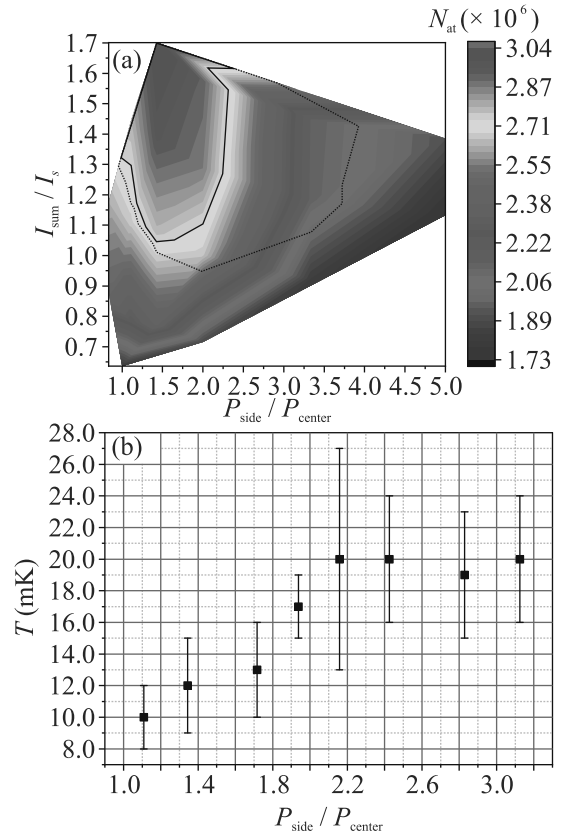


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость количества атомов ^{171}Yb в первичной МОЛ (N_{at}) от суммарной интенсивности охлаждающих лучей по отношению к интенсивности насыщения (I_{sum}/I_s) и соотношения мощностей бокового луча к центральному ($P_{\text{side}}/P_{\text{center}}$). Непрерывной линией обозначена оптимальная область. ГМП составляет 27.4 Гс/см. Пунктиром продемонстрировано, насколько увеличивается оптимальная область при увеличении ГМП до 30.0 Гс/см. (б) – Зависимость температуры облака атомов ^{171}Yb от соотношения мощностей бокового луча к центральному при отношении $I_{\text{sum}}/I_s \approx 1.4$

мо разницей в градиентах магнитных полей в данных направлениях.

Для определения температуры атомного ансамбля были проведены ее измерения при фиксированной суммарной интенсивности лазерных лучей $I_{\text{sum}} = 1.4I_s$ и ГМП равным 27.4 Гс/см. При таких параметрах изменялось отношение мощностей $P_{\text{side}}/P_{\text{center}}$ и проводилось измерение температуры. Результаты представлены на рис. 3б. Видно, что минимальная температура достигается при отношении $P_{\text{side}}/P_{\text{center}} \approx 1$. Это обусловлено равенством сил вязкого трения, а следовательно, и коэффициентов диффузии импульса по всем осям, по которым производится охлаждение атомов.

Видно, что реализация атомного ансамбля с меньшей температурой требует равенства сил трения со стороны лазерного излучения. С другой стороны, для достижения оптимального количества атомов в МОЛ необходим баланс сил, обеспечивающих локализацию атомов в МОЛ. Для этого, при равенстве интенсивностей лазерных лучей, необходимо обеспечить изотропность ГМП. К сожалению, этого достичь в трехмерной МОЛ с антигильмгольцевскими катушками невозможно.

Исходя из проведенных измерений, для дифракционной решетки и атомного чипа могут быть сформулированы следующие требования:

- атомный чип должен обеспечить изотропный градиент магнитного поля со значением не менее 27.4 Гс/см для ^{171}Yb и 40–50 Гс/см для ^{174}Yb по предварительной оценке;
- интенсивность падающего и отраженных от дифракционной решетки лучей должны быть одинаковы для достижения минимальной температуры атомов в МОЛ.

3. Атомный чип для МОЛ атомов иттербия. Из экспериментальных данных следует, что особенностью “первичной” МОЛ является относительно большой ГМП $A > 30$ Гс/см. Это характерно для атомов иттербия [29]. Для создания такого ГМП используются токи, притекающие через антигильмгольцевские магнитные катушки $I \approx 50$ А. Данное обстоятельство ограничивает создание компактных и энергоэффективных установок, поскольку создание таких токов в магнитных катушках требует мощных источников питания.

Требуемое квадрупольное магнитное поле может быть создано при помощи атомного чипа. Простейшей моделью атомного чипа является бесконечно длинный тонкий провод с током в суперпозиции с внешним однородным магнитным полем. В такой модели координата точки локализации атомов (точка, в которой формируется минимум магнитного поля) z_0 и градиент магнитного поля в ней определяются следующими выражениями [20]:

$$z_0 = \frac{\mu_0}{2\pi} \frac{I}{\tilde{B}_{\text{bias}}}, \quad (1)$$

$$B'_z(z_0) = \frac{-2\pi}{\mu_0} \frac{\tilde{B}_{\text{bias}}^2}{I} = -\frac{\tilde{B}_{\text{bias}}}{z_0}, \quad (2)$$

где μ_0 – магнетон Бора, I – сила тока, протекающего через микропровод, $\tilde{B}_{\text{bias}}$ – величина внешнего однородного поля. В такой модели градиент поля $B'_z(z_0) = 50$ Гс/см при разумном расстоянии до чипа $z_0 = 2.5$ мм (заведомо больше радиуса атомного облака) может быть достигнут при величинах

$\tilde{B}_{\text{bias}} = 12.5$ Гс и $I = 15$ А. Создание такого электрического тока, протекающего через микропровод атомного чипа, не требует мощных источников питания. Это связано с тем фактом, что сопротивление микропровода мало (порядка $R \approx 1$ Ом) по сравнению с сопротивлением магнитных катушек трехмерной МОЛ. Стоит отметить, что для формирования внешнего магнитного поля необходимо использовать катушки с током (в гильмгольцевской конфигурации). Однако такие катушки являются более компактными и потребляют меньше энергии в сравнении с антигильмгольцевскими катушками при создании классической МОЛ.

Для формирования трехмерного квадрупольного магнитного поля вблизи атомного чипа необходимо использовать U-образный микропровод [20]. Однако отклонение реального распределения магнитного поля от квадрупольного все же ограничивает область эффективной локализации атомов [30]. Частичной компенсации отклонения можно добиться путем использования широкого U-образного микропровода [20, 30] и дополнительного вертикального магнитного поля. Использование широкого микропровода позволяет также снизить тепловую нагрузку на атомный чип за счет уменьшения омического сопротивления.

На рисунке 4 представлена предлагаемая модель атомного чипа. Для формирования МОЛ вблизи атомного чипа используется геометрия лазерных лучей при которой лазерное излучение отражается под углом 45° от поверхности, так называемая зеркальная МОЛ [31]. По этой причине атомный чип полностью покрывается слоем металла. Предлагаемая конструкция атомного чипа состоит из двух широких U-образных микропроводов (границы которых помечены красным на рис. 4) толщиной 10 мкм, один из которых является запасным. Данные микропровода формируются за счет зазоров шириной 100 мкм в металлическом слое. Длина U-образной дорожки при анализе варьировалась в пределах 5–11 мм для создания оптимального градиента магнитного поля вдоль оси Y . Было определено, что оптимальной является длина, равная 6 мм. При этом ГМП вдоль оси Y составляет значение 40 Гс/см. Анализ показывает, что ширина провода должна быть примерно равна расстоянию от центра формируемой МОЛ до атомного чипа. Данное расстояние должно составлять как минимум $z_0 = 2.5$ мм (заведомо больше радиуса атомного облака), так что в расчетах использовалась ширина микропровода атомного чипа 3 мм. Ближе к краю чипа микропровода уширяются. Это необходимо по двум причинам: 1) уменьшение тепловыделе-

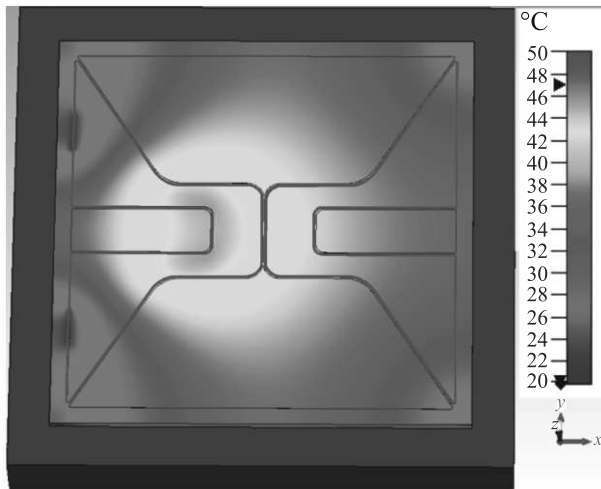


Рис. 4. (Цветной онлайн) Рассматриваемая модель атомного чипа. Красными линиями выделены границы микропроводов. Цветовая карта показывает распределение температуры при протекании через один из проводов (левый) постоянного тока 15 А. Размер чипа 25 × 25 мм. Вся поверхность чипа, за исключением тонких (100 мкм в ширину) канавок (расположенных вдоль красных линий), покрыта металлом, так что поверхность чипа выступает в роли зеркала для лазерных лучей при формировании зеркальной МОЛ

ния за счет уменьшения омического сопротивления и 2) для формирования контактных площадок.

На рисунке 5 представлено распределение магнитного поля вблизи предлагаемого атомного чипа с

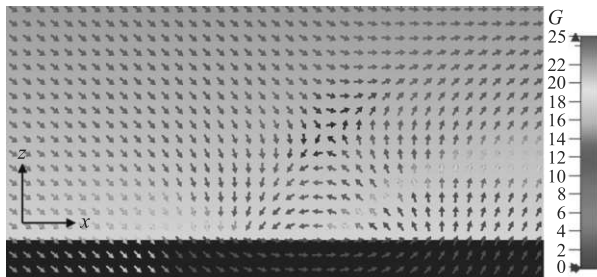


Рис. 5. (Цветной онлайн) Распределение магнитного поля вблизи атомного чипа, представленного на рис. 3, в плоскости, перпендикулярной центральным частям проводов. Ток, пропускаемый через провод, $I = 15$ А. Внешнее однородное магнитное поле $B_{\text{bias}} = (12.6; 0; 6.3)$ Гс. Оно было подобрано с целью оптимизации распределения суммарного магнитного поля

учетом оптимизации внешнего однородного магнитного поля. ГМП составляет 60 Гс/см в направлении лазерных лучей, отражающихся от поверхности чипа, и 40 Гс/см вдоль провода (вдоль оси Y). Такие значения градиентов магнитного поля достаточны для реализации МОЛ атомов иттербия (см. рис. 2а).

Представленные результаты расчета распределения магнитного поля получены при следующих параметрах: сила электрического тока, протекающего через микропровод, равна $I = 15$ А; внешнее однородное магнитное поле $B_{\text{bias}} = (12.6; 0; 6.3)$ Гс.

Пропускание электрического тока через микропровод атомного чипа приводит к его нагреву. Это одна из существенных проблем использования атомных чипов. Во-первых, недостаточный отвод тепла приводит к перегреву и разрушению микропровода. Во-вторых, даже в условиях, когда температура микропровода ниже температуры плавления и не происходит его разрушения, дополнительный нагрев может вызывать локальное ухудшение вакуума вблизи атомного чипа. Это обстоятельство приведет к уменьшению времени жизни атомов в МОЛ и, как следствие, к уменьшению общего количества локализованных атомов. Последнее обстоятельство скажется на стабильности атомных часов.

На рисунке 4 приведен результат моделирования температурного распределения при пропускании через один из микропроводов тока величиной 15 А. Параметры расчета были аналогичны использованным ранее в работе [32]. Из рисунка 4 видно, что максимальное значение температуры составляет значение порядка 50 °С. Это значение не является критическим с точки зрения функционирования атомного чипа. Помимо этого, полученное значение температуры значительно ниже 100 °С, поэтому мы не ожидаем существенного изменения давления остаточных газов вблизи атомного чипа. Значение 100 °С выбрано в качестве границы допустимого режима работы чипа по следующим причинам. Во-первых, при превышении данной температуры с поверхности тел, в данном случае с поверхности атомного чипа, начинается активное испарение водяных паров и прочих примесей. Это ухудшает локальный вакуум вблизи атомного чипа и, как следствие, уменьшает время жизни атомов в МОЛ. Во-вторых, при температуре выше 100 °С сильно начинает сказываться зависимость сопротивления от температуры. Это приводит к тому факту, что температура поверхности начинает нелинейным образом зависеть от величины протекающего тока. По этой причине малое увеличение силы тока может привести к резкому возрастанию температуры и повреждению микропроводов.

Предлагаемая структура (слои) атомного чипа, который может быть создан с использованием подхода, рассмотренного в [32], описана в дополнительных материалах.

Загрузку такого атомного чипа необходимо осуществлять стандартным методом из атомного пучка.

При этом, для повышения плотности потока атомов может быть использован подход фокусировки атомного пучка в область охлаждения вблизи атомного чипа [33, 34].

4. Дифракционная решетка для формирования лазерных лучей МОЛ атомов иттербия. Для создания оптической системы, которая может быть использована для построения компактной МОЛ, можно использовать планарные дифракционные решетки [24]. В основе данного подхода лежит формирование охлаждающего лазерного поля, действующего по всем пространственным направлениям, за счет дифракции одного лазерного луча на планарной структуре (рис. 1d). Это позволяет создавать компактные МОЛ, для работы которых необходим только один лазерный луч, а не шесть как в “классическом” трехмерном варианте. Возможны различные конфигурации планарных структур, которые формируют требуемую для охлаждения конфигурацию лазерного поля [35]. В случае охлаждения атомов иттербия рассмотрены решетки как для формирования только первичной МОЛ [36], так и решетки позволяющие сформировать охлаждающее поле на двух длинах волн одновременно [37]. Планарные решетки для двух длин волн были экспериментально продемонстрированы для атомов Sr [38]. Мы рассмотрели задачу, в которой область охлаждения, формируется за счет перекрытия трех взаимоперпендикулярных лучей как для “первичной” МОЛ, так и для “вторичной”.

Лазерные пучки, необходимые для формирования оптического поля в МОЛ, должны формировать как можно больший объем перекрытия в области захвата атомов [39] при равенстве мощности и сохранении круговой поляризации в пучках. При этом надо учесть, что дифракционные решетки обладают дисперсией, и одна и та же дифракционная решетка не позволит сформировать одинаковое распределение поля для разных длин волн, относящиеся к двум стадиям охлаждения атомов в МОЛ. Рассмотрим три различных конфигурации, показанные на рис. 6. Для удобства конструирования будем проводить расчет параметров планарной дифракционной решетки для угла дифракции $\varphi_m^{\text{ref}} = 45^\circ$. Тогда период должен составлять значение $d_B = 564 \text{ нм}$ для излучения на длине волны $\lambda_B = 399 \text{ нм}$ и $d_G = 786 \text{ нм}$ при $\lambda_G = 556 \text{ нм}$. При дифракции излучения с длиной волны $\lambda_B = 399 \text{ нм}$ на решетке с периодом $d_G = 786 \text{ нм}$, угол дифракции составит $\varphi_m^{\text{ref}} \approx 30.5^\circ$, что также является приемлемым с точки зрения баланса сил светового давления [37].

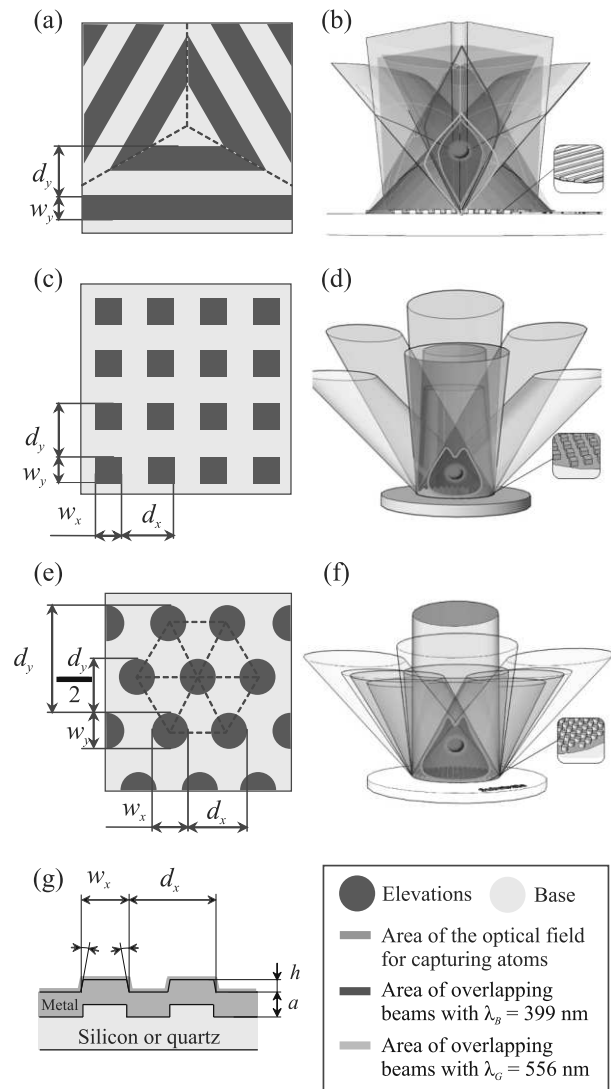


Рис. 6. (Цветной онлайн) Схемы планарных дифракционных решеток для формирования оптического поля в МОЛ: (a), (b) – тип 1, каждый сектор заполнен дифракционными решетками с ориентацией штрихов под углом 30° , 90° и 150° соответственно в полярной системе координат; (c), (d) – тип 2, с квадратной упаковкой квадратных элементов; (e), (f) – тип 3, с треугольной упаковкой круглых элементов; (g) – профиль рельефа при изготовлении: h – высота поверхностного рельефа, a – толщина металлизированного слоя, β – допустимая клиновидность профиля

В таблице 1 представлены геометрические параметры рассмотренных решеток. Высота профиля рельефа h определялась по результатам решения задачи дифракции на периодической структуре. Так как требуется сохранить круговую поляризацию в дифрагированных порядках, необходимо минимизировать разницу дифракционной эффективности для

двух взаимоперпендикулярных состояний поляризации TE (Transverse Electric) и TM (Transverse Magnetic), при которых вектор электрического поля колеблется в направлении штрихов дифракционной решетки и перпендикулярно, соответственно.

Таблица 1. Геометрические параметры дифракционных решеток

Тип	d_x , нм	d_y , нм	$\frac{w_x}{d_x}$	$\frac{w_y}{d_y}$	Металл	h , нм	a , нм
1	—	786	—	0.5	Al	116	100
2	786	786	0.5	0.5	Ag	113	130
3	1361	786	0.5	0.3	Ag	97	110

Важным параметром является объем перекрытия дифрагированных порядков. Он будет определять область эффективного охлаждения атомов. Рассмотрим дифракционную решетку с рабочей областью диаметром 25 мм. В рассматриваемой геометрии дифракции необходимо анализировать зависимость дифракционной эффективности ± 1 -го максимума дифракции от высоты профиля рельефа. Дифракция в остальные максимумы является паразитной, но так как в случае симметричного бинарного профиля рельефа ее невозможно минимизировать, рассмотрена дифракционная эффективность в ± 1 -х максимумах. На рисунке 7 показаны результаты решения задачи определения эффективности дифракции для трех типов рассматриваемых решеток. Для анализа использовался метод связанных волн [40].

Зависимость дифракционной эффективности от фактора заполнения не исследовалась. Для каждого из случаев рассмотрены три типа металлизации дифракционных решеток: алюминий, серебро и золото. Вертикальными линиями показаны высоты профиля рельефа, которые удовлетворяют условиям наименьшей разности дифракционной эффективности для TE- и TM-поляризации. Выбор конкретной высоты для последующего изготовления проводился в пользу наименьшей из возможных высот рельефа для повышения точности при изготовлении.

В случае трехсекторной дифракционной решетки первого типа (рис. 7а) оптимальным материалом металлизации является алюминий. Оптимальная дифракционная эффективность составляет значения: $\eta_{\pm 1}^{TM} = 32.7\%$, $\eta_{\pm 1}^{TE} = 45.2\%$ для $\lambda_B = 399$ нм и $\eta_{\pm 1}^{TM} = 47.0\%$, $\eta_{\pm 1}^{TE} = 32.7\%$ для $\lambda_G = 556$ нм. Данные значения реализуются при высоте профиля штриха, равном $h_1 = 116$ нм. Объем области перекрытия лазерных лучей (помечен на рис. 5b фиолетовым) составляет значение $\sim 511 \text{ мм}^3$. Из рисунка 6а

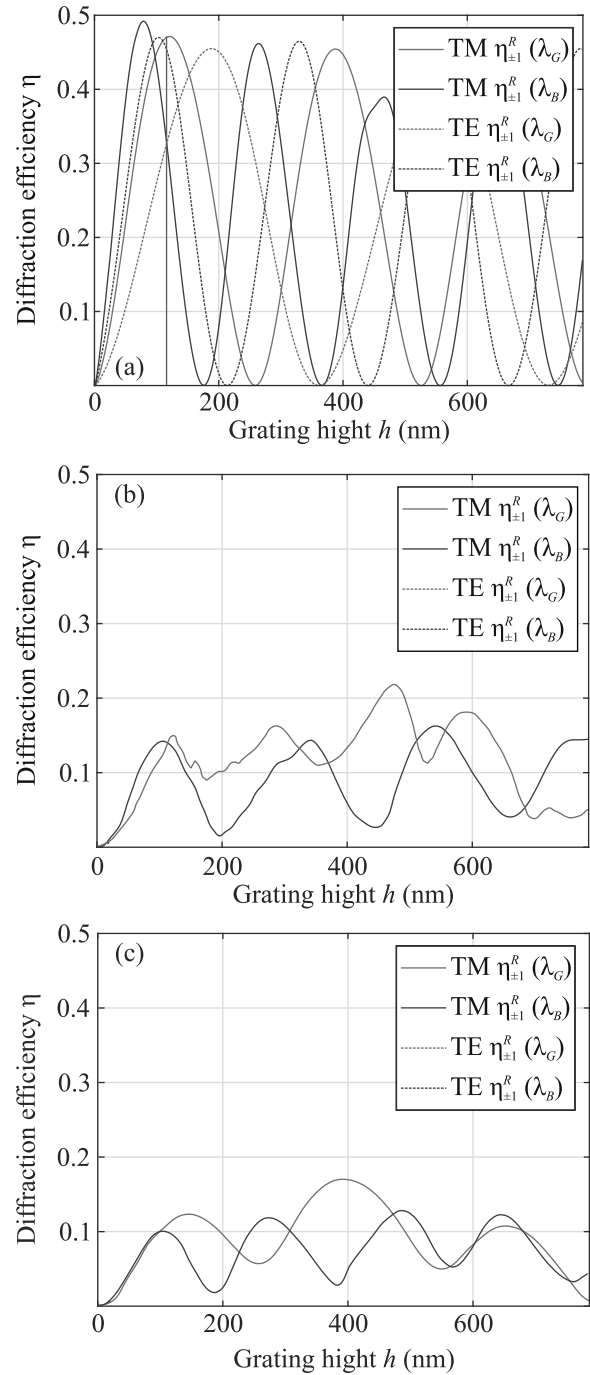


Рис. 7. (Цветной онлайн) Графики зависимости дифракционной эффективности в ± 1 -х максимумах дифракции от глубины профиля рельефа для излучения с длинами волн $\lambda_B = 399$ нм и $\lambda_G = 556$ нм: (а) – тип 1, бинарный профиль, материал: алюминий; (б) – тип 2, материал: серебро; (с) – тип 3, материал: серебро. В случае дифракции на решетках второго и третьего типов, эффективность дифракции будет одинакова для TE и TM поляризаций в силу симметрии. Красной линией отмечена оптимальная глубина профиля рельефа

видно, что невозможно полностью согласовать эффективность дифракции для ТЕ и ТМ поляризаций для всех двух длин волн. По этой причине, дифрагированное излучение будет иметь эллиптическую поляризацию.

Для дифракционной решетки второго типа (рис. 7b) с квадратной упаковкой наилучшим является изготовление квадратных элементов решетки из серебра. В силу симметрии дифракционная эффективность для ТЕ и ТМ поляризаций в этом случае будут одинаковы. Оптимум достигается при высоте штрихов $h_2 = 113$ нм. При этом дифракционная эффективность составит $\eta_{\pm 1}^{TM} = \eta_{\pm 1}^{TE} = 14.0\%$ для $\lambda_B = 399$ нм и $\lambda_G = 556$ нм. Объем области перекрытия лазерных лучей (рис. 6d) составляет значение ~ 2045 мм³. Это наибольшее значение достигнутое при рассмотрении трех типов решеток.

В случае дифракционной решетки третьего типа (рис. 7c) с треугольной упаковкой круглых элементов оптимальной является геометрия алюминиевых столбиков высотой $h_3 = 97$ нм. В силу симметрии дифракционная эффективность для ТЕ и ТМ поляризаций в этом случае так же будет одинаковой: $\eta_{\pm 1}^{TM} = \eta_{\pm 1}^{TE} = 10.0\%$ для $\lambda_B = 399$ нм и $\lambda_g = 556$ нм. Объем области перекрытия лазерных лучей (рис. 6d) составляет значение ~ 885 мм³.

5. Заключение. Наши расчеты показали, что при использовании атомного чипа, для создания квадрупольного поля с целью локализации атомов иттербия, возможно достичь требуемых параметров поля, которые определены нами в эксперименте. При токах через микропровод порядка 15 А градиенты магнитных полей вблизи поверхности достигают 50 Гс/см, что достаточно для локализации обоих рассматриваемых изотопов иттербия: ^{171}Yb и ^{174}Yb . Лазерное излучение при этом может распространяться в конфигурации зеркальной МОЛ.

По результатам расчета дифракционных решеток, сложно выделить одно оптимальное решение, в котором сбалансированы три фактора: обеспечение высокой дифракционной эффективности, сохранение состояния поляризации после дифракции и большой объем области пространственного перекрытия лазерных пучков. Поэтому все предложенные реализации потребуют экспериментальной проверки с целью исследования количества атомов, захваченных с помощью каждого типа дифракционных решеток.

После независимого экспериментального исследования предложенных подходов, мы планируем исследовать возможность совмещения атомного чипа и дифракционной решетки в одной компактной установке ОСЧ на холодных атомах иттербия.

Финансирование работы. В работе разработка атомного чипа финансировалась за счет средств Госзадания FFUU-2021-0003 и средств бюджета ФГУП “Всероссийский научно-исследовательский институт физико-технических и радиотехнических измерений”. Остальные исследования финансировались за счет средств бюджета ФГУП “Всероссийский научно-исследовательский институт физико-технических и радиотехнических измерений”.

Конфликт интересов. Авторы заявляют, что у них нет известных конкурирующих финансовых интересов или личных отношений, которые могли бы повлиять на работу, представленную в этой статье.

1. H. Häffner, C. F. Roos, and R. Blatt, Phys. Rep. **469**, 155 (2008).
2. Boulder Atomic Clock Optical Network (BACON) Collaboration, Nature **591**, 564 (2021).
3. M. G. Tarallo, T. Mazzoni, N. Poli, D. V. Sutyryn, X. Zhang, and G. M. Tino, Phys. Rev. Lett. **113**, 023005 (2014).
4. A. D. Ludlow, M. M. Boyd, J. Ye, E. Peik, and P. O. Schmidt, Rev. Mod. Phys. APS **87**, 637 (2015).
5. C. J. Kennedy, G. A. Siviloglou, H. Miyake, W. C. Burton, and W. Ketterle, Phys. Rev. Lett. **111**, 225301 (2013).
6. I. Bloch, J. Dalibard, and S. Nascimbene, Nat. Phys. **8**, 267 (2012).
7. V. Ménot, P. Vermeulen, N. Le Moigne, S. Bonvalot, P. Bouyer, A. Landragin, and B. Desruelle, Sci. Rep. **8**, 1 (2018).
8. F. Migliaccio, M. Reguzzoni, K. Batsukh, G. M. Tino, G. Rosi, F. Sorrentino, C. Braitenberg, T. Pivetta, D. F. Barbolla, and S. Zoffoli, Surv. Geophys. **40**, 1029 (2019).
9. I. Dutta, D. Savoie, B. Fang, B. Venon, C. L. Garrido Alzar, R. Geiger, and A. Landragin, Phys. Rev. Lett. **116**, 183003 (2016).
10. S.-Y. Dai, F. S. Zheng, K. Liu, W.-L. Chen, Y.-G. Lin, T.-C. Li, and F. Fang, Chin. Phys. B **30**, 13701 (2021).
11. P. W. Graham, J. M. Hogan, M. A. Kasevich, and S. Rajendran, Phys. Rev. Lett. **110**, 171102 (2013).
12. M. A. Norcia, J. R. K. Cline, and J. K. Thompson, Phys. Rev. A. **96**, 042118 (2017).
13. B. Canuel, A. Bertoldi, L. Amand et al. (Collaboration), Sci. Rep. **8**, 14064 (2018).
14. L. Hu, N. Poli, L. Salvi, and G. M. Tino, Phys. Rev. Lett. **119**, 263601 (2017).
15. L. Hu, E. Wang, L. Salvi, J. N. Tinsley, G. M. Tino, and N. Poli, Class. Quantum Gravity **37**(1), 014001 (2019).
16. V. S. Letokhov and B. D. Pavlik, Appl. Phys. **9**, 229 (1976).

17. H. Katori, M. Takamoto, V.G. Pal'Chikov, and V.D. Ovsiannikov, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 173005 (2003).
18. G. Santarelli, Ph. Laurent, P. Lemonde, A. Clairon, A.G. Mann, S. Chang, A.N. Luiten, and C. Salomon, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4619 (1999).
19. N. Poli, M. Schioppo, S. Vogt, St. Falke, U. Sterr, Ch. Lisdat, and G.M. Tino, *Appl. Phys. B. Springer* **117**, 1107 (2014).
20. J. Reichel and V. Vuletic, *Atom chips*, John Wiley & Sons, Berlin (2011).
21. J.D. Weinstein and K.G. Libbrecht, *Phys. Rev. A* **52**(5), 4004 (1995).
22. J.A. Kim, K.I. Lee, and H.R. Noh, *Opt. Lett.* **22**, 117 (1997).
23. M. Vangeleyn, P.F. Griffin, E. Riis, and A.S. Arnold, *Opt. Express* **17**, 13601 (2009).
24. W.R. McGehee, W. Zhu, and D.S. Barker, *New J. Phys.* **23**, 13021 (2021).
25. L. Chen, C.J. Huang, and X.B. Xu, *Phys. Rev. Appl.* **17**(3), 34031 (2022).
26. D. Ai, H. Qiao, and S. Zhang, *Chin. Physics B* **29**(9), 090601 (2020).
27. Z. Hu and H.J. Kimble, *Opt. Lett.* **19**, 1888 (1994).
28. R. Maruyama, R.H. Wynar, and M.V. Romalis, *Phys. Rev. A* **68**(1), 011403 (2003).
29. A. Kawasaki, B. Braverman, Q. Yu, and V. Vuletic, *J. Phys. B: At. Mol.* **48**(15), 155302 (2015).
30. S. Wildermuth, P. Krüger, C. Becker, M. Brajdic, S. Haupt, A. Kasper, R. Folman, and J. Schmiedmayer, *Phys. Rev. A* **69**, 030901 (2004).
31. J. Reichel, W. Hänsel, and T.W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **83**(17), 3398 (1999).
32. A.E. Afanasiev, A.S. Kalmykov, R.V. Kirtaev, A.A. Kortel, P.I. Skakunenko, D.V. Negrov, and V.I. Balykin, *Opt. Laser Technol.* **148**, 107698 (2022).
33. A.E. Afanasiev, D.V. Bykova, P.I. Skakunenko, and V.I. Balykin, *JETP Lett.* **115**, 509 (2022).
34. D.V. Bykova, A.E. Afanasiev, and V.I. Balykin, *JETP Lett.* **118**(1), 14 (2023).
35. C.C. Nshii, M. Vangeleyn, J.P. Cotter, P.F. Griffin, E.A. Hinds, C.N. Ironside, P. See, A.G. Sinclair, E. Riis, and A.S. Arnold, *Nat. Nanotechnol.* **8**(5), 321 (2013).
36. X. Sun, W.D.A. Rickard, B.M. Sparkes, B.R. White, R.F. Offer, A.N. Luiten, and C.N. Ironside, **29**(23), 37733 (2021).
37. O.S. Burrow, R.J. Fasano, W. Brand, M.W. Wright, W. Li, A.D. Ludlow, E. Riis, P.F. Griffin, and A.S. Arnold, *arXiv preprint*, arXiv:2306.17080 (2023).
38. S. Bondza, C. Lisdat, S. Kroker, and T. Leopold, *Phys. Rev. Appl.* **17**, 044002 (2022).
39. M. Vangeleyn, P.F. Griffin, E. Riis, and A.S. Arnold, *Opt. Lett.* **35**, 3453 (2010).
40. M.G. Moharam, E.B. Grann, D.A. Pommet, and T.K. Gaylord, *J. Opt. Soc. Am. A* **12**, 1068 (1995).

Магнитная структура Fe_5O_6 : теоретико-групповой анализ и DFT-расчет

В. С. Жандун^{+*1)}, Н. В. Казак⁺, Д. М. Васюков^{×°}

⁺Институт физики им. Л. В. Киренского – обособленное подразделение Федерального исследовательский центр “Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук”, 660036 Красноярск, Россия

^{*}Красноярский государственный медицинский университет им. проф. В. Ф. Войно-Ясенецкого, 660022 Красноярск, Россия

[×]Division of Synchrotron Radiation Research, Department of Physics, Lund University, 221 00 Lund, Sweden

[°]Materials Science and Applied Mathematics, Malmö University, 204 06 Malmö, Sweden

Поступила в редакцию 22 ноября 2023 г.

После переработки 26 декабря 2023 г.

Принята к публикации 29 декабря 2023 г.

Магнитная структура Fe_5O_6 изучена теоретически путем комбинации теоретико-группового анализа и DFT + U расчетов электронного спектра. Расчет выполнен для магнитного вектора $k = (0, 0, 0)$. Основное магнитное состояние отвечает ортогональному упорядочению двух магнитных подсистем: магнитные моменты ионов $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ в октаэдрических узлах (пластины октаэдров) направлены вдоль c -оси и антиферромагнитно упорядочены, в то время как магнитные моменты ионов Fe^{2+} в тригональных призмах, образующих цепочки, направлены вдоль оси b и антиферромагнитно связаны вдоль оси c . Появление ненулевой антиферромагнитной компоненты магнитных моментов в пластинах октаэдров вдоль b -оси является следствием влияния магнитных цепочек на трехмерную магнитную структуру.

DOI: 10.31857/S1234567824040062, EDN: szrdgv

1. Введение. Кристаллохимия и физические свойства новых оксидов железа высокого давления, образующих гомологический ряд $n\text{FeO} \cdot m\text{Fe}_2\text{O}_3$ (Fe_4O_5 , Fe_5O_6 , Fe_5O_7 и др.), представляют большой интерес с момента своего открытия [1–14]. Кристаллическая структура этих оксидов состоит из двух основных строительных блоков: кислородные октаэдры FeO_6 , соединенные общими ребрами, формируют пластины, разделенные цепочками призматически координированных ионов Fe. Некоторые представители этого ряда оксидов стабильны при нормальном давлении, что позволяет тщательно исследовать их физические свойства [3, 7]. Материалы являются соединениями со смешанной валентностью, обнаруживая аномалии электросопротивления, связанные с зарядовым упорядочением [3, 7] и фазовые переходы, подобные переходу Вервея [15].

Недавно, в [12] был предложен общий подход для данных оксидов, основанный на порождающем кристаллографическом механизме этого гомологического ряда. Оказалось, что все многообразие кристаллических структур данного ряда может быть сгенерировано из структуры вюстита (FeO) регулярным

двойникованием плоскостью симметрии на масштабе элементарной ячейки. Периодичность или, другими словами, цикл этого двойникования, является ключевым фактором, который определяет симметрию, стехиометрию и степень окисления порожденных структур, а также естественным образом делит гомологический ряд на две подгруппы: ромбическое N – семейство и моноклинное N , $N+1$ семейство [12]. Первое семейство построено на простом одночленном цикле, т.е. повторении одной пластины, состоящей из N октаэдров, например, $\eta\text{-Fe}_2\text{O}_3$, $\text{HP-Fe}_3\text{O}_4$, Fe_4O_5 и Fe_5O_6 с $N = 1, 2, 3$ и 4 , соответственно. В основе второго семейства лежит двухчленный цикл, т.е. структуры генерируются чередующимися пластинами разной ширины, N и $N+1$, и включает в себя оксиды Fe_5O_7 , Fe_7O_9 и Fe_9O_{11} . Для N -семейства была выдвинута гипотеза общей магнитной структуры, в которой коллинеарные подсистемы пластин, состоящих из октаэдров, и цепочек упорядочены ортогонально друг относительно друга [12]. Полученная структура будет либо ферромагнитной, либо антиферромагнитной, в зависимости от того, является ли N нечетным или четным, соответственно.

На сегодняшний день наиболее исследованы ромбические оксиды с $N = 3$. Многочисленные данные

¹⁾e-mail: jvc@iph.krasn.ru

магнитных измерений и прямые исследования магнитной структуры методом нейтронной дифракции ряда изоструктурных оксидов $\text{Me}^{2+}\text{Fe}_3\text{O}_5$, в которых призматические узлы заняты двухвалентными ионами Mn, Co, Ca, показали, что вблизи 300 К в пластинах октаэдров возникает коллинеарный антиферромагнитный порядок спинов и магнитные моменты направлены вдоль оси c , тогда как ферромагнитный спиновый порядок в цепочках вдоль оси b возникает независимо и при гораздо более низких температурах (~ 100 К) [16–19].

Теоретическое исследование магнитной структуры оксидов с $N = 3$ выполнено нами в работе [20]. Был применен комплексный подход, основанный на комбинации теоретико-группового анализа возможных магнитных структур с последующим DFT расчетом энергий этих структур. На примере Fe_4O_5 показано, что наименьшей энергии соответствует магнитная фаза с $k = (0, 0, 0)$, которая характеризуется ферромагнитным упорядочением моментов железа в призматических узлах вдоль оси b и антиферромагнитным упорядочением моментов железа в октаэдрических узлах вдоль оси c [20]. Таким образом, основное магнитное состояние отвечает ортогональному спиновому порядку и согласуется с магнитной структурой, предложенной в работе [12]. Однако, остается неподтвержденным аспект гипотезы, касающийся изменения ферромагнитного состояния на антиферромагнитное при изменении ширины пластины с нечетного на четное N .

Предметом данного исследования является Fe_5O_6 , в котором пластины имеют четную ширину, $N = 4$. Измерения магнитной восприимчивости данного оксида показали, что материал испытывает антиферромагнитный переход при $T_N = 100$ К [7]. Низкотемпературные измерения ($T < T_N$) обнаружили аномалии полевых зависимостей намагниченности, связанные с трансформацией антиферромагнитной подсистемы во внешнем поле. Спектры эффекта Мессбауэра, измеренные при комнатной температуре и нормальном давлении, аппроксимируются суммой двух компонент: парамагнитный дублет, связанный с ионами Fe^{2+} в призматическом окружении и магнитный секстет, приписанный ионам $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ в октаэдрическом окружении, что соответствует отношению площадей спектральных компонент $A(\text{Fe}^{\text{pr}}):A(\text{Fe}^{\text{oct}}) = 0.19:0.81$ [12]. Таким образом, имеющиеся магнитные данные по Fe_5O_6 , указывают на то, что при комнатной температуре сосуществуют магнитоупорядоченная и неупорядоченная подсистемы.

В настоящей работе комбинация теоретико-группового анализа неприводимых представлений и расчеты в рамках теории функционала плотности применены к анализу магнитной структуры Fe_5O_6 .

2. Методы расчета. DFT расчеты проводились в рамках пакета VASP [21] с использованием PAW псевдопотенциалов [22]. В расчетах использовалась PBE параметризация обменно-корреляционного функционала и обобщенное градиентное приближение [23]. Для атома Fe использовалась валентная конфигурация $3d^6 4s^2$, для атома O – $2s^2 2p^2$. Спин-орбитальная связь (SOC) была включена во время всех расчетов DFT-GGA. Энергия обрезания плоской волны составляла 500 эВ. Для интегрирования зоны Бриллюэна мы использовали сетки особых точек Монкхорста–Пака $11 \times 4 \times 3$ [24]. Критерии сходимости по энергии составляли 10^{-5} и 10^{-4} эВ для электронной и ионной релаксации соответственно. Для наилучшего соответствия экспериментальных [7] и теоретических значений ширины запрещенной зоны мы использовали подход GGA + U в приближении Дударева [25] и параметр Кулона $U = 3.2$ эВ. Для построения магнитных конфигураций с вектором распространения $k = (0, 0, 0)$ использовалась программа BASIREPS [26].

3. Результаты и обсуждение. Оксид железа Fe_5O_6 обладает ромбической элементарной ячейкой (пространственная группа $Cmcm$). Ячейка содержит 4 формульные единицы и имеет три симметрично-неэквивалентные позиции железа (рис. 1). Два атома

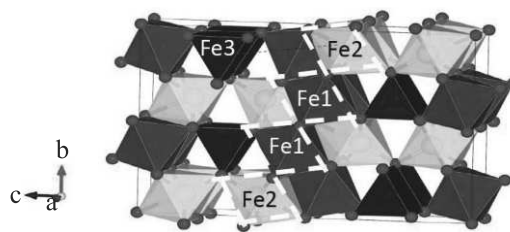


Рис. 1. (Цветной онлайн) Кристаллическая структура Fe_5O_6 . Симметрично-неэквивалентные атомы железа показаны фиолетовым (Fe1), желтым (Fe2) и синим (Fe3) цветом. Пунктиром показана пластина октаэдров $N = 4$. Все рисунки кристаллических и магнитных структур в данной статье созданы с использованием программного обеспечения VESTA [27]

железа Fe1 и Fe2 находятся в октаэдрическом кислородном окружении (позиция Вайкоффа 8f), третий атом железа Fe3 имеет в окружении тригональную призму, сформированную атомами кислорода (позиция Вайкоффа 4c). Оптимизированные параметры элементарной ячейки составляют $a = 2.89$ Å,

Таблица 1. Неприводимые представления (IrReps), магнитные группы симметрии и базисные векторы узлов 8*f* (Fe1 и Fe2) и 4*c* (Fe3) для вектора распространения $k = (0, 0, 0)$ в Fe₅O₆. Приведены только магнитонезависимые атомы Fe_{*i*}, где $i = 1-10$

IrReps/Магнитные группы	Базисные вектора									
	Fe ₁	Fe ₂	Fe ₃	Fe ₄	Fe ₅	Fe ₆	Fe ₇	Fe ₈	Fe ₉	Fe ₁₀
	Fe1 (8 <i>f</i>)				Fe2 (8 <i>f</i>)				Fe3 (4 <i>c</i>)	
$m\Gamma_1^- / Cm'c'm' (\# 63.465)$	0uv	0-uv	0u-v	0-u-v	0uv	0-uv	0u-v	0-u-v	0u0	0-u0
$m\Gamma_2^+ / Cm'c'm (\# 63.462)$	0uv	0-uv	0-uv	0uv	0uv	0-uv	0-uv	0uv	00u	00u
$m\Gamma_2^- / Cmc'm' (\# 63.461)$	u00	-u00	u00	-u00	u00	-u00	u00	-u00	u00	-u00
$m\Gamma_4^+ / Cm'cm' (\# 63.464)$	0uv	0u-v	0u-v	0uv	0uv	0u-v	0u-v	0uv	0u0	0u0
$m\Gamma_3^+ / Cmc'm' (\# 63.463)$	u00	u00	u00	u00	u00	u00	u00	u00	u00	u00
$m\Gamma_3^- / Cm'cm (\# 63.459)$	0uv	0u-v	0-uv	0-u-v	0uv	0u-v	0-uv	0-u-v	00u	00-u

$b = 10.08 \text{ \AA}$, $c = 15.51 \text{ \AA}$ и $V = 426 \text{ \AA}^3$, что в пределах 3% согласуется с экспериментальными значениями, указанными в работе [6]. Четыре октаэдра, соединенные общими ребрами в последовательности Fe2-Fe1-Fe1-Fe2 формируют пластину шириной $N = 4$. Ионы железа в позиции Fe3 создают цепочки вдоль *a*-оси. Средние значения длин связей $\langle \text{Fe-O} \rangle$ составляют $\langle d_{\text{Fe1-O}} \rangle = 2.09 \text{ \AA}$, $\langle d_{\text{Fe2-O}} \rangle = 2.14 \text{ \AA}$, $\langle d_{\text{Fe3-O}} \rangle = 2.20 \text{ \AA}$. Наибольшая длина связи наблюдается в призме Fe₃O₆, подразумевая, что данный узел занят ионами железа в двухвалентном состоянии.

Для определения возможных магнитных структур в Fe₅O₆ был проведен теоретико-групповой анализ неприводимых представлений. Любые аксиально-векторные конфигурации в периодических кристаллах описываются как некоторая линейная комбинация базисных векторов неприводимых представлений родительской пространственной группы. В данной работе мы ограничились рассмотрением магнитных структур, соответствующих вектору распространения $k = (0, 0, 0)$. Разложения по неприводимым представлениям (IrReps) для позиций 8*f* и 4*c* имеют вид:

$$\Gamma(8f) = m\Gamma_1^+ \oplus 2m\Gamma_1^- \oplus 2m\Gamma_2^+ \oplus m\Gamma_2^- \oplus$$

$$\oplus 2m\Gamma_4^+ \oplus m\Gamma_4^- \oplus m\Gamma_3^+ \oplus 2m\Gamma_3^-,$$

$$\Gamma(4c) = m\Gamma_1^- \oplus m\Gamma_2^+ \oplus m\Gamma_2^- \oplus m\Gamma_4^+ \oplus m\Gamma_3^+ \oplus m\Gamma_3^-.$$

Согласно теории Ландау, были рассмотрены только те магнитные структуры, которые соответствуют одним и тем же неприводимым представлениям, а именно: $m\Gamma_1^-$, $m\Gamma_2^+$, $m\Gamma_2^-$, $m\Gamma_4^+$, $m\Gamma_3^+$, $m\Gamma_3^-$. Неприводимые представления и базисные векторы для узлов 8*f* и 4*c* показаны в табл. 1.

В Fe₅O₆ могут быть реализованы как коллинеарные, так и неколлинеарные спиновые конфигурации. К первому типу относятся структуры, базисные векторы неприводимых представлений которых ($m\Gamma_2^-$ и $m\Gamma_3^+$) соответствуют спиновым конфигурациям с

магнитными моментами, лежащими вдоль оси *a*. Базисные векторы остальных представлений соответствуют, как коллинеарным, так и неколлинеарным ортогональным конфигурациям. В этих конфигурациях магнитные моменты атомов Fe1 и Fe2 антиферромагнитно упорядочены в плоскости *bc*, а магнитные моменты атомов Fe3 в цепочках ферромагнитно/антиферромагнитно упорядочены вдоль осей *b/c*. Ортогональные спиновые конфигурации возникают в результате распада исходной магнитной системы на две, первая из которых представлена октаэдрически координированными атомами железа в позициях 8*f* (пластины), вторая – линейными цепочками, состоящими из ионов железа в тригональных призмах (4*c*). В пластинах наблюдается антиферромагнитное упорядочение спинов вдоль оси *b* ($m\Gamma_2^+$) или *c* ($m\Gamma_4^+$), при этом ферромагнитная составляющая направлена вдоль оси *c* или *b* соответственно, или одновременное антиферромагнитное упорядочение в плоскости *bc* ($m\Gamma_1^-$, $m\Gamma_3^-$), что является признаком скошенной спиновой структуры. Магнитные моменты в призмах могут быть, как ферромагнитно упорядочены вдоль оси *b* ($m\Gamma_4^+$) или *c* ($m\Gamma_2^+$), так и антиферромагнитно упорядочены вдоль осей *b* ($m\Gamma_1^-$) или *c* ($m\Gamma_3^-$). При этом магнитные моменты в цепочках (Fe3) ортогональны соответствующей антиферромагнитной компоненте, составляющей магнитных моментов в пластинах (Fe1, Fe2), способствуя формированию ортогональных ферромагнитных и антиферромагнитных спиновых конфигураций.

На основе приведенного выше анализа неприводимых представлений был проведен DFT+*U* расчет полных энергий различных магнитных структур. Для каждого неприводимого представления были рассчитаны энергии нескольких, соответствующих им магнитных структур и определены магнитные конфигурации, соответствующие наименьшей энергии для данного представления. Результаты расчета приведены в табл. 2. Здесь FM и AFM

Таблица 2. Энергии некоторых возможных спиновых конфигураций, отвечающих неприводимым представлениям (IrReps) для вектора распространения $k = (0, 0, 0)$, которые определены относительно энергии основного магнитного состояния (AFM1) для Fe_5O_6

IrReps	$m\Gamma_1^-$	$m\Gamma_2^+$	$m\Gamma_2^-$	$m\Gamma_4^+$	$m\Gamma_3^+$	$m\Gamma_3^-$
Магнитное состояние	AFM1	FM1	AFM2	FM2	FM3	AFM3
ΔE (мэВ/ф.ед.)	0	168	47	78	303	97

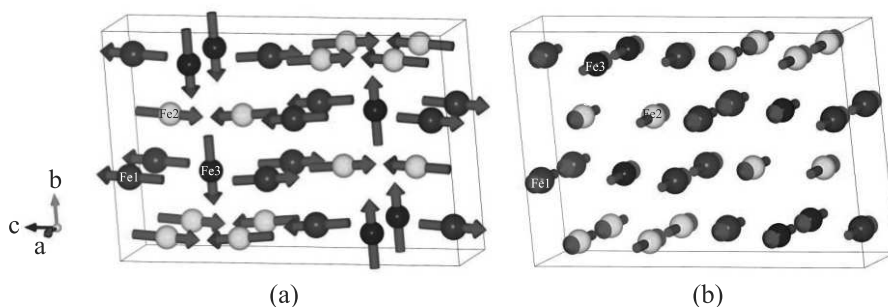


Рис. 2. (Цветной онлайн) Наиболее энергетически выгодные магнитные структуры в Fe_5O_6 : (a) – AFM1 ($m\Gamma_1^-$); (b) – AFM2 ($m\Gamma_2^-$) для вектора $k = (0, 0, 0)$. Стрелки показывают направления спинов Fe в позициях Fe1 (фиолетовый), Fe2 (желтый) и Fe3 (синий)

обозначают результирующие ферромагнитные и антиферромагнитные состояния. Обнаружено, что ортогональная структура AFM1 ($m\Gamma_1^-$), представленная на рис. 2а, имеет наименьшую полную энергию, согласуясь с предсказаниями, сделанными на основе эмпирических и кристаллографических аргументов [12]. В этой фазе магнитные моменты в пластинах (Fe1, Fe2) имеют большую антиферромагнитную компоненту вдоль c -оси и малую антиферромагнитную компоненту вдоль оси b , приводящую к скосу магнитных моментов. При этом магнитные моменты Fe1 и Fe2 антиферромагнитно упорядочены относительно друг друга. Магнитные моменты в цепочках Fe3 направлены вдоль b -оси и при этом антиферромагнитно связаны вдоль c -оси. Отметим, что магнитные моменты в цепочках Fe3 ортогональны магнитным моментам в пластинах. Компоненты магнитного момента на неэквивалентных ионах железа (m_x, m_y, m_z) вдоль кристаллографических осей составляют $m_1 = (0, 0.5, 3.9)\mu_B$, $m_2 = (0, 0.6, 3.8)\mu_B$ и $m_3 = (0, 3.6, 0)\mu_B$ для Fe1, Fe2 и Fe3 соответственно.

Второй по энергетической выгодности магнитной структурой является антиферромагнитная конфигурация AFM2, отвечающая неприводимому представлению $m\Gamma_2^-$. В данной структуре магнитные моменты, как в пластинах, так и в линейных цепочках направлены вдоль a -оси и антиферромагнитно связаны вдоль оси c (рис. 2б). Отсутствие компонент вдоль других направлений делает эту спиновую конфигурацию коллинеарной. Энергетическая разница между AFM1 и AFM2 фазами составляет

$\Delta E = 47$ мэВ/ф.ед. Таким образом, в относительно слабых магнитных полях можно ожидать перехода от неколлинеарной ортогональной AFM1 структуры к коллинеарной AFM2 структуре, что отвечает повороту магнитных моментов на всех неэквивалентных узлах на угол 90° и может проявляться аномалиями кривых намагничивания и спонтанными спин-ориентационными переходами. Спиновая конфигурация FM3 (неприводимое представление $m\Gamma_3^+$) является наиболее невыгодной ($\Delta E = 303$ мэВ/ф.ед.), свидетельствуя о высоком энергетическом барьере, который требуется, чтобы достичь полного ферромагнитного порядка вдоль оси a . Переходу в данное состояние будет соответствовать спин-флип переход во внешнем магнитном поле.

Полученный в теоретических расчетах небольшой наклон магнитных моментов в пластинах в направлении оси b является следствием влияния магнитных цепочек на трехмерную магнитную структуру. Магнитоупорядоченные цепочки защищены симметрией от возмущений со стороны пластин, но не наоборот [12]. Более того, наши расчеты CaFe_4O_6 , где атомы Fe3 заменены на немагнитные атомы кальция, не показывают признаков такого наклона. Можно заключить, что заполнение призматических узлов магнитным ионом приводит к нарушению коллинеарного антиферромагнитного порядка в пластинах и появлению скошенной магнитной подструктуры. Отметим, что если в Fe_4O_5 наклон магнитных моментов к оси c был сформирован ферромагнитной компонентой базисного вектора, соответствующего неприво-

димого представления, то в Fe_5O_6 в силу симметрии наклону магнитных моментов отвечает антиферромагнитная компонента базисного вектора.

Подводя итоги, наши расчеты в данной работе и в работе [20] показывают, что ширина пластины N , приводит к различию в магнитном упорядочении цепочек, разделенных этой пластиной вдоль c -оси. В Fe_5O_6 магнитные цепочки ионов Fe^{3+} , разделенные пластиной $N = 4$, упорядочены антиферромагнитно, тогда как в Fe_4O_5 , эти же цепочки, разделенные пластиной с $N = 3$, упорядочены ферромагнитно друг относительно друга. Таким образом, наши DFT расчеты для Fe_4O_5 [20] и Fe_5O_6 предполагают, что в обоих соединениях в пластинах возникает антиферромагнитный порядок, результирующий же магнитный порядок цепочек в этих двух соединениях будет определяться толщиной пластины N (ферромагнитный при $N = 3$ в Fe_4O_5 и антиферромагнитный при $N = 4$ в Fe_5O_6). Проведенный анализ полностью согласуется с гипотезой об общей магнитной структуре для оксидов железа N -семейства выдвинутой в работе [12].

4. Выводы. Комбинация теоретико-группового анализа и DFT + U расчетов позволила впервые определить основное магнитное состояние оксида железа Fe_5O_6 . Проведенный анализ показал, что основное магнитное состояние соответствует ортогональному упорядочению двух магнитных подсистем, первая из которых представлена октаэдрически координированными атомами железа в позициях $\text{Fe}1$ ($8f$) и $\text{Fe}2$ ($8f$) (пластины), вторая – цепочками вдоль a -оси, состоящими из ионов железа в тригональных призмах $\text{Fe}3$ ($4c$). Для магнитного вектора $k = (0, 0, 0)$ магнитные моменты в пластинах антиферромагнитно упорядочены вдоль c -оси, в то время как магнитные моменты в тригональных призмах направлены вдоль оси b и при этом антиферромагнитно связаны вдоль оси c . Влияние магнитных цепочек на трехмерную магнитную структуру приводит к неколлинеарному антиферромагнитному порядку в пластинах и появлению ненулевой компоненты магнитного момента вдоль b -оси. Результаты расчетов хорошо согласуются с общей магнитной структурой для оксидов железа N -семейства, предложенной в работе [12]. Предсказанная магнитная структура требует экспериментального подтверждения.

В. Жандун и Н. Казак выражают благодарность Российскому фонду фундаментальных исследований за поддержку (проект # 21-52-12033). Д. Васюков благодарит за поддержку Шведский исследовательский совет (Swedish Research Council, проект # 2018-04704). Расчеты проводи-

лись с использованием компьютерных ресурсов “Научно-исследовательских установок комплексного моделирования и обработки данных мегакласса” НИЦ “Курчатовский институт” (<http://ckp.urcki.ru>).

Финансирование работы. Данная работа финансировалась за счет средств Российского фонда фундаментальных исследований (проект # 21-52-12033) и Шведского исследовательского совета (Swedish Research Council, проект # 2018-04704).

Конфликт интересов. Конфликт интересов отсутствует.

1. B. Lavina, P. Dera, E. Kim, Y. Meng, R. T. Downs, P. F. Weck, S. R. Sutton, and Y. Zhao, *Proceedings of the National Academy of Sciences* **108**, 17281 (2011).
2. T. Ishii, L. Uenver-Thiele, A. B. Woodland, E. Alig, and T. Boffa Ballaran, *Am. Mineral.* **103**(11), 1873 (2018).
3. S. V. Ovsyannikov, M. Bykov, E. Bykova et al., *Nat. Chem.* **8**, 501 (2016).
4. E. Bykova, L. Dubrovinsky, N. Dubrovinskaia, M. Bykov, C. McCammon, S. V. Ovsyannikov, H.-P. Liermann, I. Kupenko, A. I. Chumakov, R. Rüffer, M. Hanfland, and V. Prakapenka, *Nat. Commun.* **7**, 10661 (2016).
5. R. Sinmyo, E. Bykova, S. V. Ovsyannikov, C. McCammon, I. Kupenko, L. Ismailova, and L. Dubrovinsky, *Sci. Rep.* **6**, 32852 (2016).
6. B. Lavina and Y. Meng, *Sci. Adv.* **1**, e1400260 (2015).
7. S. V. Ovsyannikov, M. Bykov, S. A. Medvedev, P. G. Naumov, A. Jesche, A. A. Tsirlin, E. Bykova, I. Chuvashova, A. E. Karkin, V. Dyadkin, D. Chernyshov, and L. S. Dubrovinsky, *Angew. Chem. Int. Ed.* **59**, 1 (2020).
8. A. Yang, Q. Qin, X. Tao, S. Zhang, Y. Zhao, and P. Zhang, *Phys. Lett. A* **414**, 127607 (2021).
9. Q.-Y. Qin, A.-Q. Yang, X.-R. Tao, L.-X. Yang, H.-Y. Gou, and P. Zhang, *Chin. Phys. Lett.* **38**, 089101 (2021).
10. S. Maitani, R. Sinmyo, T. Ishii, S. I. Kawaguchi, and N. Hirao, *Phys. Chem. Miner.* **49**, 11 (2022).
11. S. V. Ovsyannikov, M. Bykov, E. Bykova et al. (Collaboration), *Nat. Commun.* **9**, 4142 (2018).
12. D. M. Vasiukov, G. Khanal, I. Kupenko, G. Aprilis, S. V. Ovsyannikov, S. Chariton, V. Cerantola, V. Potapkin, A. I. Chumakov, L. Dubrovinsky, K. Haule, and E. Blackburn, *arXiv preprint arXiv:2207.14111* (2022).
13. K. Hikosaka, R. Sinmyo, K. Hirose, T. Ishii, and Y. Ohishi, *Am. Mineral.* **104**, 1356 (2019).
14. S. Layek, E. Greenberg, S. Chariton, M. Bykov, E. Bykova, D. M. Trots, A. V. Kurnosov, I. Chuvashova, S. V. Ovsyannikov, I. Leonov, and G. Kh. Rozenberg, *J. Am. Chem. Soc.* **144**, 10259 (2022).

15. E. J. W. Verwey, *Nature* **144**, 327 (1939).
16. K. H. Hong, G. M. McNally, M. Coduri, and J. P. Attfield, *Z. Anorg. Allg. Chem.* **642**, 1355 (2016).
17. K. H. Hong, A. M. Arevalo-Lopez, M. Coduri, G. M. McNally and J. P. Attfield, *J. Mater. Chem. C* **6**, 3271 (2018).
18. K. H. Hong, A. M. Arevalo-Lopez, J. Cumby, C. Ritter, and J. P. Attfield, *Nat. Commun.* **9**, 2975 (2018).
19. K. H. Hong, E. Solana-Madruga, M. Coduri, and J. P. Attfield, *Inorg. Chem.* **57**, 14347 (2018).
20. V. S. Zhandun, N. V. Kazak, I. Kупenko, D. M. Vasiukov, X. Li, E. Blackburn, and S. G. Ovchinnikov, *Dalton Trans.* **53**, 2242 (2024).
21. G. Kresse and J. Furthmuller, *Phys. Rev. B* **54**, 11169 (1996).
22. G. Kresse and D. Joubert, *Phys. Rev. B* **59**, 1758 (1999).
23. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865 (1996).
24. H. J. Monkhorst and J. D. Pack, *Phys. Rev. B* **13**, 5188 (1976).
25. S. L. Dudarev, G. A. Botton, S. Y. Savrasov, C. J. Humphreys, and A. P. Sutton, *Phys. Rev. B* **57**, 1505 (1998).
26. J. Rodriguez-Carvajal, *Physica B* **192**, 55 (1993).
27. K. Momma and F. Izumi, *J. Appl. Cryst.* **44**, 1272 (2011).

Эффективное воздействие электрического тока на спектры мандельштам-бриллюэновского рассеяния света в структуре NiFe/IrMn¹⁾

Р. Б. Моргунов^{+,*2)}, М. В. Бахметьев^{†,*}, А. И. Чернов^{*,×}, А. Б. Хутиева[°], А. В. Садовников[°]

[†] Федеральный исследовательский центр проблем химической физики и медицинской химии РАН,
142432 Черноголовка, Россия

^{*} Российский квантовый центр, 143025 Сколково, Россия

[×] Центр фотоники и двумерных материалов, МФТИ, 14170 Долгопрудный, Россия

[°] Лаборатория “Метаматериалов”, Саратовский государственный университет, 410012 Саратов, Россия

Поступила в редакцию 9 декабря 2023 г.

После переработки 26 декабря 2023 г.

Принята к публикации 29 декабря 2023 г.

При пропускании электрического тока через структуру NiFe/IrMn наблюдается существенное перераспределение интенсивностей прямой стоксовой и обратной анти-стоксовой линий в спектрах мандельштам-бриллюэновского рассеяния света на тепловых спиновых волнах. Это связано с изменением ориентации одноосной анизотропии и соответствующей легкой оси обменного смещения под действием спин-орбитального момента в антиферромагнетике IrMn, что, в свою очередь, влияет на динамику спиновых волн в соседнем ферромагнитном слое NiFe. Обнаруженный эффект свидетельствует о возможности управления спин-волновыми процессами в ферромагнетике при изменении магнитной анизотропии интерфейса NiFe/IrMn спиновым током.

DOI: 10.31857/S1234567824040074, EDN: szrqdb

1. Введение. Взаимосвязь магнитных состояний и электрического тока в антиферромагнетиках и явления, вызванные ею, имеют чрезвычайно важное значение в антиферромагнитной спинтронике [1–4]. Эта область претендует на развитие приборов, значительно более быстродействующих и энергоэффективных по сравнению с приборами ферромагнитной спинтроники. В антиферромагнетиках отсутствует макроскопическая намагниченность, поля рассеяния и анизотропия формы, что уменьшает энергию, необходимую для управления их состоянием. Вместе с тем, это значительно усложняет изучение магнитных состояний в антиферромагнетике и эффектов, связанных с влиянием тока на эти состояния. Те отклики антиферромагнетиков, которые используются сегодня для обнаружения в них спин-поляризованного тока и его влияния на намагниченность, часто оказываются непрактичными с точки зрения технологий, требуя сложного оборудования (нейтронография) или специальных условий (низких температур)

[2]. Преодолеть эти недостатки можно с помощью дополнительного ферромагнитного слоя, напыленного на антиферромагнетик [2, 5]. Намагниченность ферромагнитного слоя весьма чувствительна к состоянию интерфейса, и поэтому ферромагнитная пленка может выполнять роль индикатора магнитных состояний в антиферромагнетике и делает возможным использование стандартных методов исследования магнитных свойств гетероструктур.

В [6] было обнаружено, что в структурах NiFe/IrMn пропускание тока в плоскости пленки изменяет направление вектора обменного смещения и одноосной анизотропии. Это ведет к изменению эффекта Холла и анизотропного магнитосопротивления. Было показано, что физическая природа этого эффекта связана с изменением вектора обменного смещения при передаче магнитного момента от электронов проводимости к ионам кристаллической решетки в антиферромагнитной области вблизи интерфейса. Передача магнитного момента к электронам, локализованным на ионах кристаллической решетки, от спин-поляризованных носителей заряда происходит благодаря спин-орбитальному взаимодействию и известна в литературе, как Spin-

¹⁾ См. дополнительный материал к данной статье на сайте нашего журнала www.jetpletters.ac.ru.

²⁾ e-mail: spintronics2022@yandex.ru

Transfer Torque STT [7–14]. При этом изменяется направление поля обменного смещения и соответствующей одноосной анизотропии. В [6] это явление было обнаружено путем измерения сопротивления Холла и анизотропного магнитосопротивления. Кроме того, в [6] было показано, что перемагничивание петли магнитного гистерезиса соответствует скачкам на полевой зависимости анизотропного магнитосопротивления, при которых происходит перемагничивание слоя NiFe в постоянном токе.

Хорошо известно, что изменение обменного смещения и направления оси одноосной анизотропии влияет на спектры спиновых волн в тонких ферромагнитных пленках [15–17]. Например, в $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ наблюдали переключение направления оси одноосной анизотропии и направления поля обменного смещения при постепенном нарастании толщины NiFe ферромагнитного слоя [15]. При этом в спектрах мандельштам-бриллюэновского рассеяния света (Brillouin Light Scattering, BLS) наблюдалось уширение линий, которое позволяло судить о величине обменного смещения. В обменно-смещенных структурах Fe/FeF₂ также наблюдалась корреляция между шириной спектров BLS и обменным смещением [16]. В нашей работе основным параметром, характеризующим изменение обменного смещения, является не ширина, а асимметрия амплитуды пиков Стокса (S) и Анти-Стокса (AS) в спектрах BLS. Хотя асимметрия интенсивности S-AS, наблюдаемая в спектрах BLS от ферромагнитных пленок, как известно, является особенностью, связанной с нарушением симметрии обращения времени, ее природа в каждом конкретном случае может быть различна. Асимметрия амплитуд пиков S и AS зависит от величины приложенного поля, геометрии рассеяния света, характера поляризации излучения подложкой и локализации мод [18, 19]. В [18] эти эффекты рассмотрены, исходя из эллиптичности магнонов и относительной фазы компонент электрического поля. Эллиптичность спиновой волны выражается, как отношение компонент электрического поля световой волны E_x и E_y и, помимо внешнего поля, зависит от толщины пленки и волнового вектора магнонов [18]. Уменьшение эллиптичности с ростом внешнего поля ответственно за отношение амплитуд пиков S и AS. Например, в симметричном ферромагнитном бислое Fe/Cr/Fe под давлением динамической намагниченности двух слоев приводит к отношениям интенсивностей S и AS пиков, близком к единице. Отсутствие компенсации между динамическим намагничиванием в асимметричном мультислойном образце Fe/Cr/Fe/Cr/Fe

вызывает большую асимметрию S и AS. Было показано, что имеется два условия асимметрии: 1) динамическая намагниченность S-магнонов должна быть комплексно сопряжена с этой величиной для AS-магнонов, 2) отношение E_x/E_y должно быть комплексным, что имеет место только в поглощающей среде. Подстройка обменного смещения спиновым током на интерфейсе обменно-смещенных гетероструктур способна вызвать значительные изменения в комплексной магнитной проницаемости и соответствующие изменения компонент комплексных компонент электрического поля световой волны E_x и E_y . Это позволяет ожидать, что можно добиться электрического управления частотой света, отраженного от поверхности гетероструктуры.

Целью нашей работы было экспериментальное исследование изменений в спектрах мандельштам-бриллюэновского рассеяния света, вызванных переориентацией оси одноосной анизотропии и поля обменного смещения под действием SOT при протекании электрического тока через гетероструктуру NiFe/IrMn.

2. Методика измерений и образцы.

В работе использовали сплошной образец Ta(5 нм)/NiFe(10 нм)/IrMn(10 нм)/Ta(5 нм) площадью $3 \times 3 \text{ мм}^2$ и паттернированный образец с “крестом Холла” с такими же толщинами слоев. Последний был изготовлен методом оптической литографии. Эффективные толщины слоев определяли по длительности магнетронного напыления, которое варьировалось в диапазоне $2 \div 120 \text{ с}$. Образцы изготавливали методом магнетронного напыления на подложках Si/SiO₂ на постоянном токе, базовое давление в камере составляло $3.5 \times 10^{-8} \text{ Па}$, давление аргона составляло 0.4 Па, скорость потока Ar $30 \text{ см}^3/\text{мин}$. Вращение подложки поддерживали постоянным на уровне 10 об/мин во время напыления образцов для создания более однородных слоев. Сначала слой NiFe напыляли на Ta, который был необходим для буферизации дефектов и усиления текстуры (111) слоев NiFe. Роль слоя Ta заключалась в повышении адгезии слоев NiFe и IrMn и уменьшении ее шероховатости. Далее напыляли IrMn, и затем напыляли еще один покровный слой Ta, который служил для предотвращения окисления и коррозии слоев NiFe и IrMn. Магнитное поле прикладывалось на стадии охлаждения образца, чтобы зафиксировать направление оси одноосной анизотропии.

Спектр рентгеновской дифракции был получен с помощью дифрактометра ДРОН-3М с использованием медной трубки (излучение $K_{\alpha 1}$ с длиной волны

1.54 Å), работающей при 35 кВ и 25 мА со стабильностью 0.01 %/8 ч. Измерения были выполнены в диапазоне углов $2\theta = 35 \div 50^\circ$ с шагом 0.2° . Спектр рентгеновской дифракции, содержащий пики NiFe и IrMn показан в дополнительных материалах на рис. S1a [22].

Толщины слоев были определены с помощью просвечивающего электронного микроскопа высокого разрешения HR-TEM (см. рис. S1b в дополнительных материалах). На изображениях TEM высокого разрешения для слоев NiFe и IrMn видно наличие хорошо текстурированных (111) зерен в слоях NiFe ($d_{111} = 0.195$ нм) и IrMn ($d_{111} = 0.217$ нм), чередующихся с частично аморфными зернами и зернами без четко выраженной текстуры. Буферный и покровный слои Ta находятся в аморфном состоянии, покровный слой Ta частично окислен с глубиной окисления (толщиной оксида Ta_2O_5) ~ 2 нм. Наличие сплошного слоя Ta, отделяющего слой IrMn от окисленного слоя Ta_2O_5 , свидетельствует об отсутствии окисления в IrMn и NiFe. Химический состав слоев определяли методом энергодисперсионного рентгеновского анализа. EDX изображение поперечного сечения структуры NiFe/IrMn представлено на рис. S1c в дополнительных материалах. Толщины слоев, определенные электронной микроскопией, хорошо согласуются с толщиной слоев, рассчитанных по скоростям напыления слоев из мишеней для напыления NiFe, IrMn, Ta. Относительное атомное процентное содержание Ni, Fe, Ir и Mn согласуется со стехиометрией мишеней $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ и $\text{Ir}_{25}\text{Mn}_{75}$.

Магнитный момент сплошного образца и его полевые зависимости были измерены с помощью SQUID-магнетометра MPMS XL (Quantum Design). Электрические свойства паттернированного образца были исследованы с помощью комплекса PPMS.

Спектры спиновых волн мандельштамбриллюэновской спектроскопии исследованы в конфигурации отраженного потока света Деймона-Эшбаха при комнатной температуре во внешнем магнитном поле до 4 кЭ. Измерения проводятся при помощи интерферометра Фабри-Перо. Внешнее магнитное поле создается с помощью электромагнита GMW ~ 3472 -70. В качестве источника света используется лазерный луч с длиной волны 532 нм, генерируемый одночастотным лазером Excelsior (Spectra Physics) EXLSR-532-200-CDRH. Для исключения нагрева образца и изменения его температуры в процессе измерения мощность лазерного излучения составляет 20 мВт, при этом диаметр сфокусированного на поверхности образца лазерного пятна составляет 25 мкм, а глубина про-

никновения лазерного луча составляет 30–40 нм. Это обеспечивает проникновение света на всю глубину покровных слоев и ферромагнитного слоя.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение. Измерение полевой зависимости намагниченности при 300 К в двух ориентациях поля, лежащего в плоскости образца параллельно полю обменного смещения (кривая 1 на рис. 1a) и перпендикулярно полю обменного смещения HEX (кривая 2 на рис. 1a) показало наличие узкой петли магнитного гистерезиса, со смещением 130 Э в отрицательные поля в параллельной ориентации.

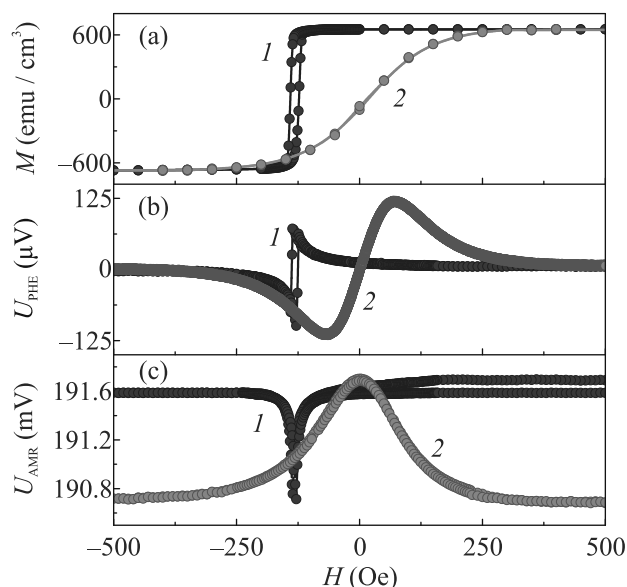


Рис. 1. (Цветной онлайн) Петля магнитного гистерезиса (a), полевые зависимости планарного эффекта Холла (b) и анизотропного магнитосопротивления (c) для образца NiFe/IrMn при комнатной температуре в легкой (1) и трудной (2) оси намагничивания.

Петли гистерезиса при других углах показаны в дополнительных материалах на рис. S2. При перпендикулярной ориентации H и H_{EX} гистерезис практически отсутствовал, но центр полевой зависимости был при $H = 0$, т.е. обменное смещение было равно нулю. Мы также измеряли планарный эффект Холла (PHE) и соответствующее напряжение U_{PHE} в перпендикулярном току направлении (рис. 1b) и анизотропное магнитосопротивление AMR и соответствующее ему напряжение U_{AMR} в параллельном току направлении (рис. 1c), как функции приложенного поля. Видно, что зависимость $U_{\text{PHE}}(H)$ в целом повторяет петлю магнитного гистерезиса и характеризуется теми же значениями коэрцитивной силы и обменного смещения.

В целом и зависимость $U_{\text{PHE}}(H)$ и зависимость $U_{\text{AMR}}(H)$ локализованы в области значений поля, равного полю обменного смещения при параллельной ориентации векторов H и H_{EX} . Эти зависимости становятся более пологими в перпендикулярной ориентации. Таким образом, электрические свойства образца чувствительны к намагниченности ферромагнитного слоя и управляются обменным смещением на интерфейсе. Это позволяет ожидать, что эффекты, связанные с SOT, о которых сообщалось в [6], могут наблюдаться и в наших образцах.

В следующей серии экспериментов было исследовано влияние электрического тока на спектры BLS. Внешнее магнитное поле H лежало в плоскости образца и было перпендикулярно плоскости падения света. Сначала был записан спектр BLS в магнитном поле $H = +3$ кЭ при нулевом электрическом токе (рис. 2, кривая 1). При приложении электрического тока $j = +0.35 \times 10^{10}$ А/м² в конфигурации, когда ток, поле и намагниченность коллинеарны (см. вставку на рис. 2), амплитуда стоксовой линии увеличивается, а амплитуда анти-стоксовой линии снижается (рис. 2, кривая 2).

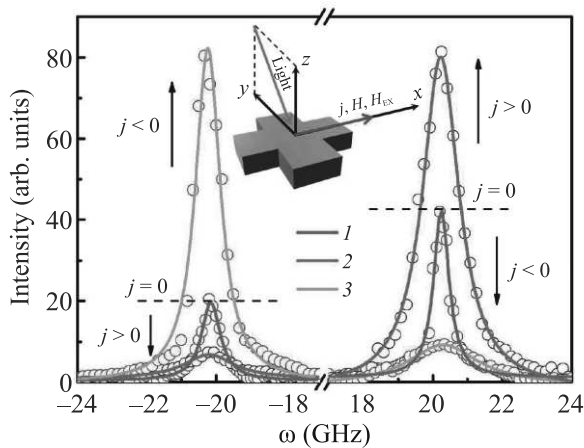


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры BLS при нулевом токе (1), при токе $j = +0.35 \times 10^{10}$ А/м² (2), направленном вдоль внешнего поля +3 кЭ, при токе $j = -0.35 \times 10^{10}$ А/м² (3), направленном против поля. На вставке представлена взаимная ориентация векторов плотности тока j , внешнего поля H и поля обменного смещения H_{EX} для случая $j > 0$. Стрелками показаны направления изменения амплитуды при протекании тока. Пунктирными горизонтальными линиями показаны амплитуды в образце без протекания тока

Частота максимума ~ 21 ГГц при этом не меняется. Напротив, изменение направления тока на обратное $j = -0.35 \times 10^{10}$ А/м² увеличивает амплитуду анти-стоксовой линии и уменьшает амплитуду стоксовой линии (рис. 2, кривая 3). Таким об-

разом, намагниченность, вызванная электрическим током и перемагничиванием слоев антиферромагнетика, близких к интерфейсу, под действием SOT перераспределяет асимметрию стоксовых и анти-стоксовых линий.

Серия спектров BLS, записанных при различных плотностях тока, представлена на рис. 3а–д. Видно, что изменение плотности тока с $j = +0.35 \times 10^{10}$ А/м² на $j = -0.35 \times 10^{10}$ А/м² плавно меняет амплитуду анти-стоксовой линии (рис. 3а и с), увеличивая ее в положительном поле +3 кЭ и уменьшая в отрицательном поле –3 кЭ. Такое же уменьшение j с положительного на отрицательные значения приводит к противоположному результату для стоксовой линии – она плавно уменьшается в положительном поле и растет в отрицательном поле (рис. 3б и д).

Таким образом, намагниченность интерфейсных слоев антиферромагнетика, установленная в [6] при аналогичных условиях эксперимента, создает изменение направления H_{EX} и перераспределяет амплитуды стоксовой и анти-стоксовой линий. В нашей предыдущей работе ранее сообщалось о влиянии инверсии магнитного поля на асимметрию стоксовых и анти-стоксовых линий в структуре NiFe/IrMn [20]. Нами также были выполнены эксперименты в условиях, когда плотность тока перпендикулярна направлению коллинеарных векторов внешнего поля H и поля обменного смещения H_{EX} (рис. S3 в дополнительных материалах). В этой конфигурации также наблюдался аналогичный эффект влияния электрического тока на асимметрию линий Стокса и анти-стокса. В других двух конфигурациях, когда внешнее поле было перпендикулярно полю обменного смещения, а плотность тока была вдоль и перпендикулярно внешнему полю, влияния тока на асимметрию спектров BLS не наблюдалось (см. рис. S4 и S5 в дополнительных материалах).

Мы также проверили, что спектры BLS паттернированного образца совпадают со спектрами сплошного образца при разных углах падения лазерного луча на образец (рис. S6 в дополнительных материалах) и при разных значениях внешнего магнитного поля (рис. S7 в дополнительных материалах). Это свидетельствует о том, что эксперименты BLS, выполненные на сплошных образцах, без изменений могут быть распространены и на паттернированные образцы, на которых выполнялись электрические измерения. О том же свидетельствует запись петель магнитного гистерезиса, одинакового для сплошных и паттернированных образцов. Таким образом, поля рассеяния паттернированных образцов не влияют на результаты экспериментов.

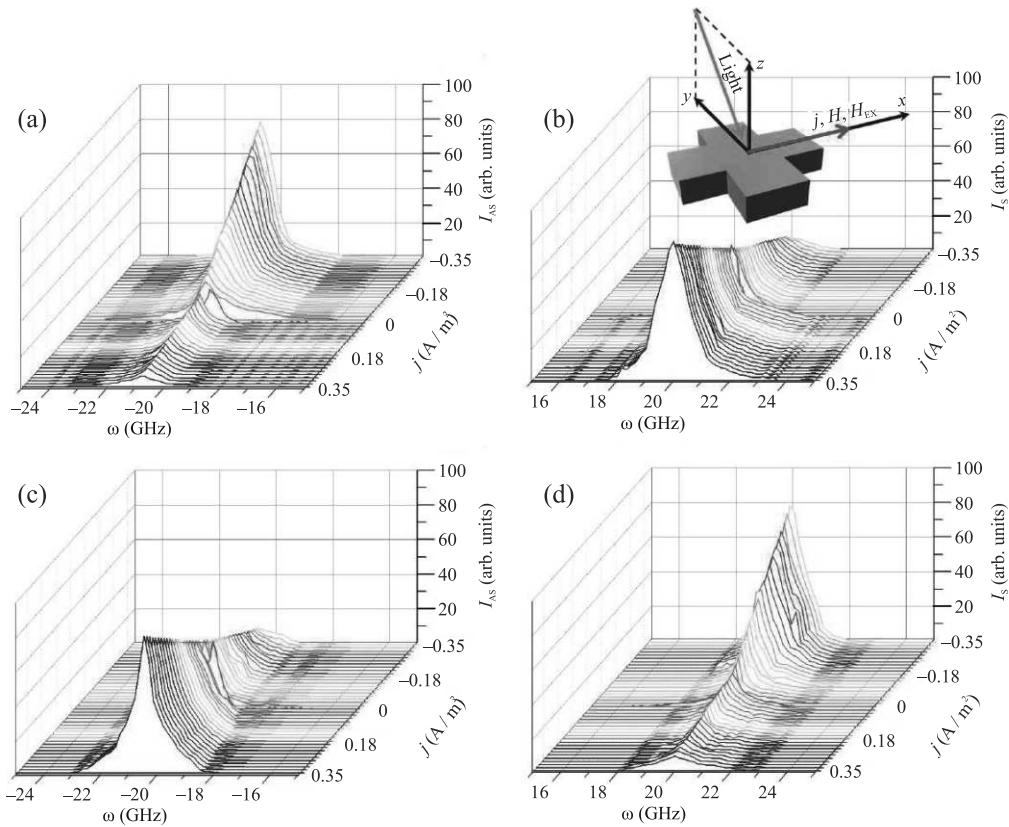


Рис. 3. (Цветной онлайн) (a), (c) – Анти-стоксова и (b), (d) – Стоксова линии спектра BLS, записанного при ориентациях внешнего поля $H = +3$ кЭ (a), (b) и $H = -3$ кЭ (c), (d), тока и поля обменного смещения в соответствии со схемой на вставке при разных значениях плотности тока

Полученные результаты позволяют сформулировать следующее объяснение наблюдаемого эффекта. При пропускании электрического тока происходит спиновая поляризация носителей заряда в ферромагнитном слое, а затем эти носители заряда попадают в антиферромагнитный слой в область интерфейса, прилегающую к ферромагнетику (рис. 4).

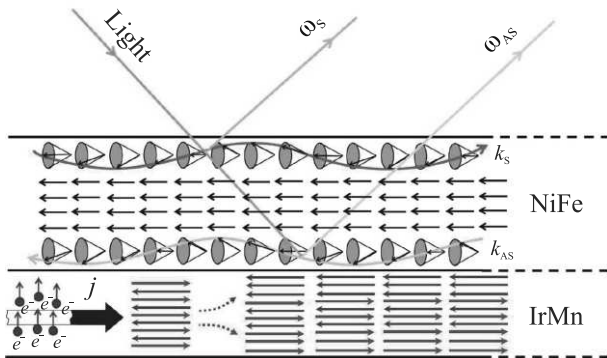


Рис. 4. (Цветной онлайн) Схема эксперимента по измерению спектра BLS при пропускании тока через образец NiFe/IrMn

Далее электроны проводимости в этой области передают свой вращательный момент локализованным электронам, принадлежащим ионам кристаллической решетки ферромагнетика. Это происходит с помощью спин-орбитального взаимодействия, а соответствующий магнитный момент называют Spin Orbit Torque (SOT). Намагничивание интерфейсного слоя антиферромагнетика ведет к изменению направления поля обменного смещения и оси одноосной анизотропии. В результате перераспределения ориентации намагниченности на интерфейсе и изменения обменного смещения распространение спиновых волн в ферромагнитном слое изменяется таким образом, что при направлении тока вдоль поля подавляется анти-стоксова компонента, а при направлении тока против поля – стоксова. Поскольку реальная частота отраженного света содержит две компоненты с частотами $\omega_0 + \omega_s$ и $\omega_0 + \omega_{AS}$, перераспределение интенсивностей компонент спектра эквивалентно изменению частоты отраженного луча [21]. Поэтому результат всей перечисленной цепочки процессов заключается в изменении частоты света отраженного от поверхности образца

под действием протекающего в нем электрического тока.

4. Выводы. Обнаружено влияние электрического тока, проходящего в антиферромагнитном слое IrMn, на спектры мандельштам-бриллюэновского рассеяния света соседнего ферромагнитного слоя NiFe в структурах NiFe/IrMn. Пропускание электрического тока вдоль внешнего магнитного поля приводит к подавлению анти-стоксовой составляющей спектра BLS, а пропускание электрического тока в направлении, противоположном полю, приводит к исчезновению Стоксовой составляющей. Эффект наблюдается только при ориентации внешнего магнитного поля параллельно или антипараллельно полю обменного смещения. При перпендикулярной взаимной ориентации упомянутых полей влияние электрического тока на спектры BLS отсутствует. Это согласуется с представлениями о передаче спин-орбитального момента от электронов проводимости к локализованным электронам, принадлежащим ионам кристаллической решетки ферромагнетика, а также с электрическими измерениями других авторов на аналогичных образцах.

Пропускание тока через гетероструктуру вызывает изменение направления поля обменного смещения под действием спин-орбитального момента, генерируемого в слое IrMn вблизи границы раздела NiFe/IrMn спин-поляризованными носителями заряда. Передача спин-орбитального момента ионам кристаллической решетки изменяет обменное смещение и соответствующее поле однонаправленной анизотропии в антиферромагнитном слое IrMn, что, в свою очередь, влияет на распространение спиновых волн в ферромагнетике NiFe и на амплитуды линий в соответствующих спектрах BLS. Это влияет на асимметрию спектров BLS, значительно перераспределяя амплитуды стоксовой и анти-стоксовой линий.

Электрическое переключение частоты лазерного луча, отраженного от поверхности гетероструктуры, является новым электро-оптическим эффектом, который может быть использован для считывания информации в элементах магнитной памяти или для создания перестраиваемой частоты лазеров.

Финансирование работы. Работа выполнена в рамках тематической карты Федерального исследовательского центра проблем химической физики и медицинской химии РАН 124013100858-3. Р. Б. Моргунов поддержан грантом Российского научного фонда # 22-19-20157. А. В. Садовников поддержан грантом Российского научного фонда # 20-79-10191.

Конфликт интересов. Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. T. Jungwirth, X. Marti, P. Wadley, and J. Wunderlich, *Nature Nanotech.* **11**, 231 (2016); <https://doi.org/10.1038/nnano.2016.18>
2. H. Yan, Z. Feng, P. Qin, X. Zhou, H. Guo, X. Wang, H. Chen, X. Zhang, H. Wu, C. Jiang, and Z. Liu, *Adv. Mater.* **32**, 1905603 (2020); <https://doi.org/10.1002/adma.201905603>.
3. Б. А. Иванов, *ЖЭТФ* **158**, 103 (2020); <https://doi.org/10.31857/S004445102007010X>.
4. V. Baltz, A. Manchon, M. Tsoi, T. Moriyama, T. Ono, and Y. Tserkovnyak, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 015005; <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.90.015005>
5. J. Zelezny, P. Wadley, K. Olejnik, A. Hoffmann, and H. Ohno, *Nature Phys.* **14**, 220 (2018); <https://doi.org/10.1038/s41567-018-0062-7>.
6. J. Kang, J. Ryu, J.-G. Choi, T. Lee, J. Park, S. Lee, H. Jang, Y.S. Jung, K.-J. Kim, and B.-G. Park, *Nat. Commun.* **12**, 6420 (2021); <https://doi.org/10.1038/s41467-021-26678-x>.
7. D. C. Ralph and M. D. Stiles, *J. Magn. Magn. Mater.* **320**, 1190 (2008); <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2007.12.019>.
8. Z. Diao, Z. Li, S. Wang, Y. Ding, A. Panchula, E. Chen, L.-C. Wang, and Y. Huai, *J. Phys.: Condens. Matter* **19**, 165209 (2007); <https://doi.org/10.1088/0953-8984/19/16/165209>.
9. C. H. Marrows, *Adv. Phys.* **54**, 585 (2005); <https://doi.org/10.1080/00018730500442209>.
10. Q. Shao, P. Li, L. Liu, H. Yang, S. Fukami, A. Razavi, H. Wu, K. Wang, F. Freimuth, Y. Mokrousov, M. D. Stiles, S. Emori, A. Hoffmann, J. Akerman, K. Roy, J.-P. Wang, S.-H. Yang, K. Garello, and W. Zhang, *IEEE Trans. Magn.* **57**, 1 (2021); <https://doi.org/10.1109/TMAG.2021.3078583>.
11. J. C. Slonczewski, *J. Magn. Magn. Mater.* **159**, L1 (1996); [https://doi.org/10.1016/0304-8853\(96\)00062-5](https://doi.org/10.1016/0304-8853(96)00062-5).
12. L. Berger, *Phys. Rev. B* **54**, 9353 (1996); <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.54.9353>.
13. L. Berger, *J. Appl. Phys.* **81**, 4880 (1997); <https://doi.org/10.1063/1.364902>.
14. L. Berger, *IEEE Trans. Magn.* **34**, 3837 (1998); <https://doi.org/10.1109/20.728292>.
15. C. Mathieu, M. Bauer, B. Hillebrands, J. Fassbender, G. Guntherodt, R. Jungblut, J. Kohlhepp, and A. Reinders, *J. Appl. Phys.* **83**, 2863 (1998); <https://doi.org/10.1063/1.367049>.
16. P. Miltenyi, M. Gruyters, J. Guntherodt, J. Nogues, and I. K. Schuller, *Phys. Rev. B* **59**, 3333 (1999); <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.59.3333>.

17. R.L. Rodriduez-Suarez, A.B. Oliveira, F. Estrada, D.S. Maior, M. Arana, O.A. Santos, A. Azevedo, and S.M. Rezende, J. Appl. Phys. **123**, 043901 (2018); <https://doi.org/10.1063/1.5009461>.
18. R. Ziveri, P. Vavassori, L. Giovannini, F. Nizzoli, E.E. Fullerton, M. Grimsditch, and V. Metlushko, Phys. Rev. B **65**, 165406 (2002); <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.65.165406>.
19. Т.С. Величкина, А.М. Дьяконов, О.И. Васильева, В.В. Александров, И.А. Яковлев, Письма в ЖЭТФ **35**, 438 (1982).
20. M. Bakhmetiev, A. Talantsev, A. Sadovnikov, and R. Morgunov, J. Phys. D: Appl. Phys. **55**, 105001 (2022); <https://doi.org/10.1088/1361-6463/ac3ce7>.
21. E.R. Moog, S.D. Bader, and J. Zak, Appl. Phys. Lett. **56**, 2687 (1990); <https://doi.org/10.1063/1.102827>.

Эффект сверхпроводящего спинового клапана в гетероструктуре Co/Pb/Co с изолирующими прослойками

А. А. Камашев⁺¹⁾, Н. Н. Гарифьянов⁺, А. А. Валидов⁺, В. Е. Катаев*, А. С. Осин[×], Я. В. Фоминов[×],
И. А. Гарифуллин⁺

⁺ Казанский физико-технический институт им. Е. К. Завойского ФИЦ Казанский научный центр РАН, 420029 Казань, Россия

* Leibniz Institute for Solid State and Materials Research, D-01069 Dresden, Germany

[×] Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау РАН, 142432 Черногловка, Россия

Поступила в редакцию 5 декабря 2023 г.

После переработки 27 декабря 2023 г.

Принята к публикации 11 января 2024 г.

Исследованы сверхпроводящие свойства гетероструктуры Co/Pb/Co с тонкими изолирующими прослойками, роль которых играют окисленные интерфейсы сверхпроводник/ферромагнетик. Изучено поведение температуры перехода гетероструктуры в сверхпроводящее состояние (T_c) при изменении взаимной ориентации намагниченностей ферромагнитных слоев с антипараллельной на параллельную (так называемый эффект сверхпроводящего спинового клапана). Как правило, данный эффект наиболее выражен в случае идеального металлического контакта на границах раздела сверхпроводник/ферромагнетик. Мы же наблюдали значительный эффект сверхпроводящего спинового клапана для структур с ухудшенными интерфейсами сверхпроводник/ферромагнетик. Разница в T_c при изменении взаимной ориентации намагниченностей двух ферромагнитных слоев Co с антипараллельной на параллельную составила 0.2 K при оптимальной толщине сверхпроводящего Pb-слоя. Наши исследования верифицируют ранние, до сих пор не подтвержденные результаты Дойчера и Менье [G. Deutscher and F. Meunier, Phys. Rev. Lett. **22**, 395 (1969)], и открывают новые интересные возможности улучшения параметров сверхпроводящего спинового клапана.

DOI: 10.31857/S1234567824040086, EDN: szruqq

Введение Различные теоретические модели и практические конструкции сверхпроводящего спинового клапана (ССК) исследуются на протяжении последних 25 лет (см., например, [1–10]). Фундаментальный интерес к таким системам связан с тем, что в них существует возможность пространственного разделения сверхпроводимости (С) и ферромагнетизма (Ф) в рамках одной структуры для исследований их взаимного влияния на свойства друг друга (см., например, [11–17]). Помимо этого, структуры ССК являются перспективными элементами сверхпроводящей спинтроники (см., например, [18–22]). Впервые теоретическая модель ССК конструкции Ф1/Ф2/С была предложена О и др. в 1997 г. [1]. В 1999 году Тагировым [2] и Буздиным и др. [3] была предложена другая модель конструкции Ф1/С/Ф2. Здесь, Ф1 и Ф2 – ферромагнитные слои; С – сверхпроводящий слой. Принцип работы ССК основан на эффекте близости С/Ф. В структурах ССК можно управлять степенью подавления сверхпроводимости путем изменения взаим-

ной ориентации намагниченностей ферромагнитных слоев, то есть величиной среднего обменного поля Ф-слоев, действующего на С-слой. Температура перехода в сверхпроводящее состояние T_c в структурах ССК минимальна/максимальна для параллельной (П)/антипараллельной (АП) ориентации намагниченностей Ф-слоев, соответственно. Величина эффекта ССК определяется как разница температур $\Delta T_c = T_c^{AP} - T_c^P$. Полный эффект ССК реализуется только в том случае, когда ΔT_c превышает ширину сверхпроводящего перехода δT_c в П- и АП-ориентациях. Впервые экспериментально реализовать полный эффект ССК удалось в 2010 г. для конструкции Ф1/Ф2/С [10].

На сегодняшний день подробно изучены различные конструкции ССК с использованием разнообразных элементных металлов и сплавов. Результаты этих исследований указывают, что, возможно, уже достигнут предел величины эффекта ССК (см., например, [23–25]). В основе работы этих конструкций лежит эффект близости С/Ф, который определяется качеством границы раздела между С- и Ф-слоями. Именно поэтому всегда особое внимание в структу-

¹⁾ e-mail: kamandi@mail.ru

рах ССК уделялось интерфейсу С/Ф. Обычно считается, что для наблюдения эффектов ССК необходимо, чтобы интерфейс С/Ф был совершенным с точки зрения морфологии (см., например, [26]). Однако, в 1969 г. Дойчер и Менье [27] наблюдали значительный эффект ССК $\Delta T_c \sim 0.3$ К в гетероструктуре FeNi/In/Ni с окисленными интерфейсами С/Ф, что с сегодняшней точки зрения, действительно, удивительно. Окисление ферромагнитных FeNi- и Ni-слоев объяснялось необходимостью ослабления эффекта близости С/Ф, и, как следствие, сверхпроводимость в In-слое могла быть не полностью подавлена средним обменным полем Ф-слоев. В работе же Ли и др. [28] показано, что для наблюдения эффектов ССК нужен непосредственный контакт между ферромагнитным изолятором и сверхпроводником. При этом введение тончайшего изолирующего немагнитного слоя (барьера) на границу раздела С/Ф приводило к полному подавлению эффекта близости С/Ф, и, как следствие, эффекта ССК.

Однако, в работе Дойчера и Менье [27] ухудшение границы С/Ф привело к наблюдению значительного эффекта ССК. Насколько нам известно, работа Дойчера и Менье [27] не получила подтверждения для других конструкций ССК, хотя некоторые экспериментальные группы пытались воспроизвести этот неожиданный результат.

В настоящей работе представлено дальнейшее развитие концепции Дойчера и Менье [27]. Мы исследовали сверхпроводящие свойства структур ССК, состоящих из других ферромагнитных и сверхпроводящих материалов по сравнению с описанными в работе [27]. Следует отметить, что работа [27] являлась одной из первых, где исследовались тонкопленочные гетероструктуры на базе С/Ф. В то время отсутствовало глубокое понимание явлений, происходящих в таких структурах. Поэтому параметры структуры (толщины слоев и условия их приготовления) в работе [27] могли быть неоптимальными.

Мы изготовили структуры ССК Co1/Pb/Co2 с тонкими изолирующими прослойками на границах раздела Co1/Pb и Pb/Co2. Формирование окисленных изолирующих прослоек на границах раздела было сделано по примеру работ [27, 29]. Мы изучили зависимость величины эффекта ССК ΔT_c от толщины Pb-слоя. Было установлено, что величина ΔT_c достигает 0.2 К при оптимальной толщине Pb-слоя, что превосходит большинство значений эффекта для структур с идеальными границами раздела С/Ф.

Образцы. Образцы изготавливались на напылительной установке фирмы BESTEC. Была приготовлена основная серия образцов $\text{CoO}_x(3.5 \text{ нм})/$

$\text{Co1}(3 \text{ нм})/\text{I1}/\text{Pb}(d_{\text{Pb}})/\text{I2}/\text{Co2}(3 \text{ нм})/\text{Si}_3\text{N}_4(85 \text{ нм})$ с варьируемой толщиной Pb-слоя d_{Pb} в пределах от 40 до 120 нм. Образцы напылялись на высококачественные монокристаллические подложки MgO (001). Здесь: CoO_x – антиферромагнитный (АФ) слой, необходимый для фиксации намагниченности Co1-слоя; Co1 и Co2 – ферромагнитные Ф1- и Ф2-слои; I1 и I2 – тонкие оксидные изолирующие прослойки; Pb – сверхпроводящий слой, Si_3N_4 – защитный слой. Слои наносились методами электронно-лучевого испарения (Co, Pb) и магнетронного напыления на переменном токе (Si_3N_4). Слой CoO_x был приготовлен окислением металлического Co-слоя в атмосфере кислорода при давлении 100 мбар в течение двух часов. После этого в камере молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) наносился Co1-слой поверх слоя CoO_x . Слой I1 формировался на поверхности Co1 в загрузочной камере в атмосфере кислорода при давлении около $\sim 10^{-2}$ мбар в течение 60 с. Наши исследования показали, что такое короткое время окисления не приводит к образованию антиферромагнитного CoO_x . После этого в МЛЭ камере наносился Pb-слой при температуре подложки $T_{\text{sub}} \sim 150$ К. Такая температура подложки была необходима для получения гладкого Pb-слоя [26]. Слой Pb выдерживался в загрузочной камере в атмосфере кислорода при давлении около 10^{-2} мбар в течение 30 с для формирования I2-слоя на его поверхности. Далее в МЛЭ камере наносился Co2-слой. На последнем этапе все образцы покрывались защитным слоем Si_3N_4 . Скорости напыления слоев составляли: 0.5 Å/с для Co-слоев; 12 Å/с для Pb-слоя; 1.8 Å/с для защитного Si_3N_4 -слоя.

Толщина АФ-слоя CoO_x $d_{\text{CoO}_x} = 3.5$ нм была выбрана на основе результатов наших предыдущих исследований [30–32]. Такая величина d_{CoO_x} позволяет зафиксировать намагниченность Co1-слоя вдоль направления внешнего магнитного поля до $H_0^{\text{max}} \sim 1.5$ кЭ. Толщины Co1 и Co2-слоев одинаковы и составляют 3 нм. Кроме того, нами была приготовлена контрольная серия образцов Co1/Pb/Co2 с такими же толщинами слоев как и у основной серии, но без изолирующих прослоек. Структуры приготовленных образцов представлены на рис. 1.

Экспериментальные результаты. Величины T_c определялись из зависимостей удельного сопротивления от температуры. Сопротивление измерялось при помощи стандартного 4-контактного метода на постоянном токе. Значения T_c определялись как средняя точка на сверхпроводящем переходе.

Вначале образцы охлаждались от комнатной до гелиевых температур во внешнем магнитном поле

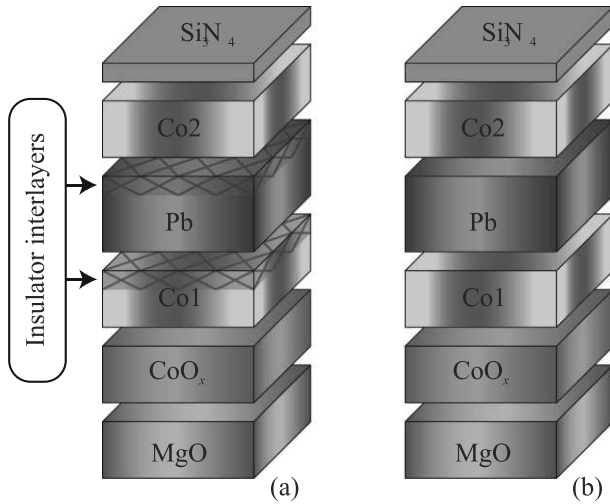


Рис. 1. (Цветной онлайн) Структуры приготовленных образцов: (а) – основная серия образцов $\text{CoO}_x/\text{Co1}/\text{I1}/\text{Pb}/\text{I2}/\text{Co2}/\text{Si}_3\text{N}_4$ с изолирующими прослойками; (б) – контрольная серия образцов $\text{CoO}_x/\text{Co1}/\text{Pb}/\text{Co2}/\text{Si}_3\text{N}_4$ без изолирующих прослоек

порядка 5 кЭ, приложенном вдоль плоскости образца (*field cooling procedure*). Это позволяло добиться параллельной ориентации намагниченностей Ф-слоев и зафиксировать намагниченность Co1-слоя вдоль направления приложенного поля до $H_0^{\max} \sim 1.5$ кЭ. Далее была исследована температурная зависимость удельного сопротивления $R(T)$ для П- и АП-ориентаций намагниченностей Ф-слоев для обеих серий образцов. Взаимное изменение ориентации намагниченностей Ф-слоев достигалась путем вращения вектора приложенного внешнего магнитного поля $H_0 = 1$ кЭ, приводящего к соответствующему повороту намагниченности Co2-слоя.

На рисунке 2 показаны кривые сверхпроводящих переходов для образцов $\text{CoO}_x(3.5 \text{ нм})/\text{Co1}(3 \text{ нм})/\text{I1}/\text{Pb}(d_{\text{Pb}})/\text{I2}/\text{Co2}(3 \text{ нм})$ с толщинами С-слоя $d_{\text{Pb}} = 120, 60$ и 40 нм при П ($H_0 = +1$ кЭ) и АП ($H_0 = -1$ кЭ) ориентациях намагниченностей Co1- и Co2-слоев, соответственно. Очевидно, что для образца с $d_{\text{Pb}} = 60$ нм реализован полный эффект ССК ($\Delta T_c > \delta T_c$) со значением $\Delta T_c = 0.2$ К (см. рис. 2б).

На рисунке 3 представлена зависимость ΔT_c от толщины Pb-слоя d_{Pb} для основной серии образцов с изолирующими прослойками. ΔT_c практически линейно увеличивается с уменьшением d_{Pb} до значений 60 нм, после чего ΔT_c начинает резко уменьшаться. Максимальная величина эффекта ССК $\Delta T_c = 0.2$ К достигается при оптимальной толщине сверхпроводящего слоя $d_{\text{Pb}} = 60$ нм.

Следует отметить, что для всех образцов контрольной серии с такими же толщинами слоев, как

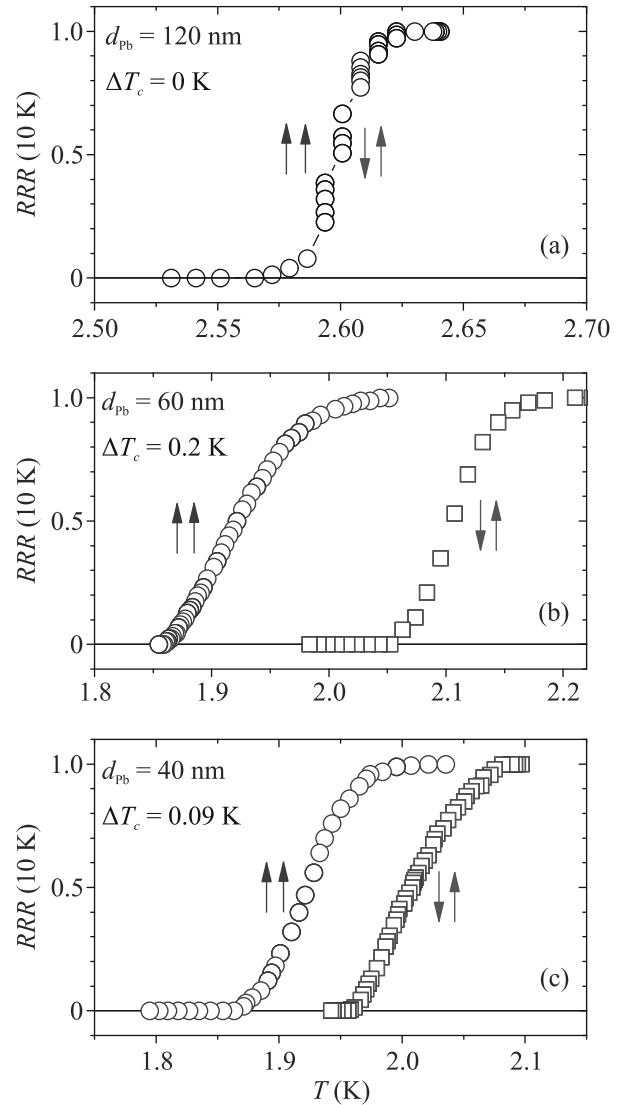


Рис. 2. (Цветной онлайн) Кривые сверхпроводящих переходов для образцов $\text{CoO}_x(3.5 \text{ нм})/\text{Co1}(3 \text{ нм})/\text{I1}/\text{Pb}(d_{\text{Pb}})/\text{I2}/\text{Co2}(3 \text{ нм})$ с толщинами С-слоя $d_{\text{Pb}} = 120, 60$ и 40 нм при П ($H_0 = +1$ кЭ) и АП ($H_0 = -1$ кЭ) ориентациях намагниченностей Co1- и Co2-слоев, соответственно

и в основной серии, но без изолирующих прослоек, сверхпроводимость не наблюдалась вплоть до самой низкой достижимой нами температуры 1.4 К.

Обсуждение результатов. Наши результаты демонстрируют значительную величину эффекта ССК в гетероструктурах Ф1/С/Ф2 с изолирующими прослойками на границах раздела Ф1/С и С/Ф2 и таким образом подтверждают первоначальные результаты Дойчера и Менье [27]. Более того, выясняется, что толщина С-слоя является важным параметром для реализации полного эффекта ССК. Если сверхпроводящий слой слишком толстый,

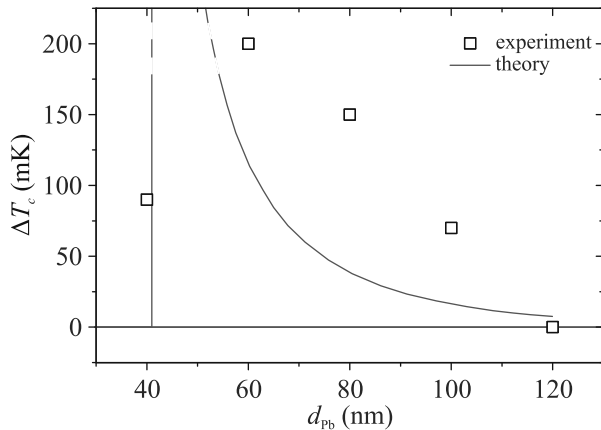


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость величины эффекта ССК ΔT_c от толщины Рб-слоя d_{Pb} для основной серии образцов с изолирующими прослойками. Сплошная кривая – теоретическая зависимость $\Delta T_c(d_{Pb})$ (см. пункт “Обсуждение результатов”)

то эффект не наблюдается. При уменьшении d_{Pb} значение ΔT_c увеличивается и достигает максимума 0.2 К при $d_{Pb} = 60$ нм (см. рис. 3). Дальнейшее уменьшение d_{Pb} приводит к резкому падению T_c . По-видимому, несмотря на изолирующие прослойки, эффект близости С/Ф становится более выраженным при уменьшении d_{Pb} .

Достигнутая нами максимальная величина эффекта ССК ΔT_c вдвое превышает величины эффектов в работах [30–33], где исследовались структуры ССК с элементарными металлическими ферромагнитными слоями и идеальными границами раздела С/Ф. Полученный нами результат довольно необычен, поскольку противоречит считающемуся важнейшим условием реализации эффекта близости С/Ф – наличию хорошего металлического контакта между С- и Ф-слоями. Не исключено, что оксидные изолирующие прослойки остаются магнитными, как это предполагалось в работах [27, 29]. Они могут играть двойную роль: (1) ослаблять влияние металлического ферромагнитного слоя на С-слой (в контрольных образцах без изолирующих прослоек сверхпроводимость подавляется полностью); (2) и в то же время сохранять своего рода эффект близости, позволяющий переключаться между нормальным и сверхпроводящим состояниями. Стоит отметить, что в работе Ли и др. [28] было продемонстрировано включение/выключение сверхпроводимости в трехслойной системе EuS/Al/EuS, где EuS являлся ферромагнитным изолятором.

Корректное теоретическое описание полученных результатов представляет собой сложную задачу из-за неопределенности параметров интерфейсов струк-

туры ССК. Теория для описания T_c в симметричных структурах Ф1/С/Ф2 с тонкими изолирующими интерфейсами была сформулирована в работе [34]. Применив эту теорию к нашим данным, мы смогли добиться качественного согласия между теорией и экспериментом (см. рис. 3) при использовании следующих параметров системы: длины когерентности в сверхпроводнике $\xi_S = 41$ нм; длины когерентности в Ф-слоях $\xi_F = 12$ нм; параметров интерфейсов $\gamma = 0.093$ (параметр согласования материалов) и $\gamma^b = 0.48$ (параметр прозрачности границы) [34] и обменной энергии в Ф-слоях $h = 0.035$ эВ.

Теория демонстрирует немонотонную зависимость и приблизительное положение максимума величины эффекта ССК. Этот максимум ожидаем, поскольку эффект ССК должен подавляться как в пределе очень тонкого, так и очень толстого С-слоя. Максимальная же величина эффекта ССК должна наблюдаться при толщине С-слоя, близкой к длине когерентности ξ_S . Однако, количественного согласия между теорией и экспериментом добиться не удалось по следующим возможным причинам. Теория [34] предполагает симметричную структуру Ф1/С/Ф2, наши же образцы могут быть асимметричны с точки зрения прозрачности интерфейсов, поскольку условия формирования И1- и И2-слоев были различными. Кроме того, как отмечено выше, не исключен собственный магнетизм интерфейсов, в то время как в теории [34] они моделируются как немагнитные потенциальные барьеры. Тем не менее, несмотря на эти причины, очевидно препятствующие хорошему количественному совпадению теории и эксперимента, примененный нами теоретический подход позволил качественно понять причину немонотонной зависимости $\Delta T_c(d_{Pb})$ в исследованных гетероструктурах и определить условия достижения максимального эффекта ССК.

Закключение. Исследовались сверхпроводящие свойства гетероструктур ССК Co1/Pb/Co2 с тонкими оксидными изолирующими прослойками, сформированными на границах раздела Co1/Pb и Pb/Co2. Была определена оптимальная толщина сверхпроводящего Рб-слоя для реализации полного эффекта сверхпроводящего спинового клапана. Максимальная величина эффекта ССК составила 0.2 К. Наши результаты подтверждают наблюдения работы Дойчера и Менье [27], в которой был обнаружен большой эффект ССК для структур Ф1/С/Ф2 с изолирующими прослойками. Следует отметить, что полученная нами величина эффекта ССК ΔT_c значительно превышает величины эффектов, которые наблюдались для структур с элементарными ферро-

магнитными и сверхпроводящими материалами, где особое внимание уделялось качеству интерфейса С/Ф.

Необходимо отметить, что, по всей видимости, в эффекте сверхпроводящего спинового клапана ключевую роль играет не сила эффекта близости С/Ф, а *чувствительность* сверхпроводимости к магнитной части системы. В наших экспериментах мы старались добиться “ослабленной” сверхпроводимости, максимально чувствительной к изменению взаимной ориентации намагниченностей Ф-слоев. В структурах Co1/Pb/Co2 без изолирующих прослоек сверхпроводимость полностью подавлена. Роль изолирующих прослоек, возможно, заключается в восстановлении сверхпроводимости в системе путем ухудшения эффекта близости С/Ф. Такая “восстановленная” сверхпроводимость, действительно, оказывается очень чувствительной к магнитной части структуры. Полученные результаты позволяют надеяться, что исследования структур ССК с модифицированными интерфейсами окажут стимулирующее влияние на развитие новых подходов к оптимизации рабочих и конструкционных параметров сверхпроводящих спиновых клапанов.

Финансирование работы. Работа А. А. Камашева и Н. Н. Гарифьянова по приготовлению образцов была финансирована Российским научным фондом из проекта # 21-72-20153. Работа А. А. Камашева, Н. Н. Гарифьянова, А. А. Валидова и И. А. Гарифуллина по исследованию сверхпроводящих свойств систем была выполнена в рамках государственного задания Федерального исследовательского центра Казанского научного центра Российской академии наук. Работа Я. В. Фоминова была выполнена в рамках государственного задания Института теоретической физики им. Л. Д. Ландау Российской академии наук.

Конфликт интересов. Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. S. Oh, D. Youm, and M. R. Beasley, Appl. Phys. Lett. **71**, 2376 (1997).
2. L. R. Tagirov, Phys. Rev. Lett. **83**, 2058 (1999).
3. A. I. Buzdin, A. V. Vedyayev, and N. V. Ryzhanova, Europhys. Lett. **48**, 686 (1999).
4. J. Y. Gu, C. Y. You, J. S. Jiang, J. Pearson, Ya. B. Bazaliy, and S. D. Bader, Phys. Rev. Lett. **89**, 267001 (2002).
5. I. C. Moraru, W. P. Pratt, and N. O. Birge, Phys. Rev. Lett. **96**, 037004 (2006).
6. A. Potenza and C. H. Marrows, Phys. Rev. B **71**, 180503(R) (2005).
7. K. Westerholt, D. Sprungmann, H. Zabel, R. Brucas, B. Hjörvarsson, D. A. Tikhonov, and I. A. Garifullin, Phys. Rev. Lett. **95**, 097003 (2005).
8. R. Steiner and P. Ziemann, Phys. Rev. B **74**, 094504 (2006).
9. N. G. Pugach, M. Yu. Kupriyanov, A. V. Vedyayev, C. Lacroix, E. Goldobin, D. Koelle, R. Kleiner, and A. S. Sidorenko, Phys. Rev. B **80**, 134516 (2009).
10. P. V. Leksin, N. N. Garif'yanov, I. A. Garifullin, J. Schumann, H. Vinzelberg, V. Kataev, R. Klingeler, O. G. Schmidt, and B. Büchner, Appl. Phys. Lett. **97**, 102505 (2010).
11. L. B. Ioffe, V. B. Geshkenbein, M. V. Feigel'man, A. L. Fauchère, and G. Blatter, Nature **398**, 679 (1999).
12. M. V. Feigel'man, Phys.-Uspekhi **42**, 823 (1999).
13. A. I. Buzdin, Rev. Mod. Phys. **77**, 935 (2005).
14. F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. B. Efetov, Rev. Mod. Phys. **77**, 1321 (2005).
15. M. G. Blamire and J. W. A. Robinson, J. Phys.: Condens. Matter **26**, 453201 (2014).
16. J. Linder and J. W. A. Robinson, Nat. Phys. **11**, 307 (2015).
17. M. Eschrig, Rep. Prog. Phys. **78**, 104501 (2015).
18. E. A. Demler, G. B. Arnold, and M. R. Beasley, Phys. Rev. B **55**, 15174 (1997).
19. I. A. Garifullin, J. Magn. Magn. Mater. **240**, 571 (2002).
20. I. Žutić, J. Fabian, and S. Das Sarma, Rev. Mod. Phys. **76**, 323 (2004).
21. J. Linder, T. Yokoyama, and A. Sudbø, Phys. Rev. B **79**, 224504 (2009).
22. K. B. Efetov, I. A. Garifullin, A. F. Volkov, and K. Westerholt, *Spin-Polarized Electrons in the superconductor/ferromagnet hybrid structures: Magnetic Nanostructures. Spin Dynamic and Spin Transport*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (2013).
23. Y. Gu, G. B. Halász, J. W. A. Robinson, and M. G. Blamire, Phys. Rev. Lett. **115**, 067201 (2015).
24. A. Singh, S. Voltan, K. Lahabi, J. Aarts, Phys. Rev. X **5**, 021019 (2015).
25. A. A. Kamashev, N. N. Garif'yanov, A. A. Validov, J. Schumann, V. Kataev, B. Büchner, Ya. V. Fominov, and I. A. Garifullin, Phys. Rev. B **100**, 134511 (2019).
26. P. V. Leksin, A. A. Kamashev, J. Schumann, V. E. Kataev, J. Thomas, B. Büchner, and I. A. Garifullin, Nano Res. **9**, 1005 (2016).
27. G. Deutscher and F. Meunier, Phys. Rev. Lett. **22**, 395 (1999).
28. B. Li, N. Roschewsky, B. A. Assaf, M. Eich, M. Epstein-Martin, D. Heiman, M. Münzenberg, and J. S. Moodera, Phys. Rev. Lett. **110**, 097001 (2013).
29. J. M. Lommel and C. D. Graham, Jr., J. Appl. Phys. **33**, 1160 (1968).

30. P. V. Leksin, N. N. Garif'yanov, A. A. Kamashev, Ya. V. Fominov, J. Schumann, C. Hess, V. Kataev, B. Büchner, and I. A. Garifullin, *Phys. Rev. B* **91**, 214508 (2015).
31. I. A. Garifullin, P. V. Leksin, N. N. Garif'yanov, A. A. Kamashev, Ya. V. Fominov, J. Schumann, Y. Krupskaya, V. Kataev, O. G. Schmidt, and B. Büchner, *J. Magn. Magn. Mater.* **373**, 18 (2015).
32. A. A. Kamashev, P. V. Leksin, N. N. Garif'yanov, A. A. Validov, J. Schumann, V. Kataev, B. Büchner, and I. A. Garifullin, *J. Magn. Magn. Mater.* **459**, 7 (2018).
33. P. V. Leksin, N. N. Garif'yanov, I. A. Garifullin, Ya. V. Fominov, J. Schumann, Y. Krupskaya, V. Kataev, O. G. Schmidt, and B. Büchner, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 057005 (2012).
34. Ya. V. Fominov, A. A. Golubov, and M. Yu. Kupriyanov, *JETP Lett.* **77**, 510 (2003).

Структура сверхпроводящего параметра порядка в нематической фазе соединений железа

М. М. Коршунов⁺¹⁾, Ю. Н. Тогушова*

⁺Институт физики им. Л. В. Киренского, Федеральный исследовательский центр

“Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук”, 660036 Красноярск, Россия

*Сибирский федеральный университет, 660041 Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 28 декабря 2023 г.

После переработки 28 декабря 2023 г.

Принята к публикации 8 января 2024 г.

Рассмотрено влияние нематического порядка на формирование сверхпроводящего состояния в пниктидах и халькогенидах железа. Нематический порядок симметрии B_{2g} моделируется как нестабильность Померанчука d -типа и описывается в рамках теории среднего поля. Вычисленный нематический параметр порядка зависит от коэффициента нематического взаимодействия и меняется скачком при его увеличении. В рамках спин-флуктуационной теории спаривания получено сверхпроводящее решение. Показано, что в нематической фазе главное решение имеет структуру $s_{\pi\pm}$ типа. Из оценки критических температур T_c сделан вывод, что нематическое сверхпроводящее состояние $s_{\pi\pm}$ типа более выгодно, чем обычные состояния $s_{\pm}$ и $d_{x^2-y^2}$ типов, возникающие в отсутствие нематичности.

DOI: 10.31857/S1234567824040098, EDN: szsbyl

1. Введение. В сложных системах очень часто возникает сочетание нескольких конкурирующих или сосуществующих дальних порядков разной природы. К таким системам относятся пниктиды и халькогениды железа, являющиеся квазидвумерными соединениями. Многоорбитальные эффекты приводят к возникновению в них необычной сверхпроводимости с параметром порядка со структурой $s_{\pm}$ типа, имеющим противоположные знаки на разных листах поверхности Ферми, но относящимся к A_{1g} представлению и являющимся вариантом расширенной s -симметрии [1–5]. Многообразие экспериментальных данных по сверхпроводящему состоянию можно объяснить в рамках спин-флуктуационного механизма куперовского спаривания, приводящего, в частности, к решению $s_{\pm}$ типа [6]. Подтверждение наличия такого типа параметра порядка получено из данных по спин-резонансному пику [7–9], обнаруженному в неупругом рассеянии нейтронов [10–12], и из наблюдения спинового экситона, характерного для состояния $s_{\pm}$, в спектрах андреевского отражения [13].

Экспериментально обнаруженная разница в сопротивлении вдоль взаимно перпендикулярных направлений в плоскости железа a и b в тетрагональной фазе ферропниктидов [14] привела к выводу о нарушении симметрии C_4 до C_2 и формировании

электронного нематического порядка [15, 16]. Слово “нематический” здесь используется для того, чтобы подчеркнуть, что переход происходит в электронной подсистеме, в отличие от привычного структурного фазового перехода, где ионы смещаются в новые равновесные позиции. Аналогом является переход разупорядоченной системы спинов в изинговский нематический порядок при нарушении симметрии Z_2 . Это и есть отличие от обычного перехода в магнитоупорядоченное состояние, возникающего при нарушении симметрии $O(3)$ [15]. Другими словами, в нематической фазе наступает неэквивалентность в направлениях a и b , что приводит к различию магнитного отклика, т.е. спиновой восприимчивости, во взаимоперпендикулярных направлениях в импульсном пространстве, q_x и q_y .

Поскольку, если опускаться вниз по температуре, сначала наблюдается переход в нематическую фазу, а только потом – в магнитную или сверхпроводящую [17, 18], мы будем исследовать сверхпроводимость на фоне уже сформировавшегося нематического порядка. В данной работе мы проанализировали влияние понижения симметрии поверхности Ферми с C_4 до C_2 на решение уравнения на сверхпроводящий параметр порядка в рамках спин-флуктуационной теории спаривания [4]. Полученные решения имеют симметрию C_2 , что согласуется с наблюдаемым понижением симметрии параметра порядка [19].

¹⁾e-mail: mkor@iph.krasn.ru

2. Модель. В основе нашего рассмотрения лежит гамильтониан пятиорбитальной модели ферропниктидов $H_{5-\text{orb}}$ [20, 21]:

$$H_{5-\text{orb}} = \sum_{\mathbf{k}, \sigma, l, l'} \varepsilon_{\mathbf{k}}^{ll'} d_{\mathbf{k}l\sigma}^\dagger d_{\mathbf{k}l'\sigma}, \quad (1)$$

где $d_{\mathbf{k}l\sigma}^\dagger$ ($d_{\mathbf{k}l\sigma}$) – оператор рождения (уничтожения) электрона с импульсом $\mathbf{k}$, спином σ и орбитальным индексом l , $\varepsilon_{\mathbf{k}}^{ll'}$ – матрица одноэлектронных энергий за вычетом химпотенциала (диагональные элементы) и интегралов перескока (недиагональные элементы), значения которых приведены в работе [21].

Для описания нематического состояния следуем подходу среднего поля из работ [22, 23]. Вклад в гамильтониан от двухчастичного нематического взаимодействия имеет вид

$$H_{\text{nem}} = -\frac{1}{4} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}', \sigma, \sigma', l, l'} V_{ll'}^{\text{nem}} f_{\mathbf{k}l} f_{\mathbf{k}'l'} n_{\mathbf{k}l\sigma} n_{\mathbf{k}'l'\sigma'}, \quad (2)$$

где $n_{\mathbf{k}l\sigma} = d_{\mathbf{k}l\sigma}^\dagger d_{\mathbf{k}l\sigma}$ – оператор числа частиц, $V_{ll'}^{\text{nem}}$ – матричные элементы взаимодействия, $f_{\mathbf{k}l}$ – структурный фактор. Как и в работах [22, 23], для моделирования нематического порядка симметрии B_{2g} как неустойчивости Померанчука d -типа, мы принимаем структурный фактор равным $f_{\mathbf{k}l} = \cos k_x - \cos k_y$.

Для формулировки теории среднего поля записываем $n_{\mathbf{k}l\sigma} = \langle n_{\mathbf{k}l\sigma} \rangle + \delta n_{\mathbf{k}l\sigma}$, где $\langle n_{\mathbf{k}l\sigma} \rangle$ – среднее значение числа заполнения, а отклонение от среднего $\delta n_{\mathbf{k}l\sigma}$ считаем малой величиной. Подставляя это выражение в гамильтониан H_{nem} , пренебрегая вторым порядком малости по отклонению от среднего и опуская вклад в сдвиг энергии, который уйдет в перенормировку химпотенциала, получаем

$$H_{\text{nem}}^{MF} = \sum_{\mathbf{k}, \sigma, l} \Phi_l f_{\mathbf{k}l} n_{\mathbf{k}l\sigma}. \quad (3)$$

Здесь введен параметр порядка нематической фазы

$$\Phi_l = -\frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}', \sigma', l'} V_{ll'}^{\text{nem}} f_{\mathbf{k}'l'} \langle n_{\mathbf{k}'l'\sigma'} \rangle. \quad (4)$$

Заметим, что, благодаря формулировке гамильтониана двухчастичного нематического взаимодействия H_{nem} в виде плотность-плотность, гамильтониан среднего поля H_{nem}^{MF} не содержит межорбитальных перескоков и описывает изменения плотности частиц на орбиталях l .

3. Нематический параметр порядка. Сперва мы ищем нематический параметр порядка Φ_l . Решение заключается в самосогласованном вычислении Φ_l из уравнения (4) и среднего $\langle n_{\mathbf{k}'l'\sigma'} \rangle$. Матрицу $V_{ll'}^{\text{nem}}$ положим равной $\delta_{ll'} V_{\text{nem}}$ с коэффициентом взаимодействия V_{nem} . Поскольку он не известен, используем его как параметр. На рисунке 1 показана вычисленная зависимость Φ_l для различных d -орбиталей

от коэффициента V_{nem} . Видно, что при малых значениях коэффициента V_{nem} нематическое состояние не возникает (область I). Отличной от нуля величина параметра порядка становится выше некоторого значения V_{nem} , притом, только для одной из орбиталей, d_{xy} (область II). Учитывая, что величина 4 эВ для параметра взаимодействия велика даже по сравнению с хаббардовским отталкиванием, в дальнейшем мы ограничимся областями I и II.

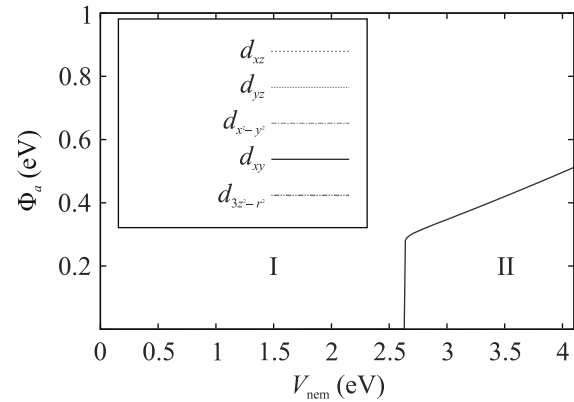


Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость компонент нематического коэффициента порядка Φ_a для орбитали a от параметра взаимодействия V_{nem} . Римскими цифрами обозначены области, где параметр порядка ведет себя существенно по-разному

Поверхности Ферми и дисперсия в двух различных областях показаны на рис. 2. В области II ($V_{\text{nem}} = 2.8$ эВ) очевидно нарушение симметрии C_4 , имевшей место в области I ($V_{\text{nem}} = 0$). Это хорошо видно в дисперсии вдоль направления $(0, \pi) - (\pi, 0)$.

В спин-флуктуационной теории сверхпроводящего спаривания центральным объектом является действительная часть динамической спиновой восприимчивости на нулевой частоте $\text{Re}\chi(\mathbf{q}, \omega = 0)$ [4]. Спиновая восприимчивость вычисляется как спин-спиновый коррелятор

$$\chi^{ll'mm'}(\mathbf{q}, \Omega) = \int_0^\beta d\tau e^{i\Omega\tau} \langle T_\tau S_{ll'}^+(\mathbf{q}, \tau) S_{ll'}^-(\mathbf{q}, 0) \rangle, \quad (5)$$

где Ω – мацубаровская частота, $\beta = 1/T$ – обратная температура, T_τ – оператор упорядочения по мацубаровскому времени τ , S^+ и S^- – спиновые операторы. Усреднение проводится по ансамблю со взаимодействием. В нулевом приближении имеем

$$\chi_{(0)}^{ll'mm'}(\mathbf{q}, \Omega) = -T \sum_{\mathbf{p}, \omega_n, \mu, \nu} \left[\varphi_{\mathbf{p}m}^\mu \varphi_{\mathbf{p}l}^{*\mu} G_{\mu\uparrow}(\mathbf{p}, \omega_n) \times \right. \\ \left. \times G_{\nu\downarrow}(\mathbf{p} + \mathbf{q}, \Omega + \omega_n) \varphi_{\mathbf{p}+\mathbf{q}l'}^\nu \varphi_{\mathbf{p}+\mathbf{q}m'}^{*\nu} \right]. \quad (6)$$

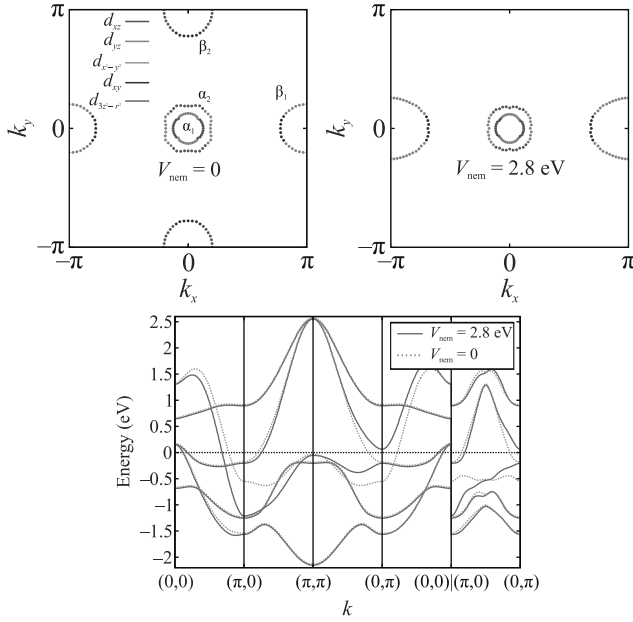


Рис. 2. (Цветной онлайн) Поверхность Ферми (вверху) и дисперсия вдоль основных направлений зоны Бриллюэна (внизу) для двух значений коэффициента взаимодействия V_{nem} . Отсчет энергии ведется от химического потенциала. $\alpha_{1,2}$ и $\beta_{1,2}$ обозначают листы поверхности Ферми, а различными цветами показаны области, где максимален вклад от соответствующей орбитали

Здесь ω_n – мацубаровская частота, μ и ν – зонные индексы, $\varphi_{\mathbf{k}m}^\mu$ – коэффициенты перехода из зонного в орбитальное представление такие, что $d_{\mathbf{k}m\sigma} = \sum_\mu \varphi_{\mathbf{k}m}^\mu b_{\mathbf{k}m\sigma}$. Здесь $b_{\mathbf{k}m\sigma}$ – оператор уничтожения электрона в зонном представлении, в котором функция Грина диагональна, $G_{\mu\sigma}(\mathbf{k}, \omega_n) = 1/(i\omega_n - \varepsilon_{\mathbf{k}\mu\sigma})$.

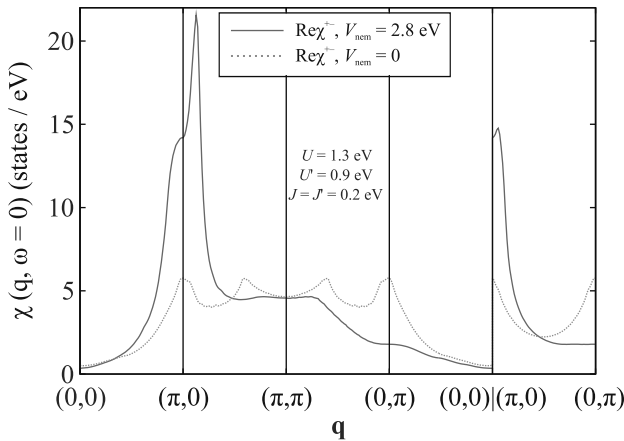


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость действительной части спиновой восприимчивости на нулевой частоте от волнового вектора $\mathbf{q}$, рассчитанная в RPA, для двух значений коэффициента взаимодействия V_{nem}

Сначала мы вычисляем $\chi_{(0)}^{ll'mm'}(\mathbf{q}, \Omega)$ с гамильтонианом $H_0 = H_{5-\text{orb}} + H_{\text{nem}}^{MF}$, а затем, в рамках приближения случайных фаз (*random phase approximation*, RPA) получаем $\chi^{ll'mm'}(\mathbf{q}, \Omega)$. Лестничное приближение RPA строится по одноузловому кулоновскому взаимодействию – внутриорбитальному хаббардовскому U , межорбитальному U' , хундовскому обмену J и парному перескоку J' [24, 25]. Гамильтониан H_{int} записывается следующим образом:

$$H_{\text{int}} = U \sum_{f,m} n_{fm\uparrow} n_{fm\downarrow} + U' \sum_{f,m<l} n_{fl} n_{fm} + J \sum_{f,m<l} \sum_{\sigma,\sigma'} d_{fl\sigma}^\dagger d_{fm\sigma'}^\dagger d_{fl\sigma'} d_{fm\sigma} + J' \sum_{f,m \neq l} d_{fl\uparrow}^\dagger d_{fl\downarrow}^\dagger d_{fm\downarrow} d_{fm\uparrow}, \quad (7)$$

где $n_{fm} = n_{fm\uparrow} + n_{fm\downarrow}$, $n_{fm\sigma} = d_{fm\sigma}^\dagger d_{fm\sigma}$ – это оператор числа частиц на узле f .

Сумма лестничных диаграмм, включающих электрон-дырочную петлю в матричном виде $\hat{\chi}_{(0)}(\mathbf{q}, \Omega)$, дает следующее выражение для матрицы спиновой восприимчивости в приближении RPA [4]:

$$\hat{\chi}(\mathbf{q}, \Omega) = [\hat{I} - \hat{U}_s \hat{\chi}_{(0)}(\mathbf{q}, \Omega)]^{-1} \hat{\chi}_{(0)}(\mathbf{q}, \Omega), \quad (8)$$

где $\hat{I}$ и $\hat{U}_s$ – единичная матрица и матрица взаимодействия в орбитальном представлении, в явном виде записанная в работе [21]. В дальнейшем будут приведены результаты для физической восприимчивости $\chi(\mathbf{q}, \Omega) = \sum_{l,m} \chi^{ll'mm'}(\mathbf{q}, \Omega)$, аналитически продолженной на ось действительных частот ω ($i\Omega \rightarrow \omega + i\delta$, $\delta \rightarrow 0+$).

Нарушение симметрии поверхности Ферми приводит к нарушению симметрии до C_2 в зависимости спиновой восприимчивости от волнового вектора $\mathbf{q}$. Это продемонстрировано на рис. 3. Увеличение коэффициента V_{nem} , а с ним и параметра порядка Φ_l , приводит к возрастанию пика вблизи $\mathbf{q} = (\pi, 0)$ по сравнению с $\mathbf{q} = (0, \pi)$. Связано это, естественно, с тем, что листы поверхности Ферми β_2 вблизи точек $(0, \pm\pi)$ исчезают, в отличие от листов β_1 вблизи точек $(\pm\pi, 0)$. Это приводит к превалированию рассеяния между зонами, формирующими листы $\alpha_{1,2}$, и зонами, формирующими листы β_1 , по сравнению с зонами, формирующими листы β_2 (см. рис. 2).

4. Сверхпроводящее состояние. Сверхпроводящее состояние на фоне нематической фазы ищем как решение линеаризованного уравнения на щель $\Delta_{\mathbf{k}} = \Delta_0 g_{\mathbf{k}}$, записанного как уравнение на соб-

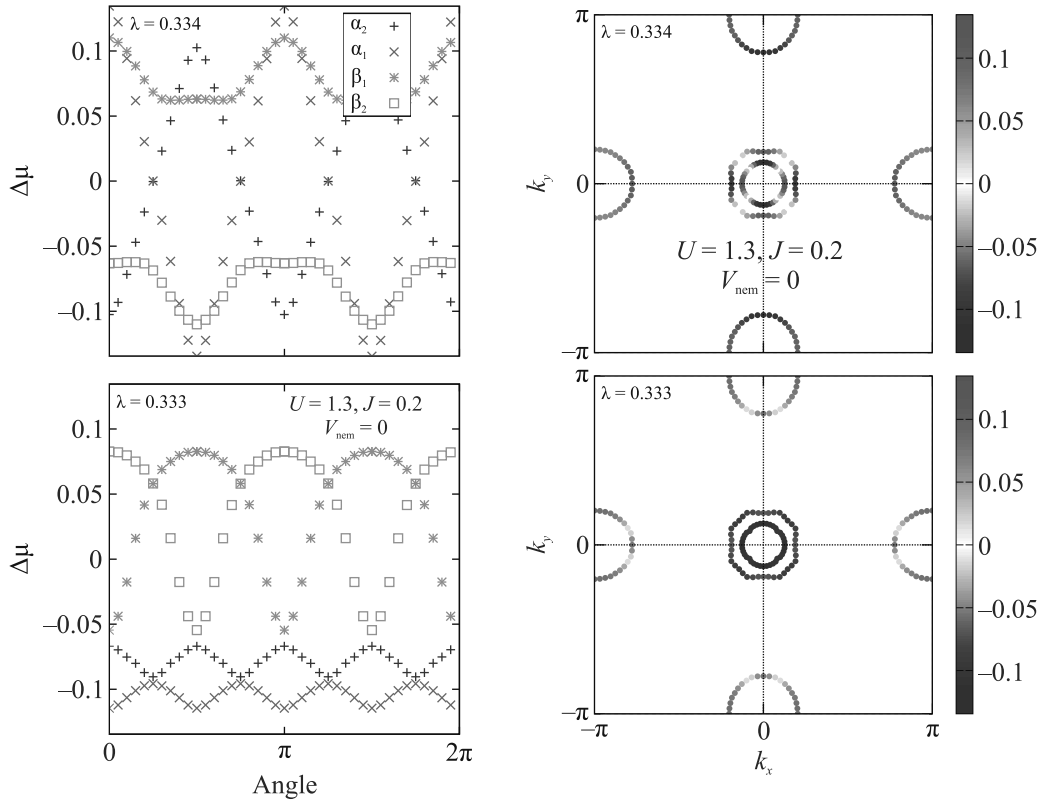


Рис. 4. (Цветной онлайн) Параметр порядка при $U = 1.3$, $J = 0.2$ и $V_{nem} = 0$ для двух наибольших величин собственного значения λ на листах поверхности Ферми ($\alpha_{1,2}$, $\beta_{1,2}$). Слева: угловая зависимость на каждом листе, справа: величина параметра порядка показана интенсивностью в пределах зоны Бриллюэна. Все значения приведены в эВ

ственные значения λ и собственные вектора $g_{\mathbf{k}}$ [4, 21, 26–28],

$$\lambda g_{\mathbf{k}} = - \sum_{\nu} \oint_{\nu} \frac{d\mathbf{k}'_{\parallel}}{2\pi} \frac{1}{2\pi v_{F\mathbf{k}'}} \tilde{\Gamma}^{\mu\nu}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') g_{\mathbf{k}'}, \quad (9)$$

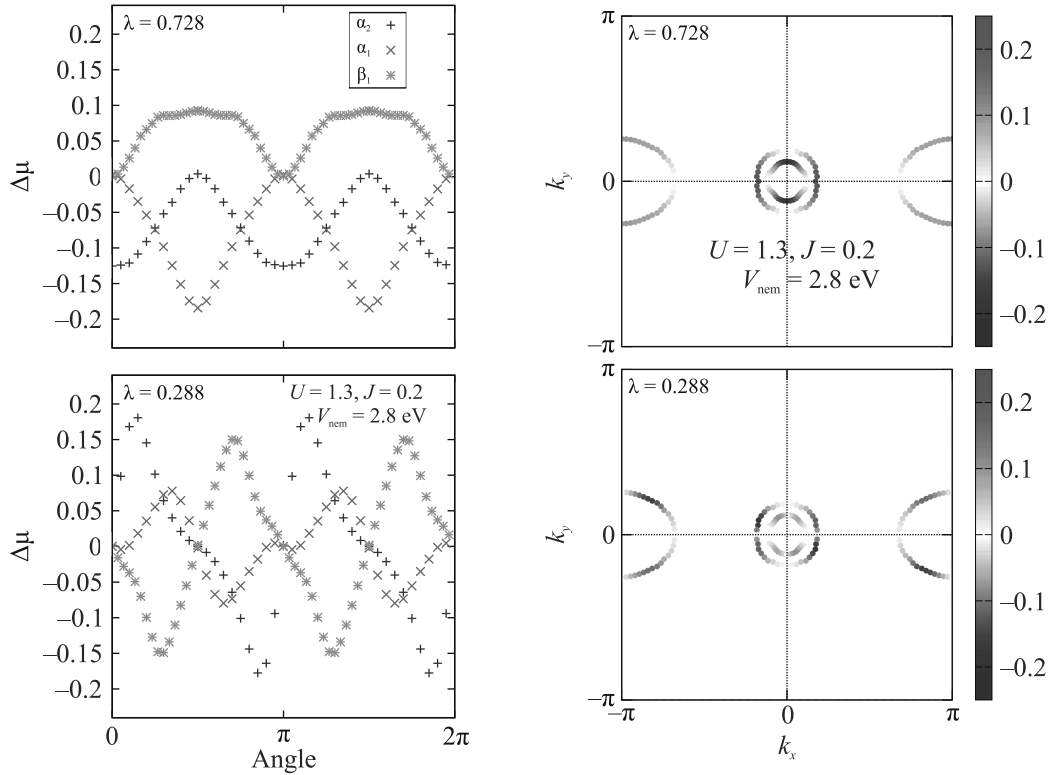
где $v_{F\mathbf{k}'}$ – скорость Ферми, контурный интеграл берется по параллельной ν -му листу поверхности Ферми компоненте импульса $\mathbf{k}'_{\parallel}$, а зонный индекс μ однозначно определяется положением вектора $\mathbf{k}$. Положительные λ соответствуют притяжению и максимальное из них определяет состояние с максимальной критической температурой T_c , т.е. наиболее выгодное сверхпроводящее состояние с импульсной зависимостью, определяемой соответствующим собственным вектором $g_{\mathbf{k}}$.

Куперовская вершина $\tilde{\Gamma}^{\mu\nu}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$ зависит от кулоновских параметров U , U' , J , J' и от $\text{Re}\chi(\mathbf{q}, \omega = 0)$, см. [4]. При наличии спин-вращательной инвариантности, что предполагается здесь, $U' = U - 2J$, $J' = J$. Оставшиеся два параметра хаббардовского взаимодействия, U и J , мы будем варьировать. Для дальнейшего исследования мы выбрали следующие наборы параметров (значения в эВ).

1: $U = 1$, $J = 0$; 2: $U = 1.1$, $J = 0$; 3: $U = 1$, $J = 0.1$; 4: $U = 1.2$, $J = 0$; 5: $U = 1.1$, $J = 0.1$; 6: $U = 1.2$, $J = 0.1$; 7: $U = 1$, $J = 0.2$; 8: $U = 1.3$, $J = 0$; 9: $U = 1.1$, $J = 0.2$; 10: $U = 1.3$, $J = 0.1$; 11: $U = 1.4$, $J = 0$; 12: $U = 1.2$, $J = 0.2$; 13: $U = 1.4$, $J = 0.1$; 14: $U = 1$, $J = 0.3$; 15: $U = 1.4$, $J = 0.15$; 16: $U = 1.3$, $J = 0.2$.

Для набора номер 16 ($U = 1.3$, $J = 0.2$) на рис. 4, 5 показаны по два решения уравнения (9) с максимальными значениями λ в областях I и II: в отсутствие нематичности при $V_{nem} = 0$ на рис. 4 и в нематической фазе при $V_{nem} = 2.8$ эВ на рис. 5.

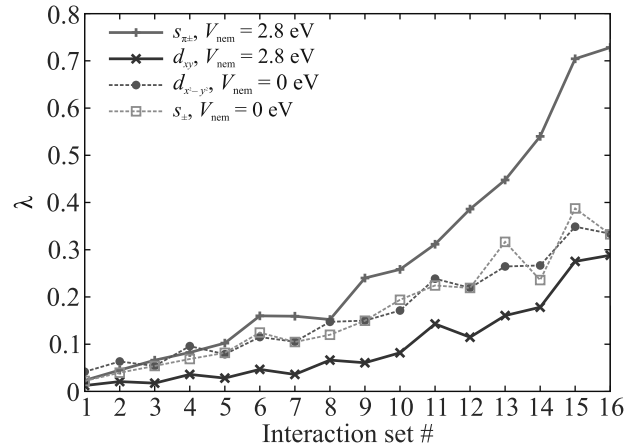
Видно, что для данного набора кулоновских параметров решения $d_{x^2-y^2}$ типа и $s_{\pm}$ типа конкурируют в области I (имеют близкие значения λ), но выигрывает все же $d_{x^2-y^2}$ тип. В нематической фазе в области II мы уже не можем пользоваться классификацией типов щелей по неприводимым представлениям тетрагональной фазы. Однако состояние с большей λ на рис. 5 мы назовем $s_{\pi\pm}$, чтобы подчеркнуть его связь с состоянием $s_{\pm}$ в тетрагональной фазе и указать, что соответствующее $\Delta_{\mathbf{k}}$ инвариантно относительно поворота на π , а не на $\pi/2$, как было для рас-

Рис. 5. (Цветной онлайн) То же, что на рис. 4, но для $V_{\text{nem}} = 2.8$ эВ

ширенного s -типа симметрии. Состояние с меньшей λ на рис. 5 напоминает d_{xy} тип симметрии, поэтому мы его так и будем называть.

На рисунке 6 приведен сводный график значений λ для различных наборов параметров одноузельного кулоновского взаимодействия при $V_{\text{nem}} = 0$ и $V_{\text{nem}} = 2.8$ эВ. Разные линии соответствуют различным получающимся в расчете симметриям параметра порядка. Отметим, что решение “нематического типа” $s_{\pi\pm}$ всегда имеет большее значение λ , чем решение $s_{\pm}$, которое конкурирует с $d_{x^2-y^2}$ типом. Следовательно, T_c сверхпроводящего состояния, сосуществующего с нематическим состоянием, больше, чем T_c собственно сверхпроводящего состояния. Это свидетельствует в пользу того, что нематическая сверхпроводящая фаза может оказаться более выгодной, чем состояние с ненарушенной симметрией C_4 .

5. Заключение. Мы рассмотрели возникновение сверхпроводимости на фоне нематического порядка в пятиорбитальной модели пниктидов и халькогенидов железа. Нематический порядок описан в рамках теории среднего поля с коэффициентом нематического взаимодействия V_{nem} . Самосогласованно вычисленный нематический параметр порядка Φ_l равен нулю (область I) при значениях V_{nem} от нуля вплоть до некоторого критического значения, когда компо-

Рис. 6. (Цветной онлайн) Максимальные собственные значения λ для двух значений коэффициента нематического взаимодействия V_{nem} при различных наборах кулоновских параметров

нента Φ_l , соответствующая орбитали $l = d_{xy}$, скачком становится конечной (область II). Сверхпроводящее решение в рамках спин-флуктуационной теории спаривания найдено в обеих областях, I и II. В отсутствие нематического порядка (область I) сверхпроводящий параметр порядка имеет структуру $s_{\pm}$ и $d_{x^2-y^2}$ типов для двух главных конкурирующих ре-

шений. В нематической фазе (область II) получаются два главных решения типа $s_{\pi\pm}$ и типа d_{xy} , притом, первое всегда выигрывает. Оценка соответствующих критических температур T_c приводит к выводу, что нематическое сверхпроводящее состояние со структурой $s_{\pi\pm}$ будет иметь большую T_c , чем обычные состояния $s_{\pm}$ и $d_{x^2-y^2}$ типов с ненарушенной симметрией C_4 .

Финансирование работы. Данная работа финансировалась в рамках научной тематики Госзадания Института физики им. Л. В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук – обособленного подразделения ФИЦ КНЦ СО РАН. Никаких дополнительных грантов на проведение или руководство данным конкретным исследованием получено не было.

Конфликт интересов. Отсутствует.

1. М. В. Садовский, Успехи физических **178**, 1243 (2008) [M. V. Sadvskii, Phys.-Uspekhi **51**, 1201 (2008)].
2. Ю. А. Изюмов, Э. З. Курмаев, Успехи физических **178**, 1307 (2008) [Yu. A. Izyumov and E. Z. Kurmaev, Phys.-Uspekhi **51**, 1261 (2008)].
3. P. J. Hirschfeld, M. M. Korshunov, and I. I. Mazin, Rep. Progr. Phys. **74**, 124508 (2011).
4. М. М. Коршунов, Успехи физических наук **184**, 882 (2014) [M. M. Korshunov, Phys.-Uspekhi **57**, 813 (2014)].
5. М. В. Садовский, Успехи физических наук **186**, 1035 (2016) [M. V. Sadvskii, Phys.-Uspekhi **59**, 947 (2016)].
6. S. Maiti, M. M. Korshunov, T. A. Maier, P. J. Hirschfeld, and A. V. Chubukov, Phys. Rev. Lett. **107**, 147002 (2011).
7. M. M. Korshunov and I. Eremin, Phys. Rev. B **78**, 140509 (2008).
8. T. A. Maier and D. J. Scalapino, Phys. Rev. B **78**, 020514 (2008).
9. M. M. Korshunov, Phys. Rev. B **98**, 104510 (2018).
10. M. D. Lumsden and A. D. Christianson, J. Phys. Condens. Matter **22**, 203203 (2010).
11. P. Dai, Rev. Mod. Phys. **87**, 855 (2015).
12. D. S. Inosov, Comptes Rendus Physique **17**, 60 (2016).
13. M. M. Korshunov, S. A. Kuzmichev, and T. E. Kuzmicheva, Materials **15**, 6120 (2022).
14. J.-H. Chu, J. G. Analytis, K. De Greve, P. McMahon, Z. Islam, Y. Yamamoto, and I. R. Fisher, Science **329**, 824 (2010).
15. R. M. Fernandes, A. V. Chubukov, J. Knolle, I. Eremin, and J. Schmalian, Phys. Rev. B **85**, 024534 (2012).
16. R. M. Fernandes, A. V. Chubukov, and J. Schmalian, Nat. Phys. **10**, 97 (2014).
17. J. Li, P. J. Pereira, J. Yuan et al. (Collaboration), Nat. Commun. **8**, 1880 (2017).
18. X. Zhou, Y. Li, B. Teng, P. Dong, J. He, Y. Zhang, Y. Ding, J. Wang, Y. Wu, and J. Li, Adv. Phys. X **6**, 1878931 (2021).
19. P. O. Sprau, A. Kostin, A. Kreisel, A. E. Bohmer, V. Taufour, P. C. Canfield, S. Mukherjee, P. J. Hirschfeld, B. M. Andersen, and J. C. Seamus Davis, Science **357**, 75 (2017).
20. K. Kuroki, S. Onari, R. Arita, H. Usui, Y. Tanaka, H. Kontani, and H. Aoki, Phys. Rev. Lett. **101**, 087004 (2008).
21. S. Graser, T. A. Maier, P. J. Hirschfeld, and D. J. Scalapino, New J. Phys. **11**, 025016 (2009).
22. H. Yamase, V. Oganessian, and W. Metzner, Phys. Rev. B **72**, 035114 (2005).
23. S. S. Choudhury, S. Peterson, and Y. Idzerda, Phys. Rev. B **105**, 214515 (2022).
24. C. Castellani, C. R. Natoli, and J. Ranninger, Phys. Rev. B **18**, 4945 (1978).
25. A. M. Oleś, Phys. Rev. B **28**, 327 (1983).
26. N. F. Berk and J. R. Schrieffer, Phys. Rev. Lett. **17**, 433 (1966).
27. D. J. Scalapino, E. Loh, and J. E. Hirsch, Phys. Rev. B **34**, 8190 (1986).
28. M. M. Korshunov, *Itinerant Spin Fluctuations in Iron-Based Superconductors in Perturbation Theory: Advances in Research and Applications*, Nova Science Publishers Inc., N.Y. (2018), p. 61.

Anisotropic Josephson diode effect in the topological hybrid junctions with the hexagonal warping

T. Karabassov¹⁾

National Research University Higher School of Economics, 101000 Moscow, Russia

Submitted 24 November 2023
Resubmitted 30 December 2023
Accepted 9 January 2024

DOI: 10.31857/S1234567824040104, EDN: szsjjb

One of the most promising platforms for the implementation of the SDE is topological insulator based diodes [1]. The surface of TI provides strong spin-orbit coupling (SOC) which makes it possible to demonstrate a substantial magneto-electric effect [2]. Special attention has been paid to the magneto-electric effect in the TI based Josephson junctions, where it reveals itself in the form of the anomalous ground state phase shift [3, 4]. Recently, it has been demonstrated that in the TI hybrid structures where superconductivity and ferromagnetism are spatially separated, the ground state is also modified [5, 6]. In this case the ground state corresponds to the spatially inhomogeneous superconducting order parameter. This superconducting state is commonly referred as the helical state [7].

The superconducting helical state became one of the options in achieving the SDE [8]. Described by finite Cooper pair momentum, the helical state can be realized in systems with broken inversion and time reversal symmetries. The former is connected to the appearance of the SOC term in the Hamiltonian, while the latter can be introduced by the magnetic field. In this case the direction of the Cooper pair momentum depends on the direction of the magnetic field. The finite momentum of the Cooper pair, which is locked to the direction of the magnetic field leads the nonreciprocal depairing current in various systems.

Here we discuss the consequences of the hexagonal warping of the TI surface states on the Josephson critical current and nonreciprocal transport in the S/TI/S system with an in-plane Zeeman field. The effect of hexagonal warping is important in the TI based devices, since it can significantly change some of the transport properties. For example, it is well known that the interference effects near the defects are strongly enhanced due to the deformation of the Fermi surface [9]. The warping term also leads to the anisotropy of the spin

conductivity in the TI materials [10]. The influence of the snowflake Fermi surface on superconducting properties in the hybrid structures has also been questioned [11–13]. However, the impact of the warping term on the superconducting transport and especially nonreciprocal transport have not been well studied.

We formulate the model of the S/TI/S hybrid structure (Fig. 1) in the framework of the tight-binding

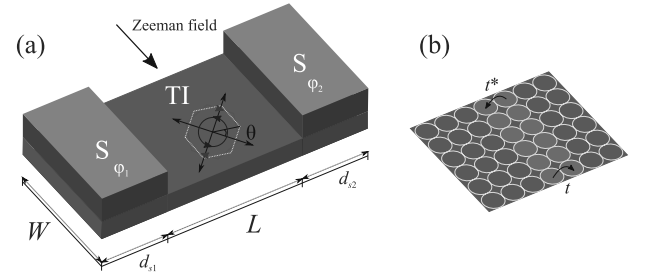


Fig. 1. (Color online) (a) – Schematic geometry of the Josephson diode based on the TI weak link. The superconducting layers S are assumed to be thin so that the system is effectively two-dimensional. $\phi = \phi_2 - \phi_1$ corresponds to the phase difference between the superconducting parts. θ represents the angle of the Fermi surface rotation in the momentum space. (b) – The tight-binding representation of the middle normal region. Here two-layer region with blue sites corresponds to the virtual self energy lead with hopping term t from the left to the right site

Bogoliubov–de Gennes (BdG) Hamiltonian and assume the nearest neighbour hopping approximation. Such system can be described by the following effective Hamiltonian [9, 14]:

$$\begin{aligned}
 H(\mathbf{k}) &= H_0 + H_{SOC} + H_W + H_S + H_Z = \\
 &= \left(\frac{\hbar^2}{2m_{\text{eff}}} (k_y^2 + k_x^2) - \mu_x \right) \hat{s}_0 \otimes \hat{\sigma}_z + \\
 &+ \alpha (k_y \hat{s}_x - k_x \hat{s}_y) \otimes \hat{\sigma}_z + \lambda k_x (k_x^2 - 3k_y^2) \hat{s}_z \otimes \hat{\sigma}_z + \\
 &+ g\mu_B \mathbf{B} \cdot \hat{\mathbf{s}} \otimes \hat{\sigma}_z + \Delta \hat{s}_0 \otimes \hat{\sigma}_x.
 \end{aligned} \tag{1}$$

Here μ_x is the chemical potential in the corresponding

¹⁾e-mail: tkarabassov@hse.ru

region ($x = S$ for the superconducting region S and $x = N$ for the bare topological insulator surface TI), α is the strength of the spin-orbit coupling and λ is the warping coefficient. μ_B is the Bohr magneton and $\mathbf{B} = (0, B_y, 0)$ is the Zeeman field. The Zeeman field $\mathbf{B}$ is assumed to be finite in all the regions of the hybrid structure. The order parameter $\Delta(x) = \Delta e^{i\phi_2} \theta(x - d_n/2) \theta(x - d_n/2 - d_s) + \Delta e^{i\phi_1} \theta(x + d_n) \theta(x + d_n/2 + d_s)$, where Δ is a real-valued constant, $\phi = \phi_2 - \phi_1$ is the phase difference between the superconducting islands and $\theta(x)$ is the Heaviside step function. The matrices $\hat{s}$ and $\hat{\sigma}$ are the Pauli matrices in the spin and particle-hole spaces respectively. These spaces are combined by the Kronecker product $\otimes$.

The Hamiltonian in Eq. (1) can describe both the surface and quasi-two-dimensional bulk states of the topological insulator [14]. The case of the surface states with a robust Dirac cone dispersion can be realized in the limit of $m_{\text{eff}} \rightarrow \infty$. On the other hand, when the quadratic term is not sufficiently small the model coincides with the two-dimensional electron gas with the Rashba spin-orbit coupling.

Within the model we calculate the superconducting current-phase relations (CPR) and the Josephson critical current. First we show that the warping term causes the Josephson current anisotropy, i.e. the supercurrent depends on the orientation of the warped Fermi surface. We demonstrate that in the presence of the finite in-plane Zeeman field there is a Josephson current nonreciprocity between the two superconducting islands. This phenomenon is known as the superconducting Josephson diode effect [8]. As a next step we take into account the hexagonal warping of the TI Fermi surface which is inherent in certain 3D topological insulators [9]. We claim that the presence of the hexagonal warping leads to the anisotropy of the supercurrent nonreciprocity in the system under consideration. This is a direct consequence of the rotational symmetry breaking caused by the presence of the hexagonal warping.

Funding. This work was supported by the Foundation for the Advancement of Theoretical Physics and Mathematics “BASIS” grant number 22-1-5-105-1. The

calculation of Fig. 2 of the main text was supported by the Mirror Laboratories Project and the Basic Research Program of the National Research University Higher School of Economics.

Conflict of interest. Author declares that there is no conflict of interest.

This is an excerpt of the article “Anisotropic Josephson diode effect in the topological hybrid junctions with the hexagonal warping”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023603792

1. M. Masuko, M. Kawamura, R. Yoshimi, M. Hirayama, Y. Ikeda, R. Watanabe, J. J. He, D. Maryenko, A. Tsukazaki, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, N. Nagao, and Y. Tokura, npj Quantum Mater. **7**, 1 (2022).
2. I. V. Bobkova, A. M. Bobkov, A. A. Zyuzin, and M. Alidoust, Phys. Rev. B **94**, 134506 (2016).
3. I. V. Krive, L. Y. Gorelik, R. I. Shekhter, and M. Jonson, Low Temp. Phys. **30**(5), 398 (2004).
4. K. N. Nesterov, M. Houzet, and J. S. Meyer, Phys. Rev. B **93**, 174502 (2016).
5. T. Karabassov, I. V. Bobkova, A. A. Golubov, and A. S. Vasenko, Phys. Rev. B **106**, 224509 (2022).
6. T. Karabassov, E. S. Amirov, I. V. Bobkova, A. A. Golubov, E. A. Kazakova, and A. S. Vasenko, Condensed Matter **8**(2), 36 (2023).
7. M. Houzet and J. S. Meyer, Phys. Rev. B **92**, 014509 (2015).
8. M. Nadeem, M. S. Fuhrer, and X. Wang, Nature Reviews Physics **5**, 558 (2023).
9. L. Fu, Phys. Rev. Lett. **103**, 266801 (2009).
10. R. S. Akzyanov and A. L. Rakhmanov, Phys. Rev. B **99**, 045436 (2019).
11. A. S. Vasenko, A. A. Golubov, V. M. Silkin, and E. V. Chulkov, JETP Lett. **105**, 497 (2017).
12. A. S. Vasenko, A. A. Golubov, V. M. Silkin, and E. V. Chulkov, J. Phys. Condens. Matter **29**, 295502 (2017).
13. C. Y. Zhu, S. H. Zheng, H. J. Duan, M. X. Deng, and R. Q. Wang, Front. Phys. **15**, 1 (2020).
14. C.-X. Liu, X.-L. Qi, H. Zhang, X. Dai, Z. Fang, and S.-C. Zhang, Phys. Rev. B **82**, 045122 (2010).

Высотный ход потоков суб-релятивистских электронов в области Южно-Атлантической аномалии по данным измерений на спутнике формата кубсат “СириусСат-1”

А. В. Богомолов⁺¹⁾, В. В. Богомолов^{+*}, А. Ф. Июдин⁺, В. В. Калегаев^{+*}, М. В. Коржик[°], В. И. Оседло⁺,
М. В. Подзолко⁺, В. В. Сазонов[×], С. И. Свертилов^{+*}

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

^{*}Физический факультет, МГУ им. М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

[×]Факультет космических исследований, МГУ им. М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

[°]Белорусский государственный университет имени Ф. Скорины,
Научно-исследовательский институт ядерных проблем, 220030 Минск, Республика Беларусь

Поступила в редакцию 2 декабря 2023 г.

После переработки 23 декабря 2023 г.

Принята к публикации 27 декабря 2023 г.

Рассмотрены результаты измерений потоков электронов с энергиями > 0.3 МэВ на заключительных участках траектории полета спутника “СириусСат-1” в диапазоне высот от ~ 400 до 180 км в области Южно-Атлантической аномалии. Существующие модели распределений потоков электронов в околоземном пространстве, например, AE8 и AE9, в основном касаются захваченных частиц радиационных поясов на высотах более 400 км. Данные о потоках электронов суб-релятивистских энергий на относительно малых высотах менее 300 км практически отсутствуют. Благодаря тому, что спутник “СириусСат-1” продолжал функционировать вплоть до моментов сгорания в атмосфере, были проведены уникальные измерения высотного хода потоков суб-релятивистских электронов, в том числе в области Южно-Атлантической аномалии.

DOI: 10.31857/S1234567824040116, EDN: szmzge

1. Введение. На сегодняшний день о распределении потоков электронов в околоземном космическом пространстве (ОКП) накоплен обширный экспериментальный материал. На основе этих данных разработаны теоретические модели, описывающие распределение заряженных частиц в радиационных поясах Земли (РПЗ). В части электронов следует отметить модель AE9 [1], основанную на более новых экспериментальных данных, по сравнению с широко используемыми моделью AE8 [2] и моделью НИИЯФ МГУ [3], разработанными в 1970–1980-х гг. Модель AE9 основана на измерениях космических аппаратов (КА) серий LANL-GEO, GPS, POLAR, SAMPEX, NEO и др., выполненных в 1990–2011 гг. Модель описывает пич-угловое распределение и общие потоки электронов с энергиями 0.01–10 МэВ в координатах, связанных с интегральными инвариантами (I , Φ) движения захваченных частиц в магнитном поле.

Однако необходимо подчеркнуть, что большинство полученных на сегодняшний день эксперимен-

тальных данных и, соответственно, построенные на их основе модели относятся к высотам более 350–400 км. Этому есть вполне понятное объяснение, связанное с тем, что на малых высотах из-за наличия остаточной атмосферы спутники не могут долго существовать, а в случае схода с орбиты на заключительных этапах полета, научная аппаратура, как правило, уже не работает.

В то же время картина распределения потоков электронов на малых высотах имеет свои особенности и их изучение представляет самостоятельный интерес. Распределение потоков захваченных частиц на малых высотах определяется положением условной границы магнитных дрейфовых оболочек относительно верхних слоев атмосферы, поскольку именно взаимодействие с атомами и ионами остаточной атмосферы является основным фактором, определяющим время существования захваченных и квази-захваченных частиц на конечных траекториях. В свою очередь, конфигурация дрейфовых оболочек определяется магнитным полем Земли, которое может претерпевать существенные долговременные изменения, при которых меняется, как главный ди-

¹⁾e-mail: aabboogg@srd.sinp.msu.ru

польный момент, так и гармоника более высокого порядка [4], которые определяют асимметрию поля на малых высотах. Поэтому, потоки частиц радиационных поясов на малых высотах, помимо вариаций, связанных с геомагнитной активностью, также испытывают долговременные изменения, связанные с вековыми изменениями магнитного поля Земли (см., например, [5]).

С учетом особенностей распределения заряженных частиц в геомагнитном поле большие потоки электронов суб-релятивистских энергий на малых высотах наблюдаются в районе Южно-Атлантической аномалии (ЮАА), т.е. фактически во внутреннем радиационном поясе. Настоящая работа посвящена результатам измерений потоков электронов с энергиями > 0.3 МэВ на заключительных участках траектории полета спутника “СириусСат-1” [6] в диапазоне высот от ~ 400 до 180 км в области ЮАА.

2. Описание эксперимента. Спутник “СириусСат-1” был запущен вместе с идентичным КА “СириусСат-2” с Международной космической станции (МКС) 15 августа 2018 г. и успешно проработал до 9 декабря 2020 г. Орбита спутника соответствовала орбите МКС, т.е. характеризовалась наклоном 51° и высотой, менявшейся от ~ 430 км в начале полета (август 2018 г.) до ~ 180 км в декабре 2020 г. [7].

В качестве полезной нагрузки (ПН) на спутниках “СириусСат” работал детектор космического излучения измеряющий потоки заряженных частиц (главным образом электронов) и гамма-квантов в диапазоне энергий 0.3–3.0 МэВ. Для идентификации частиц в ПН использовался трехслойный детектор (1.0 см CsI(Tl), 0.23 см CsI(Na), 0.2 см пластмассовый сцинтиллятор), геометрическая площадь регистрирующей поверхности каждого сцинтиллятора составляла 4 см^2 . Все три сцинтиллятора просматривались двумя фотоэлектронными умножителями (ФЭУ). Суммарная амплитуда сигналов на выходах ФЭУ пропорциональна энерговыделению в детекторе и измерялась с использованием специальных электронных схем (амплитудно-цифровых преобразователей). Для определения абсолютных значений энергии была проведена предполетная калибровка прибора с использованием стандартных радиоактивных источников. При этом разделение событий, зарегистрированных в разных сцинтилляторах, осуществлялось по их характерным временам высвечивания. Такое устройство детектора позволило осуществлять идентификацию типа регистрируемых частиц методом временного анализа. Временное разрешение де-

тектора составляло ~ 20 мкс. Энергетический диапазон определяется конфигурацией детекторного узла прибора – толщинами сцинтилляторов и защитного кожуха (0.1 см). Соответственно в пластмассовом сцинтилляторе преимущественно регистрировались электроны с энергией > 500 кэВ, а в неорганических сцинтилляторах – преимущественно гамма-кванты с энергиями от 300 кэВ до ~ 3 МэВ. С конечной вероятностью в пластмассовом сцинтилляторе могли также регистрироваться протоны с энергиями более 5 МэВ, значимые потоки таких частиц наблюдаются только в области ЮАА, но их величины на порядок величины меньше потоков суб-релятивистских электронов. Потоки частиц других типов на орбите спутника вообще пренебрежимо малы [8]. Более подробное описание детектора космических излучений на спутнике “СириусСат-1” дано в [6].

Важной особенностью этого эксперимента было то, что, кроме мониторингового режима, в котором за заданный интервал экспозиции (как правило, 1 с) фиксировалось число регистрируемых электронов (в основном пластмассовым сцинтиллятором) и гамма-квантов (в основном неорганическими сцинтилляторами), был также режим записи массивов событий (так называемый “по-событийный”). Под событием подразумевается факт регистрации гамма-кванта или заряженной частицы. В этом режиме записывалось точное время регистрации события и информация о количестве света, собранного в сцинтилляторах за 600 нс (“быстрый компонент”) и за 2 мкс (“медленный компонент”). Эта информация позволила в дальнейшем определить тип зарегистрированной частицы и ее энергию. Именно запись массивов позволила проводить анализ быстрых (суб-секундных) вариаций. Однако, низкая пропускная способность канала связи не позволяла проводить частые измерения в этом режиме. С помощью прибора проводились измерения, как медленных, так и быстрых изменений потоков электронов и гамма-квантов на орбите. За время эксперимента в “по-событийном” режиме было получено несколько массивов данных, относящихся к областям захваченной радиации, в том числе ЮАА, “зазора” и высыпаний из внутреннего пояса.

3. Особенности траектории спутнике “СириусСат-1” на заключительной стадии полета. Срок гарантированного существования КА “СириусСат-1” составлял 6 месяцев [9], баллистический срок существования – около 18 месяцев. Конструктивный баллистический коэффициент КА “СириусСат-1”, рассчитанный по его массово-габаритным характеристикам составляет 0.012–

0.029, что на порядок выше, чем баллистический коэффициент Международной космической станции [10], поэтому на скорость снижения КА существенное влияние оказывает плотность атмосферы Земли на высоте его полета. Рассматриваемый КА не был оборудован автономной системой навигации, данными по радиоконтролю орбиты коллектив авторов не располагал. Параметры движения КА брались из публичного сервиса space-track.org, предоставляющего данные американской системы контроля космического пространства NORAD в виде двухстрочных элементов (TLE). Данные именно NORAD традиционно используются для определения орбит КА такого класса, как “СириусСат-1”. Данный способ позволяет задать замкнутую эллиптическую орбиту, но не может задать незамкнутую траекторию схода КА с орбиты, поэтому для последнего участка полета КА траектория строилась при помощи математической модели, основанной на интегрировании системы уравнений движения КА, предложенной в [10].

При моделировании орбитального движения КА “СириусСат-1” учитывалась неоднородность гравитационного потенциала Земли в виде поля сферических гармоник 8×8 и силы атмосферного торможения в предположении, что молекулы атмосферного газа совершают с поверхностью КА абсолютно неупругий удар. Для определения плотности атмосферы использовалась ее динамическая модель [11], параметры геомагнитной и солнечной активности брались с сайта celestrak.org.

Модель орбитального движения содержит 7 изменяемых параметров – начальный радиус-вектор и вектор скорости, а также баллистический коэффициент. По координатам, получаемым в рамках модели SGP4 [12], при помощи метода наименьших квадратов определялись параметры орбиты и баллистический коэффициент [10]. Точки орбиты брались в двухчасовом интервале с центром в момент времени заданного TLE с шагом в 10 с. Далее решение интегрировалось до момента, когда высота КА над референсным эллипсоидом не станет меньше 140 км. Ошибка определения орбиты считалась статистически.

При помощи указанного метода по последним трем TLE от 08-09 декабря 2020 г. были получены следующие оценки параметров орбитального движения КА:

- среднеквадратичное отклонение (СКО) радиус вектора = 2723.21 м;
- СКО вектора скорости = 3621.82 мм/с,
- баллистический коэффициент = 0.0126767.

Таблица 1. Расчетные значения высоты орбиты КА “СириусСат-1”

Дата	Время, UTC, ч:м:с	Высота орбиты, км
08.12.2020	19:43:09	194.702
08.12.2020	20:43:09	186.879
08.12.2020	21:43:09	211.665
08.12.2020	22:43:09	191.897
08.12.2020	23:43:09	182.733
09.12.2020	0:43:09	208.592
09.12.2020	1:43:09	188.374
09.12.2020	2:43:09	179.658
09.12.2020	3:43:09	202.132
09.12.2020	4:43:09	184.594
09.12.2020	5:43:09	177.816
09.12.2020	6:43:09	193.573
09.12.2020	7:43:09	181.398
09.12.2020	8:43:09	175.908
09.12.2020	9:43:09	182.578
09.12.2020	10:43:09	177.694
09.12.2020	11:43:09	171.645
09.12.2020	12:43:09	168.79
09.12.2020	13:43:09	172.217
09.12.2020	14:43:09	162.893
09.12.2020	15:43:09	150.794
09.12.2020	16:43:09	158.807
09.12.2020	17:43:09	138.412

Значения высоты орбиты КА “СириусСат-1” на завершающем этапе его функционирования представлены в табл. 1.

Последняя строчка в табл. 1 соответствует ожидаемому времени схода КА с орбиты – 17:43:09 UTC 9 декабря 2020 г.

Примечателен тот факт, что при определении параметров орбиты по набору TLE за интервал времени 01–05 ноября 2020 г., получены значения параметров орбитального движения КА:

- СКО радиус вектора = 4575.94 м;
- СКО вектора скорости = 5055.071.82 мм/с;
- баллистический коэффициент = 0.0124984;

ожидаемое время схода КА с орбиты – 22:17:32.4393 UTC 9 декабря 2022 г., и соответствующая высота орбиты 135.939 км, что близко к значениям табл. 1. Следует отметить, что движение КА на таких низких орбитах тяжело прогнозируется из-за неопределенностей, связанных с состоянием атмосферы, поэтому требуется ежедневное уточнение. Соответственно, орбита на конечной стадии и время схода были предсказаны по данным за последние 2 дня до конца полета спутника. Сравнение с прогнозом, сделанным за месяц до окончания миссии, показывает, что используемый метод дает вполне приемлемую точность.

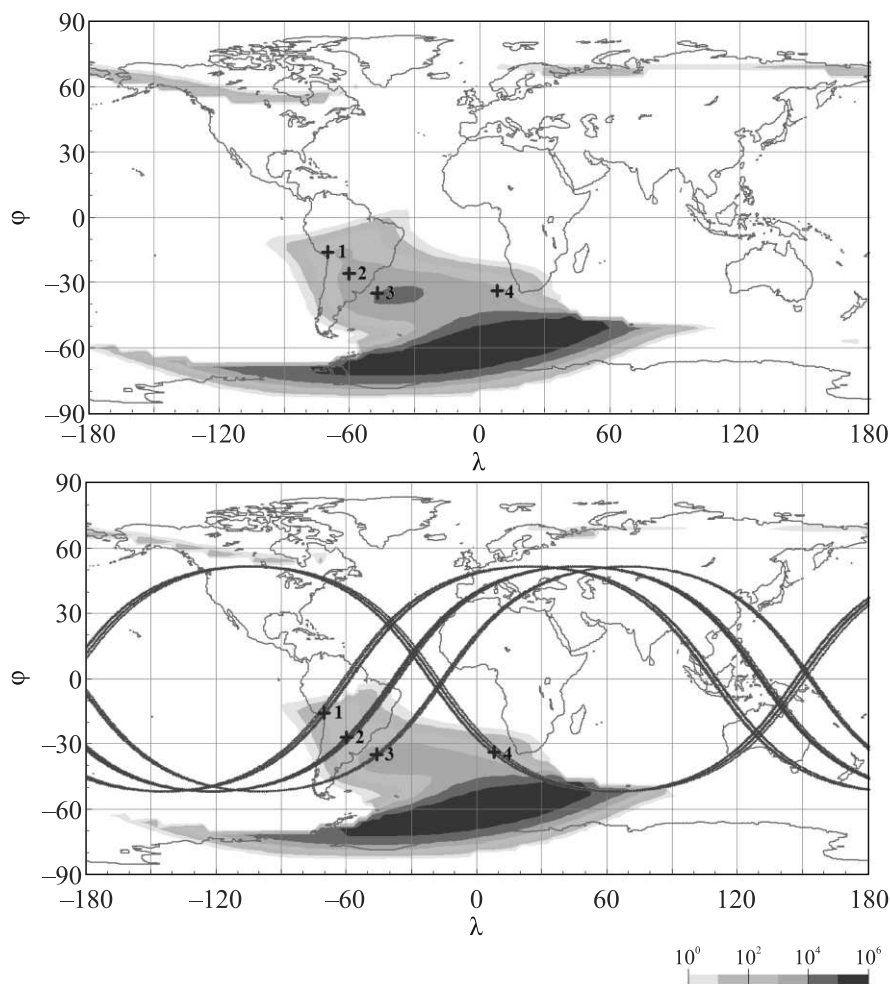


Рис. 1. (Цветной онлайн) Карты распределений потоков электронов с $E > 500$ кэВ на высотах 400 км (вверху) и 300 км (внизу). Цветовая шкала интенсивностей в $1/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ приведена внизу рисунка. Представленные распределения построены из теоретической модели AE9 с учетом поправки на вековую вариацию геомагнитного поля за 2020 г. На нижней карте также изображены линиями проекции траекторий орбиты спутника, проходящих через области, для которых строились высотные зависимости потоков электронов

Несмотря на достаточно большие значения СКО, полученные на основе аппроксимации данных TLE, которые, по всей видимости, являются следствием непригодности модели SGP4 для расчета незамкнутых орбит и больших расхождений модели атмосферы с реальностью на заданных высотах, полученные расчетные значения времени схода КА с орбиты, соответствуют реальности. Спутник “СириусСат-1” прекратил существование именно 09 декабря 2020 г.

4. Результаты измерений высотного хода потоков электронов в области ЮАА на спутнике “СириусСат-1”. На рисунке 1 представлены карты распределений потоков электронов с энергиями $E > 500$ кэВ на высотах 400 и 300 км, построенные по модели AE9 [1] для 2020 г. Это эмпирическая модель, полученная из усредненных данных измерений

потоков электронов в основном в первом десятилетии XXI в. на различных КА, указанных во Введении. Эта модель также учитывает ежегодные поправки на вековую вариацию магнитного поля Земли.

Для определения высотного хода электронов в области ЮАА были выбраны четыре географические области, (отмечены прямыми крестиками на рис. 1), для каждой из которых значения широты φ и долготы λ имели небольшой разброс значений (2° по φ и 4° по λ). Были отобраны витки, проходившие вблизи ЮАА через указанные области, когда спутник уже начал быстро терять высоту (8 и 9 декабря 2020 г.), но при этом измерялись значимые скорости счета. Также условие отбора подразумевало, что через отмеченные области проходили витки, когда спутник был на высоте более 400 км, и для них имелась ин-

формация о темпе счета суб-релятивистских электронов.

Для каждого прохождения спутником областей, отмеченных на рис. 1, измерялись средние за временной интервал пересечения области значения скорости счета электронов с энергией > 500 кэВ – J . Затем отдельно для каждой области были построены зависимости величины J от соответствующей высоты орбиты спутника, которые приведены на рис. 2 (высота орбиты также бралась средней по области для каждого пересечения).

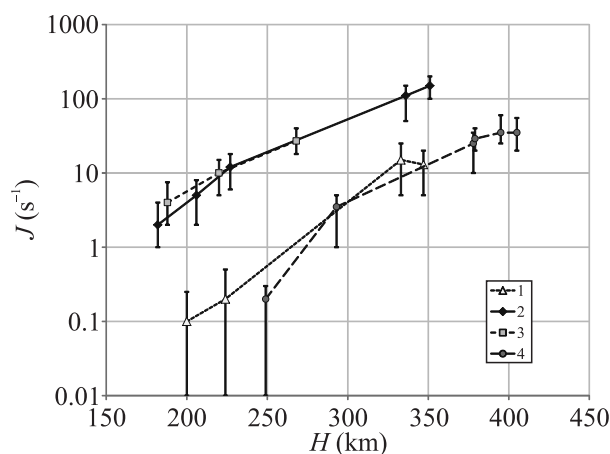


Рис. 2. Высотные зависимости скорости счета суб-релятивистских электронов в районе ЮАА. Номера зависимостей соответствуют обозначениям областей, отмеченных на рис. 1

Величины ошибок, отложенные на рис. 2, определялись эмпирическим путем, по минимальным и максимальным значениям скоростей счета, измерявшимся при прохождении исследуемой области. Этот разброс значений превышает чисто статистический и может быть вызван наличием неоднородностей с учетом вращения спутника.

На рисунке 3 изображены высотные зависимости скорости счета суб-релятивистских электронов отдельно для каждой из областей в районе ЮАА, отмеченных на рис. 1, совместно с зависимостями, предсказываемыми моделью распределения всенаправленных потоков захваченных электронов АЕ9 [1].

5. Обсуждение и выводы. Как было отмечено выше, экспериментальные зависимости скоростей счета суб-релятивистских электронов сравнивались с результатами теоретических моделей распределения электронов в ОКП. Для этого с использованием моделей АЕ9 были проведены расчеты ожидаемых потоков электронов с энергией более 500 кэВ в обла-

сти ЮАА для высот от 180 до 420 км в следующих точках (широта, долгота, высота):

- 1) –34 град. южной широты, долгота 8 град.;
- 2) 35 град. южной широты, долгота 313 град.;
- 3) 26 град. южной широты, долгота 300 град.;
- 4) –16 град. южной широты, долгота 290 град.

Как видно из рис. 3, во всех четырех областях в районе ЮАА, для которых были получены наблюдательные данные, измеренные значения скорости счета для высот менее ~ 230 км становятся существенно меньше предсказываемых моделью АЕ9. По-видимому, это связано с тем, что данная модель не учитывает конкретного состояния верхней атмосферы для заданного интервала времени наблюдений. Высотный ход интенсивности электронов обусловлен в первую очередь их не адиабатическими потерями за счет взаимодействия с атомами остаточной атмосферы. Достаточно резкое падение интенсивности потоков суб-релятивистских электронов, начиная с высот менее 250 км, может свидетельствовать о расширении остаточной атмосферы, которое может быть связано с повышением уровня солнечной активности, подъем которой начался с очередным 11-летним циклом как раз в конце 2020 г. Следует отметить, что модели АЕ8 и АЕ9 солнечную активность не учитывают. Другим возможным объяснением расхождения измеренной высотной зависимости с предсказанием теоретической модели АЕ9 может быть связано с тем, что она не вполне корректно учитывает вековую вариацию магнитного поля Земли, которая влияет на жесткость геомагнитного обреза в области малых высот.

В результате измерений потоков электронов с энергиями > 0.3 МэВ на заключительных участках траектории полета спутника “СириусСат-1” были получены данные о величинах потоков в диапазоне высот от ~ 400 до 180 км (сами данные находятся на сайте Центра данных мониторинга космической погоды НИИЯФ МГУ по адресу <https://swx.sinp.msu.ru/tools/davisat.php>). Было показано, что в области ЮАА измеренные потоки значимо меньше предсказываемых теоретическим моделями типа АЕ8, АЕ9. Указанные расхождения с известными теоретическими моделями, рассматривающими распределение потоков захваченных электронов в ОКП (АЕ8, АЕ9) свидетельствуют о необходимости их доработки с учетом реального состояния атмосферы в зависимости от уровня солнечной активности. Также требуется дополнительное изучение возможных механизмов заброса частиц в области, в которых стабильные потоки захваченных частиц существовать не могут.

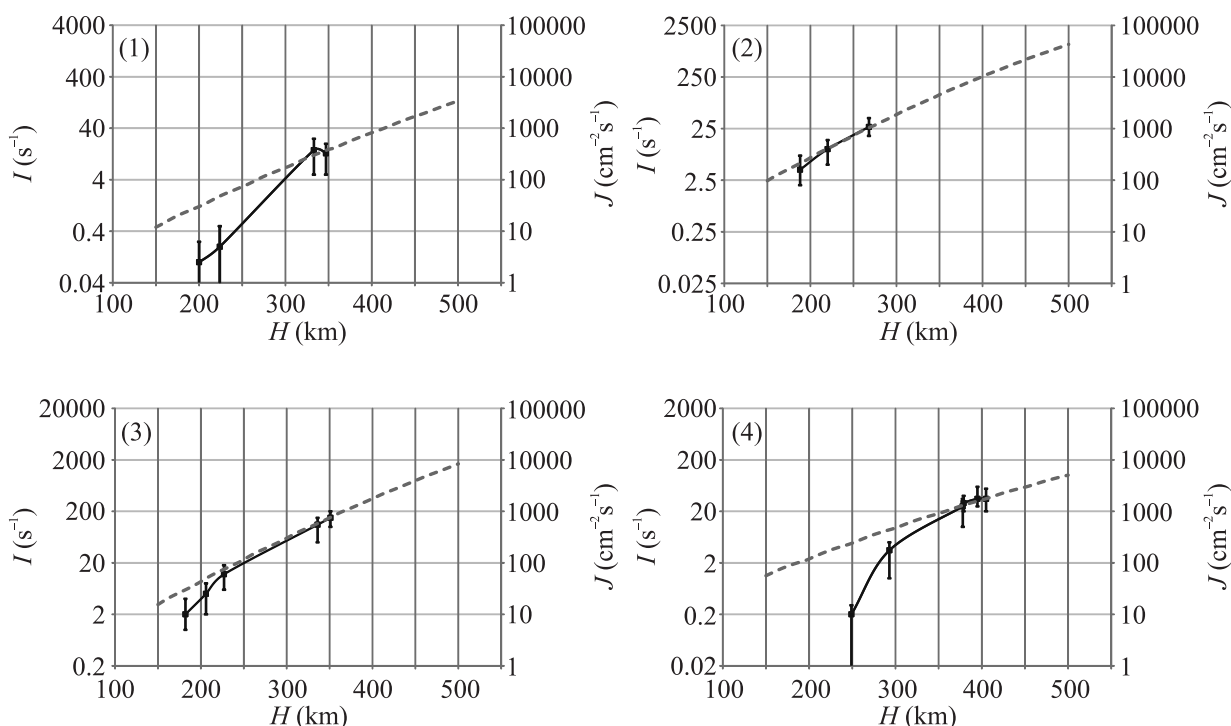


Рис. 3. Высотные зависимости скорости счета суб-релятивистских электронов для областей, отмеченных на рис. 1 (φ , λ – географическая широта и долгота): 1 – $\varphi = -16^\circ$, $\lambda = 290^\circ$; 2 – $\varphi = -26^\circ$, $\lambda = 300^\circ$; 3 – $\varphi = -35^\circ$, $\lambda = 313^\circ$; 4 – $\varphi = -34^\circ$, $\lambda = 8^\circ$. Пунктирные линии показывают высотные зависимости для указанных областей, построенные на основе модели AE9 [1]. Левая шкала – экспериментальные данные, правая шкала – результаты расчетов

6. Финансирование работы. Данная работа в части анализа данных космического эксперимента “СириусСат-1” выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда, проект # 23-42-10005 и Белорусского фонда фундаментальных исследований, проект # F23-RSF-074. В части расчета траектории спутника и сопоставления с данными теоретических моделей (Сазонов В.В., Свертилов С.И. и Оседло В.И.) поддержка работы осуществлялась Научно-образовательной школой Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова “Фундаментальные и прикладные исследования космоса”, проект # 23А-Ш01-02 “Созвездие 270”.

7. Конфликт интересов. Авторы объявили, что у них нет никаких конфликтов интересов.

1. G.P. Ginet, T.P. O'Brien, S.L. Huston, W.R. Johnston, T.B. Guild, R. Friedel, C.D. Lindstrom, C.J. Roth, P. Whelan, R.A. Quinn, D. Madden, S. Morley, and Y.-J. Su, Space Sci. Rev. **179**, 579 (2013).

2. J.I. Vette, The AE-8 trapped electron environment. (NSSDC/WDC-A-R&S 91-24, 1991).

3. И. В. Гецелев, А. Н. Гусев, Л. А. Дарчиева, Н. А. Кабашова, Т. И. Морозова, А. В. Павлов, М. И. Панасюк, Г. И. Пугачева, С. Я. Рейзман, О. И. Савун, Э. Н. Сосновец, Л. В. Тверская, Г. А. Тимофеев, Б. Ю. Юшков, *Модель пространственно-энергетического распределения потоков захваченных частиц (протонов и электронов) в радиационных поясах Земли*, изд. МГУ, препринт НИИЯФ МГУ-91-37/241, М. (1991).

4. О. О. Царева, Л. М. Зелёный, Х. В. Малова, М. В. Подзолко, Е. П. Попова, В. Ю. Попов, Успехи физических наук **188**, 207 (2018)

5. D. Heynderickx, J. Lemaire, and E. J. Daly, Radiat. Meas. **26**, 325 (1996).

6. В. В. Богомолов, А. В. Богомолов, Ю. Н. Дементьев, В. Е. Еремеев, Р. Н. Жарких, А. Ф. Июдин, И. А. Максимов, В. И. Оседло, М. И. Прохоров, С. И. Свертилов, Вестник Московского университета. Серия 3: Физика, астрономия **6**, 125 (2020).

7. <https://sputnix.ru/ru/sputniki/na-orbite/siriussat-1>.

8. *Модель космоса*, под ред. проф. М. И. Панасюка, Книжный дом – университет, М. (2007), т. 1.

9. <https://sputnix.ru/ru/o-nas/novosti/poluchenyipervyye-nauchnyie-dannyie-so-sputnikov-siriussat-12>.

10. В. В. Сазонов, Математическое моделирование **32**(10), 77 (2020).

11. ГОСТ Р 25645.166-2004, АТМОСФЕРА ЗЕМЛИ ВЕРХНЯЯ. Модель плотности для баллистического обеспечения полетов искусственных спутников Земли.
12. D. Vallado and P. Crawford, SGP4 Orbit Determination, AIAA/AAS Astrodynamics Specialist Conference and Exhibit (2008); DOI:10.2514/6.2008-6770.

Fermionic quartet and vestigial gravity

G. E. Volovik¹⁾

Low Temperature Laboratory, Aalto University, P.O. Box 15100, FI-00076 Aalto, Finland

Landau Institute for Theoretical Physics, 142432 Chernogolovka, Russia

Submitted 9 December 2023

Resubmitted 9 December 2023

Accepted 11 January 2024

DOI: 10.31857/S1234567824040128, EDN: sxsgnx

Experiments on superfluid $^3\text{He-B}$ demonstrated the anomalous behaviour, which suggested the existence of a new state above the superfluid transition but below the normal state [1]. The possible interpretation was that when the disorder suppresses the anisotropic Cooper pairing, the 4-fermion state with reduced anisotropy is formed. Such intertwined states are called the vestigial order, see review paper [2].

There can be many different realizations of the fermionic quartets, see, e.g., Eqs. (10.2)–(10.7) in [3] and Eqs. (1) and (2) in [4]. These states have different types of the topological objects. For example, if the intertwined state has the form $\langle\Psi\Psi\Psi\Psi\rangle$, the mass of the effective boson is $4m$, which gives rise to the fractional vortices with circulation quantum $2\pi\hbar/4m$.

An interesting example of the quartet states is the combination of the $S = 1$ pairing in the s -wave channel and the $S = 0$ pairing in the p -wave channel, both being forbidden separately [5]. One may also expect the quartet order parameter, which combines the p -wave pairing with ferromagnetism, while both the Cooper pairing and ferromagnetism are absent. The four-fermion condensate naturally appears in the core of vortices [6]. More on the $4e$ condensates can be found in [7–17]. The sextuplets of fermions in the $2 + 1$ systems give the fractional values ($1/3$ or $1/6$) of the intrinsic Quantum Hall Effect [18].

We consider the vestigial order on example of the spin-triplet p -wave superfluid phases of liquid ^3He , where the order parameter is the complex 3×3 matrix $A_{\alpha i}$ (α is the spin vector index, and i is the orbital vector index). $A_{\alpha i}$ breaks the symmetry $G = U(1) \times SO(3)_L \times SO(3)_S$ of the normal liquid, where S and L denote the spin and orbital rotations (we ignore the discrete symmetries). For the polar phase the order parameter is $A_{\alpha i} \propto e^{i\Phi} d_\alpha m_i$, where $\mathbf{d}$ is the unit

vector in the spin space; and $\mathbf{m}$ is the unit vector in the orbital space.

The many-component order parameter is the typical source of the intertwined states. It is not excluded that there can be different intertwined vestigial states, which separate the polar phase from the normal state. Example is the state in which the pair order parameter is absent, $\langle A_{\alpha i} \rangle = 0$, but the 4-fermionic order parameter is the same as in the nematic liquid crystals, $\langle A_{\alpha i} A_{\beta i}^* + A_{\beta i} A_{\alpha i}^* \rangle \propto d_\alpha d_\beta$. The role of the director is played by the vector $\mathbf{d}$ in the spin space. This quartet represents the non-superfluid spin nematic, where the symmetry, which is broken in the polar phase, is partially restored. The polar phase symmetry $SO(2)_L \times SO(2)_S$ is enlarged to $U(1) \times SO(3)_L \times SO(2)_S$. So there is the following sequence of symmetry breaking transitions starting with the normal state:

$$G = U(1) \times SO(3)_L \times SO(3)_S \rightarrow \quad (1)$$

$$\rightarrow H_{\text{nematic}} = U(1) \times SO(3)_L \times SO(2)_S \rightarrow \quad (2)$$

$$\rightarrow H_{\text{polar}} = SO(2)_L \times SO(2)_S. \quad (3)$$

The symmetry breaking scenarios determine the behaviour of the topological defects in transition from the Cooper pairs to quartets. Example is the monopole in the planar phase of superfluid ^3He and in its 4-fermion partners. The monopole is the combined object: it is the monopole in spin space, which is accompanied by the monopole in the orbital vector [19]. If one tries to split the two monopoles, there appears the analog of the Nambu string which connects the spin and orbital monopoles [20]. In the 4-fermion phases the symmetry is partially restored, the orbital vector is absent, and the combined monopole in the planar phase transforms to the isolated monopole in the spin nematics vector.

In the two-step transitions one may expect the appearance of the hybrid defects, composed of two different types of topological defects with different dimensions. Such combined objects are described by the rela-

¹⁾e-mail: grigori.volovik@aalto.fi

tive homotopy groups [21]. These include walls bounded by strings and strings terminated by monopoles [22–25].

In superfluid $^3\text{He-B}$, the order parameter $A_{\alpha i}$ plays the role of gravitational triads [26, 27]. This is the analog of the Akama–Diakonov–Wetterich (ADW) gravity [28–31], where tetrads are formed as the bilinear combinations of fermionic operators (see also [32]):

$$e_\mu^a = \langle \hat{E}_\mu^a \rangle, \quad \hat{E}_\mu^a = \frac{1}{2} \left(\Psi^\dagger \gamma^a \partial_\mu \Psi - \Psi^\dagger \overleftarrow{\partial}_\mu \gamma^a \Psi \right). \quad (4)$$

The emergent quantum gravity here is of the type of Einstein–Cartan–Sciama–Kibble (ECSK) tetrad gravity, see review in [33]. The metric, which is the bilinear combination of tetrads, represents the fermionic quartet.

The analogy with the quartet phases in superfluid ^3He suggests that the ADW scenario can be extended to incorporate the vestigial states of quantum gravity, where the bilinear order parameter (tetrad) vanishes, while the quartet order parameter (metric) is nonzero:

$$\langle \hat{E}_\mu^a \rangle = 0, \quad g_{\mu\nu} = \eta_{ab} \langle \hat{E}_\mu^a \hat{E}_\nu^b \rangle. \quad (5)$$

The vestigial order in Eq. (5) describes the emergence of the Einstein general relativity in terms of metric fields $g_{\mu\nu}$. So, this symmetry breaking gives rise to the gravity for bosons, although it emerges in the fermionic vacuum.

The further spontaneous symmetry breaking is the breaking of the spin rotation symmetry by the tetrad order parameter e_μ^a in Eq. (4). This gives rise to the Weyl–Dirac action for fermions and to the Einstein–Cartan–Sciama–Kibble (ECSK) tetrad gravity, which interacts also with fermions. The sequence of symmetry breaking phase transitions is: disorder $\rightarrow$ GR $\rightarrow$ ECSK.

Due to the quartic correlators, the ECSK gravity may have the memory on the vestigial gravity:

$$g_{\mu\nu} = \eta_{ab} e_\mu^a e_\nu^b + \tilde{g}_{\mu\nu}, \quad (6)$$

$$\tilde{g}_{\mu\nu} = \eta_{ab} (\langle \hat{E}_\mu^a \hat{E}_\nu^b \rangle - \langle \hat{E}_\mu^a \rangle \langle \hat{E}_\nu^b \rangle). \quad (7)$$

Fermions interact with tetradic part of the metric, while bosons interact with the full metric. Thus the Equivalence Principle can be violated on the level of particles, i.e. a boson and a fermion in a given gravitational field do not follow the same trajectories.

Funding. This work has no funding.

Conflict of interest. The author of this work declares that he has no conflicts of interest.

This is an excerpt of the article “Fermionic quartet and vestigial gravity”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S002136402460006X

1. Yu. M. Bunkov, A. S. Chen, D. J. Cousins, and H. Godfrin, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3456 (2000).
2. R. M. Fernandes, P. P. Orth, and J. Schmalian, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **10**, 133 (2019).
3. G. E. Volovik, *Exotic Properties of Superfluid ^3He* , World Scientific, Singapore (1992).
4. G. E. Volovik, *JETP Lett.* **63**, 301 (1996).
5. G. Aeppli, A. V. Balatsky, H. M. Ronnow, and N. A. Spaldin, *Nat. Rev. Mater.* **5**, 477 (2020).
6. M. M. Salomaa and G. E. Volovik, *J. Phys. Condens. Matter* **1**, 277 (1989).
7. B. V. Svistunov, E. S. Babaev and N. V. Prokof'ev, *Superfluid states of matter*, CRC Press, Boca Raton, USA (2015).
8. P. Tarasiewicz, *Symmetry* **11**, 1358 (2019).
9. N. V. Gnedilov and Y. Wang, *Phys. Rev. B* **106**, 094508 (2022).
10. V. Grinenko, D. Weston, F. Caglieris, Ch. Wuttke et al. (Collaboration), *Nat. Phys.* **17**, 1254 (2021).
11. K.-F. Huang, Y. Ronen, R. Melin, D. Feinberg, K. Watanabe, T. Taniguchi, and P. Kim, *Nat. Commun.* **13**, 3032 (2022).
12. R. M. Fernandes and L. Fu, *Phys. Rev. Lett.* **127**, 047001 (2021).
13. S.-K. Jian, Y. Huang, and H. Yao, *Phys. Rev. Lett.* **127**, 227001 (2021).
14. Y.-B. Liu, J. Zhou, C. Wu, and F. Yang, *Nat. Commun.* **14**, 7926 (2023).
15. R. Liu, W. Wang, and X. Cui, *Phys. Rev. Lett.* **131**, 193401 (2023).
16. Y.-M. Wu and Y. Wang, arXiv:2303.17631.
17. P. Kleinert, arXiv:0802.1271.
18. G. E. Volovik, *JETP* **67**, 1804 (1988).
19. G. E. Volovik, *JETP Lett.* **112**, 505 (2020).
20. T. Sh. Misirpashaev and G. E. Volovik, *JETP* **75**, 650 (1992).
21. G. E. Volovik and K. Zhang, *Phys. Rev. Research* **2**, 023263 (2020).
22. T. W. B. Kibble, G. Lazarides, and Q. Shafi, *Phys. Rev. D* **26**, 435 (1982).
23. J. T. Mäkinen, V. V. Dmitriev, J. Nissinen, J. Rysti, G. E. Volovik, A. N. Yudin, K. Zhang, and V. B. Eltsov, *Nat. Commun.* **10**, 237 (2019).
24. G. Lazarides, Q. Shafi, and A. Tiwari, *JHEP* **05**, 119 (2023).
25. M. Eto, T. Hiramatsu, I. Saito, and Y. Sakakihara, *Phys. Rev. D* **108**, 116004 (2023).
26. G. E. Volovik, *Physica B* **162**, 222 (1990).
27. G. E. Volovik, *J. Low Temp. Phys.* **206**, 1 (2022).
28. K. Akama, *Prog. Theor. Phys.* **60**, 1900 (1978).
29. C. Wetterich, *Phys. Rev. D* **70**, 105004 (2004).
30. D. Diakonov, arXiv:1109.0091.
31. L. Sindoni, *SIGMA* **8**, 027 (2012).
32. S. N. Vergeles, arXiv:2301.01692.
33. F. W. Hehl, arXiv:2303.05366.

Содержание

Том 119, выпуск 3

Поля, частицы, ядра

Градузов В.А., Яковлев С.Л. Осцилляции Гайлитиса–Дамбурга в трехчастичной системе $e^-e^+\bar{p}$ 151

Жутиков И.Н., Литвинович Е.А., Хватов В.А. Влияние учета детальной геометрии активной зоны на поток антинейтрино от реактора ВВЭР-1000 158

Оптика, лазерная физика

Митрофанов А.В., Рожко М.В., Назаров М.М., Якушкин Н.В., Воронин А.А., Федотов А.Б., Сидоров-Бирюков Д.А. Генерация терагерцового излучения релятивистскими лазерными импульсами на поверхности толстых твердотельных мишеней и тонких фольг 166

Кудряшов С.И., Данилов П.А., Винс В.Г., Помазкин Д.А., Пахольчук П.П., Скориков М.Л., Сметанин И.В., Дуонг Ф.В., Минг Ф.Х. Однофотонное фемтосекундное лазерное возбуждение фотолуминесценции НЗ- и Н4-центров природного алмаза для измерения их концентраций 174

Романов А.А., Силаев А.А., Введенский Н.В., Фролов М.В. Двухэлектронный механизм генерации высших гармоник атомом в интенсивном инфракрасном поле и аттосекундном импульсе 180

Конденсированное состояние

Давидович М.В. Металлическая пленка на подложке в магнитном поле как магнитоплазменная замедляющая система СВЧ-ТГц диапазонов 187

Кореев А.С., Бережной П.С., Ваньков А.Б., Кукушкин И.В. Эволюция спинового порядка холловских ферромагнетиков при сильном смешивании уровней Ландау и $1 \leq \nu \leq 2$ 201

Литасов К.Д., Бражкин В.В., Сагатов Н.Е., Инербаев Т.М. Уравнения состояния твердых фаз CO_2 при мегабарных давлениях 206

Орешкин С.И., Петухов М.Н., Музыченко Д.А., Панов В.И., Суров В.О., Самородский А.В., Орешкин А.И. Особенности фторирования поверхности золота Au(111) с использованием молекул фторфуллеренов 212

Терещенко И.А., Хренов М.М., Кленов Н.В., Тихонова О.В. Управление динамическими режимами наноразмерного сверхпроводящего интерферометра 219

Орлов Ю.С., Николаев С.В., Паклин Н.Н. Фотоиндуцированная нелинейная динамика сильно коррелированных систем со спиновым кроссовером: автокаталитический спиновый переход 228

Красавин А.В., Вагов А.В., Васенко А.С., Столяров В.С., Шаненко А.А. Подавление сверхпроводящих флуктуаций в многозонных сверхпроводниках как механизм повышения критической температуры (Миниобзор)	234
Bobkov G.A., Bobkova I.V., Bobkov A.M. Magnetic eigenmodes in chains of coupled φ_0 -Josephson junctions with ferromagnetic weak links	253

Содержание
Том 119, выпуск 4
Оптика, лазерная физика

Бессонов В.О., Розанов А.Д., Федянин А.А. Оптический захват и перемещение микрочастиц ближним полем блоховских поверхностных волн в полимерных волноводах 257

Chang Ch., Shen T., Wang H., Li H., Wang T., Liu J., He G., Zhang Y., Li L. Enhancement of terahertz radiation from saccharide solutions induced by femtosecond laser pulses 263

Wu X.-X., Li S., Zhou J., Xue Z.-Y. High-fidelity and robust stimulated Raman transition with parameter-modulated optimal control 265

Кузьмин Е.В., Красин Г.К., Гулина Ю.С., Данилов П.А., Помазкин Д.А., Горевой А.В., Кузнецов С.В., Воронов В.В., Ковалев В.Ю., Кудряшов С.И., Левченко А.О., Караксина Э.В., Ширяев В.С. Структурная микромодификация алмаза фемтосекундными лазерными импульсами через оптический контакт с нелинейной сильнорефрактивной иммерсионной средой . 267

Вялых А.П., Скакуненко П.И., Шишова М.В., Семенко А.В., Афанасьев А.Е., Белотелов Г.С., Сутырин Д.В., Балыкин В.И. Атомный чип и дифракционная решетка для лазерного охлаждения атомов иттербия 273

Конденсированное состояние

Жандун В.С., Казак Н.В., Васюков Д.М. Магнитная структура Fe_5O_6 : теоретико-групповой анализ и DFT-расчет 283

Моргунов Р.Б., Бахметьев М.В., Чернов А.И., Хутиева А.Б., Садовников А.В. Эффективное воздействие электрического тока на спектры мандельштам-бриллюэновского рассеяния света в структуре NiFe/IrMn 289

Камашев А.А., Гарифьянов Н.Н., Валидов А.А., Катаев В.Е., Осин А.С., Фоминов Я.В., Гарифуллин И.А. Эффект сверхпроводящего спинового клапана в гетероструктуре $\text{Co}/\text{Pb}/\text{Co}$ с изолирующими прослойками 296

Коршунов М.М., Тогушова Ю.Н. Структура сверхпроводящего параметра порядка в нематической фазе соединений железа 302

Karabassov T. Anisotropic Josephson diode effect in the topological hybrid junctions with the hexagonal warping 308

Разное

Богомоллов А.В., Богомоллов В.В., Июдин А.Ф., Калегает В.В., Коржик М.В., Оседло В.И., Подзолко М.В., Сазонов В.В., Свертилов С.И. Высотный ход потоков субрелятивистских электронов в области Южно-Атлантической аномалии по данным измерений на спутнике формата кубсат “СириусСат-1” 310

Мультидисциплинарное

Volovik G.E. Fermionic quartet and vestigial gravity	317
---	-----