

ISSN 0370-274X

Том 118, Выпуск 3–4

Август 2023



Письма
в
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
и
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ
ФИЗИКИ

www.sciencejournals.ru



2023 г. Том 118 вып. 3, стр. 145 – 224

2023 г. Том 118 вып. 4, стр. 225 – 308

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 118

Выпуск 3

10 августа 2023

*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.ac.ru>

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

Размеры нейтрон-протонного гало нуклонно-стабильных состояний ядра ${}^6\text{Li}$

Д. М. Родкин^{+*1)}, Ю. М. Чувильский*

⁺Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н. Л. Духова, 127055 Москва, Россия

*Научно-исследовательский институт ядерной физики имени Д. В. Скобельцына
МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 3 мая 2023 г.

После переработки 23 июня 2023 г.

Принята к публикации 30 июня 2023 г.

Представлены результаты теоретического исследования материального, нейтронного и протонного радиусов нуклонно-стабильных состояний ядра ${}^6\text{Li}$ 1^+ и 0^+ на основе оболочечной модели без инертного кора, а также их сравнительного анализа с радиусами 0^+ состояния ядра ${}^6\text{He}$. Для повышения точности вычислений использована разработанная авторами двумерная процедура экстраполяции. Предложено и обосновано новое определение количественной меры, позволяющее описывать свойства гало, образованного слабосвязанными нейтроном и протоном в рамках A -нуклонной задачи. На этой основе впервые проведены вычисления размеров гало указанных состояний ${}^6\text{Li}$. Продемонстрирована близость размеров их гало и двухнейтронного гало ${}^6\text{He}$. Тем самым получено хорошо обоснованное дополнительное свидетельство наличия у обсуждаемых состояний ${}^6\text{Li}$ нейтрон-протонного гало.

DOI: 10.31857/S1234567823150016, EDN: hvyizx

В последние десятилетия ядерное гало является чрезвычайно популярным объектом экспериментальных и теоретических исследований. Этим термином обозначают область малой плотности вещества на поверхности ядер. Эффект гало порождается наличием в конкретном ядерном состоянии одного, двух, а иногда и большего числа слабосвязанных нейтронов и/или протонов. Его не следует путать с эффектом нейтронной “шубы” (“кожи” – *neutron skin*), который естественным образом возникает в ядрах за счет избытка нейтронов. Признаками наличия у ядра гало, проявляющимися в экспериментах, являются: большие сечения кулоновского развала и узкие импульсные распределения его продуктов (именно эти особенности, описанные в статье [1], породили концепцию гало), большая вероятность передачи нуклонов гало другому ядру [2], специфические свойства гамма- и бета-переходов между состояниями, обладающими гало-структурой и переходами в ситуациях, когда одно из состояний (начальное или конечное) имеет такую структуру, а другое – не имеет [3–6].

Теоретические схемы, предназначенные для описания данного эффекта, весьма разнообразны. Наиболее просто количественные характеристики одно- и двухнуклонного гало интерпретируются в схемах, динамика которых описывается взаимодействием ко-

ра как целого с нуклоном (нуклонами) и нуклонов между собой. Эти схемы различаются выбором потенциала кор–нуклон, используются, в основном, две концепции построения такого потенциала: потенциал с отталкиванием на малых расстояниях [7] и потенциал с запрещенными состояниями [8, 9]. Среди подходов, использующих потенциалы второго типа, встречаются и полумикроскопические схемы, в которых кор рассматривается как система нуклонов и после вариационной процедуры проводится антисимметризация внешних и внутренних нуклонов [10, 11].

Современная теория легких ядер шаг за шагом переходит к описанию свойств этих ядер с помощью полностью микроскопических методов, рассматривающих ядро как систему взаимодействующих нуклонов-фермионов, причем используются реалистические, полученные, в частности, в рамках киральной эффективной теории поля (КЭТП, ChEFT) (см., например, [12]) NN-взаимодействия. Такие подходы выделяются термином *ab initio*. В рамках этих подходов получено высококачественное описание полных энергий связи (ПЭС) ядер массы $A \leq 16$, энергий их нижних уровней, моментов и некоторых электромагнитных переходов в них.

По сравнению с перечисленными характеристиками возможности *ab initio* описания размерных параметров ядер существенно ограничены. Дело в том, что задача высокоточного *ab initio* расчета размер-

¹⁾e-mail: rodkindm92@gmail.com

ных параметров ядер качественно отличается от задачи расчета их ПЭС. Размеры ядер во многом определяются дальнедействующими корреляциями нуклонов, а ПЭС ядер определяется главным образом взаимодействием между нуклонами на меньших расстояниях. Следствием этого является, во-первых, трудность достижения сходимости результатов расчета радиусов ядер на базисах, доступных современным компьютерам. Это, в свою очередь, вынуждает использовать более сложные и менее надежные процедуры экстраполяции результатов на большие размеры функционального базиса. Еще более серьезной является вторая проблема. В отличие от закономерной тенденции монотонного изменения энергии связи с увеличением размера базиса сходимость ядерных радиусов не является монотонной. Поэтому высокоточные исследования эффектов гало в настоящее время в основном сосредоточены на “каноническом” ядре этого типа – ${}^6\text{He}$.

Список работ, посвященных расчету нижнего состояния ${}^6\text{He}$, очень велик. Наиболее важные из них – [13–26] – основаны на большом разнообразии *ab initio* схем. Различные теоретические подходы с использованием метода Монте-Карло [13, 14, 18, 24], метода гиперсферических гармоник [17], метода связанных кластеров [26] и др. используются в этих работах. Наиболее заметную роль среди этих схем играют различные версии оболочечной модели без инертного кора (NCSM, МОБИК). Вычисления МОБИК и подобные им расчеты в модели взаимодействующих конфигураций без инертного кора (NCCI, МВКБИК) [22, 23] материальных и зарядовых радиусов вместе с расчетами ПЭС выполняются с использованием реалистических NN- [19] и NN + 3N- [15, 21, 24] взаимодействий. Помимо них, использовалась адаптированная к SU(3)-симметрии версия МОБИК [20], МОБИК с $(\alpha + 2n)$ континуумом (NCSMC, МОБИКК) [25]. Среди этих работ есть и статья авторов [27], в которой предложена новая и, на наш взгляд, весьма удачная схема двумерной экстраполяции размерных параметров ядра ${}^6\text{He}$.

Интересной проблемой представляется *ab initio* исследование гало (т.е. области малой нуклонной плотности) другой нуклонно-стабильной шестинуклонной системы – ${}^6\text{Li}$. Косвенные признаки наличия в ${}^6\text{Li}$ гало (в данном случае нейтрон-протонного) представлены, в частности, в работах [3–6]. Этой системе посвящено множество *ab initio* исследований. Изучались и его размерные параметры: материальный, зарядовый и нейтронный радиусы [16, 28–36]. В то же время весьма актуальный для интерпрета-

ции упомянутых выше экспериментальных результатов вопрос о том, как определить величину нейтрон-протонного гало легкой системы с $N = Z$, не был до сих пор решен из-за тождественности нуклонов кора и гало. Не вносит ясности и привлечение результатов экспериментальных измерений. Если для относительно тяжелой системы количественной мерой величины гало может служить разность между материальными радиусами экзотического ядра и ядра-кора, то для гало, масса которого лишь в 2–4 раза меньше массы остова, существенную роль играет движение центра масс кора–объем, в котором движутся нуклоны остова, оказывается заметно больше измеренного или вычисленного объема ядра-кора. В случае, например, нейтронно-избыточного ядра ${}^6\text{He}$ проблема решается, поскольку этот объем можно с хорошей точностью отождествить с объемом, соответствующим зарядовому радиусу, но для нейтрон-протонного гало такой метод неприменим.

В настоящей работе мы ставим задачу количественного исследования размерных характеристик слабосвязанных нуклонов в нуклонно-стабильных состояниях ${}^6\text{Li}$ и сравнения их с характеристиками гало основного состояния ядра ${}^6\text{He}$ описание которых представлено нами в работе [27]. Для этих расчетов использованы методы и приемы, во всех деталях аналогичные представленным в работе [27].

Кратко опишем эти методы. Мы исходим из одного из наиболее надежных и обоснованных *ab initio* подходов – M-схемы МОБИК. В качестве потенциала использовался потенциал Daejeon16 [37], построенный с использованием N3LO приближения КЭТП [38], смягченного с помощью преобразования ренорм-группы (SRG) [39]. Этот потенциал относится к категории “глобальных”, т.е. он был построен для расчета всевозможных характеристик ядер с массами $A \leq 16$ и проверен в рамках крупномасштабных расчетов ПЭС, энергий связи нуклонов и кластеров, энергий возбуждения, радиусов, моментов ядерных состояний, ширин распада резонансов и приведенных вероятностей электромагнитных переходов. Эти тесты показали, что такие характеристики в целом хорошо воспроизводятся. Расчеты МОБИК проводились с использованием кода Bigstick [40]. Осцилляторные базисы в этих расчетах ограничены значениями параметра обрезания $N_{\text{max}}^* \leq 14$. Для уточнения результатов расчета радиусов использовалась упомянутая выше двумерная процедура экстраполяции. Объектом экстраполяции является форма поверхности значений каждого из радиусов на плоскости $(N_{\text{max}}^*, \hbar\omega)$, и обе эти координаты содержатся в экстраполированной формуле.

Начнем описание экспериментальной ситуации и разработанного подхода с терминологии. Как и в большинстве современных работ, среднеквадратичные радиусы точечных нуклонов – параметры, характеризующие распределения всех нуклонов (ядерной материи) $r_m \equiv (\bar{r}_m^2)^{1/2}$, а также нейтронов r_n и протонов r_p . Последний параметр получается из измеренного зарядового радиуса r_{ch} с использованием выражения, приведенного в [41]:

$$r_p^2 = r_{ch}^2 - R_p^2 - (N/Z)R_n^2 - 3\hbar^2 c^2 / 4(M_p c^2) - r_{so}^2. \quad (1)$$

Здесь R_p^2 и R_n^2 – среднеквадратичные зарядовые радиусы протона и нейтрона, $3\hbar^2 c^2 / 4(M_p c^2)$ – релятивистская поправка Дарвина–Фолди, а r_{so}^2 – спин-орбитальная поправка к плотности ядерного заряда. Обычно выбирают следующие значения: $R_n^2 = -0.1161 \text{ фм}^2$, $3\hbar^2 c^2 / 4(M_p c^2) = 0.033 \text{ фм}^2$, $r_{so}^2 = 0.08 \text{ фм}^2$. Значение R_p , согласно базе данных Particle Data Group [42], составляет $0.877(7) \text{ фм}$. Именно эта величина используется при обработке результатов измерений для получения точечных ядерных радиусов. Однако это значение также было точно определено из спектроскопии мюонного атома водорода [43], оно оказалось $0.84184(67) \text{ фм}$. Следовательно, используя эти два значения для R_p , можно получить два разных значения r_p . Материальный радиус r_m извлекается непосредственно из дифференциальных сечений упругого рассеяния протонов при больших переданных импульсах с использованием теории многократного рассеяния Глаубера. Радиус r_n недоступен для измерения и поэтому рассчитывается с помощью выражения

$$Ar_m^2 = Zr_p^2 + Nr_n^2. \quad (2)$$

В расчетах МОБИК используется универсальный подход, позволяющий вычислить все три размерных параметра. После вычисления энергии связи и волновой функции состояния рассчитываются материальный, нейтронный и протонный радиусы для точечных нуклонов. В оболочечной модели квадрат радиуса соответствующей системы определяется как

$$r_{m(n,p)}^2 = (1/N_{A(N,Z)}) \sum_i (\bar{r}_{m(n,p),i} - \bar{r}_{cm})^2,$$

где $\bar{r}_{cm} = (1/N_A) \sum_i \bar{r}_{m,i}$ Среднеквадратичный радиус принимает вид

$$\begin{aligned} \bar{r}_{m(n,p)}^2 = & -\frac{4}{N_A \cdot N_{A(N,Z)}} \langle \Psi_A | \sum_{i < j} \bar{r}_{m(n,p),i} \bar{r}_{m,j} | \Psi_A \rangle + \\ & + \langle \Psi_A | r_{cm}^2 | \Psi_A \rangle + \frac{N_A - 2}{N_A \cdot N_{A(N,Z)}} \langle \Psi_A | \sum_i r_{m(n,p),i}^2 | \Psi_A \rangle. \end{aligned} \quad (3)$$

Здесь $N_{A(N,Z)}$ обозначает число нуклонов A (или нейтронов N , или протонов Z) в системе

$$\langle \Psi_A | r_{cm}^2 | \Psi_A \rangle = \frac{3(\hbar c)^2}{2mc^2 \hbar \omega N_A}, \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \langle \Psi_A | \sum_i \bar{r}_i^2 | \Psi_A \rangle = & \frac{1}{\sqrt{2J+1}} \times \\ & \times \sum_{k_a, k_b} \text{OBTD}(k_a, k_b, \lambda = 0) \langle k_a || r^2 || k_b \rangle, \end{aligned} \quad (5)$$

и

$$\begin{aligned} \langle \Psi_A | \sum_{i < j} \bar{r}_i \bar{r}_j | \Psi_A \rangle = & \frac{1}{\sqrt{2J+1}} \sum_{k_a \leq k_b, k_c \leq k_d, J_0} \langle k_a k_b J_0 || \\ & \bar{r}_1 \bar{r}_2 || k_c k_d J_0 \rangle \cdot T\text{BTD}(k_a, k_b, k_c, k_d, J_0). \end{aligned} \quad (6)$$

Входящие в эти формулы одночастичные и двухчастичные переходные плотности (OBTD) и (TBTD) выражаются через матричные элементы произведений фермионных операторов вторичного квантования:

$$\text{OBTD}(k_a, k_b, \lambda = 0) = \langle \Psi_A | [a_{k_a}^+ \otimes \tilde{a}_{k_b}]^{\lambda=0} | \Psi_A \rangle. \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \text{TBTD}(k_a, k_b, k_c, k_d, J_0) = & \langle \Psi_A | [[a_{k_a}^+ \otimes a_{k_b}^+]_{J_0} \otimes \\ & \otimes [\tilde{a}_{k_c} \otimes \tilde{a}_{k_d}]_{J_0}]^{\lambda=0} | \Psi_A \rangle. \end{aligned} \quad (8)$$

где $k_i \equiv \{n_i, l_i, m_i\}$ – набор квантовых чисел отдельного нуклона, $\otimes$ – знак тензорного произведения (ТП), а величины J_0 и λ определяют ранг ТП соответствующих операторов.

МОБИК расчеты радиусов дополняются предложенной нами ранее в работе [27] процедурой двумерной экстраполяции, детальное описание которой можно найти в работе [27]. Для ее реализации мы использовали обычный метод хи-квадрат, реализованный в общедоступном пакете минимизации TMinuit, который включен в среду анализа данных ROOT CERN с открытым исходным кодом. Использовались три значения N_{max}^* : 10, 12 и 14. Включение в базу входных данных экстраполяции меньших значений N_{max}^* , для которых вообще не проявляется стабильность значения радиусов, естественно, может лишь понизить качество результатов. Как известно из работ [19, 22, 44] и подтверждено нашими расчетами при уменьшении N_{max}^* значения радиусов растут при малых $\hbar\omega$ значительно быстрее, чем убывают при больших $\hbar\omega$. Чтобы учесть это, используется несколько вариантов неравномерной сетки по параметру $\hbar\omega$, точно таких же, как представленные в

[27]. Оптимальным результатом считался тот, который соответствует наименьшему значению χ^2 .

Данная методика использовалась для расчета размерных характеристик нижнего 1^+ и возбужденного 0^+ состояний ядра ${}^6\text{Li}$. Второе из них является нуклонно-стабильным в силу запрета по четности распада в открытый канал $\alpha + d$. Результаты теоретических расчетов показывают практически полную симметрию пространственного распределения нейтронов и протонов. Разность $r_p - r_n$ составляет $\sim 0.02 \div 0.04$ фм. Радиус возбужденного состояния 0^+ несущественно больше радиуса состояния 1^+ . Значения размерных характеристик обсуждаемых уровней в рамках экстраполяционной процедуры, а также значения ПЭС приведены в табл. 1.

Таблица 1. Рассчитанные значения ПЭС, материального, нейтронного и протонного радиусов нижнего 1^+ и возбужденного 0^+ состояний ядра ${}^6\text{Li}$ (фм)

	1^+	0^+
r_m	2.422	2.467
r_n	2.411	2.443
r_p	2.438	2.502
E_{tot}	32.06	28.90

Экспериментальные данные о пространственных характеристиках исследуемых состояний ${}^6\text{Li}$ весьма ограничены. Для нижнего состояния хорошо промерен зарядовый радиус, данных о размерах возбужденного состояния 0^+ нет. Результаты различных измерений зарядового радиуса основного состояния ${}^6\text{Li}$, а также извлеченного из этих данных с помощью выражения (1) с использованием значения $R_p = 0.877(7)$ фм радиуса распределения протонов r_p приведены в табл. 2. Эти результаты хорошо согласованы между собой. В итоге результат вычисления радиуса r_p с потенциалом Daeyeon16 оказывается близким к экспериментальным данным. Экспериментальное значение материального радиуса основного состояния ядра приведено в работе [48]: $r_m = 2.09 \pm 0.02$ фм. Принимая во внимание тот факт, что представленный в данной работе подход, базирующийся на *ab initio* вычислениях, хорошо воспроизводит зарядовый радиус ядра ${}^6\text{Li}$ и радиус системы точечных протонов, а также указанную выше близость размеров протонной и нейтронной систем, есть серьезные основания рассматривать этот результат как сомнительный. Дополнительным косвенным подтверждением этого вывода служит то, что используемый в данной работе метод дал для материального радиуса ядра ${}^6\text{He}$ результаты, хорошо согласованные с экспериментальными [27].

Таблица 2. Экспериментальные значения зарядового и протонного радиуса основного состояния ядра ${}^6\text{Li}$ (фм). Протонный радиус получен с использованием радиуса протона R_p из [42]

	[45]	[46]	[47]	[1]
r_{ch}	2.51(4)	2.49(4)	2.55(4)	2.56(10)
r_p	2.365	2.344	2.407	2.418

Представленные выше экспериментальные данные и результаты вычислений демонстрируют, что обсуждаемые состояния имеют большие для столь легких ядер размеры. Имея ввиду, что остовом в этой системе служит весьма компактное и жесткое ядро ${}^4\text{He}$, эти данные можно рассматривать как дополнительное (косвенное, качественное) указание на наличие у этих состояний нейтрон-протонного гало.

Вернемся к обозначенной во вводной части проблеме определения меры нейтрон-протонного гало. Ее, естественно, бессмысленно определять по аналогии со случаем ${}^6\text{He}$ как разность нейтронного и протонного радиусов. Тем не менее, для количественной оценки размеров гало состояний ${}^6\text{Li}$ воспользуемся результатами работы [27], в которой размерные параметры ядра ${}^6\text{He}$ вычислены аналогичным вплоть до мелких деталей расчетом методом. В таблице 3 приведены их значения, полученные с помощью экстраполяционной процедуры. Заметим, что материальные радиусы всех трех обсуждаемых шестинуклонных состояний примерно равны. Это дает основания предполагать, что характеристики движения центра масс остова – ${}^4\text{He}$ и, тем более, масштаб его поляризации внешними нуклонами во всех рассматриваемых системах очень близки друг к другу.

Таблица 3. Рассчитанные значения материального, нейтронного и протонного радиусов нижнего 0^+ ${}^6\text{He}$, нижнего 1^+ и возбужденного 0^+ состояний ядра ${}^6\text{Li}$, а также радиуса кора, используемого для вычисления размеров гало в новом определении (фм)

	${}^6\text{Li}^{1+}$	${}^6\text{Li}^{0+}$	${}^6\text{He}$
r_m	2.422	2.467	2.430
r_n	2.411	2.443	2.663
r_p	2.438	2.502	1.871
r_{core}	–	–	1.871
r_{halo}	3.255	3.355	3.274

Определенное теоретическое подтверждение этого предположения дает анализ основных каналов виртуального распада этих состояний, а именно каналов фрагментации на четырех- и двухнуклонные подсистемы: ${}^6\text{Li}(1^+) \rightarrow {}^4\text{He}(0_{1,2}^+ + d(F1)$, ${}^6\text{Li}(0^+) \rightarrow {}^4\text{He}(0_{1,2}^+) + \bar{d}(F2)$ и ${}^6\text{He}(0^+) \rightarrow {}^4\text{He}(0_{1,2}^+) + (2n)(F3)$.

Нижние индексы 1 и 2 обозначают основное состояние ${}^4\text{He}$ и его первое возбужденное состояние (0_2^+) соответственно. Под символами $\tilde{d}$ и $(2n)$ подразумеваются состояние “синглетного дейтрона” и его двухнейтронного изобар-аналога с изоспином $T = 1$. Они не являются связанными в свободном состоянии, но оказываются локализованными в поле нуклонов остова.

Для такого анализа напомним главные величины, характеризующие свойства кластерных каналов. Ими являются проекция волновой функции системы Ψ_A на канал, характеризующийся массами фрагментов A_1 и A_2 , их моментом относительного движения l , спином канала S , полным моментом системы J и волновыми функциями фрагментов – кластерный формфактор (КФФ), определяемый как

$$\Phi_l(\rho) = \langle \Psi_A | \hat{A} \{ \Psi_{A_1} \frac{1}{\rho^2} \delta(\rho - \rho') Y_l(\Omega_{\rho'}) \Psi_{A_2} \} l S J \rangle$$

и его норма – спектроскопический фактор (СФ)

$$S_{AA_1A_2(l)} \equiv \int |\Phi_l(\rho)|^2 \rho^2 d\rho.$$

Статистический вес каждого из шести перечисленных каналов – его СФ – представлен в табл. 4. Эта таблица демонстрирует, что степень поляризации остова внешними нуклонами – соотношение СФ канала виртуального распада в первое возбужденное и основное состояния α -частицы – для всех тех случаев приближенно равна $1/5$.

Таблица 4. Спектроскопические факторы виртуальных каналов распада состояний ${}^6\text{He}$ и ${}^6\text{Li}$. Обозначения (Fi) – см. текст

	${}^4\text{He} (0_1^+)$	${}^4\text{He} (0_2^+)$
(F1)	0.717	0.139
(F2)	0.614	0.135
(F3)	0.607	0.122

Главным свидетельством близкого подобия свойств остова во всех, трех системах является, естественно, близость формы функций характеризующих относительное движение центров масс четырех- и двухнуклонного фрагментов. Ее иллюстрируют рис. 1 и 2. Для каналов с ${}^4\text{He}$ как в основном, так и первом возбужденном состоянии, эти функции с хорошей точностью совпадают. Вклад в волновые функции множества других каналов с малыми СФ не велик, кроме того, и для них с полным основанием можно ожидать аналогичного поведения.

Итак, анализ приведенных данных показывает, что для оценки размеров нейтрон-протонного гало

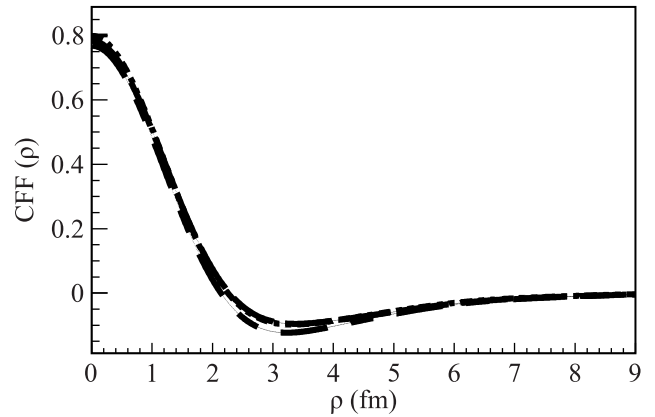


Рис. 1. Кластерные формфакторы каналов ${}^4\text{He}(0_1^+) + 2n(l=0)$, ${}^4\text{He}(0_1^+) + \tilde{d}(l=0)$, ${}^4\text{He}(0_1^+) + d(l=0)$ – штрих-пунктирная линия с двумя точками, штриховая линия, штрих-пунктирная линия для состояний ${}^6\text{He}(0^+)$, ${}^6\text{Li}(0^+)$ и ${}^6\text{Li}(1^+)$, соответственно

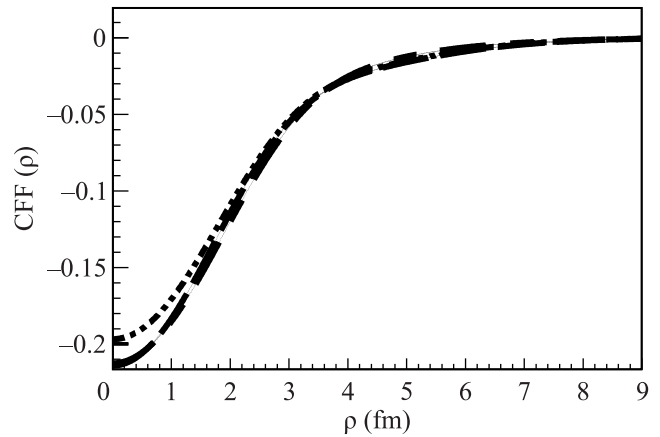


Рис. 2. Кластерные формфакторы каналов ${}^4\text{He}(0_2^+) + 2n(l=0)$, ${}^4\text{He}(0_2^+) + \tilde{d}(l=0)$, ${}^4\text{He}(0_2^+) + d(l=0)$ – штрих-пунктирная линия с двумя точками, штриховая линия, штрих-пунктирная линия для состояний ${}^6\text{He}(0^+)$, ${}^6\text{Li}(0^+)$ и ${}^6\text{Li}(1^+)$, соответственно

с хорошей точностью можно исходить из положения, что радиус распределения нуклонов остова r_{core} совпадает с радиусом протонной подсистемы ${}^6\text{He}$: $r_{\text{core}} = r_{p({}^6\text{He})}$. В итоге оказывается возможным определить размер нейтрон-протонного гало состояний ядра ${}^6\text{Li}$ r_{halo} следующим образом:

$$r_{\text{halo}} = \left[\frac{A_{\text{nucleus}} r_{\text{nucleus}}^2 - A_{\text{core}} r_{\text{core}}^2}{A_{\text{nucleus}} - A_{\text{core}}} \right]^{1/2} \quad (9)$$

и аналогичным образом переопределить размер гало ${}^6\text{He}$. Эти величины также представлены в табл. 3. В качественном смысле значения всех радиусов близки друг к другу, что служит надежным свидетельством наличия у обсуждаемых состояний ${}^6\text{Li}$

нейтрон-протонного гало. Интересно отметить, что не слишком большая, на первый взгляд, разница размеров гало и материальных радиусов состояний в действительности указывает на драматическое различие свойств ядерной материи в области, соответствующей радиусу кора, и периферийной области. Нуклонные плотности в этих областях различаются примерно на порядок. Более детальное количественное сравнение размеров гало трех исследуемых состояний обнаруживает интересное обстоятельство, что разница в размерах двухнейтронного гало ${}^6\text{He}$ и нейтрон-протонного гало состояния 1^+ ядра ${}^6\text{Li}$ заметно меньше, чем разница в размерах изобар-аналоговых состояний 0^+ . Этот факт оказывается особенно неожиданным в свете того, что гало состояния 1^+ ядра ${}^6\text{Li}$ и гало двух других обсуждаемых состояний относятся к разным типам. Первое из них классифицируется как “танго-гало”, т.е. связанное состояние трехтельной системы, одна из трех парных подсистем которой в в свободном состоянии – связана, а две другие – нет. Два состояния 0^+ относятся к типу “борромиевских”, т.е. не имеющих связанных парных подсистем. Повторим, чтобы быть правильно понятыми, что состояние 0^+ ядра ${}^6\text{Li}$, $T = 1$ является связанным состоянием альфа-частицы и пары нейтрон-протон, находящейся в синглетном состоянии, а его распад в канал $\alpha + d$ запрещен не только правилами отбора по изоспину, но и по четности.

В заключение перечислим основные результаты проведенных исследований.

I. В рамках *ab initio* схемы проведены расчеты размерных характеристик нуклонно-стабильных состояний ядра ${}^6\text{Li}$ и их сравнительный анализ с аналогичными характеристиками основного состояния ядра ${}^6\text{He}$. Использовался NN-потенциал Daejeon16, наиболее успешно, среди других моделей взаимодействия, описывающий свойства легких ядер.

II. Для уточнения результатов вычислений использовалась созданная авторами новая двумерная процедура экстраполяции значений материального, протонного и нейтронного радиусов ядер, полученных в расчетах с помощью оболочечной модели без инертного кора, с использованием различных осцилляторных базисов, характеризующихся разными параметрами N_{max}^* и $\hbar\omega$ на случай бесконечного функционального базиса.

III. Результат расчета размера протонной системы основного состояния ядра ${}^6\text{Li}$ хорошо согласуется с экспериментальными данными. Результат вычисления материального радиуса этого ядра вместе с только что указанным фактом ставит под сомнение известные данные измерений этого параметра.

IV. Предложено новое определение количественной меры, определяющей свойства ядерного гало, позволяющее характеризовать ядерное гало, образованное слабосвязанными нейтроном и протоном. Проведены вычисления размеров гало нуклонно-стабильных состояний ${}^6\text{Li}$ и ${}^6\text{He}$ в рамках этого определения.

V. Продемонстрирована близость размеров двухнейтронного гало ${}^6\text{He}$ и гало нуклонно-стабильных состояний ${}^6\text{Li}$. Тем самым получено дополнительное (и весьма надежное) свидетельство наличия у обсуждаемых состояний ${}^6\text{Li}$ нейтрон-протонного гало. Отмечено слабое влияние типа гало на его размеры.

Исследование выполнено при поддержке гранта Российского научного фонда # 22-22-00096, <https://rscf.ru/project/22-22-00096/> и Фонда развития теоретической физики и математики “БАЗИС” (грант # 21-1-1-67-4) <https://basis-foundation.ru>.

Мы благодарны Келвину Джонсону за поддержку наших усилий по внедрению кода Bigstick для МОБИК расчетов.

1. I. Tanihata and H. Hamagaki, Phys. Rev. Lett. **55**, 24 (1985).
2. G. M. Ter-Akopian, A. M. Rodin, A. S. Fomichev, S. I. Sidorchuk, S. V. Stepanov, R. Wolski, M. L. Chelnokov, V. A. Gorshkov, A. Yu. Lavrentev, V. I. Zagrebaev, and Yu. Ts. Oganessian, Phys. Lett. B **426**, 251 (1998).
3. I. N. Izosimov, AIP Conf. Proc. **1681**, 030006 (2015).
4. I. N. Izosimov, Phys. At. Nucl. **80**(5), 867 (2017).
5. I. N. Izosimov, JPS Conf. Proc. **23**, 013005 (2018).
6. I. N. Izosimov, EPJ Web of Conferences **239**, 02003 (2020).
7. M. V. Zhukov, B. V. Danilin, D. V. Fedorov, J. M. Bang, I. J. Thompson, and J. S. Vaagen, Phys. Rep. **231**, 151 (1993).
8. V. I. Kukulin, V. M. Krasnopol'sky, V. T. Voronchev, and P. B. Sazonov, Nucl. Phys. A **453**(3), 365 (1986).
9. V. I. Kukulin, V. T. Voronchev, T. D. Kaipov, and R. A. Eramzhyan, Nucl. Phys. A **517**(2), 221 (1990).
10. G. G. Ryzhikh, R. A. Eramzhyan, V. I. Kukulin, and Yu. M. Tchuvil'sky, Nucl. Phys. A **563**(2), 247 (1993).
11. R. A. Eramzhyan, G. G. Ryzhikh, and Yu. M. Tchuvil'sky, Phys. At. Nucl. **62**, 37 (1999).
12. R. Machleidt and D. R. Entem, Phys. Rep. **503**, 1 (2011).
13. R. Schiavilla and R. B. Wiringa, Phys. Rev. C **65**, 054302 (2002).
14. P. Navratil and W. E. Ormand, Phys. Rev. C **68**, 034305 (2003).
15. E. Caurier and P. Navratil, Phys. Rev. C **73**, 021302(R) (2006).

16. I. J. Shin, Y. Kim, P. Maris, J. P. Vary, C. Forssen, J. Rotureau, and N. Michel, *J. Phys. G: Nucl. Part. Phys.* **44**, 075103 (2017).
17. S. Bacca, N. Barnea, and A. Schwenk, *Phys. Rev. C* **86**, 034321 (2012).
18. T. Abe, P. Maris, T. Otsuka, N. Shimizu, Y. Utsuno, and J. P. Vary, *Phys. Rev. C* **86**, 054301 (2012).
19. P. Maris and J. P. Vary, *Int. J. Mod. Phys. E* **22**, 1330016 (2013).
20. T. Dytrych, K. D. Launey, J. P. Draayer, P. Maris, J. P. Vary, E. Saule, U. Catalyurek, M. Sosonkina, D. Langr, and M. A. Caprio, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 252501 (2013).
21. D. Saaf and C. Forssen, *Phys. Rev. C* **89**, 011303(R) (2014).
22. M. A. Caprio, P. Maris, and J. P. Vary, *Phys. Rev. C* **90**, 034305 (2014).
23. C. Constantinou, M. A. Caprio, J. P. Vary, and P. Maris, *Nucl. Sci. Tech.* **28**, 179 (2017).
24. D. Lonardonì, J. Carlson, S. Gandolfi, J. E. Lynn, K. E. Schmidt, A. Schwenk, and X. B. Wang, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 122502 (2018).
25. S. Quaglioni, C. Romero-Redondo, P. Navratil, and G. Hupin, *Phys. Rev. C* **97**, 034332 (2018).
26. Z. H. Sun, T. D. Morris, G. Hagen, G. R. Jansen, and T. Papenbrock, *Phys. Rev. C* **98**, 054320 (2018).
27. D. M. Rodkin, and Yu. M. Tchuvil'sky, *Phys. Rev. C* **106**, 034305 (2022).
28. R. Han, J.-X. Ji, and J.-X. Li, *Chin. Phys. C* **35**, 821 (2011).
29. A. S. Solov'yev, *Phys. Rev. C* **106**, 014610 (2022).
30. X. Mao, J. Rotureau, W. Nazarewicz, N. Michel, R. M. Id Betan, and Y. Jaganathen, *Phys. Rev. C* **102**, 024309 (2020).
31. S. Pastore, S. C. Pieper, R. Schiavilla, and R. B. Wiringa, *Phys. Rev. C* **87**, 035503 (2013).
32. C. Forssen, P. Navratil, and S. Quaglioni, *Few-Body Syst.* **49**, 11 (2011).
33. T. Myo, A. Umeya, H. Toki, and K. Ikeda, *Phys. Rev. C* **86**, 024318 (2012).
34. Q. Zhao, B. Zhou, M. Kimura, H. Motoki, and S. Shin, *Eur. Phys. J. A* **58**, 25 (2022).
35. G. A. Negoita, J. P. Vary, G. R. Luecke, P. Maris, A. M. Shirokov, I. J. Shin, Y. Kim, E. G. Ng, C. Yang, M. Lockner, and G. M. Prabhu, *Phys. Rev. C* **99**, 054308 (2019).
36. W. G. Jiang, G. Hagen, and T. Papenbrock, *Phys. Rev. C* **100**, 054326 (2019).
37. A. M. Shirokov, I. J. Shin, Y. Kim, M. Sosonkina, P. Maris, and J. P. Vary, *Phys. Lett. B* **761**, 87 (2016).
38. D. R. Entem and R. Machleidt, *Phys. Rev. C* **68**, 041001(R) (2003).
39. S. K. Bogner, R. J. Furnstahl, and R. J. Perry, *Phys. Rev. C* **75**, 061001(R) (2007).
40. C. W. Johnson, W. E. Ormand, K. S. McElvain, and H. Shan, arXiv:1801.08432 [physics.comp-ph] (2018).
41. M. Brodeur, T. Brunner, C. Champagne, S. Ettenauer, M. J. Smith, A. Lapierre, R. Ringle, V. L. Ryjkov, S. Bacca, P. Delheij, G. W. F. Drake, D. Lunney, A. Schwenk, and J. Dilling, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 052504 (2012).
42. K. Nakamura and (Particle Data Group), *J. Phys. G* **37**, 075021 (2010).
43. R. Pohl, A. Antognini, and F. Nez et al. (Collaboration), *Nature (London)* **466**, 213 (2010).
44. C. Forssen, B. D. Carlsson, H. T. Johansson, D. Saaf, A. Bansal, G. Hagen, and T. Papenbrock, *Phys. Rev. C* **97**, 034328 (2018).
45. W. Nortershauser, A. Dax, G. Ewald et al. (Collaboration), *Hyperfine Interactions* **1–4**, 93-100 (2005).
46. B. A. Bushaw, W. Nortershauser, G. Ewald, A. Dax, and G. W. F. Drake, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 043004 (2003).
47. C. W. de Jager, H. De Vries, and C. De Vries, *At. Data Nucl. Tables* **141**, 479 (1974).
48. D. R. Tilley, C. M. Cheves, J. L. Godwin, G. M. Hale, H. M. Hofmann, J. H. Kelley, C. G. Sheu, and H. R. Weller, *Nucl. Phys. A* **708**, 3 (2002).

Поиск солнечных аксионов с энергией 8.4 кэВ, излучаемых в M1-переходе ядер ^{169}Tm

А. В. Дербин¹⁾, И. С. Драчев, В. Н. Муратова, Д. А. Семенов, М. В. Трушин, Е. В. Унжаков

Петербургский институт ядерной физики им. Б. П. Константинова
Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 188300 Гатчина, Россия

Поступила в редакцию 28 июня 2023 г.

После переработки 29 июня 2023 г.

Принята к публикации 29 июня 2023 г.

Проведен поиск аксионов с энергией 8.4 кэВ, излучаемых в M1-переходе ядер ^{169}Tm на Солнце, с помощью реакции резонансного поглощения ядрами ^{169}Tm на Земле: $A + ^{169}\text{Tm} \rightarrow ^{169}\text{Tm}^* \rightarrow ^{169}\text{Tm} + (\gamma, e)$ (8.4 кэВ). В качестве детектора использовался кристалл тулиевого граната $\text{Tm}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, который работал как болометрический детектор. Вычислен поток монохроматических 8.4 кэВ аксионов и получены новые ограничения на константы связи аксиона с нуклонами и массу аксиона в KSVZ- и DFSZ-моделях, которые составляют $m_A^{\text{KSVZ}} \leq 141$ эВ и $m_A^{\text{DFSZ}} \leq 244$ эВ (90 % у.д.) соответственно.

DOI: 10.31857/S1234567823150028, EDN: hwecce

1. Введение. Вероятность рождения и регистрации аксионов, гипотетических нейтральных псевдоскалярных частиц, введенных в теорию для объяснения отсутствия CP-нарушения в сильных взаимодействиях [1–3] и являющихся хорошо мотивированными кандидатами на роль частиц темной материи, определяется эффективными константами связи аксионов с фотонами $g_{A\gamma}$, электронами g_{Ae} и нуклонами g_{AN} . Основными реакциями, предлагаемыми для детектирования, являются конверсия аксионов в фотоны в магнитном поле или в поле ядра, распад аксиона на два фотона, комптоновская конверсия и аксиоэлектрический эффект.

В данной работе рассматривается только один процесс – излучение и поглощение аксионов в ядерном магнитном переходе, при этом излучение аксионов происходит на Солнце, а поглощение на Земле. Чувствительность эксперимента определяется только константами связи аксиона с нуклонами. Эксперименты подобного рода были проведены ранее с ядрами ^{57}Fe [4–6], ^7Li [7–9] и ^{83}Kr [10–12].

После того как первоначальная модель “стандартного” PQWW-аксиона [1–3] была надежно закрыта серией экспериментов, появились два класса моделей “невидимого” аксиона – это модели KSVZ-аксиона (адронный аксион) [13, 14] и DFSZ-аксиона [15, 16]. Масса аксиона m_A и его константа распада f_A в обоих моделях связаны с такими же характеристиками π^0 -мезона: $m_A f_A \approx m_\pi f_\pi (z^{1/2}/(1+z))$, где $z = m_u/m_d$ – отношение масс легких кварков. В чис-

ленном виде соотношение m_A и f_A выглядит следующим образом [17, 18]:

$$m_A = 5.69(5) \left(\frac{10^6 \text{ ГэВ}}{f_A} \right) \text{ эВ}. \quad (1)$$

Ограничения на массу аксиона возникают как следствие экспериментальных ограничений на константы связи $g_{A\gamma}$, g_{Ae} и g_{AN} , которые, в свою очередь, являются модельно зависимыми величинами.

Монохроматические аксионы должны испускаться в переходах магнитного типа в ядрах ^{57}Fe (14.4 кэВ) и ^{83}Kr (9.4 кэВ), низколежащие уровни которых возбуждаются за счет высокой (1.3 кэВ) температуры в центре Солнца. Целью данной работы является поиск монохроматических аксионов с энергией 8.4 кэВ, излучаемых в M1-переходе в ядрах ^{169}Tm , с помощью реакции резонансного поглощения, приводящей к возбуждению первого ядерного уровня ^{169}Tm . Гамма- и рентгеновские кванты и конверсионные и Ожэ электроны, возникающие при разрядке возбужденного уровня, могут быть зарегистрированы. Вероятность испускания и последующего поглощения аксионов зависит только от константы связи с нуклонами и пропорциональна g_{AN}^4 . Поиск аксионов с энергией 8.4 кэВ проводится впервые.

Использовать изотоп ^{169}Tm для поиска солнечных аксионов с непрерывным спектром, обусловленным константами $g_{A\gamma}$ (аксионы Примакова) и g_{Ae} (тормозные и комптоновские процессы), было предложено и реализовано в работах [19, 20].

¹⁾e-mail: Derbin_AV@pnpi.nrcki.ru

Наиболее известны эксперименты по поиску солнечных аксионов, возникающих в результате конверсии тепловых фотонов в поле солнечной плазмы. Основываясь на взаимодействии аксиона с фотоном $g_{A\gamma}$, аксионы пытаются обнаружить с помощью обратной конверсии в лабораторном магнитном поле [21, 22] или в поле кристалла [23, 24]. Ожидаемая скорость счета фотонов в данных экспериментах пропорциональна $g_{A\gamma}^4$.

Подробные обзоры теоретических и экспериментальных работ по аксионной тематике представлены в [18].

2. Поток аксионов с энергией 8.4 кэВ от Солнца. Первый уровень ядра ^{169}Tm имеет энергию $E_\gamma = 8.410$ кэВ, спин и четность $J^\pi = 3/2^+$, примесь Е2-перехода составляет 0.11 % ($\delta = 0.033$) [25]. Для экспериментов проводимых по схеме мишень-детектор, когда конверсионные и Ожэ-электроны поглощаются мишенью, важным является коэффициент электронной конверсии. Для изучаемого перехода он составляет $e/\gamma = 264$ ($\eta = 3.79 \times 10^{-3}$) [25].

Поток аксионов от Солнца зависит от энергии E_γ и времени жизни уровня τ_γ , от распространенности изотопа ^{169}Tm на Солнце ($N(r)$), распределения температуры внутри Солнца ($T(r)$), а также от отношения вероятности испускания аксиона и фотона ω_A/ω_γ [4, 26]:

$$\Phi_A(r) = \frac{N}{\tau_\gamma} \frac{2 \exp(-E_\gamma/kT)}{(1 + 2 \exp(-E_\gamma/kT))} \frac{\omega_A}{\omega_\gamma}. \quad (2)$$

Вследствие эффекта Доплера, вызванного тепловым движением ядер в Солнце, спектр аксионов представляет собой гауссово распределение с дисперсией $\sigma(T) = E_\gamma(kT(r)/M)^{1/2}$, где M – масса ядра ^{169}Tm . Полный спектр аксионов является суммой гауссианов с дисперсиями $\sigma(T)$, определяемыми температурой в точке испускания аксиона на Солнце.

Наиболее интенсивный поток монохроматических аксионов от Солнца связан с М1-переходом с первого возбужденного уровня на основное состояние ядра ^{57}Fe . Это обусловлено, в первую очередь, высокой распространенностью железа на Солнце. Тулий имеет на 7 порядков меньшую концентрацию, однако такие факторы как более низкая энергия перехода E_γ , меньшая величина доплеровского уширения $\sigma(T)$ и 100 % распространенность изотопа ^{169}Tm ведут к увеличению ожидаемой скорости счета аксионов.

Принципиальное отличие М1-перехода в ядре ^{169}Tm от аналогичных переходов в ядрах ^{57}Fe и ^{83}Kr состоит в том, что это, в основном, протонный переход. Это особенно важно для поиска KSVZ-аксионов, у которых константа связи аксиона с нейтроном ма-

ла. Более того, для протонного перехода отношение ω_A/ω_γ не обращается в нуль, как это может быть в случае нейтронных переходов.

Мы вычислили поток аксионов для стандартной солнечной модели BS05 [27] с высокой металличностью [28] как сумму вкладов от отдельных сферических слоев толщиной dr , в которых использовались конкретные значения температуры T и концентрации тулия $N(r)$. На рисунке 1 показана зависимость интегрального потока аксионов из слоя $r^2 dr$ от радиуса r . Можно видеть, что 90 % потока аксионов излучается внутри $r \leq 0.2R_\odot$.

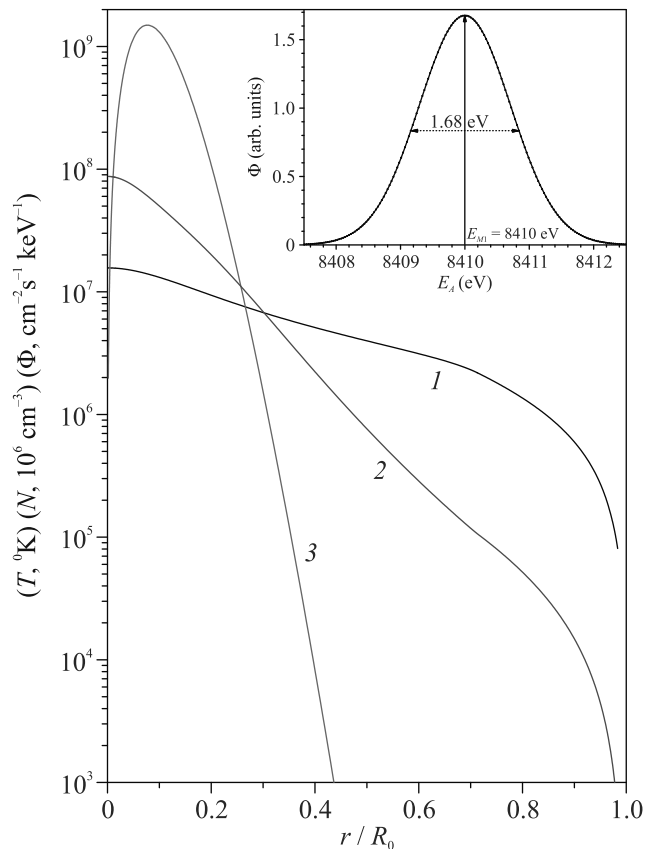


Рис. 1. Распределение температуры (T , °K, кривая 1) и концентрации атомов ^{169}Tm (N , в единицах 10^6 см^{-3} , кривая 2) в зависимости от радиуса r . Поток аксионов из слоя $r^2 dr$ для значения $\omega_A/\omega_\gamma = 4 \times 10^{-14}$ и $dr = 5 \times 10^{-3} R_\odot$ ($\Phi, \text{см}^{-2} \text{ с}^{-1} \text{ кэВ}^{-1}$, кривая 3). На вставке показан энергетический спектр солнечных аксионов со средней энергией 8.41 кэВ

Дифференциальный спектр представляет собой сумму отдельных гауссианов. Каждый вклад характеризовался величиной доплеровского уширения $\sigma(T)$. Суммарный энергетический спектр аксионов показан на вставке рис. 1, он хорошо описывается гауссовой функцией с дисперсией $\sigma = 0.78$ кэВ. Диф-

ференциальный поток в максимуме распределения при $E = 8.41$ кэВ оказывается равным:

$$\Phi(E) = 3.73 \times 10^{22} (\omega_A/\omega_\gamma) \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1} \text{ кэВ}^{-1}. \quad (3)$$

Ширина полученного распределения существенно превышает энергию ядра отдачи (2.2×10^{-7} эВ), собственную ширину ядерного уровня ($\Gamma = 1.12 \times 10^{-7}$ эВ) и доплеровскую ширину уровня ядер ^{169}Tm мишени (3.3×10^{-3} эВ), даже находящуюся при температуре $T = 300$ К.

Отношение вероятностей аксионного и электромагнитного переходов (ω_A/ω_γ) было вычислено в работах [29, 30]:

$$\frac{\omega_A}{\omega_\gamma} = \frac{1}{2\pi\alpha(1+\delta^2)} \left[\frac{g_{AN}^0\beta^* + g_{AN}^3}{(\mu_0 - 0.5)\beta^* + \mu_3 - \eta} \right]^2 \left(\frac{p_A}{p_\gamma} \right)^3, \quad (4)$$

где p_γ и p_A – импульсы фотона и аксиона, δ – отношение вероятностей E2 и M1 переходов, $\mu_0 \approx 0.88$ и $\mu_3 \approx 4.71$ – изоскалярный и изовекторный ядерные магнитные моменты, β^* и η – параметры, которые определяются конкретными ядерными матричными элементами. Для ядра $^{169}_{69}\text{Tm}$ с нечетным числом нуклонов и неспаренным протоном параметры β^* и η , в одночастичном приближении, можно оценить как $\beta^* = 1$ и $\eta = 0.5$ [26].

Изоскалярная g_{AN}^0 и изовекторная g_{AN}^3 части константы связи аксиона с нуклонами являются модельно зависимыми величинами. Они могут быть выражены через эффективные константы связи аксиона с протонами C_p и нейтронами C_n [31, 32]:

$$\begin{aligned} g_{AN}^0 &= (M_N/2f_A)(C_p + C_n); \\ g_{AN}^3 &= (M_N/2f_A)(C_p - C_n), \end{aligned} \quad (5)$$

где M_N – масса нуклона. Эффективные константы C_p и C_n , в свою очередь, зависят от констант связи аксиона с кварками [18, 31]. Вычисления, выполненные в [31], дают для KSVZ модели следующие значения $C_p^{KSVZ} = -0.47(3)$ и $C_n^{KSVZ} = 0.02(3)$. Как было отмечено ранее, взаимодействие аксиона с нейтроном сильно подавлено. Для DFSZ аксион значения C_p и C_n зависят от дополнительного параметра β [31]: $C_p^{\text{DFSZ}} = -0.617 + 0.435 \sin^2 \beta \pm 0.025$ и $C_n^{\text{DFSZ}} = 0.254 - 0.414 \sin^2 \beta \pm 0.025$. Мы использовали значения $C_p^{\text{DFSZ}} = 0.2712$ и $C_n^{\text{DFSZ}} = 0.1248$ при большом угле $\tan \beta = 10$, найденные в [32]. Используя отношение (1), можно выразить изоскалярную и изовекторную константы g_{AN}^0 и g_{AN}^3 через массу аксиона m_A .

3. Скорость поглощения 8.4 кэВ аксионов ядрами ^{169}Tm . Сечение резонансного поглощения

аксионов $\sigma(E_A)$ с энергией E_A дается выражением, аналогичным выражению для сечения резонансного поглощения γ -квантов с поправкой на отношение ω_A/ω_γ :

$$\sigma(E_A) = 2\sqrt{\pi}\sigma_{0\gamma} \exp \left[-\frac{4(E_A - E_{M1})^2}{\Gamma^2} \right] \left(\frac{\omega_A}{\omega_\gamma} \right), \quad (6)$$

где $\sigma_{0\gamma} = 2.61 \times 10^{-19} \text{ см}^2$ – максимальное сечение резонансного поглощения гамма-квантов ядром ^{169}Tm .

Полное сечение поглощения аксионов может быть получено путем интегрирования выражения (6) для $\sigma(E_A)$ по спектру солнечных аксионов. Интегрирование узкого распределения (6) по широкому спектру аксионов дает значение, близкое $\Phi(E_{M1})$ в выражении (3). Ожидаемая скорость резонансного поглощения солнечных аксионов ядром ^{169}Tm равна:

$$R_A = \pi\sigma_{0\gamma}\Gamma\Phi_A(E_{M1})(\omega_A/\omega_\gamma)^2 \quad (7)$$

и может быть представлена в численном виде как:

$$R_A = 3.35 \times 10^{-6} (\omega_A/\omega_\gamma)^2 \text{ с}^{-1}. \quad (8)$$

Отношение ω_A/ω_γ зависит от констант связи g_{AN}^0 и g_{AN}^3 или C_p и C_n . В результате, скорость поглощения аксионов R_A ядром ^{160}Tm , выраженная в единицах $\text{атом}^{-1} \text{ с}^{-1}$, в модельно независимом виде, т.е. зависящем только от значений констант связи, будет выглядеть как:

$$R_A = 3.55 \times 10^{-6} (g_{AN}^0 + g_{AN}^3)^4 (p_A/p_\gamma)^6. \quad (9)$$

Используя отношения, связывающие константы g_{AN}^0 и g_{AN}^3 с массой аксиона m_A в KSVZ- и DFSZ-моделях, скорость поглощения аксионов ядром ^{169}Tm в сутки можно представить как функцию массы аксиона m_A , последняя выражена в единицах эВ:

$$\begin{aligned} R_A^{KSVZ} &= 4.88 \times 10^{-30} m_A^4 (p_A/p_\gamma)^6, \\ R_A^{\text{DFSZ}} &= 5.41 \times 10^{-31} m_A^4 (p_A/p_\gamma)^6. \end{aligned} \quad (10)$$

Общее число зарегистрированных аксионов зависит от числа ядер ^{169}Tm в мишени, времени измерений и эффективности регистрации детектора, а вероятность наблюдения пика с энергией 8.41 кэВ определяется уровнем фона экспериментальной установки.

4. Экспериментальная установка. Для регистрации реакции резонансного поглощения солнечных аксионов использовался детектор на основе кристалла тулиевого граната $\text{Tm}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, который был специально изготовлен для данного эксперимента и работал как низкотемпературный болометр [33].

Кристалл был выращен в институте общей физики им. А. М. Прохорова РАН. Детектор имел форму куба со стороной 10 мм, масса кристалла составляла 8.18 г, а масса тулия 4.97 г.

Для проведения измерений детектор был размещен в вакуумном криостате в институте физики М. Планка и охлаждался до температуры около 10 мК. Установка была расположена на поверхности земли. Для калибровки использовался стандартный калибровочный источник ^{55}Fe . Энергетическое разрешение, полученное для линии с энергией 5.9 кэВ ($K_{\alpha 12} \text{ Mn}$), составило $\sigma = \text{FWHM}/2.35 = 0.4 \text{ кэВ}$. Вследствии большого коэффициента электронной конверсии e/γ эффективность регистрации пика с энергией 8.4 кэВ с высокой точностью равна $\epsilon \cong 1.0$. Подробно характеристики детектора и экспериментальная установка описаны в работах [33, 34].

Как было отмечено выше, при разрядке возбужденного уровня ^{169}Tm испускаются конверсионные и Ожэ электроны, рентгеновские и γ -кванты. Изотоп ^{169}Tm входит в состав детектора, поэтому эффективность регистрации резонансного поглощения в $e/\gamma = 260$ раз выше по сравнению с нашими предыдущими экспериментами, выполненными по схеме “мишень-детектор” [19, 20].

5. Полученные результаты. Измерения проводились 3.86 суток живого времени, полученный спектр показан на рис. 3 в [34]. Уровень фона в районе пика с энергией 8.4 кэВ составил 25 сб./0.1 кэВ сут.

Измеренный спектр в интервале (4.6–20) кэВ подгонялся функцией для непрерывного фона с 4 параметрами и 4-мя гауссовыми пиками $K_{\alpha 1}$, $K_{\alpha 2}$, K_{β} рентгеновских линий Mn от калибровочного источника и ожидаемым аксионным пиком S_4 с энергией 8.4 кэВ. Положение и дисперсия гауссиана, описывающего аксионный пик, были привязаны к параметрам пика $K_{\alpha 1}$ марганца. “Аксионный” пик с энергией 8.4 кэВ статистически не проявился.

Для установления верхнего предела на число отсчетов в пике использовался стандартный метод нахождения профиля $\chi^2(S_4)$ и функции вероятности $P(\chi^2(S_4))$. Подгонка позволила установить верхний предел на число событий в пике $S_{\text{lim}} = 128$ событий для 90 % у.д. [34]. Определенный верхний предел на число событий в пике с энергией 8.41 кэВ позволяет ограничить константы взаимодействия аксиона C_p или $(g_{AN}^0 + g_{AN}^3)$ и массу аксиона m_A в соответствии с выражениями (5), (9) и (10).

Ожидаемое число зарегистрированных аксионов составляет:

$$S_A = R_A N_{169\text{Tm}} T \epsilon \leq S_{\text{lim}}, \quad (11)$$

где $N_{169\text{Tm}} = 1.77 \times 10^{22}$ – число ядер ^{169}Tm в мишени, $T = 3.34 \times 10^5$ – время измерений в секундах и $\epsilon = 1.0$ – эффективность регистрации.

В соответствие с выражением (9), при условии $(p_A/p_\gamma)^6 \cong 1$, что справедливо для масс аксиона $m_A \leq 2 \text{ кэВ}$, получаем ограничение:

$$|(g_{AN}^0 + g_{AN}^3)| \leq 8.89 \times 10^{-6}, \quad (12)$$

для 90 % у.д. Ограничение (12) является модельно-независимым ограничением на константы связи аксиона или любой другой псевдоскалярной аксионоподобной частицы с нуклонами. Используя выражения (10), легко получить ограничения на массу аксиона в двух разных моделях, которые оказываются следующими: $m_A^{KSVZ} \leq 141 \text{ эВ}$ в KSVZ-модели и $m_A^{DFSZ} \leq 244 \text{ эВ}$ в DFSZ-модели.

Результаты следует сравнить с пределами на массу аксиона, полученными в экспериментах по поиску резонансного поглощения солнечных аксионов другими ядрами. В отмеченных выше работах с ядрами ^{57}Fe [4–6], ^7Li [7–9], и ^{83}Kr [10, 11] получены верхние пределы на массу для KSVZ-аксиона, которые составляют величины 145 эВ, 13.9 кэВ и 65 эВ, соответственно.

Более строгие астрофизические ограничения на константу связи аксиона с протоном основаны на изменении температуры нейтронных звезд в присутствии аксионного излучения и составляют в KSVZ-модели – $C_p^2 \leq (1–6) \times 10^{-17}$ [35–37].

6. Заключение. Вычислен поток монохроматических солнечных аксионов с энергией 8.41 кэВ, связанный с разрядкой первого ядерного уровня ^{169}Tm , возбуждаемого за счет высокой температуры Солнца. Проведен поиск резонансного поглощения данных аксионов ядрами ^{169}Tm , приводящего к возбуждению первого ядерного уровня ^{169}Tm . Для регистрации частиц, возникающих при разрядке уровня, использовался кристалл $\text{Tm}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, работающий как низкотемпературный болометр. В результате получены новые верхние пределы на массу аксиона в KSVZ- и DFSZ-моделях, которые, для 90 % у.д., составляют $m_A \leq 141 \text{ эВ}$ и $m_A \leq 244 \text{ эВ}$ соответственно.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда, проект # 22-22-00017.

1. R. D. Peccei and H. R. Quinn, Phys. Rev. Lett. **38**, 1440 (1977).
2. S. Weinberg, Phys. Rev. Lett. **40**, 223 (1978).
3. F. Wilczek, Phys. Rev. Lett. **40**, 279 (1978).
4. S. Mariyama, Phys. Rev. Lett. **75**, 3222 (1995).

5. A. V. Derbin, A. I. Egorov, I. A. Mitropol'sky, V. N. Muratova, D. A. Semenov, and E. V. Unzhakov, *Eur. Phys. J. C* **62**, 755 (2009).
6. A. V. Derbin, V. N. Muratova, D. A. Semenov, and E. V. Unzhakov, *Phys. At. Nucl.* **74**, 596 (2011).
7. M. Krčmar, Z. Krečak, A. Ljubičić, M. Stipčević, and D. A. Bradley, *Phys. Rev. D* **64**, 115016 (2001).
8. A. V. Derbin, A. I. Egorov, I. A. Mitropol'skii, and V. N. Muratova, *JETP Lett.* **81**, 365 (2005).
9. P. Belli, R. Bernabei, R. Cerulli et al. (Collaboration), *Nucl. Phys. A* **806**, 388 (2008).
10. Yu. M. Gavriluk, A. N. Gangapshev, A. V. Derbin, I. S. Drachnev, V. V. Kazalov, V. V. Kobychyev, V. V. Kuz'minov, V. N. Muratova, S. I. Panasenkod, S. S. Ratkevicha, D. A. Semenov, D. A. Tekueva, E. V. Unzhakov, and S. P. Yakimenko, *JETP Lett.* **101**, 664 (2015).
11. A. V. Derbin, I. S. Drachnev, A. M. Gangapshev, Yu. M. Gavriluk, V. V. Kazalov, V. V. Kobychyev, V. V. Kuzminov, V. N. Muratova, S. I. Panashenko, S. S. Ratkevich, D. A. Tekueva, E. V. Unzhakov, and S. P. Yakimenko, *J. Phys.: Conf. Ser.* **934**, 012018 (2017).
12. Yu. M. Gavriluk, A. N. Gangapshev, A. V. Derbin, I. S. Drachnev, V. V. Kazalov, V. V. Kuzminov, M. S. Mikulich, V. N. Muratova, D. A. Tekueva, E. V. Unzhakov, and S. P. Yakimenko, *JETP Lett.* **116**, 13 (2022).
13. J. E. Kim, *Phys. Rev. Lett.* **43**, 103 (1979).
14. M. Shifman, A. Vainshtein, and V. Zakharov, *Nucl. Phys. B* **166**, 493 (1980).
15. M. Dine, W. Fischler, M. Srednicki, *Phys. Lett. B* **104**, 199 (1981).
16. A. Zhitnitskii, *Sov. J. Nucl. Phys.* **31**, 2 (1980).
17. M. Gorghetto and G. Villadoro, *JHEP* **03**, 033 (2019).
18. R. L. Workman, V. D. Burkert, V. Crede et al. (Particle Data Group), *Prog. Theor. Exp. Phys.* 083C01 (2022) and 2023 update.
19. A. V. Derbin, S. V. Bakhlanov, A. I. Egorov, I. A. Mitropol'sky, V. N. Muratova, D. A. Semenov, and E. V. Unzhakov, *Phys. Lett. B* **678**, 181 (2009).
20. A. V. Derbin, A. S. Kayunov, V. N. Muratova, D. A. Semenov, and E. V. Unzhakov, *Phys. Rev. D* **83**, 023505 (2011).
21. P. Sikivie, *Phys. Rev. Lett.* **51**, 1415 (1983).
22. V. Anastassopoulos, S. Aune, K. Barth et al. (CAST collaboration), *Nature Phys.* **13**, 584 (2017).
23. F. T. Avignone, D. Abriola, R. L. Brodzinski et al. (Collaboration), The SOLAX Collaboration, *Nucl. Phys. Proc. Suppl.* **72**, 176 (1999).
24. E. Armengaud, Q. Arnaud, C. Augier et al. (EDELWEISS Collaboration), *JCAP* **1311**, 067 (2013).
25. C. M. Baglin, *Nuclear Data Sheets* **109**, 2033 (2008).
26. W. C. Haxton and K. Y. Lee, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2557 (1991).
27. J. N. Bahcall, A. M. Serenelli, and S. Basu, *Astrophys. J.* **621**, L85 (2005).
28. N. Grevesse and A. J. Sauval, *Space Sci. Rev.* **85**, 161 (1998).
29. T. W. Donnelly, S. J. Freedman, R. S. Lytel, R. D. Peccei, and M. Schwartz, *Phys. Rev. D* **18**, 1607 (1978).
30. F. T. Avignone, C. Baktash, W. C. Barker, F. P. Calaprice, R. W. Dunford, W. C. Haxton, D. Kahana, R. T. Kouzes, H. S. Miley, and D. M. Moltz, *Phys. Rev. D* **37**, 618 (1988).
31. G. G. di Cortona, E. Hardy, J. P. Vega, and G. Villadoro, *JHEP* **01**, 034 (2016).
32. F. T. Avignone III, R. J. Creswick, J. D. Vergados, P. Pirinen, P. C. Srivastava, and J. Suhonen, *JCAP* **01**, 021 (2018).
33. E. Bertoldo, A. V. Derbin, I. S. Drachnev et al. (Collaboration), *Nuclear Instruments and Methods A* **949**, 162924 (2020).
34. A. H. Abdelhameed, S. V. Bakhlanov, P. Bauer et al. (Collaboration), *Eur. Phys. J. C* **80**, 376 (2020).
35. J. Keller and A. Sedrakian, *Nucl. Phys. A* **897**, 62 (2013).
36. A. Sedrakian, *Phys. Rev. D* **93**, 6, 065044 (2016).
37. K. Hamaguchi, N. Nagata, K. Yanagi, and J. Zheng, *Phys. Rev. D* **98**(10), 103015 (2018).

Исследование влияния метеорологических параметров на поток космических мюонов с использованием метода эффективного уровня генерации на основе данных детектора DANSS

И. Г. Алексеев^{a,b}, В. В. Белов^d, М. В. Данилов^b, И. В. Житников^d, Д. Р. Зинатулина^{d,f}, С. В. Казарцев^d,
А. С. Кобякин^{a,b,c}, А. С. Кузнецов^d, И. В. Мачихильян^g, Д. В. Медведев^d, В. М. Нестеров^a, Д. В. Пономарев^d,
И. Е. Розова^d, Н. С. Румянцева^{d,e}, В. Ю. Русинов^a, Э. И. Самигуллин^{a,b,1)}, Д. Н. Свирида^{a,b}, Н. А. Скробова^{a,b},
Е. И. Тарковский^a, Д. В. Философов^d, М. В. Фомина^d, Е. А. Шевчик^d, М. В. Ширченко^d, Ю. А. Шитов^d,
А. Е. Яковлева^b, Е. А. Якушев^d

^aНациональный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

^bФизический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

^cМосковский физико-технический институт, 141701 Долгопрудный, Россия

^dОбъединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Россия

^eГосударственный университет “Дубна”, 141982 Дубна, Россия

^fВоронежский государственный университет, 394018 Воронеж, Россия

^gФедеральное государственное унитарное предприятие
“Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики имени Н. Л. Духова”,
127055 Москва, Россия

Поступила в редакцию 4 июля 2023 г.

После переработки 4 июля 2023 г.

Принята к публикации 6 июля 2023 г.

Детектор DANSS располагается непосредственно под энергетическим ядерным реактором на Калининской АЭС. Такое положение обеспечивает защиту от космических лучей на уровне ~ 50 м.в.э. в вертикальном направлении и позволяет детектору занять промежуточное положение между наземными и подземными экспериментами по степени экранирования от космических лучей. Чувствительный объем детектора состоит из 1 м^3 пластикового сцинтиллятора, а также окружен многослойной пассивной защитой и мюонным вето. Главной задачей эксперимента DANSS является исследование спектра антинейтрино на различных расстояниях от источника. Для этого детектор помещен на подъемную платформу, с помощью которой данные набираются в трех положениях: в 10.9, 11.9, 12.9 м от центра реактора. Детектор способен восстанавливать мюонные треки, проходящие через чувствительный объем. В настоящей работе были определены значения барометрического, температурного и высотного коэффициентов для мюонов в различных областях зенитного угла θ в рамках метода эффективного уровня генерации. Результаты основываются на мюонных данных, набранных на протяжении четырех лет.

DOI: 10.31857/S123456782315003X, EDN: hwoixw

1. Введение. Зависимость потоков космических лучей от изменений атмосферного давления и температуры была известна еще в 1920-х гг., и практически сразу стало ясно, что характер и величина этих эффектов зависят от степени защиты детектора от космических лучей. Это происходит из-за того, что полные температурный и барометрический эффекты на самом деле складываются из нескольких явлений, которые по разному влияют на мюо-

ны разных энергий. Например, при увеличении температуры воздуха атмосфера расширяется, а значит, растет средняя высота, на которой образуются мюоны. Это очень слабо влияет на мюоны высоких энергий, но мягкие мюоны могут и не пролететь это дополнительное расстояние – этот процесс называется отрицательным температурным эффектом. С другой стороны, при тепловом расширении атмосферы она становится более разреженной, и вероятность заряженных пи-мезонов из адронной компоненты космических лучей взаимодействовать с

¹⁾e-mail: e.samigullin@lebedev.ru

атомами атмосферы снижается, а значит, увеличивается их вероятность распасться на лету на мюон, что ведет к увеличению потока мюонов, и это называется положительным температурным эффектом. Положительный эффект влияет на мюоны всех энергий, но в низкоэнергетической части мюонного спектра гораздо слабее отрицательного температурного эффекта, поэтому детекторы, расположенные на поверхности, наблюдают главным образом отрицательный эффект, так как большая часть детектируемых мюонов обладает малой энергией. Если же поместить детектор глубоко под землю, то мюоны низких энергий перестанут долетать до детектора, а значит будет наблюдаться по большей части положительный температурный эффект. Большинство экспериментов, изучавших подобные метеорологические эффекты, находились либо на поверхности земли, либо глубоко под землей, в то время как детектор DANSS находится в очень интересном промежуточном положении – на поверхности земли, но при этом ~ 50 м.в.э. вещества над детектором служат защитой от космических лучей в вертикальном направлении. Исследование этих эффектов необходимо для учета изменений фоновых условий, связанных с мюонами в низкофоновых экспериментах, посвященных изучению нейтрино или поиску темной материи, а также при исследовании космических лучей и гелиосферы. Теория, описывающая барометрический эффект, устоялась уже достаточно давно [1], но для описания полного температурного эффекта было разработано несколько подходов. В работе [2], посвященной исследованию подобных метеорологических эффектов с помощью детектора DANSS, использовался метод эффективной температуры [3]. В этом подходе предполагается, что температура атмосферы не зависит от высоты над уровнем земли и равняется некоторой эффективной температуре. Тогда изменение потока мюонов описывается следующей формулой:

$$\frac{I - \langle I \rangle}{\langle I \rangle} = \alpha \frac{T_{\text{eff}} - \langle T_{\text{eff}} \rangle}{\langle T_{\text{eff}} \rangle} + \beta (P - \langle P \rangle), \quad (1)$$

где I – счет мюонов за единицу времени, T_{eff} – эффективная температура, P – атмосферное давление на уровне земли, а α и β – температурный и барометрические коэффициенты соответственно. Измеренные в данной работе значения β сильно расходятся с теорией, что может быть связано с тем, что эффективная температура и атмосферное давление не являются полностью независимыми величинами, и один эффект искажает другой. К тому же, хотя измеренные значения α и находятся в отличном согласии с теоретическими предсказаниями, но напрямую их можно

сравнивать только с недавно полученными результатами мюонных телескопов, расположенных в Якутске [4] на глубинах 20 и 40 м.в.э., так как все остальные эксперименты, использовавшие данный подход, находятся гораздо глубже под землей.

Для того, чтобы проверить на устойчивость полученные ранее значения барометрического коэффициента β , а также выполнить сравнение с большим числом экспериментов, было решено обработать набранную в [2] статистику и определить корреляционные коэффициенты, используя метод эффективного уровня генерации [5]. Хотя в наше время он считается устаревшим, тем не менее, благодаря своей относительной простоте этот метод широко использовался в XX в. для учета температурных эффектов. К сожалению, результаты, полученные с его помощью, нельзя строго пересчитать в терминах эффективной температуры, и, поэтому, чтобы выполнить сравнение с экспериментами, использовавшими его, необходимо воспользоваться аналогичным подходом. В данном методе предполагается, что все мюоны образуются на одном изобарическом уровне, обычно принимаемым за 100 мбар, и тогда изменение потока мюонов описывается как:

$$\frac{I - \langle I \rangle}{\langle I \rangle} = \beta (P - \langle P \rangle) + \mu' (H_{100} - \langle H_{100} \rangle) + \mu'' (T_{100} - \langle T_{100} \rangle), \quad (2)$$

где H_{100} и T_{100} – высота и температура изобарического слоя 100 мбар, а β , μ' и μ'' – соответствующие корреляционные коэффициенты.

2. Конструкция детектора. Детектор DANSS [6] расположен на Калининской атомной электростанции (57.91° с.ш., 35.06° в.д.), под реактором ВВЭР-1000 на специальном подъемном механизме, который позволяет перемещать детектор в диапазоне 10.9–12.9 м от центра активной зоны реактора. Реактор, его биологическая защита и резервуары с техническими жидкостями обеспечивают примерно шестикратное подавление потока космических мюонов в вертикальном направлении, что эквивалентно ~ 50 м воды. Чувствительный объем детектора занимает пространство 1 м^3 и содержит в себе 2500 пластиковых сцинтилляционных стрипов, уложенных взаимноперпендикулярными слоями. Вокруг регистрирующей области расположена многослойная пассивная защита, состоящая из последовательных слоев: меди (5 см), борированного полиэтилена (8 см), свинца (5 см) и внешнего слоя борированного полиэтилена (8 см). Такая защита обеспечивает хорошее экранирование от нейтронов, гамма-квантов и прочих внешних фонов. Снару-

жи пассивная защита окружена вето счетчиками, составляющими активную защиту детектора.

Каждый индивидуальный стрип размерами $100 \times 4 \times 1$ см, и имеет по 3 канавки, в которых находятся спектросмещающие волокна. Один конец каждого волокна покрыт зеркальной краской, а противоположный конец выходит к фотоприемникам. Стрипы, лежащие в одном направлении, группируются в секции, состоящие из 10 горизонтальных слоев, содержащих по 5 соседних стрипов. Крайние волокна объединяются в каждой секции и выводятся к фотоэлектронным умножителям. Центральное волокно каждого стрипа индивидуально считывается кремниевым фотоумножителем. Все стрипы покрыты белым светоотражающим слоем, обеспечивающим диффузное отражение фотонов. Антинейтрино детектируется по реакции обратного бета-распада, одним из продуктов которого является быстрый нейтрон; в содержащем много водорода детекторе он замедляется до тепловых энергий, для его регистрации в состав покрытия стрипов введена двуокись гадолиния. Несмотря на то, что DANSS создавался для регистрации реакторных антинейтрино, из-за высокого уровня сегментации он обладает достаточно хорошим пространственным разрешением, что дает возможность изучения не только полного потока мюонов, но и мюонов в отдельных угловых диапазонах.

3. Анализ данных. В данной работе использовались мюонные данные, набранные в период с 05.10.2016 по 31.08.2020, что составляет практически 4 года наблюдений. Во избежание влияния краевых эффектов использовались мюоны, проходящие не дальше 40 см от центра чувствительного объема. Анализ проводился независимо для каждого из трех положений детектора на подъемном механизме. Это было сделано из-за того, что наиболее плотные объемы вещества – сам реактор, его защита и бассейны с водой – занимают разный телесный угол в разных положениях детектора, а значит, степень экранирования от космических лучей отличается. Также анализ был независимо проделан для трех угловых диапазонов мюонов, где ожидается максимальное различие в количестве вещества: для около вертикальных мюонов с косинусом зенитного угла $\cos \theta > 0.9$, около горизонтальных с $\cos \theta < 0.36$ и для мюонов, летящих под любыми углами.

Метеорологические данные были взяты из базы данных глобального климатического реанализа ERA5 [7]. Эта база данных собирает измерения, выполненные наземными метеостанциями, данные метеозондов и спутникового сканирования со всего мира, а затем аппроксимирует современной метеоро-

логической моделью для предсказания атмосферных данных в любой точке Земли. Пространственная точность равняется $0.25^\circ \times 0.25^\circ$, а генерируемые значения усредняются по часовым интервалам. В этом анализе использовались данные об атмосферном давлении на уровне земли и о температуре на 37 различных уровнях давления в диапазоне от 1 до 1000 мбар, рассчитанные для местоположения детектора DANSS (57.9° с.ш., 35.1° в.д.). Индивидуальные ошибки сгенерированных с помощью ERA5 значений температуры были вычислены из сравнения с соответствующими реальными измерениями температуры на уровне 100 мбар [8], проводящимися с помощью зонда на метеостанции в городе Бологое, примерно в 60 км к западу от АЭС, и составили 0.81 К. Аналогично сравнивались данные о давлении ERA5 с информацией из локального погодного архива [9], и неопределенность индивидуального значения давления на уровне земли составила 0.59 мбар. К сожалению, ERA5 не располагает информацией о высоте уровня 100 мбар, необходимой для реализации метода эффективного уровня генерации. Поэтому для расчета высоты слоя атмосферы с давлением в 100 мбар использовалась формула для барометрического нивелирования [10]:

$$\Delta H = 18400 (1 + aT) \lg \left(\frac{p_1}{p_2} \right), \quad (3)$$

где ΔH – выраженная в метрах разность высот, $a = 0.00366 \text{ K}^{-1}$ – температурный коэффициент объемного расширения воздуха, а T – температура. Эта формула дает значение разности высот между двумя уровнями давления p_1 и p_2 . Для наилучшего результата дистанция между двумя уровнями давления не должна быть слишком большой, поэтому для вычислений H_{100} сначала по формуле (3) рассчитывались разности высот между ближайшими уровнями давления, взятыми из ERA5, от поверхности земли до 100 мбар, которые затем суммировались для получения H_{100} . В данных расчетах в качестве температуры использовалось среднее арифметическое температур в соседних слоях. Полученные результаты согласуются с предсказаниями Стандартной Атмосферы, в которых уровень 100 мбар соответствует высоте ~ 16 км.

Для получения значений коэффициентов β , μ' и μ'' использовался метод последовательных приближений. Сначала строились три зависимости относительного изменения скорости счета мюонов от абсолютных изменений давления, температуры и высоты. Затем каждая из зависимостей фитировалась прямой, угловые коэффициенты которых и есть

предварительные значения корреляционных коэффициентов. Однако эти коэффициенты сильно отличаются от реальных, так как каждая из зависимостей, с помощью которых они были получены, сильно размыта двумя другими эффектами. Чтобы уменьшить их влияние, из каждой точки исходных распределений вычиталось влияние двух других эффектов, с использованием вычисленных на предыдущем шаге соответствующих коэффициентов, а затем из полученных распределений опять вычислялись новые коэффициенты. Эта процедура продолжалась, пока модуль разности β между последними итерациями не стал меньше статистической ошибки вычисленного ранее в терминах метода эффективной температуры значения β . Пример итоговых зависимостей для летящих под любыми углами мюонов в нижнем положении детектора после процедуры “очистки” показан на рис. 1. Полученные значения коэффициентов β , μ' и μ'' представлены в табл. 1.

4. Сравнение результатов с другими экспериментами. Как обсуждалось выше, значения коэффициентов зависят от степени защищенности детектора от космических лучей. Величина, характеризующая ее, – это пороговая энергия мюона E_{thr} – энергия, которой должен обладать мюон для того, чтобы пройти через защиту и достигнуть детектора. Кроме того, коэффициенты отличаются для разных зенитных углов, так как более горизонтально летящим мюонам надо пролететь через большее количество вещества атмосферы, чтобы достигнуть земли. Средние значения косинусов зенитного угла и пороговых энергий, измеренные в трех положениях детектора для трех угловых диапазонов, были рассчитаны в работе [2] и представлены в таблице 1.

Для сравнения настоящих результатов с другими работами были выбраны установки, находящиеся в похожих условиях с детектором DANSS, чтобы коэффициенты можно было сравнивать напрямую. Для отбора подобных экспериментов использовалась база мюонных телескопов Global Muon Detector Network [11], и среди представленных в ней детекторов отбирались удовлетворяющие следующим критериям. Во-первых, очевидно, в эксперименте должен использоваться метод эффективного уровня генерации, иначе с ним нельзя будет сравниться. Во-вторых, детектор не должен располагаться высоко в горах, потому что на большой высоте глубина атмосферы, а значит и сами метеорологические эффекты сильно отличаются от наблюдаемых на уровне моря. В-третьих, отбрасывались детекторы, располагающиеся на поверхности без серьезной защиты от космических лучей над ними, потому что в областях

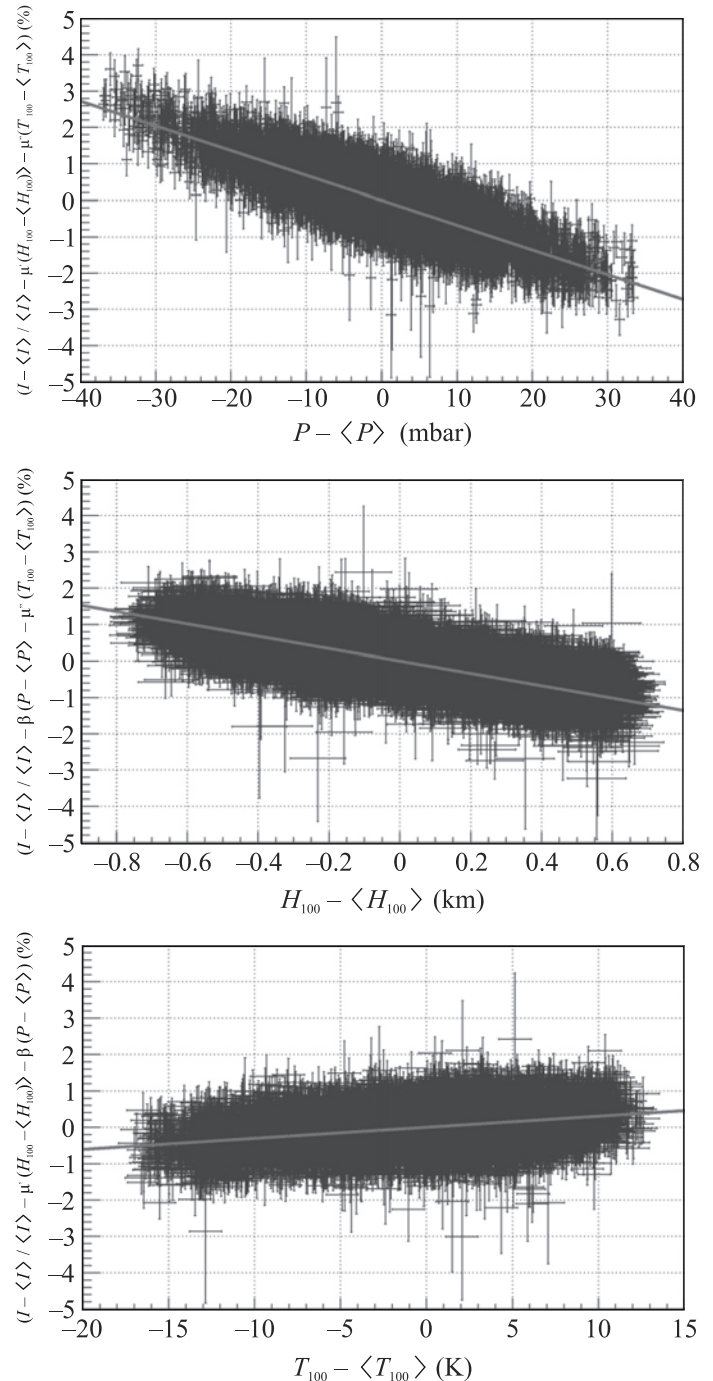


Рис. 1. (Цветной онлайн) Рисунок, иллюстрирующий проведенный анализ для расчета β , μ' и μ'' для нижнего положения детектора и мюонов, летящих с любых направлений. На рисунках показаны “очищенные” эффекты – на верхней изображен барометрический, на средней – высотный, а на нижней – температурный

малых E_{thr} коэффициенты будут сильно отличаться от измеренных в этой работе. К сожалению, большая часть отобранных экспериментов для выраже-

Таблица 1. Итоговые результаты вычисления барометрического, температурного и высотного корреляционных коэффициентов, полученных в терминах метода эффективного уровня генерации, а также параметров окружающего вещества для трех положений детектора, в трех угловых диапазонах

Угловой диапазон	Положение детектора	Корреляционный коэффициент	Экспериментальное значение	$\langle E_{thr} \rangle$ (ГэВ)	$\langle \cos \theta \rangle$
Полный поток	Верхнее	β (%/мбар)	-0.0668 ± 0.004 (стат.)	12.8 ± 1.7	0.656 ± 0.007
		μ' (%/км)	-1.61 ± 0.02 (стат.)		
		μ'' (%/K)	0.0286 ± 0.0008 (стат.)		
	Среднее	β (%/мбар)	-0.0665 ± 0.0006 (стат.)	12.5 ± 1.7	0.654 ± 0.008
		μ' (%/км)	-1.53 ± 0.02 (стат.)		
		μ'' (%/K)	0.0257 ± 0.001 (стат.)		
	Нижнее	β (%/мбар)	-0.0680 ± 0.0004 (стат.)	12.2 ± 1.7	0.655 ± 0.008
		μ' (%/км)	-1.70 ± 0.01 (стат.)		
		μ'' (%/K)	0.0304 ± 0.0007 (стат.)		
Вертикальные	Верхнее	β (%/мбар)	-0.055 ± 0.001 (стат.)	10.9 ± 0.7	0.950 ± 0.002
		μ' (%/км)	-0.72 ± 0.035 (стат.)		
		μ'' (%/K)	0.030 ± 0.002 (стат.)		
	Среднее	β (%/мбар)	-0.054 ± 0.001 (стат.)	11.0 ± 0.7	0.951 ± 0.002
		μ' (%/км)	-0.62 ± 0.06 (стат.)		
		μ'' (%/K)	0.040 ± 0.003 (стат.)		
	Нижнее	β (%/мбар)	-0.0565 ± 0.0009 (стат.)	11.1 ± 0.7	0.952 ± 0.002
		μ' (%/км)	-0.62 ± 0.03 (стат.)		
		μ'' (%/K)	0.035 ± 0.002 (стат.)		
Горизонтальные	Верхнее	β (%/мбар)	-0.094 ± 0.001 (стат.)	17.1 ± 4.4	0.269 ± 0.002
		μ' (%/км)	-3.07 ± 0.04 (стат.)		
		μ'' (%/K)	-0.001 ± 0.002 (стат.)		
	Среднее	β (%/мбар)	-0.089 ± 0.002 (стат.)	17.0 ± 4.4	0.268 ± 0.002
		μ' (%/км)	-3.11 ± 0.07 (стат.)		
		μ'' (%/K)	-0.002 ± 0.004 (стат.)		
	Нижнее	β (%/мбар)	-0.093 ± 0.001 (стат.)	16.9 ± 4.5	0.265 ± 0.002
		μ' (%/км)	-3.07 ± 0.04 (стат.)		
		μ'' (%/K)	0.0005 ± 0.0022 (стат.)		

ния защищенности от космических лучей использует не пороговую энергию в явном виде, а количество воды, эквивалентное веществу над ними. Эти значения равняются 40 м.в.э. для Budapest [12], 42 м.в.э. для Hobart [13] и 60 м.в.э. для London [14], и эти значения требуется пересчитать в пороговые энергии. Для этого из Particle Data Group [15] были взяты значения средних энергетических потерь мюонов в воде, соответствующие 24 значениям энергии мюона в интервале от 10 МэВ до 40 ГэВ. Затем решалась задача, обращенная во времени, – сколько энергии получит мюон с энергией 10 МэВ, пролетев через 40, 42 и 60 м воды, в предположении, что он получает энергию, проходя через вещество, а не тратит. Для этого заданные пути разбивались на миллиметровые шаги, внутри которых считалось, что энергетические поте-

ри мюона постоянны, и вычислялись в приближении, что эти потери линейно меняются между соседними точками, выбранными ранее.

Сравнение полученных коэффициентов μ' и μ'' с результатами детекторов, находящихся в похожих условиях, представлены на рис. 2. Результаты, полученные для около горизонтальных мюонов и в меньшей степени для всех углов, расходятся с другими экспериментами. Это обусловлено тем, что все эти детекторы являются мюонными телескопами, направленными вверх, и их нельзя напрямую сравнивать. Полученные же значения для около вертикальных мюонов находятся в достаточно неплохом согласии с результатами других экспериментов.

Сравнение полученных значений β с теоретическими предсказаниями [1] и другими эксперимента-

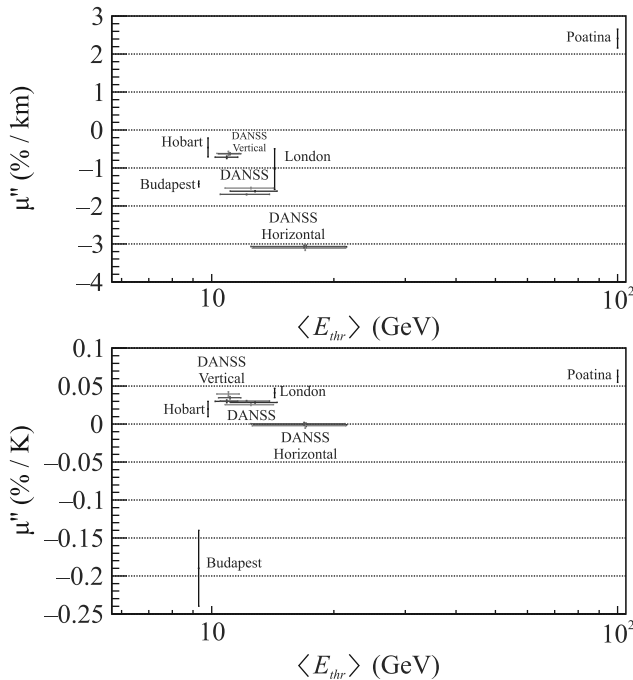


Рис. 2. (Цветной онлайн) Сравнение полученных в данной работе значений коэффициентов μ' (верхний рисунок) и μ'' (нижний рисунок) с результатами других подземных экспериментов: London [14], Budapest [12], Hobart [13] и Poatina [16]. Цветами обозначены точки, соответствующие результатам, полученным в разных положениях детектора: красным цветом – в нижнем положении, зеленым – в среднем и синем – в верхнем. Подписи соответствуют результатам, набранным в разных угловых диапазонах, – DANSS Vertical – для около вертикальных мюонов ($\cos \theta > 0.9$), DANSS – для всех углов, а DANSS Horizontal – для около горизонтальных мюонов ($\cos \theta < 0.36$)

ми показано на рис. 3. Из-за того, что теоретическая зависимость β от E_{thr} достаточно сложна, основная часть рис. 3, включающая в себя теоретические кривые и результаты других экспериментов, взята из работы [1], а точки, соответствующие детектору DANSS, нанесены поверх него. Измеренные значения β практически не отличаются от полученных ранее результатов с использованием метода эффективной температуры [2] и также расходятся с теоретическими предсказаниями. Однако, если внимательно сравнить экспериментальные точки на рис. 2 и 3, то можно заметить, что вычисленные в данной работе значения E_{thr} для экспериментов Budapest, Hobart и London заметно больше вычисленных в работе [1]. При этом в работе [14] также метры водного эквивалента переводились в значения пороговой энергии (правда без численного приведения этих значений), и они тоже заметно больше, чем изображены на рис. 3.

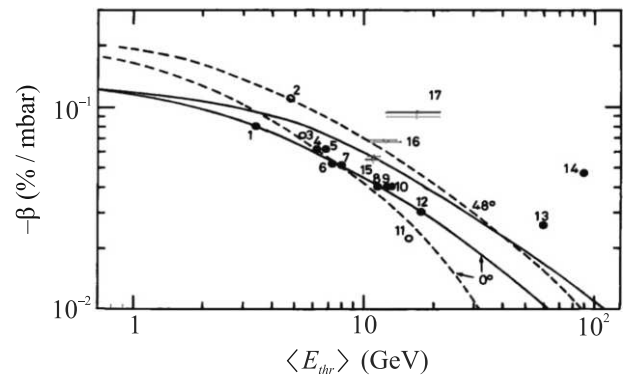


Рис. 3. (Цветной онлайн) Сравнение экспериментально измеренных различными детекторами значений барометрического коэффициента β с предсказаниями модели. Сплошной линией показаны расчеты для $X_0 = 1000 \text{ г/см}^2$, а штрихованной для $X_0 = 600 \text{ г/см}^2$; нижние кривые рассчитывались для $\theta = 0^\circ$, а верхние для $\theta = 48^\circ$. Полые и закрашенные круги показывают экспериментальные станции, расположенные выше и ниже 1 км, соответственно. Результаты этой работы, полученные с использованием метода эффективного уровня генерации, подписаны номерами: 15 – для около вертикальных мюонов, 16 – для всех мюонов, 17 – для практически горизонтальных. Результаты, соответствующие нижнему положению детектора, изображены красными, среднему положению – зелеными и верхнему положению – синими точками. Другие результаты: 1 – Yakutsk (глубина 20 м.в.э.); 2 – Bolivia; 3 – Embudo; 4 – Mawson; 5 – Misato; 6 – Hobart; 7 – Budapest; 8 – Takeyama; 9 – London; 10 – Yakutsk (глубина 60 м.в.э.); 11 – Socoro; 12 – Sakashita; 13 – Matushiro [17] и 14 – Poatina [16]. Ссылки на исследования 1–12 могут быть найдены в [18]

Если же сдвинуть на нем точки 6, 7 и 9, вправо до рассчитанных здесь или в работе [14] значений E_{thr} , то они тоже станут достаточно сильно расходиться с предсказаниями теории.

5. Заключение. В данной работе проводился анализ данных детектора DANSS для исследования метеорологических эффектов, влияющих на поток космических мюонов, с использованием метода эффективного уровня генерации. В результате были получены значения корреляционных коэффициентов β , μ' и μ'' в трех положениях детектора, для трех диапазонов значений зенитного угла. Все полученные значения β практически не отличаются от измеренных ранее с использованием метода эффективной температуры для учета температурного эффекта, и также расходятся с теорией на $\sim 30\%$. При этом коэффициенты μ' и μ'' , измеренные для около вертикальных мюонов, хорошо согласуются с другими экспериментами, находящимися в похожих усло-

виях. Это демонстрирует устойчивость измеренных значений β к методу получения, а также подтверждает правильность полученных ранее с использованием метода эффективной температуры значений α . Так же было обнаружено несоответствие между вычисленными в работах [1] и [14] значениями пороговых энергий для детекторов Budapest, Hobart и London, что, возможно, также указывает на расхождение значений β , полученных в этих экспериментах, с теорией.

Авторы выражают благодарность работникам и руководству Калининской атомной электростанции за постоянную помощь и поддержку на протяжении всего эксперимента. Особой благодарности заслуживают коллективы отдела радиационной безопасности и цеха тепловой автоматики и измерений за содействие при проведении организационных процедур. Данная работа была бы невозможна без участия сотрудников лаборатории физики реакторов, которые обеспечивали эксперимент регулярными данными о состоянии реактора и поддерживали плодотворные обсуждения.

Создание экспериментальной установки ДАНСС стало возможным благодаря поддержке Госкорпорации “РосАтом” в рамках государственных контрактов #Н.4х.44.90.13.1119 и Н.4х.44.9Б.16.1006 (2013–2016 гг.).

Длительная эксплуатация детектора, получение и обработка экспериментальных данных выполнены при поддержке гранта Российского научного фонда #17-12-01145 (2017–2021 гг.). Настоящий анализ выполнен благодаря гранту Российского научного фонда #23-12-00085.

1. S. Sagisaka, *Il Nuovo Cimento C* **9**, 809 (1986).
2. I. Alekseev, V. Belov, V. Brudanin et al. (Collaboration), *Eur. Phys. J. C* **82**, 515 (2022).

3. P. H. Barrett, L. M. Bollinger, G. Cocconi, Y. Eisenberg, and K. Greisen, *Rev. Mod. Phys.* **24**(3), 133 (1952).
4. M. Berkova, V. Grigoryev, M. Preobrazhensky, A. Zverev, and V. Yanke, *Phys. At. Nucl.* **81**, 776 (2018).
5. A. Duperier, *Proceedings of the Physical Society. Section A* **62**, 684 (1949).
6. I. Alekseev, V. Belov, V. Brudanin et al. (Collaboration), *J. Instrum.* **11**, 06 (2016).
7. <https://www.ecmwf.int/en/forecasts/datasets/reanalysisdatasets/era5>.
8. I. Durre, R. Vose, and D. Wuertz, *Journal of Climate – J CLIMATE* **19**, 53 (2006).
9. <http://www.pogodaiklimat.ru>.
10. А. Х. Хргиан, *Физика атмосферы*, Гидрометеорологическое общество, Л. (1969).
11. <http://cr0.izmiran.ru/gmdnet/>.
12. T. Sandor, A. Somogyi, and F. Telbisz, *Il Nuovo Cimento* **23**, 1080 (1962).
13. A. G. Fenton, R. M. Jacklyn, and R. B. Taylor, *Il Nuovo Cimento* **22**, 285 (1961).
14. J. Dutt and T. Thambyahpillai, *J. Atmos. Sol.-Terr. Phys.* **27**(3), 34 (1965).
15. R. L. Workman, V. D. Burkert, V. Crede et al. (Collaboration), *PTEP* **2022**, 083C01 (2022).
16. P. R. A. Lyons, A. G. Fenton, and K. B. Fenton, *Further calculations of atmospheric coefficients for underground cosmic ray detectors*, in *Proceedings of the XVII. International Conference Cosmic Ray*, Paris, France (1981), v. 4, p. 300.
17. S. Yasue, S. Mori, and S. Sagisaka, *Solar and meteorological effects on high energy cosmic rays observed at deep underground (220 hg cm⁻² in depth) at matsushiro*, in *Proceedings of the XVIII International Conference Cosmic Ray*, Bangalore, India (1983), v. 10, p. 237.
18. *Appendix*, in *Proceedings of the International Symposium High Energy Cosmic Ray Modulation*, Tokyo (1976).

Пересмотр электролюминесценции в благородных жидкостях за счет тормозного излучения электронов на нейтральных атомах

А. Ф. Бузулуцков, Е. А. Фролов¹⁾

Институт ядерной физики Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 9 июня 2023 г.

После переработки 23 июня 2023 г.

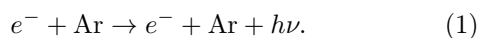
Принята к публикации 25 июня 2023 г.

Недавнее открытие механизма электролюминесценции (ЭЛ) за счет тормозного излучения электронов на нейтральных атомах (тормозное излучение на нейтралах, ТИН) в благородных газах в двухфазных детекторах для поиска темной материи привело к предсказанию, что ТИН ЭЛ должна также присутствовать и в благородных жидкостях. Соответственно, в рамках формализма Коэна–Лекнера и Атражева была разработана строгая теория ТИН ЭЛ в благородных жидкостях. Совсем недавно за ней последовало первое экспериментальное наблюдение ТИН ЭЛ в жидком аргоне, результаты которого, однако, значительно расходились с предыдущей теорией. Учитывая это, мы пересмотрели предыдущие теоретические расчеты ТИН ЭЛ в благородных жидкостях для того, чтобы они соответствовали эксперименту. В частности, в данной работе рассчитаны выходы и спектры ТИН ЭЛ для аргона, криптона и ксенона с использованием сечения рассеяния электронов с передачей импульса (вместо сечения с передачей энергии) для расчета сечения ТИН. Результаты для легких благородных жидкостей, гелия и неона, также пересмотрены.

DOI: 10.31857/S1234567823150041, EDN: hwpiej

1. Введение. Электролюминесценция (ЭЛ) – это физическое явление, при котором среда излучает свет под действием приложенного электрического поля или электрического тока. ЭЛ в инертных газах является ключевым эффектом, используемым в двухфазных (жидкость-газ) детекторах для низкоэнергетических и низкофоновых экспериментов, таких как поиск темной материи и когерентное нейтрино-ядерное рассеяние [1–4]. В этих детекторах измеряется как прямой сигнал первичной сцинтилляции (S1), так и задержанный сигнал первичной ионизации (S2), причем последний регистрируется по ЭЛ эффекту в газовой фазе.

Недавно был открыт новый механизм ЭЛ, а именно, за счет тормозного излучения электронов на нейтральных атомах (тормозное излучение на нейтралах, ТИН или *neutral bremsstrahlung*, NBrS) в ультрафиолетовом (УФ), видимом и ближнем инфракрасном (ИК) диапазонах [5–11] в газообразных Ar [5] и Xe [8]. Эта ЭЛ обусловлена упругим рассеянием электронов на нейтральных атомах:



Хотя выход ТИН ЭЛ невелик по сравнению с други-

ми механизмами ЭЛ [1, 6, 12], у ТИН ЭЛ есть преимущество в том, что она не имеет порога по электрическому полю и имеет широкий спектр излучения, от УФ до ближнего ИК, подходящий для прямого оптического считывания с помощью обычных фотодетекторов, таких как фотоумножители (ФЭУ) и кремниевые фотоумножители (КФЭУ).

Вслед за открытием ТИН ЭЛ в благородных газах ее присутствие в жидкостях также было предсказано теоретически [7], а затем впервые обнаружено в Ar [13]. Помимо очевидного интереса к ТИН ЭЛ как к новому физическому явлению, интерес к ней как в газах, так и в жидкостях обусловлен также новыми и более надежными схемами считывания двухфазных и однофазных детекторов на основе благородных жидкостей, которые могут быть разработаны на основе этого эффекта.

Эта работа является пересмотром теоретической работы [7], в которой выходы и спектры ТИН ЭЛ рассчитывались для всех благородных жидкостей от Ne до Xe, в свете последних экспериментальных результатов по ЭЛ в жидком Ar [13]. В частности, существовала неясность относительно того, следует ли использовать для расчета сечения ТИН сечение с передачей энергии (полное упругое) или с передачей импульса (транспортное) рассеяния электронов

¹⁾e-mail: geffdroid@gmail.com

на эффективном потенциале (см. раздел 2). В [7] использовалось сечение с передачей энергии, тогда как экспериментальные результаты [13] однозначно показывают, что использование сечения с передачей импульса является правильным выбором (см. рис. 1). Таким образом, в данной работе мы перерасчитываем подходом Коэна–Лекнера [15] и Атражева [16], по методике работы [7]. Также обсуждаются результаты по легким элементам (He и Ne), рассчитанные в [7] с использованием приближения, в котором жидкость считается газом с атомной плотностью жидкости (приближение “сжатого газа”).

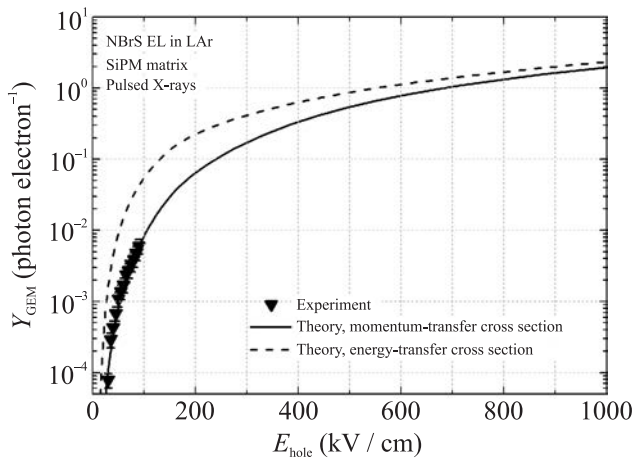


Рис. 1. Абсолютный световыход ТИН ЭЛ (NBrS EL) в жидком Ar, полученный в газовом электронном умножителе (ГЭУ, GEM) [14] и выраженный в фотонах (при $\lambda \leq 1000$ нм) на дрейфующий электрон в зависимости от электрического поля в центре отверстия ГЭУ. Показаны теоретические предсказания, когда для расчета сечения ТИН используется как сечение с передачей импульса, так и сечение с передачей энергии (см. уравнение (2)); они показаны сплошной и пунктирной линией соответственно. Экспериментальные данные и теоретические предсказания получены в [13]

2. Теория. Расчеты ТИН ЭЛ, выполненные в [7], основаны на формализме Коэна–Лекнера [15] и Атражева [16]. В этом подходе транспорт электрона через жидкость под действием электрического поля рассматривается как последовательность однократных рассеяний, описываемых сечениями рассеяния, с различием между рассеянием с передачей энергии, которое изменяет только энергию электрона, и рассеянием с передачей импульса, которое изменяет только направление его скорости. Обоим процессам присваиваются отдельные сечения [15–17]. В этой работе использованы данные, приведенные в [16], так как тогда теория хорошо описывает экспериментальные данные по скоростям дрейфа электронов [7, 16].

Для расчета ТИН ЭЛ требуется только распределение дрейфующих электронов по их энергии $f(\varepsilon)$ и дрейфовые скорости v_d .

Помимо транспортных параметров электронов, также требуется формула сечения испускания фотонов ТИН при рассеянии электронов. Ее компактная форма [5, 8, 18–22] такова:

$$\frac{d\sigma}{d\nu} = \frac{8}{3} \frac{r_e}{c} \frac{1}{h\nu} \left(\frac{\varepsilon - h\nu}{\varepsilon} \right)^{1/2} \times \\ \times [(\varepsilon - h\nu)\sigma_{el}(\varepsilon) + \varepsilon\sigma_{el}(\varepsilon - h\nu)], \quad (2)$$

где $h\nu$ – энергия фотона, $r_e = e^2/mc^2$ – классический радиус электрона, c – скорость света, ε – энергия налетающего электрона и $\sigma_{el}(\varepsilon)$ – сечение его упругого рассеяния на эффективном потенциале. В [7] было предложено, что в рамках подхода Коэна–Лекнера [15] и Атражева [16] эту формулу, первоначально выведенную для газа, можно применять и для жидкости.

Абсолютный выход ЭЛ, Y_{EL} , определяется как количество фотонов, произведенных на единицу дрейфового пути и на один дрейфующий электрон. Для сравнения результатов при различных плотностях и температурах среды используется удельный выход ЭЛ, Y_{EL}/N , где N – атомная плотность жидкости. Он является функцией удельного электрического поля E/N , выраженного в единицах Тд (таунсенд, Td) ($1 \text{ Td} = 10^{-17} \text{ В см}^2$). Если функция распределения электронов по энергиям $f(\varepsilon)$ нормирована на единицу, его можно описать следующим уравнением [5]:

$$\frac{Y_{EL}}{N} = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \int_{h\nu}^{\infty} \frac{\sqrt{2\varepsilon/m}}{v_d} \frac{d\sigma}{d\nu} \frac{d\nu}{d\lambda} f(\varepsilon) d\varepsilon d\lambda, \quad (3)$$

где λ_1 – λ_2 – интересующая нас область длин волн. В этой работе, как и в наших предыдущих, она ограничена областью длин волн 0–1000 нм. Спектры длин волн ТИН ЭЛ можно получить из этого уравнения, взяв его производную по λ . Расчеты проводились для жидкостей при температуре кипения при давлении 1.0 атм; атомные плотности взяты из [23].

Следует отметить, что до недавнего времени существовала неясность относительно того, какое сечение упругого рассеяния, $\sigma_{el}(\varepsilon)$, должно фигурировать в уравнении (2): некоторые теоретические выводы показывали, что это должно быть сечение с передачей энергии (полного упругого рассеяния) [18–21, 24], в то время как другие показывали, что оно должно быть сечением с передачей импульса (транспортное сечение) [10, 20–22]. И хотя в газах эти два

подхода не приводят к существенному различию выходов ТИН ЭЛ [5, 8, 25], в [13] и этой работе показано, что в жидкостях результаты могут различаться более чем на порядок величины в зависимости от электрического поля. Экспериментальные измерения абсолютных выходов ТИН ЭЛ в жидком Ar (см. рис. 1 и [13]) решили этот вопрос и показали, что использование сечения с передачей импульса является правильным выбором. Следует отметить, что измерения ТИН ЭЛ в газообразном Xe [8] также согласовывались лучше с использованием сечения с передачей импульса, хотя было трудно сделать убедительный вывод из-за экспериментальных неопределенностей.

В связи с этим, был выполнен перерасчет результатов ТИН ЭЛ из [7] для жидких Ar, Kr и Xe с использованием сечения с передачей импульса, и результаты показаны на рис. 2–4 и 5. На рисунке 2 показаны спектры длин волн ТИН ЭЛ при различных электрических полях. Видно, что они достаточно плоские и по форме мало чем отличаются от таковых в благородных газах [6]. Их форма также не сильно зависит от того, используется ли сечение с передачей импульса или энергии в уравнении (2) (сравните рис. 2 здесь с рис. 3 в [7]).

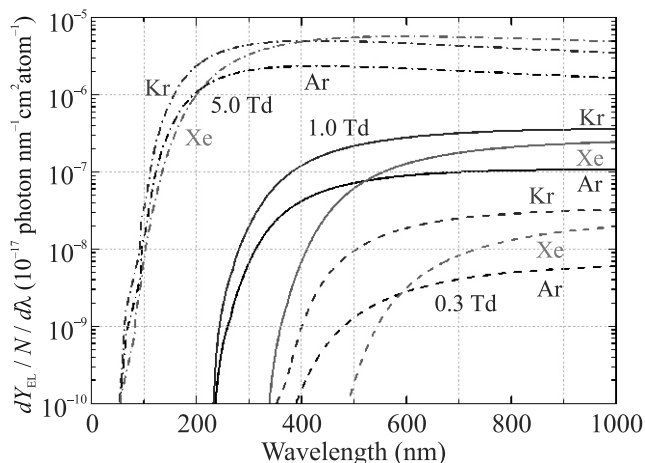


Рис. 2. (Цветной онлайн) Теоретические спектры удельного выхода ЭЛ для ТИН ЭЛ в жидких Ar, Kr и Xe при различных удельных электрических полях. Результаты получены с сечением с передачей импульса (взято из [16]), используемым в уравнении (2)

На рисунках 3, 4 и 5 показаны абсолютные выходы ТИН ЭЛ как функции электрического поля и сравнение их значений, полученных с сечением передачи импульса и энергии. Как видно, два сечения приводят к различию выходов примерно на порядок при низких электрических полях, ниже 100 кВ/см, что особенно важно для экспериментов с ГЭУ и толстыми ГЭУ. Однако, с увеличением поля эта разли-

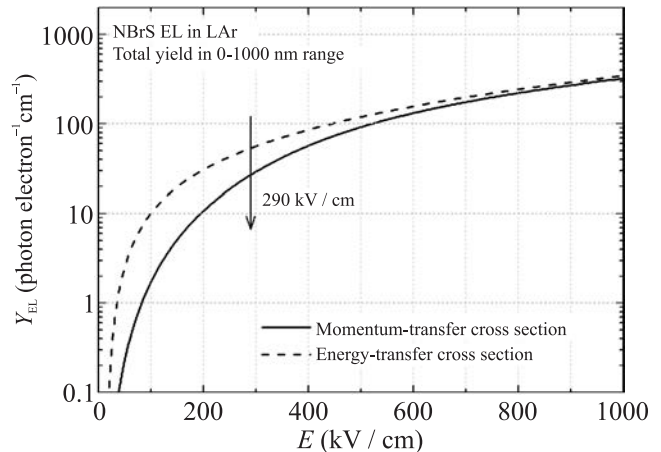


Рис. 3. Теоретический абсолютный выход ЭЛ для ТИН ЭЛ в жидком Ar для 0–1000 нм в зависимости от электрического поля. Результаты получены как для сечения с передачей импульса, так и для сечения с передачей энергии, используемых в уравнении (2). Оба сечения взяты из [16]. Стрелкой указано электрическое поле, при котором достигается двукратная разница между использованием сечения с передачей импульса и сечением с передачей энергии (последнее эквивалентно приближению сжатого газа)

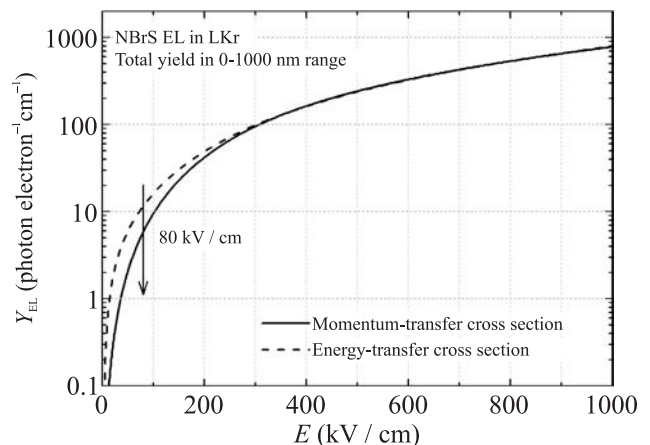


Рис. 4. То же, что и на рис. 3, для Kr

ца уменьшается и практически исчезает при достаточно больших электрических полях, превышающих несколько сотен кВ/см. Такие сильные электрические поля можно получить в благородных жидкостях с помощью тонких проволок [26] или игл [27]. Это означает, что для более высоких электрических полей результаты [7] по ТИН ЭЛ в тяжелых благородных жидкостях остаются в силе.

Следует отметить, что для легких благородных жидкостей He и Ne описанная выше теория неприменима, поскольку в литературе отсутствуют соответствующие сечения транспорта электронов в жидко-

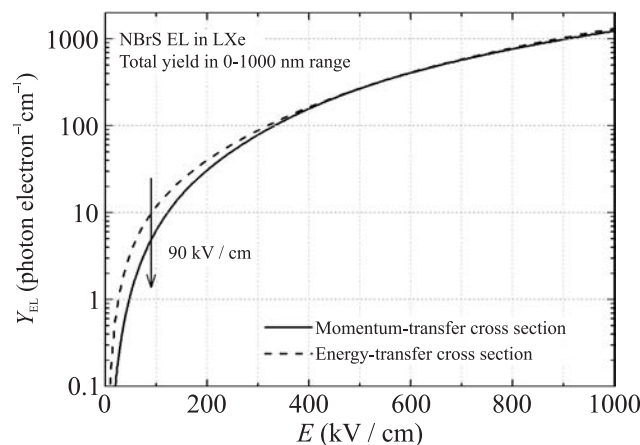


Рис. 5. То же, что и на рис. 3, для Хе

сти. В [7] эту проблему удалось избежать с помощью приближения “сжатого газа”. В основе этого приближения лежит то, что в газах функции распределения электронов $f(\varepsilon)$ и удельные выходы ТИН ЭЛ Y_{EL}/N фактически являются функциями не электрического поля E , а удельного электрического поля E/N . Это позволяет перерасчитывать значения, полученные при одной плотности, на любую другую, строго говоря, до тех пор, пока эффективный потенциал рассеяния электронов не изменится в достаточной степени. В [7] было показано, что, к удивлению, такой перерасчет на плотности жидкости привел к тем же, с точностью до 2, выходам ТИН ЭЛ для Ar, Kr и Хе, что и рассчитанные в формализме Коэна–Лекнера и Атражева с использованием сечения с передачей энергии.

В [7] это оправдывало использование приближения сжатого газа и для легких элементов He и Ne. Однако учитывая, что вместо этого для точного решения необходимо использовать сечение с передачей импульса, приближение сжатого газа становится недействительным при малых полях (см. рис. 3, 4 и 5). В частности, электрические поля, при которых разница между использованием сечения с передачей импульса и передачей энергии становится меньше двойки, составляют более 290 кВ/см (1.4 Тд), 80 кВ/см (0.5 Тд) и 90 кВ/см (0.7 Тд) для Ar, Kr и Хе соответственно. В скобках указаны соответствующие удельные электрические поля. Тогда из экстраполяции можно ожидать, что для He и Ne приближение сжатого газа будет работать только для полей выше 1.4 Тд или 265 и 500 кВ/см соответственно.

3. Выводы. С учетом новых экспериментальных данных по ЭЛ в жидком Ar [13] в работе проведен перерасчет ТИН ЭЛ в благородных жидкостях, до этого впервые проведенный в [7]. В частности, бы-

ли получены спектры и выходы ТИН ЭЛ для жидких Ar, Kr и Хе в широком диапазоне электрических полей с использованием сечения упругого рассеяния электронов на эффективном потенциале с передачей импульса для расчета сечения ТИН вместо ранее использовавшегося сечения с передачей энергии. Было обнаружено, что выходы ТИН ЭЛ могут быть значительно меньше, на порядок величины, чем считалось ранее для слабых электрических полей, ниже 100 кВ/см. С другой стороны, эта разница уменьшается с ростом поля и почти исчезает при достаточно больших электрических полях, превышающих 290, 80 и 90 кВ/см для Ar, Kr и Хе соответственно.

Соответственно, вывод о том, что ТИН ЭЛ может найти применение для альтернативных концепций считывания для однофазных детекторов на основе благородных жидкостей, остается в силе.

Наконец, было также показано, что выходы ТИН ЭЛ для жидких He и Ne могут быть рассчитаны в приближении сжатого газа с погрешностью в 2 раза для электрических полей, превышающих 265 и 500 кВ/см соответственно.

Работа частично поддержана Российским научным фондом (проект # 20-12-00008, <https://rscf.ru/project/20-12-00008/>).

1. D. Y. Akimov, A. I. Bolozdynya, A. F. Buzulutskov, and V. Chepel, *Two-Phase Emission Detectors*, World Scientific (2021).
2. E. Aprile et al. (XENON Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **121**, 111302 (2018).
3. P. Agnes et al. (DarkSide Collaboration), *Phys. Rev. D* **98**, 102006 (2018).
4. D. S. Akerib et al. (LUX Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **116**, 161301 (2016).
5. A. Buzulutskov, E. Shemyakina, A. Bondar, A. Dolgov, E. Frolov, V. Nosov, V. Oleynikov, L. Shekhtman, and A. Sokolov, *Astropart. Phys.* **103**, 29 (2018).
6. E. Borisova and A. Buzulutskov, *Eur. Phys. J. C* **81**, 1128 (2021).
7. E. Borisova and A. Buzulutskov, *Europhys. Lett.* **137**, 24002 (2022).
8. C. A. O. Henriques et al. (NEXT Collaboration), *Phys. Rev. X* **12**, 021005 (2022).
9. K. Aoyama, M. Kimura, H. Morohoshi, T. Takeda, M. Tanaka, and K. Yorita, *Nucl. Instrum. Meth. A* **1025**, 166107 (2022).
10. A. Milstein, S. Salnikov, and M. Kozlov, *Nucl. Instrum. Meth. B* **530**, 48 (2022).
11. A. Milstein, S. Salnikov, and M. Kozlov, *Nucl. Instrum. Meth. B* **539**, 9 (2023).
12. A. Buzulutskov, *Instruments* **4**, 16 (2020).

13. A. Buzulutskov, E. Frolov, E. Borisova, V. Nosov, V. Oleynikov, and A. Sokolov, eprint arXiv: 2305.08084.
14. F. Sauli, Nucl. Instrum. Meth. A **805**, 2 (2016).
15. M. H. Cohen and J. Lekner, Phys. Rev. **158**, 305 (1967).
16. V. M. Atrazhev and E. G. Dmitriev, J. Phys. C **18**, 1205 (1985).
17. D. Y. Stewart, G. J. Barker, A. J. Bennieston, P. F. Harrison, P. K. Lightfoot, N. McConkey, B. Morgan, Y. A. Ramachers, M. Robinson, N. J. C. Spooner, and L. Thompson, J. Instrum. **5**, P10005 (2010).
18. O. B. Firsov and M. I. Chibisov, Sov. Phys. JETP **12**, 1235 (1960).
19. V. A. Kas'yanov and A. N. Starostin, Sov. Phys. JETP **21**, 193 (1965).
20. A. Dalgarno and N. F. Lane, Astrophys. J. **145**, 623 (1966).
21. L. M. Biberman and G. E. Norman, Sov. Phys.-Uspekhi **10**, 52 (1967).
22. J. Park, I. Henins, H. W. Herrmann, and G. S. Selwyn, Phys. Plasmas **7**, 3141 (2000).
23. V. G. Fastovsky, A. E. Rovinsky, and Y. V. Petrovsky, *Inert Gases*, Atomizdat, Moscow (1972).
24. V. A. Kas'yanov and A. N. Starostin, Sov. J. Plasma Phys. **4**, 67 (1978).
25. P. Amedo, D. Gonzalez-Díaz, and B. Jones, J. Instrum. **17**, C02017 (2022).
26. E. Aprile, H. Contreras, L. W. Goetzke, A. J. M. Fernandez, M. Messina, J. Naganoma, G. Plante, A. Rizzo, P. Shagin, and R. Wall, J. Instrum. **9**, P11012 (2014).
27. A. S. Schussler, J. Burghorn, P. Wyder, B. I. Lembrikov, and R. Baptist, Appl. Phys. Lett. **77**, 2786 (2000).

Стекание ручейка неньютоновской жидкости по наклонной супергидрофобной поверхности

А. И. Агеев¹⁾, А. Н. Осипцов¹⁾

Научно-исследовательский институт механики МГУ имени М. В. Ломоносова, 119192 Москва, Россия

Поступила в редакцию 5 июня 2023 г.

После переработки 19 июня 2023 г.

Принята к публикации 27 июня 2023 г.

Рассматривается стационарное стекание ручейка жидкости степенной реологии от точечного источника по наклонной плоской супергидрофобной поверхности. В приближении тонкого слоя с заданным граничным условием неоднородного проскальзывания (коэффициенты скольжения – степенные функции пространственных координат) получено уравнение для формы поперечного сечения ручейка. В предположении симметрии ручейка относительно его срединной плоскости найдены условия существования класса автомодельных решений, описываемых одним обыкновенным дифференциальным уравнением второго порядка. Для ряда значений параметров скольжения супергидрофобной поверхности и реологических показателей стекающей жидкости приведены примеры построения аналитических и численных решений из найденного класса, проведен анализ формы поперечного сечения ручейка и геометрии области смачивания.

DOI: 10.31857/S1234567823150053, EDN: hwsynn

Введение. За последние десятилетия значительно вырос интерес к моделированию течений жидкости вблизи текстурированных супергидрофобных поверхностей (СГП), в элементах текстуры которых удерживаются микропузырьки газа. Макроскопическое проскальзывание жидкости на СГП, наблюдаемое в экспериментах, приводит к появлению ряда полезных свойств поверхности и эффекту снижения гидродинамического сопротивления, что очень важно для практических приложений (см. обзор [1]). Указанный интерес способствовал пересмотру ряда задач гидродинамики вязкой жидкости с формулировкой условия проскальзывания на СГП вместо классического условия прилипания. Был получен ряд новых практически важных результатов и построены классы автомодельных течений [2, 3], позволяющие определять параметры скольжения СГП из простых экспериментов. В частности, были описаны автомодельные режимы растекания тонкого слоя неньютоновской жидкости вдоль горизонтальной и наклонной СГП. Полученные результаты могут быть использованы как при производстве СГП с заданными свойствами, так и для понимания механизмов снижения трения и самоочистки таких поверхностей.

Для течений неньютоновских жидкостей вблизи СГП опубликованных точных решений существенно меньше, хотя в самые последние годы наблюдается

всплеск интереса к исследованию таких течений. Это связано как с появившейся возможностью производства СГП с заметным проскальзыванием неньютоновских жидкостей [1], так и с обнаружением ряда неожиданных эффектов, в частности, аномально высокого скольжения псевдопластической среды при ее течении в канале с супергидрофобными стенками [4]. Абсолютное большинство опубликованных работ по течениям неньютоновских сред с условиями скольжения посвящено параметрическим исследованиям одномерных течений типа Куэтта–Пуазейля (течения в каналах и плоских слоях), а также линейной теории устойчивости свободной поверхности плоского слоя (см., например, [5–7]).

Для планирования и интерпретации экспериментальных исследований желательно иметь широкий набор достаточно простых решений, связывающих геометрию течения с реологическими параметрами среды и параметрами скольжения на СГП. Свойства проскальзывания на супергидрофобной поверхности, как правило, различны, в разных точках поверхности. Это обусловлено различием в положениях межфазной поверхности в кавернах (различным сжатием пузырьков, связанным с различием локальных давлений над пузырьками) [2]. Поэтому построение достаточно простых решений для течений неньютоновских сред вдоль неоднородных СГП представляет практический интерес.

Ниже построен класс автомодельных решений, описывающих установившееся стекание ручейка

¹⁾e-mail: aaiageev@mail.ru, osipsov@imec.msu.ru

неньютоновской жидкости от локализованного источника с условием проскальзывания на наклонной неоднородной супергидрофобной плоскости (коэффициенты скольжения – степенные функции координат) в поле силы тяжести.

Ранее автомодельные режимы растекания неньютоновской жидкости по обычной горизонтальной поверхности с условием прилипания были исследованы в [8, 9]. Ручейковое стекание неньютоновской жидкости по наклонной и искривленной поверхностям с условием прилипания рассматривалось в [10, 11]. В [12] численно исследованы автомодельные решения задачи о растекании лавы по горизонтальной поверхности как неньютоновской жидкости со степенной реологией.

Постановка задачи о ручейковом стекании жидкости. Рассмотрим стекание неньютоновской жидкости от локализованного источника по супергидрофобной плоской поверхности, образующей конечный угол $0 < \varphi < \pi/2$ с горизонтом (рис. 1) (звездочками отмечены размерные переменные).

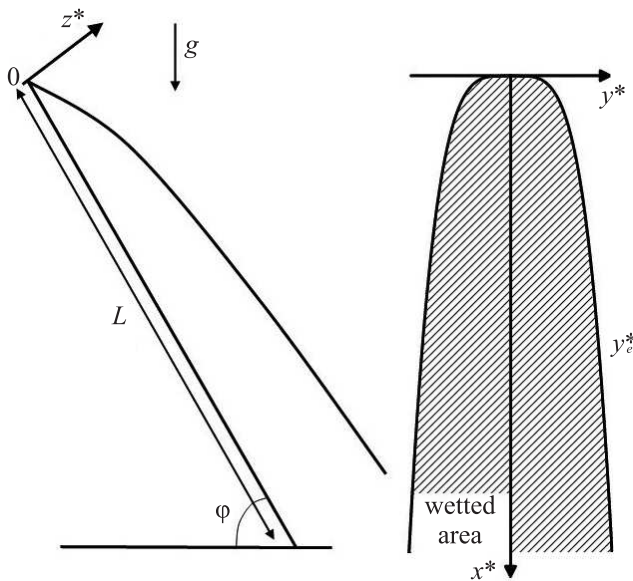


Рис. 1. Схема стекания жидкости по наклонной супергидрофобной плоской поверхности, источник расположен в начале координат

Жидкость задана реологическим соотношением $\tau_{ij}^* = 2\mu_0^* I^{n-1} e_{ij}^*$, где τ_{ij}^* и e_{ij}^* – тензоры касательных напряжений и скоростей деформации соответственно, $I = \sqrt{e_{ij}^* e_{ij}^*}$, $n > 0$, по повторяющимся индексам выполняется суммирование. При $n = 1$ коэффициент μ_0^* совпадает с динамической вязкостью неньютоновской жидкости. Рассматривается общая ситуация неоднородной СГП, у которой коэффициенты

проскальзывания зависят от координат рассматриваемой точки, при этом предполагается, что СГП имеет два главных взаимно перпендикулярных направления, с максимальным и минимальным проскальзыванием жидкости. Это может соответствовать, в частности, полосчатой структуре СГП, у которой ширина полосчатых микрокаверн с газовыми пузырьками и расстояние между ними изменяются, соответственно, вдоль и поперек потока жидкости. Рассматриваемая ситуация может также соответствовать изотропной текстуре СГП с различными положениями менисков поверхностей пузырьков в кавернах.

Начало декартовой системы координат $Ox^*y^*z^*$ совпадает с локализованным источником массопотока (рис. 1), объемный расход которого равняется Q^* ; оси Ox^* и Oy^* направлены вдоль указанных выше главных направлений скольжения, а ось Oz^* направлена по нормали к СГП. Размерные компоненты скорости обозначим u^* , v^* и w^* ; через L , l и h_0 обозначим характерные линейные масштабы длины, ширины и толщины ручейка соответственно. Предполагается, что толщина ручейка много меньше его ширины, а ширина много меньше длины: $h_0/l = l/L = \varepsilon \ll 1$. В дальнейшем ε считается малым параметром. Вводятся безразмерные переменные:

$$x = \frac{x^*}{L}, \quad y = \frac{y^*}{l}, \quad z = \frac{z^*}{h_0}, \quad u = \frac{u^*}{U},$$

$$v = \frac{v^*}{\varepsilon U}, \quad w = \frac{w^*}{\varepsilon^2 U}, \quad p = \frac{2^{n-1} \varepsilon^{2n} L^n}{\mu_0^* U^n} p^*.$$

Здесь U – характерная скорость стекания. Считая, что объемная мощность источника Q^* задана, и выбирая масштаб длины L (на котором рассматривается решение), можно выразить U , l и h_0 через Q^* , L , ρ^* , μ_0^* и g^* :

$$U = \left(\frac{8^{n-1} \rho^{*3} g^{*3} Q^{*(2n+2)}}{\mu_0^{*3} L^{n+1}} \right)^{1/(5n+2)},$$

$$l = \left(\frac{\mu_0^* U^n L^{n+1}}{2^{n-1} \rho^* g^*} \right)^{1/(2n+2)},$$

$$h_0 = \left(\frac{\mu_0^* U^n}{2^{n-1} \rho^* g^*} \right)^{1/(n+1)}.$$

Данные соотношения получены из условий $Q^* = h_0 l U$, соотношения для геометрических масштабов задачи, а также равенства единице коэффициента при силе тяжести в проекции безразмерного уравнения импульса на ось z . Записав уравнения неразрывности и импульса для неньютоновской жидкости

в выбранных безразмерных переменных и отбрасывая члены, стремящиеся к нулю при $\varepsilon \rightarrow 0$ (предполагается, что $\varepsilon^2 2^{n-1} \rho^* L^n U^{2-n} / \mu_0^*$ также стремится к нулю), получаем асимптотические уравнения “медленного” трехмерного течения пленки на наклонной плоскости:

$$\begin{aligned} \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} &= 0, \\ \frac{\partial}{\partial z} \left(\left(\frac{\partial u}{\partial z} \right)^n \right) + \sin \varphi &= 0, \\ \frac{\partial}{\partial z} \left(\left(\frac{\partial u}{\partial z} \right)^{n-1} \frac{\partial v}{\partial z} \right) &= \frac{\partial p}{\partial y}, \quad \frac{\partial p}{\partial z} = -\cos \varphi. \end{aligned} \quad (1)$$

Задача завершается заданием на СГП условий непротекания и проскальзывания для компонент скорости, которые для неньютоновской жидкости в безразмерной форме принимают вид:

$$\begin{aligned} z = 0: \quad u &= b_1(x, y) \left(\frac{\partial u}{\partial z} \right)^m, \\ v &= b_2(x, y) \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)^m, \quad w = 0. \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь b_1 и b_2 – коэффициенты пропорциональности, связывающие безразмерную касательную скорость и степени безразмерных нормальных производных продольных скоростей среды, вычисленных на СГП при $z = 0$. Следует отметить, что в отличие от ньютоновской среды, для которой в граничном условии всегда имеется линейная связь между скоростью скольжения и вектором касательных напряжений на стенке, для неньютоновской среды может иметь место более общая ситуация (параметр m , в общем случае, не связан с n [6]). Случай $m = 1$ соответствует линейному граничному условию Навье, обычно используемому при стекании ньютоновской ($n = 1$) жидкости по СГП. Для ньютоновской жидкости $b_{1,2}$ соответствует безразмерным “длинам скольжения” для главных направлений тензора скольжения [2].

На поверхности ручейка ставятся кинематическое (непротекание) и динамические (отсутствие касательных напряжений) граничные условия (поверхностным натяжением пренебрегается):

$$\begin{aligned} z = h(x, y): \quad u \frac{\partial h}{\partial x} + v \frac{\partial h}{\partial y} &= w, \\ p &= 0, \quad \frac{\partial u}{\partial z} = 0, \quad \frac{\partial v}{\partial z} = 0. \end{aligned} \quad (3)$$

В случае стандартной поверхности с условием прилипания $b_1 = b_2 = 0$ задача имеет класс известных автомодельных решений [10]. При наличии

проскальзывания в постановке задачи появляются дополнительные параметры с размерностью длины, что делает проблематичным существование автомодельных решений. Однако, если предположить определенную функциональную зависимость коэффициентов $b_{1,2}$ от пространственных координат, автомодельные решения также существуют. Рассмотрим достаточно общую ситуацию неоднородной СГП, для которой зависимость безразмерных коэффициентов $b_{1,2}$ в условии проскальзывания от координат описывается степенными функциями вида $B_{1,2} x^\gamma y^\delta$, где $B_{1,2}$ – положительные константы. Частный случай $\delta = \gamma = 0$ соответствует СГП с однородными свойствами.

Решая уравнения (1) с граничными условиями (2) и (3), получаем: $p(x, y, z) = (h - z) \cos \varphi$,

$$\begin{aligned} u(x, y) &= \left[\frac{n}{n+1} \right] \left(h^{\frac{n+1}{n}} - (h - z)^{\frac{n+1}{n}} \right) \times \\ &\times (\sin \varphi)^{\frac{1}{n}} + b_1(x, y) h^{\frac{m}{n}} (\sin \varphi)^{\frac{m}{n}}, \\ v(x, y) &= \left[\frac{n}{n+1} \right] \left(\frac{\partial h}{\partial y} \right) \times \\ &\times \left((h - z)^{\frac{n+1}{n}} - h^{\frac{n+1}{n}} \right) \frac{\cos \varphi}{(\sin \varphi)^{(n-1)/n}} + \\ &+ b_2(x, y) \left(-\frac{\partial h}{\partial y} \right)^m h^{\frac{m}{n}} \frac{(\cos \varphi)^m}{(\sin \varphi)^{m(n-1)/n}}. \end{aligned}$$

После интегрирования уравнения неразрывности по толщине слоя и подстановки полученного результата в кинематическое условие получаем уравнение в частных производных для формы поперечного сечения ручейка:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial x} \left(\left[\frac{n}{2n+1} \right] h^{\frac{2n+1}{n}} (\sin \varphi)^{\frac{1}{n}} + \right. \\ \left. + B_1 x^\gamma y^\delta h^{\frac{m+n}{n}} (\sin \varphi)^{\frac{m}{n}} \right) + \\ + \frac{\partial}{\partial y} \left(\left[\frac{n}{2n+1} \right] \left(-\frac{\partial h}{\partial y} \right) h^{\frac{2n+1}{n}} \frac{\cos \varphi}{(\sin \varphi)^{(n-1)/n}} + \right. \\ \left. + B_2 x^\gamma y^\delta \left(-\frac{\partial h}{\partial y} \right)^m h^{\frac{m+n}{n}} \frac{(\cos \varphi)^m}{(\sin \varphi)^{m(n-1)/n}} \right) = 0. \end{aligned} \quad (4)$$

При $m = 1$ и $B_{1,2} = 0$ уравнение принимает известный в литературе вид [10]. Далее для полученного уравнения в предположении постоянного расхода жидкости через поперечное сечение ручейка строятся симметричные относительно оси Ox автомодельные решения. Для установившегося стекания жидкости расход через поперечное сечение ручейка вычисляется следующим образом:

$$\int_{-y_e(x)}^{y_e(x)} \int_0^{h(x,y)} u(x, y, z) dz dy = 1,$$

где $\pm y_e(x)$ на плоскости (x, y) – заранее неизвестные боковые границы области смачивания жидкости, на которых толщина слоя равняется нулю.

После подстановки в интегральный закон сохранения расхода жидкости выражения для компоненты скорости u получаем:

$$\int_{-y_e(x)}^{y_e(x)} \left(\left[\frac{n}{2n+1} \right] h^{\frac{2n+1}{n}} (\sin \varphi)^{\frac{1}{n}} + B_1 x^\gamma y^\delta h^{\frac{m+n}{n}} (\sin \varphi)^{\frac{m}{n}} \right) dy = 1. \quad (5)$$

Задача (4)–(5) является многопараметрической и может описывать широкий класс течений для различных неоднородных СГП и стекающих жидкостей.

Рассмотрим для примера наиболее простой случай $m = 1$ и исследуем зависимость решения от реологического показателя n . В этом случае уравнение для поперечного сечения ручейка (4) и условие сохранения расхода (5) принимают вид:

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial x} \left(\left[\frac{n}{2n+1} \right] h^{\frac{2n+1}{n}} + B_1 x^\gamma y^\delta h^{\frac{n+1}{n}} \right) \operatorname{tg} \varphi - \\ & - \frac{\partial}{\partial y} \left(\left(\left[\frac{n}{2n+1} \right] h^{\frac{2n+1}{n}} + B_2 x^\gamma y^\delta h^{\frac{n+1}{n}} \right) \frac{\partial h}{\partial y} \right) = 0, \\ & (\sin \varphi)^{\frac{1}{n}} \int_{-y_e(x)}^{y_e(x)} \left(\left[\frac{n}{2n+1} \right] h^{\frac{2n+1}{n}} + B_1 x^\gamma y^\delta h^{\frac{n+1}{n}} \right) dy = 1. \end{aligned}$$

Автомодельные решения ищутся в виде, аналогичном [2, 10]: $h(x, y) = x^\alpha F(\eta)$, $\eta = y/Cx^\beta$, $C = \text{const} > 0$, где α и β – некоторые константы. Новая переменная η характеризует автомодельный закон расширения области смачивания жидкости в направлении оси OY . Значение константы C выбирается из условия $\eta = 1$ на боковой границе ручейка. После подстановки автомодельной формы решения в уравнение (4) и закон постоянства расхода (5) получаем условия существования автомодельных решений и уравнение для нахождения константы C :

$$\begin{aligned} \alpha &= -\frac{n}{5n+2}, \quad \beta = \frac{2n+1}{5n+2}, \quad \gamma = -\frac{n+(2n+1)\delta}{5n+2}, \\ C(\sin \varphi)^{\frac{1}{n}} \int_{-1}^1 & \left(\left[\frac{n}{2n+1} \right] F^{\frac{2n+1}{n}} + B_1 C^\delta \eta^\delta F^{\frac{n+1}{n}} \right) d\eta = 1. \end{aligned} \quad (6)$$

Полученные условия показывают, что каждому набору значений $n > 0$ и $\delta \geq 0$ соответствует конкретное автомодельное решение, определяемое набором значений параметров α , β и γ . После подстановки автомодельной формы решения в уравнение (4)

получаем краевую задачу для автомодельной функции F :

$$\begin{aligned} & \left[\frac{n}{2n+1} \right] \frac{d}{d\eta} \left(F^{\frac{2n+1}{n}} \frac{dF}{d\eta} \right) + B_2 C^\delta \frac{d}{d\eta} \left(\eta^\delta F^{\frac{n+1}{n}} \frac{dF}{d\eta} \right) + \\ & + \left[\frac{C^2 n}{5n+2} \right] \frac{d}{d\eta} \left(\eta F^{\frac{2n+1}{n}} \right) \operatorname{tg} \varphi + \\ & + B_1 C^{\delta+2} \left[\frac{2n+1}{5n+2} \right] \frac{d}{d\eta} \left(\eta^{\delta+1} F^{\frac{n+1}{n}} \right) \operatorname{tg} \varphi = 0, \\ & F'(0) = F(1) = 0. \end{aligned}$$

Интегрируя данное уравнение с условием $F'(0) = 0$, получаем

$$\begin{aligned} & \left[\frac{n}{2n+1} \right] F \frac{dF}{d\eta} + B_2 C^\delta \eta^\delta \frac{dF}{d\eta} + \left[\frac{C^2 n}{5n+2} \right] \eta F \operatorname{tg} \varphi + \\ & + B_1 C^{\delta+2} \left[\frac{2n+1}{5n+2} \right] \eta^{\delta+1} \operatorname{tg} \varphi = 0, \quad F(1) = 0. \quad (7) \end{aligned}$$

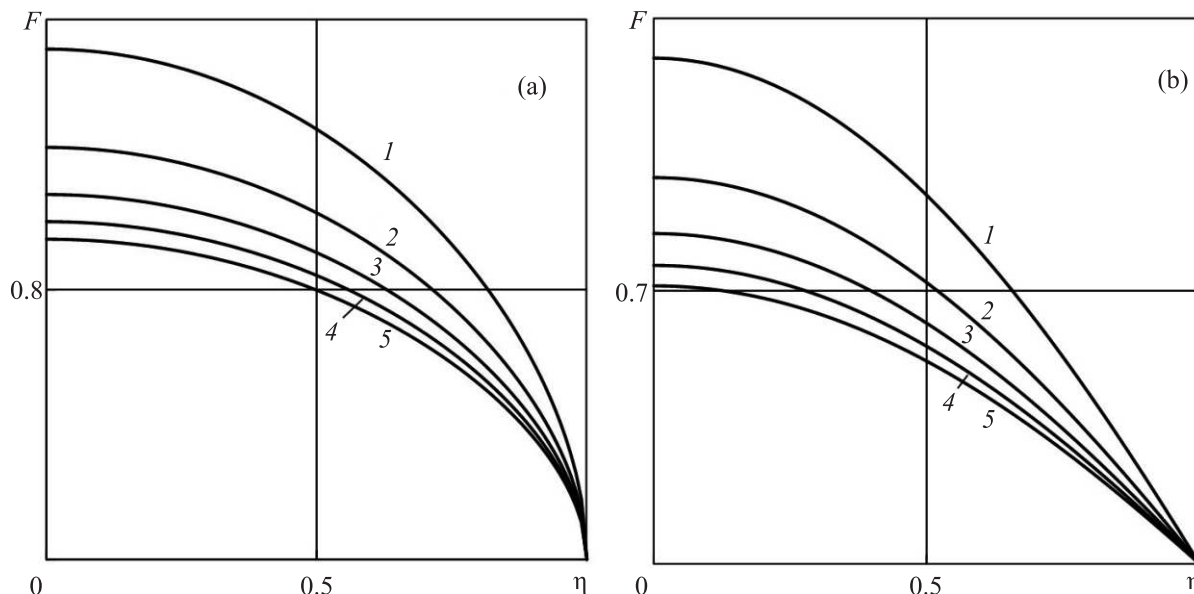
Рассмотрим несколько примеров решения уравнения (7). Значение константы C в законе расширения пятна смачивания вычислялось совместно с решением уравнения (7) методом итераций, продолжавшихся до тех пор, пока с заданной точностью не удовлетворялся закон постоянства расхода (6). Ниже приведены примеры расчетов для некоторых значений параметров, определяющих свойства СГП и неньютоновской жидкости.

Поверхность, у которой коэффициенты скольжения зависят от одной координаты. Это соответствует случаю $\delta = 0$ и $\gamma = -n/(5n+2)$ в выражениях для коэффициентов скольжения. Для данных значений параметров уравнение (7) имеет аналитическое решение, выраженное неявной функцией:

$$\begin{aligned} & \left(\frac{n}{2n+1} \right) F + B_2 \ln \left| F + \left(\frac{2n+1}{n} \right) B_1 \right| - \\ & - B_1 \ln \left| F + \left(\frac{2n+1}{n} \right) B_1 \right| = \\ & = \frac{nC^2 \operatorname{tg} \varphi}{(10n+4)} (1 - \eta^2) + B_2 \ln \left| \left(\frac{2n+1}{n} \right) B_1 \right| - \\ & - B_1 \ln \left| \left(\frac{2n+1}{n} \right) B_1 \right|. \end{aligned}$$

На рисунке 2а представлены расчеты автомодельной функции $F(\eta)$ для СГП, у которой $B_1 = 0.4$, $B_2 = 0$, при различных значениях n и фиксированном φ .

Для СГП, имеющих полосчатую микроструктуру, имеет место приближительное равенство $B_2 = 2B_1$ [2]


 Рис. 2. Автомоделная функция $F(\eta)$: $B_2 = 0$ (a), $B_2 = 2B_1$ (b), $B_1 = 0.4$, $\varphi = \pi/6$, $n = \{0.4, 0.8, 1.2, 1.6, 2.0\}$ (1–5)

(направление полос, образующих СГП, перпендикулярно оси симметрии ручейка). На рисунке 2b представлены расчеты для такого случая.

Вычисленные значения C в законе расширения пятна смачивания и толщина $F(0)$ на оси симметрии, соответствующие расчетам на рис. 2b, приведены в табл. 1.

Таблица 1. Параметр C в законе расширения пятна смачивания и толщина ручейка на оси симметрии

n	0.4	0.8	1.2	1.6	2.0
C	4.183	3.715	3.473	3.325	3.225
$F(0)$	1.297	0.990	0.847	0.765	0.713

На рисунке 3 представлена автомоделная форма пятна смачивания $y_e(x) = C(n)x^{(2n+1)/(5n+2)}$, вычисленная для тех же значений $B_{1,2}$, n и φ .

На основе результатов расчетов (рис. 3 и табл. 1), можно заключить, что при увеличении значения n , определяющего свойства жидкости, область смачивания сужается, что объясняется снижением текучести.

На рисунке 4 представлены результаты расчетов автомоделной функции для двух значений показателя степени n и φ .

Вычисленные значения C в законе расширения пятна смачивания, соответствующие расчетам на рис. 4, приведены в табл. 2:

Из представленных на рис. 4 и табл. 2 результатов следует, что угол наклона СГП, наряду с другими параметрами, является существенным определяющим параметром задачи.

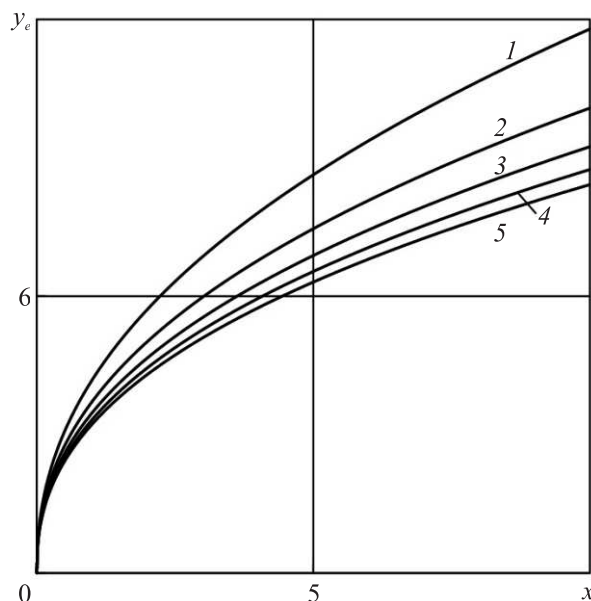

 Рис. 3. Форма пятна смачивания на СГП: $B_1 = 0.4$, $B_2 = 2B_1$, $\varphi = \pi/6$, $n = \{0.4, 0.8, 1.2, 1.6, 2.0\}$ (1–5)

Таблица 2. Параметр C в законе расширения пятна смачивания

n	$\varphi = \pi/6$	$\varphi = \pi/4$	$\varphi = \pi/3$
0.5	4.049	2.940	2.202
1.5	3.456	2.645	2.055

Процедура построения более общих автомоделных решений для $m \neq 1$, требует численного решения уравнения для формы поверхности ручейка.

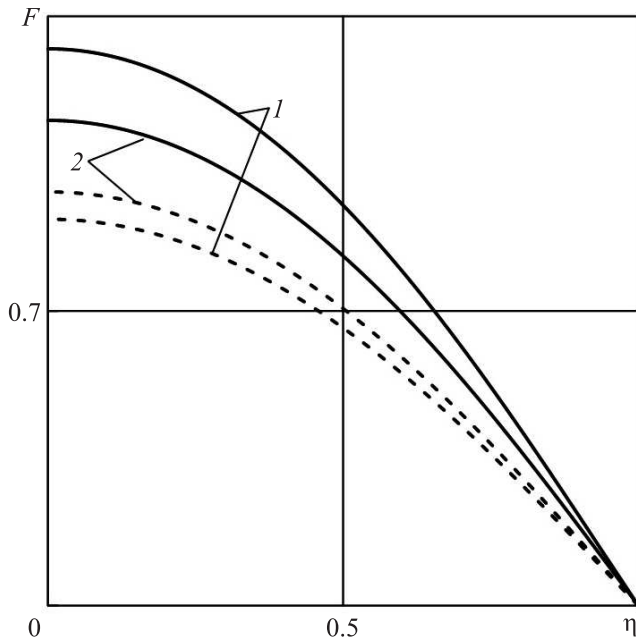


Рис. 4. Автомоделная функция $F(\eta)$: $B_1 = 0.2$, $B_2 = 2B_1$, $\varphi = \pi/6$ (1), $\pi/3$ (2), $n = 0.5$ – сплошная линия, 1.5 – пунктир

Закключение. В приближении медленного течения пленки найден класс автомоделных решений задачи о ручейковом стекании неньютоновской жидкости степенной реологии по наклонной неоднородной супергидрофобной плоской поверхности. Приведены примеры построения аналитических и численных решений для ряда конкретных примеров коэффициентов скольжения супергидрофобных поверхностей и показателя степени в реологическом соотношении.

Построенные решения для формы пятна смачивания и поперечного сечения ручейка могут быть использованы для экспериментального определения связи между реологическими параметрами среды и параметрами скольжения супергидрофобных поверхностей.

1. J. Jeevahan, M. Chandrasekaran, G. Britto Joseph, R.B. Durairaj, and G. Mageshwaran, J. Coating Technol. Res. **15**, 231 (2018).
2. А.И. Агеев, А.Н. Осипцов, Коллоидный журнал **84**(4), 380 (2022).
3. А.И. Агеев, А.Н. Осипцов, Изв. РАН, Механика жидкости и газа **6**, 35 (2015).
4. S. Patlazhan and S. Vagner, Phys. Rev. E **96**, 013104 (2017).
5. G.G. Pereira, J. Non-Newton. Fluid Mech. **157**, 197 (2009).
6. L.L. Ferras, J.M. Nobrega, and F.T. Pinho, J. Non-Newton. Fluid Mech. **175**, 76 (2012).
7. S. Chakraborty, T.W.-H. Sheu, and S. Ghosh, Phys. Fluids **31**, 013102 (2019).
8. V.M. Starov, A.N. Tyatyushkin, M.G. Velarde, and S.A. Zhdanov, J. Colloid Interface Sci. **257**, 284 (2003).
9. V.D. Federico, S. Malavasi, and S. Cintoli, Meccanica **41**, 207 (2006).
10. S.K. Wilson, B.R. Duffy, and R. Hunt, Q. J. Mech. Appl. Math. **55**(3), 385 (2002).
11. F.H.H. Al Mukahal, S.K. Wilson, and B.R. Duffy, J. Non-Newton. Fluid Mech. **224**, 30 (2015).
12. Е. А. Веденеева, Изв. РАН, Механика жидкости и газа **1**, 19 (2021).

Общетермодинамический подход для описания кинетики тепловых эффектов в высокоэнтропийных аморфных сплавах

А. С. Макаров¹⁾

Воронежский государственный педагогический университет, 394043 Воронеж, Россия

Поступила в редакцию 5 июня 2023 г.

После переработки 23 июня 2023 г.

Принята к публикации 3 июля 2023 г.

В рамках общетермодинамического подхода предложен метод расчета тепловых эффектов, возникающих при термической обработке высокоэнтропийных аморфных сплавов. Экспериментальная верификация предложенного метода показала, что экзотермический эффект, наблюдаемый ниже калориметрической температуры стеклования, эндотермический эффект в области стеклования и экзотермический эффект, возникающий в процессе кристаллизации аморфного сплава, могут быть количественно описаны при учете диаэластического эффекта с использованием общего термодинамического уравнения изменения энтропии сплава.

DOI: 10.31857/S1234567823150065, EDN: hxgbuj

1. Введение. В начале 2000-х гг. были синтезированы принципиально новые материалы – сплавы с высокой конфигурационной энтропией в кристаллическом состоянии. Данные сплавы состоят как минимум из пяти или более основных металлических элементов в эквиатомном (одинаковые атомные доли) или почти эквиатомном соотношении, когда атомные доли каждого элемента лежат в интервале от 5 до 35 ат. % [1, 2]. Содержание пяти или более элементов в относительно большой концентрации обуславливает высокую конфигурационную энтропию, поэтому данный класс материалов получил название высокоэнтропийные сплавы (ВЭС). Дальнейшие исследования показали, что ВЭС обладают уникальными физико-химическими свойствами, а именно: исключительная износостойкость и жаропрочность, высокая устойчивость к коррозии и окислению, прекрасные механические характеристики и др. [3, 4].

Около десятилетия тому назад были синтезированы образцы ВЭС в некристаллическом состоянии, которые получили название высокоэнтропийные аморфные сплавы (ВЭАС) или высокоэнтропийные металлические стекла (ВЭМС, от англ. HEMGs – *high entropy metallic glasses*) [5]. ВЭС в некристаллическом состоянии являются уникальными материалами в силу ряда факторов: а) ВЭАС сочетают в себе отдельные уникальные характеристики кристаллических высокоэнтропийных сплавов и обычных аморфных сплавов (содержат один или два основных элемента) [6]; б) некоторые составы ВЭАС об-

ладают очень высокой стеклообразующей способностью, которая обычно выражается значением критического диаметра $D_{\max}$ (максимальный диаметр цилиндра в полностью некристаллическом состоянии). В настоящее время получены неэквиатомные ВЭАС с критическими диаметрами до 50 мм включительно [7, 8]. Уникальные функциональные свойства ВЭАС вызывают к ним интерес в плане создания изделий и устройств высокотехнологичной продукции [4]. Реализация практического приложения ВЭАС осложнена тем фактом, что структура и физические свойства ВЭАС существенно зависят от тепловой предыстории. Причина этой зависимости состоит в их некристаллическости, приводящей к непрерывному изменению энергии Гиббса в сторону значения, отвечающего состоянию метастабильного равновесия в данных условиях. Это явление принято называть структурной релаксацией (СР). СР происходит посредством атомных перестроек в локальных областях аморфной матрицы, которые часто называются “дефектами” (в дальнейшем кавычки в слове “дефект” опущены), безотносительно к обычному пониманию этого термина как нарушения структурного порядка идеального кристаллического состояния. Под дефектами в аморфных сплавах обычно понимают наномасштабные области аморфной матрицы, в которых реализуются термо-, радиационно- или механически активируемые перегруппировки. В целом, несмотря на прошедшее десятилетие интенсивных исследований ВЭАС, общепризнанные представления о дефектах в ВЭАС и обусловленных ими релаксационных явлениях при термообработке и других воздействиях

¹⁾e-mail: a.s.makarov.vrn@gmail.com

в настоящее время отсутствуют. Поскольку релаксация структуры и свойств ВЭАС при термообработке является крайне существенным явлением, адекватное понимание физических механизмов ее реализации является несомненно важным и как в чисто научном, так и в прикладном аспектах.

Энтальпия является одним из самых распространенных индикаторов СР аморфных сплавов. Стеклообразующая способность ВЭАС также в значительной степени определяется энтальпией смещения, а не связана только с величиной энтропии смещения [9]. Релаксация энтальпии ВЭАС в основном определяется путем измерения теплового потока образцов методом дифференциальной сканирующей калориметрии (ДСК). В настоящей работе предлагается общетермодинамический подход, с помощью которого можно осуществить количественную оценку экзотермического эффекта, наблюдаемого ниже калориметрической температуры стеклования, эндотермического эффекта в области стеклования и экзотермического эффекта, возникающего в процессе кристаллизации ВЭАС.

2. Теоретические основы. Высокая конфигурационная энтропия аморфного сплава определяет величину избыточной энтропии (т.е. энтропии, определяемой собственно некристаллическим состоянием). Избыточная энтропия должна с необходимостью проявляться в кинетике релаксационных явлений в ВЭАС. Поэтому можно предположить, что величина теплового эффекта, возникающего при релаксации и кристаллизации ВЭАС, может быть рассчитана с использованием общего термодинамического уравнения изменения макроскопической избыточной энтропии сплава. Представим ВЭАС как термодинамическую систему, состоящую из двух подсистем – аморфной матрицы и дефектной подсистемы [10]. Термическая обработка ВЭАС приводит к изменениям дефектной подсистемы, что проявляется в виде изменения макроскопической избыточной энтропии сплава на величину ΔS_d . Данное изменение энтропии может быть рассчитано с использованием общетермодинамического соотношения [11]

$$\Delta S_d = -\frac{R_{\min}}{T}, \quad (1)$$

где $R_{\min}$ – минимальная работа, которая должна быть совершена для перестройки дефектной подсистемы в ходе реализации состояния метастабильного равновесия с аморфной матрицей при данных условиях, T – термодинамическая температура. Работу, произведенную для перехода дефектной подсистемы в другое состояние, можно написать в ви-

де дифференциала свободной энергии $\delta R_{\min} = dF_d$ [11]. Немилым была введена связь свободной энергии активации F_d атомных перестроек с мгновенным (нерелаксированным) модулем сдвига G при помощи соотношения $F_d = GV$, где V – характеристический объем перестройки [12]. Экспериментальная верификация этого соотношения на оксидных, халькогенидных, органических и металлических переохлажденных жидкостях подтвердила его справедливость [13–15]. Следует отметить, что в дальнейшем ряд других исследователей предложили физические модели для интерпретации релаксационных явлений некристаллических веществ, в которых мгновенный модуль сдвига также играет ключевую роль (обзоры [16–18]).

Предположим, что имеется некоторая концентрация дефектов в ВЭАС. В ходе термического воздействия возникает изменение концентрации дефектов на величину dc . Тогда работу по реализации изменения дефектной подсистемы ВЭАС можно записать в виде соотношения

$$\delta R_{\min} = GVdc, \quad (2)$$

где G – мгновенный (нерелаксированный) модуль сдвига, V – объем перестройки. Дилатометрический эффект (уменьшение модуля сдвига G в связи с ростом концентрации дефектов) для деформации сдвига ВЭАС выразим в виде

$$\frac{dG_{\text{rel}}}{G} = Bdc, \quad (3)$$

где G_{rel} – релаксационный вклад зависимости модуля сдвига $G(T)$, B – безразмерная сдвиговая восприимчивость, которая характеризует связь модуля сдвига аморфного материала с концентрацией дефектов c . С помощью соотношений (2) и (3) можно получить уравнение для работы в виде

$$\delta R_{\min} = \frac{V}{B} dG_{\text{rel}}. \quad (4)$$

Метод ДСК позволяет количественно исследовать эндотермические и экзотермические процессы, возникающие в образце аморфного сплава в процессе нагрева/охлаждения по контролируемой программе в контролируемой атмосфере. Сигнал ДСК представляют собой зависимость теплового потока $W(T)$ от температуры образца, который пропорционален производной теплоты по температуре $\delta Q/dT$. С помощью соотношений (1) и (4) можно определить удельный (на единицу массы m) тепловой поток $W(T)$ ВЭАС в виде

$$W(T) = \frac{\dot{T}}{m} \frac{\delta Q(T)}{dT} = -\frac{\dot{T} N_A V}{m_\mu B} \frac{dG_{\text{rel}}(T)}{dT}, \quad (5)$$

где N_A – число Авогадро, m_μ – молярная масса, $\dot{T}$ – скорость нагрева, а остальные величины определены выше.

Уравнение (5) позволяет спрогнозировать тепловой поток $W(T)$ при условии, что известна температурная зависимость релаксационного вклада $G_{\text{rel}}(T)$ ВЭАС, а также имеются величины объема перестройки V и сдвиговой восприимчивости B . Следует подчеркнуть, что результаты расчетов при помощи формулы (5) можно непосредственно сравнить с тепловым потоком, измеренным методом ДСК.

В металлах и сплавах модуль сдвига $G(T)$ включает гармоническую (независимую от температуры), ангармоническую (линейно зависимую от температуры), электронную (квадратично зависимую от температуры) и релаксационную компоненты [19, 20]:

$$G(T) = G_0[1 - \alpha_{\text{anh}}T - \alpha_{\text{el}}T^2 + \alpha_{\text{rel}}(T)], \quad (6)$$

где G_0 – постоянная гармоническая составляющая (значение модуля сдвига при 0 К), $-G_0\alpha_{\text{anh}}T$ – ангармонический вклад, $-G_0\alpha_{\text{el}}T^2$ – вклад свободных электронов, $G_{\text{rel}}(T) = G_0\alpha_{\text{rel}}(T)$ – релаксационный вклад. Обозначим нерелаксационную часть зависимости модуля сдвига $G(T)$ из уравнения (6) в виде

$$G_{\text{norel}}(T) = G_0[1 - \alpha_{\text{anh}}T - \alpha_{\text{el}}T^2]. \quad (7)$$

Тогда с помощью соотношений (6) и (7) можно определить релаксационный вклад $G_{\text{rel}}(T)$ в виде разности зависимостей модуль сдвига сплава $G(T)$ и нерелаксационного вклада $G_{\text{norel}}(T)$:

$$G_{\text{rel}}(T) = G(T) - G_{\text{norel}}(T). \quad (8)$$

3. Методика эксперимента. Для выделения релаксационной компоненты модуля сдвига $G_{\text{rel}}(T)$ при помощи формулы (8) необходимы качественные экспериментальные данные температурной зависимости мгновенного (нерелаксированного) модуля сдвига $G(T)$ в широком диапазоне температур. Прецизионное измерение модуля сдвига вблизи и выше температуры начала кристаллизации T_x ВЭАС является сложной экспериментальной задачей. Этот факт обусловлен тем, что при высоких температурах из-за значительного увеличения внутреннего трения Q^{-1} происходит быстрое расширение резонансной кривой с одновременным резким уменьшением ее высоты, что в конечном итоге приводит к возрастанию погрешности определения резонансной частоты или даже делает измерение невозможным. В виду этого, измерения модуля сдвига с помощью бесконтактного метода электромагнитно-акустического преобразования (ЭМАП) [21] были

выполнены на образцах эквиатомного ВЭАС $\text{Ti}_{16.7}\text{Zr}_{16.7}\text{Hf}_{16.7}\text{Cu}_{16.7}\text{Ni}_{16.7}\text{Be}_{16.7}$ и неэквиатомного ВЭАС $\text{Zr}_{35}\text{Hf}_{17.5}\text{Ti}_{5.5}\text{Al}_{12.5}\text{Co}_{7.5}\text{Ni}_{12}\text{Cu}_{10}$ (ат. %, далее именуемые TiZrHfCuNiBe и ZrHfTiAlCoNiCu). Данные сплавы сочетают сравнительно низкое внутреннее трение Q^{-1} и высокую сдвиговую вязкость выше температуры стеклования T_g вместе с высокой стеклообразующей способностью (критический диаметр D_{max} для TiZrHfCuNiBe и ZrHfTiAlCoNiCu составляет 15 и 18 мм, соответственно [22–24]).

Образцы ВЭАС TiZrHfCuNiBe и ZrHfTiAlCoNiCu были получены методом всасывания расплава. Аморфность исходных и релаксированных образцов контролировалась методом рентгенографии с использованием $\text{CuK}\alpha$ -излучения. Измерения теплового потока $W(T)$ были выполнены методом дифференциальной сканирующей калориметрии, используя промышленный калориметр Hitachi DSC 7020 на образцах ВЭАС массой 50–60 мг. Все измерения реализовывались при контролируемой скорости нагрева и охлаждения 3 К/мин в проточной атмосфере азота особой чистоты (99.999 %) для минимизации поверхностного окисления. Данная реализация эксперимента позволяет выполнить измерения теплового потока $W(T)$ с погрешностью, не превышающей 5 %. Температурные зависимости мгновенного (нерелаксированного) модуля сдвига $G(T)$ были получены методом ЭМАП посредством автоматизированного определения резонансной частоты сдвиговых колебаний образцов размером $5 \times 5 \times 2 \text{ мм}^3$ в вакууме с остаточным давлением 10^{-2} Па при скорости нагрева 3 К/мин. Абсолютное значение модуля сдвига определялось при помощи соотношения $G(T) = G(310 \text{ К})f^2(T)/f^2(310 \text{ К})$, где $G(310 \text{ К})$ – модуль сдвига при 310 К [25, 26], $f(T)$ и $f(310 \text{ К})$ – текущая резонансная частота и частота при температуре 310 К соответственно. Погрешность определения изменения модуля сдвига составляла 10 ppm при 310 К. С ростом температуры погрешность возрастала вследствие увеличения внутреннего трения, достигая 200 ppm при 800 К.

4. Результаты и обсуждение. На рисунке 1а приведены экспериментальные данные температурной зависимости мгновенного модуля сдвига $G(T)$ ВЭАС TiZrHfCuNiBe в исходном (initial) и релаксированном (relaxed) состояниях. Релаксированное состояние реализовывалось путем нагрева свежезакаленного образца ВЭАС до 687 К (область переохлажденной жидкости) с последующим контролируемым охлаждением со скоростью 3 К/мин до комнатной температуры. Из рисунка 1а видно, что в интервале от комнатной температуры до $T \approx 460 \text{ К}$ в ис-

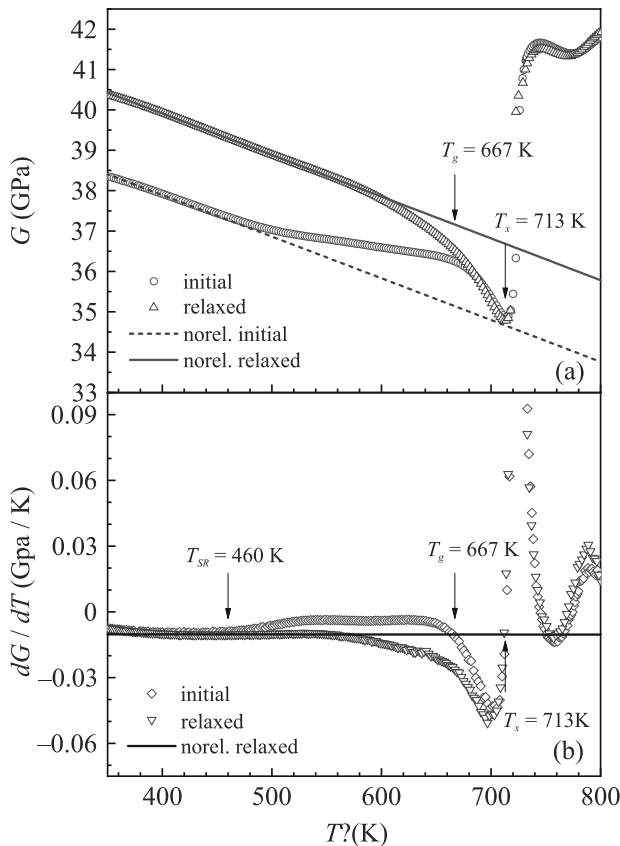


Рис. 1. (Цветной онлайн) Экспериментальные данные температурной зависимости модуля сдвига $G(T)$ (a) и первой производной по температуре $dG(T)/dT$ (b) для ВЭАС TiZrHfCuNiBe в исходном (initial) и релаксированном (relaxed) состояниях. Сплошными и штриховой кривыми показан нерелаксационный вклад модуля сдвига $G_{\text{norel}}(T)$ (a) и первая производная нерелаксационного вклада $dG_{\text{norel}}(T)/dT$ (b) в исходном (norel. initial) и релаксированном (norel. relaxed) состояниях. Характеристическая температура начала структурной релаксации T_{sr} , calorиметрические температуры стеклования T_g и начала кристаллизации T_x показаны стрелками

ходном состоянии (initial) на температурной зависимости $G(T)$ наблюдается только монотонное уменьшение вследствие ангармонического и электронного вклада. По мере дальнейшего нагрева исходного состояния до calorиметрической температуры стеклования T_g наблюдается монотонное увеличение $G(T)$ относительно ангармонического и электронного вклада. Далее, при нагреве выше T_g вплоть до 710 K $G(T)$ интенсивно убывает вследствие перехода ВЭАС в состояние переохлажденной жидкости (интервал между температурой стеклования T_g и началом кристаллизации T_x). После охлаждения образца до комнатной температуры, модуль сдвига увеличился примерно на 5 % в сравнении с исходным

значением. При нагреве релаксированного образца (relaxed) до $T \approx 540$ K на температурной зависимости $G(T)$ наблюдается только монотонное уменьшение вследствие ангармонического и электронного вклада. Далее, по мере приближения к T_g на температурной зависимости $G(T)$ возникает значительное снижение. Кристаллизация, начинающаяся при температуре 713 K на исходных и релаксированных образцах, приводит к быстрому росту модуля сдвига на ≈ 22 %. Быстрый рост внутреннего трения не позволяет реализовать измерения температурной зависимости $G(T)$ значительно выше 800 K.

С целью выделения нерелаксационного вклада был выполнен анализ температурных зависимостей модуля сдвига $G(T)$, представленных на рис. 1a. Рассмотрим особенности изменения $G(T)$ с ростом температуры. Для этого вычислим первую производную по температуре $dG(T)/dT$. Дифференцирование уравнения (6) приводит к выражению

$$dG(T)/dT = G_0[-\alpha_{\text{anh}} - 2\alpha_{\text{el}}T + d\alpha_{\text{rel}}(T)/dT]. \quad (9)$$

Уравнение (9) показывает, что если СР отсутствует и, следовательно, $d\alpha_{\text{rel}}(T)/dT = 0$, то температурная зависимость $dG(T)/dT$ должна представлять собой прямую линию. Температурная зависимость первой производной экспериментальных данных $G(T)$ (рис. 1a) представлена на рис. 1b. Из рисунка 1b следует, что в исходном состоянии (initial) ВЭАС TiZrHfCuNiBe величина $dG(T)/dT$ снижается линейно вплоть до 460 K. Этот факт говорит о том, что ниже 460 K структурная релаксация отсутствует, а данная температура является характеристической температурой начала структурной релаксации T_{sr} (обозначена стрелкой на рис. 1b). При дальнейшем нагреве функция $dG(T)/dT$ становится явно нелинейной, что свидетельствует о появлении релаксационного вклада. Видно, что в интервале температур $T_{sr} < T < 640$ K величина $dG(T)/dT$ возрастает (сдвиговое упрочнение), а затем по мере приближения к calorиметрической температуре стеклования T_g (обозначена стрелкой на рис. 1b) величина $dG(T)/dT$ начинает снижаться (сдвиговое разупрочнение). Вблизи и выше T_g происходит быстрое изменение величины $dG(T)/dT$. Этот факт свидетельствует о переходе материала в состояние переохлажденной жидкости. В релаксированном состоянии (relaxed) характер зависимости $dG(T)/dT$ отличается от исходного. При температурах $T < 540$ K величина $dG(T)/dT$ является линейной функцией. Этот факт свидетельствует о том, что в этом интервале температур зависимость $G(T)$ релаксированного ВЭАС можно аппроксимировать полино-

мом второй степени (уравнение (7)). При дальнейшем нагреве функция $dG(T)/dT$ релаксированного ВЭАС демонстрирует быстрое снижение. Кристаллизация ВЭАС приводит к резкому возрастанию величины $dG(T)/dT$, которая становится равной величине $dG_{\text{norel}}(T)/dT$ при 713 К. Интенсивный рост величины $dG(T)/dT$ свидетельствует именно о сильном изменении релаксационного вклада $G_{\text{rel}}(T) = G_0\alpha_{\text{rel}}(T)$. В работе [27] на основе анализа экспериментальных данных температурных зависимостей модуля сдвига 24 металлических сплавов на основе Zr, Pd, La и Cu в кристаллическом и релаксированном аморфном состояниях показано, что температурные коэффициенты модуля сдвига сплава в кристаллическом и аморфном состоянии равны при температурах, которые не приводят к какой-либо структурной релаксации аморфной матрицы. Другими словами, этот факт является следствием равенства ангармонического и электронного вкладов для сплава в аморфном и кристаллическом состоянии.

Аппроксимация данных $G(T)$ релаксированного ВЭАС при температурах $T < 540$ К полиномом второй степени с помощью уравнения (7) позволила выделить нерелаксационный вклад $G_{\text{norel}}(T)$, который характеризует изменение модуля сдвига, не связанное со СР. Нерелаксационная компонента $G_{\text{norel}}(T)$ представлена сплошной и пунктирной линиями на рис. 1а. Производная по температуре нерелаксационной компоненты $dG_{\text{norel}}(T)/dT$ представлена сплошной линией на рис. 1б. Из рисунка 1б следует, что $dG_{\text{norel}}(T)/dT$ при температурах $T < 540$ К полностью совпадает с величиной $dG(T)/dT$ релаксированного состояния. Этот факт говорит о согласованности вышеозначенной процедуры выделения нерелаксационного вклада. Также следует отметить, что производная модуля сдвига по температуре $dG(T)/dT$ для исходного состояния пересекается с производной по температуре нерелаксационной компоненты $dG_{\text{norel}}(T)/dT$ при температуре равной calorиметрической температуре стеклования T_g (показана стрелкой на рис. 1б). А производные модуля сдвига по температуре $dG(T)/dT$ для исходного и релаксированного состояния пересекаются с производной по температуре нерелаксационной компоненты $dG_{\text{norel}}(T)/dT$ при температуре, равной calorиметрической температуре начала кристаллизации T_x (показана стрелкой на рис. 1б). Этот факт может быть использован для реализации новой процедуры определения температуры стеклования T_g и начала кристаллизации T_x аморфных сплавов по данным релаксации сдвиговой упругости.

Согласно уравнению (8) для определения релаксационного вклада модуля сдвига ВЭАС $G_{\text{rel}}(T)$ необходимо из общей зависимости модуля сдвига $G(T)$ вычесть нерелаксационный вклад $G_{\text{norel}}(T)$ (представлен на рис. 1а). Температурная зависимость релаксационного вклада модуля сдвига $G_{\text{rel}}(T)$ ВЭАС TiZrHfCuNiBe в исходном (initial) и релаксированном (relaxed) состояниях показана на рис. 2а.

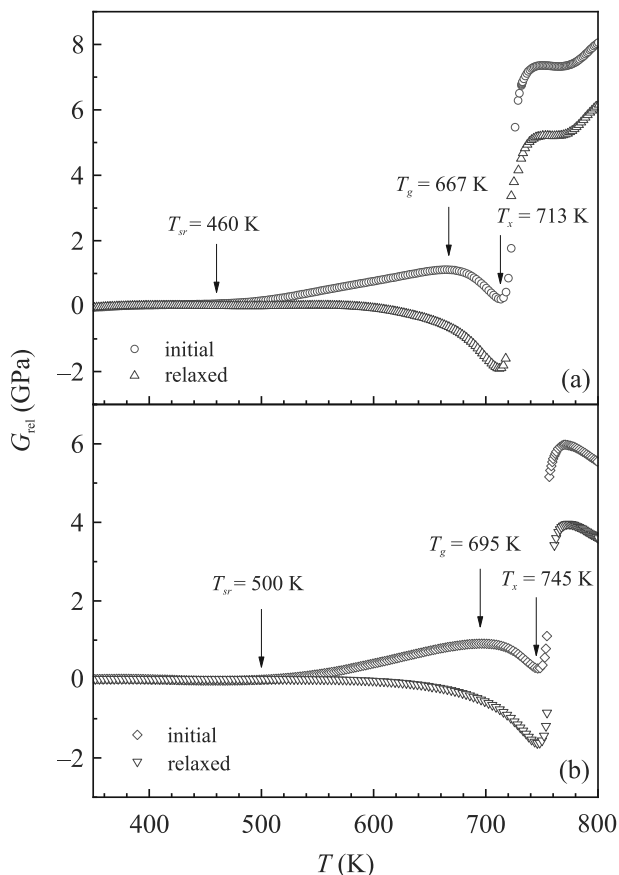


Рис. 2. (Цветной онлайн) Температурные зависимости релаксационного вклада $G_{\text{rel}}(T)$ ВЭАС TiZrHfCuNiBe (а) и ZrHfTiAlCoNiCu (б) в исходном (initial) и релаксированном (relaxed) состояниях. Характеристическая температура начала структурной релаксации T_{sr} , calorиметрические температуры стеклования T_g и начала кристаллизации T_x показаны стрелками

Видно, что для исходных и релаксированных образцов при $T < 460$ К диаэластический эффект отсутствует, а дальнейший нагрев исходного образца до calorиметрической температуры стеклования T_g демонстрирует сдвиговое упрочнение (рост релаксационного вклада $G_{\text{rel}}(T)$). Нагрев выше T_g в состояние переохлажденной жидкости вызывает генерацию дефектов, фиксируемую в виде диаэластического эффекта. Нагрев релаксированного образца в интервале температур $540 \text{ K} < T < T_g$ характеризуется уве-

личением концентрации дефектов, что проявляется также в виде диаэластического эффекта. Кристаллизация ВЭАС ($T > 713$ K) характеризуется резким уменьшением концентрации дефектов и, как следствие, наблюдается значительный рост релаксационного вклада $G_{\text{rel}}(T)$. Следует отметить, что в рамках данной концепции полная кристаллизация аморфного сплава без каких-либо последующих фазовых превращений приводит к снижению концентрации дефектов до нуля.

Представленные на рис. 2а зависимости релаксационного вклада $G_{\text{rel}}(T)$ ВЭАС TiZrHfCuNiBe позволяют рассчитать удельный тепловой поток $W(T)$ при помощи уравнения (5). Характеристический объем элементарных атомных перестроек V в уравнении (5) можно представить в виде $V = n\Omega$, где n – численный коэффициент, а Ω – объем, приходящийся на один атом, который можно найти как отношение молярного объема V_μ к числу Авогадро N_A ($\Omega = V_\mu/N_A$). На рисунке 3 показаны экспериментальные термограммы ДСК (exp.) и рассчитанные (calc.) температурные зависимости удельного теплового потока $W(T)$ при помощи уравнения (5) ВЭАС TiZrHfCuNiBe в исходном (а) и релаксированном (b) состояниях. При расчете $W(T)$ с помощью уравнения (5) было использовано значение $B/n = 19$. Перестройки дефектной подсистемы ВЭАС сопровождаются поглощением или выделением тепла. В первом случае говорят об эндотермической, а во втором – об экзотермической реакции. Тепловой эффект процесса зависит от условий, в которых он реализуется. В нашем случае фиксируются тепловые эффекты, возникающие при термической обработке ВЭАС с постоянной скоростью нагрева при постоянном давлении. Экспериментальная термограмма ДСК исходного ВЭАС TiZrHfCuNiBe (рис. 3а) демонстрирует отсутствие тепловых реакций до характеристической температуры начала структурной релаксации T_{sr} , далее фиксируется протяженный экзотермический эффект в температурном интервале $T_{sr} < T < T_g$, который сменяется далее эндотермическим эффектом в области стеклования ($T_g < T < T_x$). В релаксированном состоянии ВЭАС (рис. 3b) экзотермический эффект ниже T_g отсутствует, а фиксируется только эндотермический эффект при $T > 540$ K. Эндотермический эффект релаксированного состояния в области стеклования близок к таковому для исходного состояния ВЭАС. Нагрев выше T_x исходного и релаксированного состояния ВЭАС демонстрирует значительный экзотермический эффект, который обусловлен протекающим процессом кристаллизации.

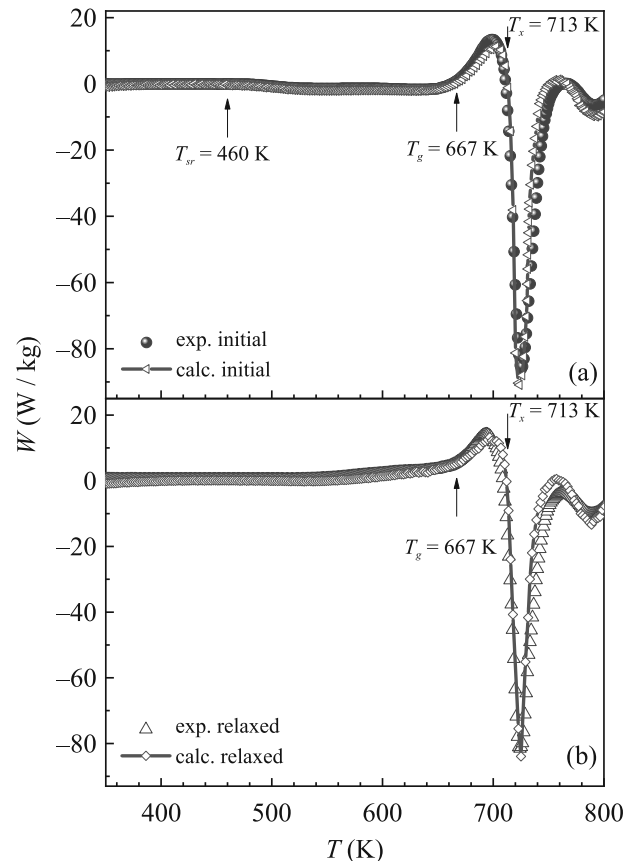


Рис. 3. (Цветной онлайн) Экспериментальные (exp.) и рассчитанные (calc.) по формуле (5) температурные зависимости удельного теплового потока $W(T)$ экиатомного ВЭАС TiZrHfCuNiBe в исходном (a) и релаксированном (b) состояниях. Характеристическая температура начала структурной релаксации T_{sr} , calorиметрические температуры стеклования T_g и начала кристаллизации T_x показаны стрелками

Из рисунка 3 следует, что расчет по формуле (5) температурных зависимостей удельного теплового потока $W(T)$ ВЭАС TiZrHfCuNiBe в исходном (calc. initial) и релаксированном (calc. relaxed) состояниях обеспечивает очень хорошее согласие с результатами эксперимента. Видно, что ниже T_{sr} тепловой эффект отсутствует, далее отлично фиксируется экзотермический эффект в ходе СР исходного ВЭАС, наблюдаемый в температурном интервале $T_{sr} < T < T_g$. Релаксированное состояние характеризуется отсутствием тепловых эффектов при $T < 540$ K. Также на расчетных данных имеются эндотермический эффект в области стеклования ($T_g < T < T_x$) и экзотермический эффект, возникающий в процессе кристаллизации ВЭАС в исходном (свежезакаленном) и релаксированном (состаренном) состоянии.

Аналогичные исследования были проведены на неэкиатомном ВЭАС ZrHfTiAlCoNiCu. Параметры

термообработки образцов ВЭАС ZrHfTiAlCoNiCu : первый нагрев исходного образца осуществлялся до 730 K (окончание интервала переохлажденной жидкости $T_g < T < T_x$), после чего следовало регулируемое охлаждение со скоростью 3 K/мин до комнатной температуры. В результате такой термообработки было получено релаксированное состояние аморфного сплава. Температурные зависимости релаксационного вклада $G_{\text{rel}}(T)$ ВЭАС ZrHfTiAlCoNiCu в исходном (initial) и релаксированном (relaxed) состояниях приведены на рис. 2b. Зависимости $G_{\text{rel}}(T)$ были использованы для расчетов удельного теплового потока $W(T)$ при помощи уравнения (5). На рисунке 4 показаны экспериментальные (exp.) и рассчитанные (calc.) температурные зависимости удельного теплового потока $W(T)$ при помощи уравнения (5) ВЭАС ZrHfTiAlCoNiCu в исходном (a) и релаксированном (b) состояниях. Рисунок 4 демонстрирует, что расчет по формуле (5) температурных зависимостей удельного теплового потока $W(T)$ неэквивалентного ВЭАС ZrHfTiAlCoNiCu в исходном (calc. initial) и релаксированном (calc. relaxed) состояниях также обеспечивает очень хорошее согласие с результатами экспериментального определения $W(T)$ методом ДСК.

Физическая причина хорошего согласия между рассчитанными и экспериментальными зависимостями $W(T)$ может заключаться в следующем. Согласно Межузельной теории [28, 29] вблизи температуры плавления кристалла начинается лавинообразное возрастание концентрации межузельных дефектов в гантельной (расщепленной) конфигурации [28–31]. При этом процесс кластеризации межузельных гантелей является энергетически выгодным [32]. Кластеры межузельных гантелей сохраняют свою идентичность в расплаве в виде групп атомов, осуществляющих струноподобное движение [33]. Аморфный сплав, полученный закалкой расплава, также наследует кластеры межузельных дефектов. Поэтому в структуре ВЭАС имеются две подсистемы – подсистема аморфной матрицы и подсистема дефектов [10]. Главная специфика подсистемы дефектов аморфной структуры состоит в ее высокой чувствительности к действию внешнего сдвигового напряжения, что вызывает снижение нерелаксированного модуля сдвига. Релаксационные изменения дефектной подсистемы приводят к изменению макроскопической избыточной энтропии. В свою очередь, изменение энтропии может быть рассчитано как отношение минимальной работы, которую необходимо совершить для преобразования дефектной подсисте-

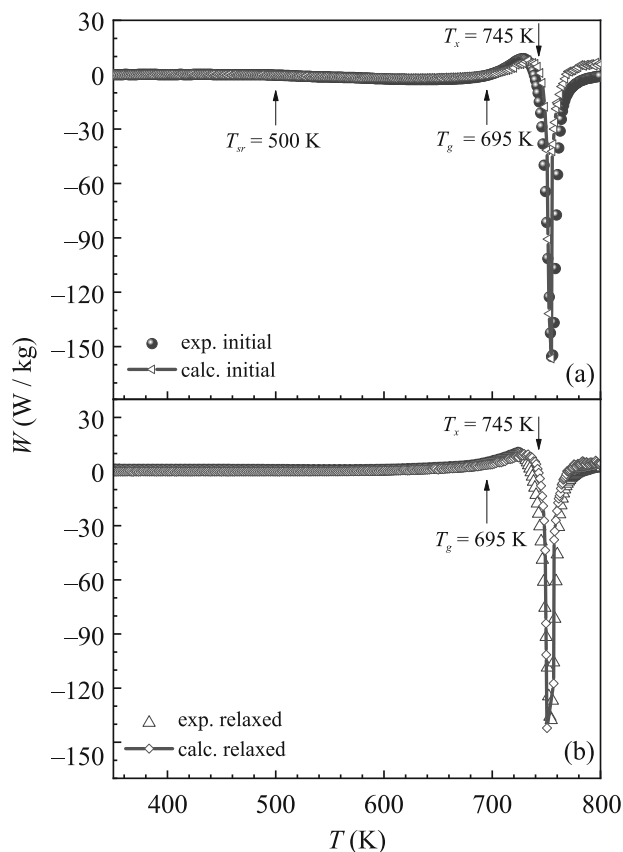


Рис. 4. (Цветной онлайн) Экспериментальные (exp.) и рассчитанные (calc.) по формуле (5) температурные зависимости удельного теплового потока $W(T)$ неэквивалентного ВЭАС ZrHfTiAlCoNiCu в исходном (a) и релаксированном (b) состояниях. Характеристическая температура начала структурной релаксации T_{sr} , calorиметрические температуры стеклования T_g и начала кристаллизации T_x показаны стрелками

мы, к абсолютной температуре (формула (1)). Минимальная работа, с другой стороны, связана с барьером свободной энергии Гиббса для элементарных перестроек дефектов, приводящих либо к рекомбинации и/или генерации дефектов, либо к их преобразованию в другие энергетические состояния. Элементарные акты структурных перестроек происходят на пикосекундном временном масштабе и мгновенные упругие свойства окружающей среды определяют величину потенциальных барьеров для этих перестроек. Тогда релаксационные изменения дефектной подсистемы, сопровождающиеся поглощением или выделением тепла (фиксируется методом ДСК), будут полностью определяться релаксационным вкладом модуля сдвига $G_{\text{rel}}(T)$.

5. Заключение. Предложен метод расчета тепловых эффектов, возникающих при нагреве высокоэнтропийных аморфных сплавов. Настоящий подход

основан на учете диаэластического эффекта и применении общего термодинамического уравнения изменения энтропии сплава. Представлено сравнение результатов расчета при использовании уравнения (5) с экспериментальными данными дифференциальной сканирующей калориметрии. Показано, что кинетика тепловых эффектов, возникающих при структурной релаксации и начальной кристаллизации высокоэнтропийных аморфных сплавов, может быть рассчитана на основе независимых данных кинетики релаксационного вклада модуля сдвига.

Автор признателен В. А. Хонику, Г. В. Афонину и Р. А. Кончакову за полезные дискуссии и помощь в постановке эксперимента.

Работа поддержана грантом Российского научного фонда # 23-12-00162.

1. J. W. Yeh, S. K. Chen, S. J. Lin, J. Y. Gan, T. S. Chin, T. T. Shun, C. H. Tsau, and S. Y. Chang, *Adv. Eng. Mater.* **6**, 299 (2004).
2. B. Cantor, I. T. H. Chang, P. Knight, and A. J. B. Vincent, *Mater. Sci. Eng. A* **375–377**, 213 (2004).
3. E. P. George, D. Raabe, and R. P. Ritchie, *Nat. Rev. Mater.* **4**, 515 (2019).
4. Б. Р. Гельчинский, И. А. Балякин, А. А. Юрьев, А. А. Ремпель, *Успехи химии* **91**, RCR5023 (2022) [B. R. Gelchinski, I. A. Balyakin, A. A. Yuryev, and A. A. Rempel, *Russ. Chem. Rev.* **91**, RCR5023 (2022)].
5. A. Takeuchi, N. Chen, T. Wada, W. Zhang, Y. Yokoyama, A. Inoue, and J. W. Yeh, *Procedia Eng.* **36**, 226 (2012).
6. Y. Chen, Z. W. Dai, and J. Z. Jiang, *J. Alloys Compd.* **866**, 158852 (2021).
7. S. F. Zhao, Y. Shao, X. Liu, N. Chen, H. Y. Ding, and K. F. Yao, *Mater. Des.* **87**, 625 (2015).
8. Y. Wang, Z. Zhu, A. Wang, and H. Zhang, *J. Non-Cryst. Solids* **577**, 121323 (2022).
9. A. Takeuchi, K. Amiya, T. Wada, K. Yubuta, W. Zhang, and A. Makino, *Mater. Trans.* **55**, 165 (2014).
10. Р. А. Кончаков, А. С. Макаров, А. С. Аронин, Н. П. Кобелев, В. А. Хоник, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 308 (2022) [R. A. Konchakov, A. S. Makarov, A. S. Aronin, N. P. Kobelev, and V. A. Khonik, *JETP Lett.* **115**, 280 (2022)].
11. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика*, Физматлит, М. (2002), ч. 1, 616 с. [L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Statistical Physics.*, Butterworth-Heinemann, Oxford (1980), P. 1, 564 p.]
12. С. В. Немилов, *ЖФХ* **42**, 391 (1968) [S. V. Nemilov, *Zh. Fiz. Khim.* **42**, 391 (1968)].
13. S. V. Nemilov, *J. Non-Cryst. Solids* **352**, 2715 (2006).
14. J. C. Dyre, N. B. Olsen, and T. Christensen, *Phys. Rev. B* **53**, 2171 (1996).
15. V. A. Khonik, Yu. P. Mitrofanov, S. A. Lyakhov, A. N. Vasiliev, S. V. Khonik, and D. A. Khoviv, *Phys. Rev. B* **79**, 132204 (2009).
16. J. C. Dyre, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 953 (2006).
17. W. W. Wang, *Prog. Mater. Sci.* **57**, 487656 (2012).
18. V. A. Khonik and N. P. Kobelev, *Metals* **9**, 605 (2019).
19. C. A. Gordon and A. V. Granato, *Mater. Sci. Eng. A* **370**, 83 (2004).
20. A. Makarov, M. Kretova, G. Afonin, N. Kobelev, and V. Khonik, *Metals* **12**, 1964 (2022).
21. А. Н. Васильев, Ю. П. Гайдуков, *УФН* **141**, 431 (1983) [A. N. Vasil'ev and Yu. P. Gaidukov, *Sov. Phys. Usp.* **26**, 952 (1983)].
22. H. Y. Ding, Y. Shao, P. Gong, J. F. Li, and K. F. Yao, *Mater. Lett.* **125**, 151 (2014).
23. T. Wada, J. Jiang, K. Yubuta, H. Kato, and A. Takeuchi, *Materialia* **7**, 100372 (2019).
24. L. T. Zhang, Y. J. Duan, T. Wada, H. Kato, J. M. Pelletier, D. Crespo, E. Pineda, and J. C. Qiao, *J. Mater. Sci. Technol.* **83**, 248 (2021).
25. Y. J. Duan, J. C. Qiao, D. Crespo, E. V. Goncharova, A. S. Makarov, G. V. Afonin, and V. A. Khonik, *J. Alloys Compd.* **830**, 154564 (2020).
26. А. С. Макаров, Е. В. Гончарова, Г. В. Афонин, Ц. Ч. Цзiao, Н. П. Кобелев, В. А. Хоник, *Письма в ЖЭТФ* **111**, 691 (2020) [A. S. Makarov, E. V. Goncharova, G. V. Afonin, J. C. Qiao, N. P. Kobelev, and V. A. Khonik, *JETP Lett.* **111**, 586 (2020)].
27. A. S. Makarov, Yu. P. Mitrofanov, E. V. Goncharova, J. C. Qiao, N. P. Kobelev, A. M. Glezer, and V. A. Khonik, *Intermetallics* **125**, 10691 (2020).
28. A. V. Granato, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 974 (1992).
29. A. V. Granato, *Eur. J. Phys.* **87**, 18 (2014).
30. E. V. Safonova, Yu. P. Mitrofanov, R. A. Konchakov, A. Yu. Vinogradov, N. P. Kobelev, and V. A. Khonik, *J. Phys.: Cond. Matter.* **28**, 215401 (2016).
31. Е. В. Гончарова, А. С. Макаров, Р. А. Кончаков, Н. П. Кобелев, В. А. Хоник, *Письма в ЖЭТФ* **106**, 39 (2017) [E. V. Goncharova, A. S. Makarov, R. A. Konchakov, N. P. Kobelev, and V. A. Khonik, *JETP Lett.* **106**, 35 (2017)].
32. W. Ingle, R. C. Perrin, and H. R. Schober, *J. Phys. F: Met. Phys.* **11**, 1161 (1981).
33. C. Donati, J. F. Douglas, W. Kob, S. J. Plimpton, P. H. Poole, and S. C. Glotzer, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2338 (1998).

Спиновые состояния ионов кобальта в объеме и на поверхности LaCoO_3 по рентгеновским абсорбционным, эмиссионным и фотоэлектронным спектрам

В. Р. Галахов⁺¹⁾, М. С. Удинцева⁺, Д. А. Смирнов^{*}, А. А. Макарова[×], К. Кюппер^{°2)}

⁺Институт физики металлов им. М. Н. Михеева Уральского отделения РАН, 620108 Екатеринбург, Россия

^{*}Institute of Solid State and Material Physics, Dresden University of Technology, 01062 Dresden, Germany

[×]Physikalische Chemie Institut für Chemie und Biochemie Freie Universität Berlin, 14195 Berlin, Germany

[°]University of Osnabrück, Department of Physics, 49076 Osnabrück, Germany

Поступила в редакцию 24 мая 2023 г.

После переработки 25 июня 2023 г.

Принята к публикации 26 июня 2023 г.

Мы представляем результаты исследований спиновых состояний трехвалентных ионов кобальта в монокристаллическом кобальтите LaCoO_3 с помощью рентгеновских фотоэлектронных, $\text{Co } L_{2,3}$ - и $\text{O } K$ -рентгеновских абсорбционных, а также $\text{Co } K\beta_{1,3}$ -рентгеновских эмиссионных спектров. Мы показываем, что при комнатной температуре в объеме монокристалла LaCoO_3 ионы Co^{3+} находятся в низкоспиновом состоянии, а на поверхности LaCoO_3 присутствуют высокоспиновые ионы Co^{2+} , высокоспиновые ионы Co^{3+} , низкоспиновые ионы Co^{3+} и, вероятно, также промежуточно-спиновые ионы Co^{3+} .

DOI: 10.31857/S1234567823150077, EDN: hxjjgr

Кобальтит лантана LaCoO_3 интересен с точки зрения изучения вопроса о спиновых состояниях ионов Co^{3+} . В этом соединении ионы Co^{3+} октаэдрически окружены ионами кислорода. Известно, что ионы трехвалентного кобальта (электронная конфигурация $3d^6$) в поле лиганда могут находиться с в низкоспиновой (LS, $S = 0$), промежуточно-спиновой (IS, $S = 1$) и высокоспиновой (HS, $S = 2$) конфигурациях. При низких температурах (ниже, чем 90 К) LaCoO_3 является диамагнитным изолятором с ионами кобальта Co^{3+} в низкоспиновом состоянии со спином $S = 0$ [1–4]. При температурах выше 90 К кобальтит LaCoO_3 переходит в парамагнитное состояние, а при температурах выше 500 К реализуется металлическое состояние [1–4]. Внимание многих исследователей сосредоточено на установлении сценария спин-спиновых переходов ионов Co^{3+} в LaCoO_3 при изменении температуры.

Возможность перехода электронов из низкоспинового состояния в промежуточно-спиновое ($\text{LS} \rightarrow \text{IS}$ в LaCoO_3) при повышении температуры поддержана работами [5–16]. Сценарий $\text{LS} \rightarrow \text{IS}$ отвергнут в пользу перехода $\text{LS} \rightarrow \text{HS}$ в [17–26]. При низких температурах ионы Co^{3+} должны находиться в низкоспиновом состоянии, но авторы работы [27], основываясь

на результатах рентгеновской фотоэмиссии, предположили, что в LaCoO_3 при 100 К сосуществуют ионы Co^{3+} в LS-, IS- и HS-состояниях. С помощью рентгеновских абсорбционных $\text{Co } L_{2,3}$ -спектров авторы работы [21] показали, что при 20 К в LaCoO_3 реализуется низкоспиновое состояние трехвалентных ионов кобальта, а при 650 К 50 % ионов Co^{3+} находятся в высокоспиновом состоянии, а 50 % – в низкоспиновом.

Таким образом, проблема спиновых состояний Co^{3+} -ионов кобальта в кобальтите LaCoO_3 при высоких температурах до сих пор не решена. Более того, остается открытым вопрос о спиновых состояниях ионов Co^{3+} в LaCoO_3 и при комнатной температуре. На основе расчетов $\text{GGA} + U$ и фотоэлектронных измерений предположено промежуточно-спиновое состояние ионов Co^{3+} в LaCoO_3 [28]. На основании анализа рентгеновских абсорбционных $\text{Co } L_{2,3}$ -спектров сделано предположение о низкоспиновом характере ионов Co^{3+} в LaCoO_3 при комнатной температуре [29]. В работе [30] по результатам измерения рентгеновских абсорбционных $\text{O } K$ -спектров утверждается, что на поверхности кобальтита реализуется промежуточно спиновое, а в объеме — низкоспиновое состояние. Поэтому целью нашего исследования является определение спиновых состояний ионов Co^{3+} в LaCoO_3 при комнатной температуре с использованием комплементарных методов рентгеновской спектроскопии.

¹⁾e-mail: galakhov@ifmlrs.uran.ru

²⁾K. Kuepper.

Монокристалл LaCoO_3 был выращен в Национальном исследовательском технологическом университете “МИСиС” (Москва) в группе профессора Я. М. Муковского методом зонной плавки с радиационным нагревом. Структура и однофазность образца проверены с помощью рентгеновского дифракционного анализа. Элементный состав образца оценивали с помощью рентгеновского электронного микроанализатора JСХА-733 (JEOL). Согласно данным рентгеновского микроанализа состав образца можно записать в виде $\text{La}_{0.98}\text{Co}_{1.00}\text{O}_3$ (после перевода массовых процентов в атомные). С помощью вышеуказанного оборудования определить содержание кислорода не представлялось возможным.

Рентгеновские фотоэлектронные спектры получены на рентгеновском фотоэлектронном спектрометре РНІ6500 ci Multitechnique System с использованием монохроматизированного $\text{Al } K\alpha$ -излучения. Для получения чистой поверхности, пригодной для фотоэлектронных исследований, монокристалл был сломан в высоковакуумной камере спектрометра непосредственно перед измерениями.

Рентгеновские абсорбционные спектры кобальта $L_{2,3}$ и кислорода K получены на Российско-Германской линии накопительного кольца BESSY-II в режиме полного фотоэлектронного выхода регистрации тока утечки с образца. Для исключения влияния загрязнения деталей спектрометра кислород-содержащими веществами $\text{O } K$ -спектры исследуемых образцов нормированы на спектр кислорода от золотой фольги, измеренный в том же энергетическом интервале.

Рентгеновские эмиссионные $\text{Co } K\beta_{1,3}$ -спектры получены на синхротронной линии BM20 Европейского центра синхротронного излучения (ESRF, Гренобль) при комнатной температуре и при 100 К.

Мультиплетные расчеты спектров ионов Co^{3+} в высокоспиновых и низкоспиновых состояниях с учетом кристаллического поля, кулоновского и обменного взаимодействий между $2p$ -дырками и $3d$ -электронами, расщепления кристаллическим полем, спин-орбитального взаимодействия и эффектов переноса заряда выполнены с использованием программного пакета CTM4XAS [31]. Параметры кристаллического поля $10Dq$ для высокоспинового и низкоспинового состояний ионов Co^{3+} в октаэдрах приняты соответственно равными 0.6 и 1.6 эВ.

На рисунке 1 представлен обзорный рентгеновский фотоэлектронный спектр LaCoO_3 , в котором видны лишь сигналы от элементов, входящих в химическую формулу. Сигнал $1s$ углерода, появившийся из-за загрязнения поверхности образца, доволь-

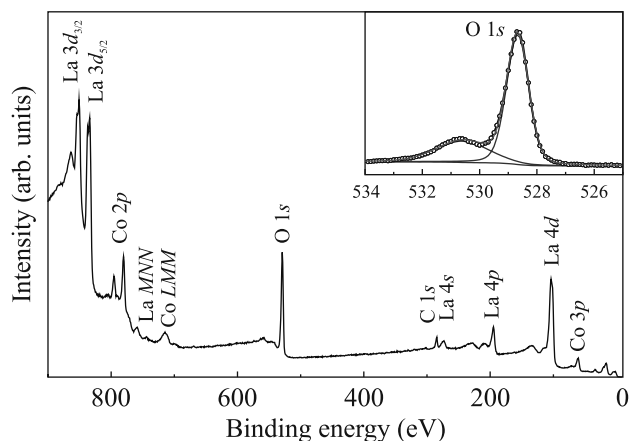


Рис. 1. (Цветной онлайн) Рентгеновский фотоэлектронный обзорный спектр LaCoO_3 . На вставке показан $\text{O } 1s$ -спектр

но слабый. Элементный состав образца, установленный по рентгеновскому фотоэлектронному спектру, $\text{La}_{1.1}\text{Co}_{1.00}\text{O}_{3.5}$, близок к составу, определенному с помощью рентгеновского микроанализа. Соотношение количества атомов кобальта и лантана соответствует погрешности измерения. Несколько завышенное содержание кислорода, по-видимому, связано с наличием на поверхности образца гидроксидов OH . Проявление сигнала от гидроксильной группы видно на вставке к рис. 1, где приведен рентгеновский фотоэлектронный $\text{O } 1s$ -спектр, разложенный на две составляющие. Интенсивный пик при 528.8 эВ соответствует $\text{O } 1s$ -состоянию объемного LaCoO_3 . Высокоэнергетическая составляющая спектра при 530.5 эВ обусловлена гидроксидом OH . Этот спектр хорошо согласуется с литературными спектрами [32–34].

Рентгеновский фотоэлектронный спектр валентной полосы LaCoO_3 показан на рис. 2а. В дополнение к сигналам $\text{La } 5s$, $\text{La } 5p$ и $\text{O } 2s$ вблизи вершины валентной полосы имеются особенности A , B , C , D , упомянутые в литературе [32–39]. Согласно расчетам в рамках кластерной модели взаимодействия конфигураций [33] и LDA-расчетам плотности электронных состояний [40] пик A сформирован $\text{Co } 3d$ -состояниями; в особенности C и D также дают некоторый вклад $\text{Co } 3d$ -состояния, тогда как структура B образована $\text{O } 2p$ -состояниями. Таким образом, наши рентгенофотоэлектронные исследования LaCoO_3 хорошо согласуются с литературными данными. Электронная структура, оцененная по фотоэлектронным спектрам, соответствует структуре LaCoO_3 .

На рисунке 2b показаны рентгеновские фотоэлектронные $\text{Co } 2p_{3/2,1/2}$ -спектры LaCoO_3 и LiCoO_2 . Известно, что ионы Co^{3+} в LiCoO_2 находятся в низкос-

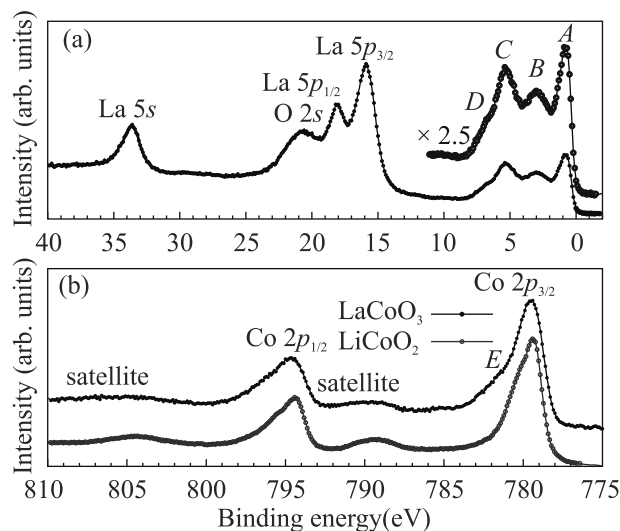


Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Рентгеновские фотоэлектронные спектры La 5s-, O 2s-, La 5p-спектры и спектр валентной полосы LaCoO_3 ; (b) – Co 2p-спектры LaCoO_3 и LiCoO_2

пиновом состоянии. Полосы при энергиях связи 790 и 804 эВ представляют собой сателлиты зарядового переноса (конечное состояние фотоэмиссионного процесса $\text{Co } 2p^5 3d^6$), а основные линии определяются $\text{Co } 2p^5 3d^7 \underline{L}$ -состояниями; здесь $\underline{L}$ означает перенос электрона от кислорода к кобальту. Спектры LaCoO_3 и LiCoO_2 близки. Плечо E в спектре LaCoO_3 можно объяснить либо наличием ионов Co^{2+} в материале [41–43], либо эффектом нелокального экранирования [44]. Нелокальная экранировка невозможна для низкоспиновых состояний ионов Co^{3+} с полностью занятыми орбиталями t_{2g}^6 [44]. Выявление зарядового и спинового состояний ионов в кобальтите, таким образом, должно также прояснить природу этого плеча в рентгеновских фотоэлектронных Co 2p-спектрах LaCoO_3 .

Для определения спиновых состояний трехвалентных ионов кобальта воспользуемся рентгеновскими абсорбционными Co L-спектрами, показанными на рисунке 3а. Спектры измерены при двух ориентациях образца относительно синхротронного пучка: при почти перпендикулярном падении луча (угол между плоскостью кристалла и пучком 70° , спектр 1) и при 40° (спектр 2). На спектрах видны отчетливые особенности A–B–C–D–E. Особенности A–B–C указывают на присутствие в образце ионов Co^{2+} . Это следует из совпадения энергетического положения этих особенностей с пиками Co L₃-спектра CoO. В частности, особенность A может служить “отпечатком пальцев” ионов Co^{2+} . Эта слабоинтенсивная предпиковая структура, связанная с примесью ионов

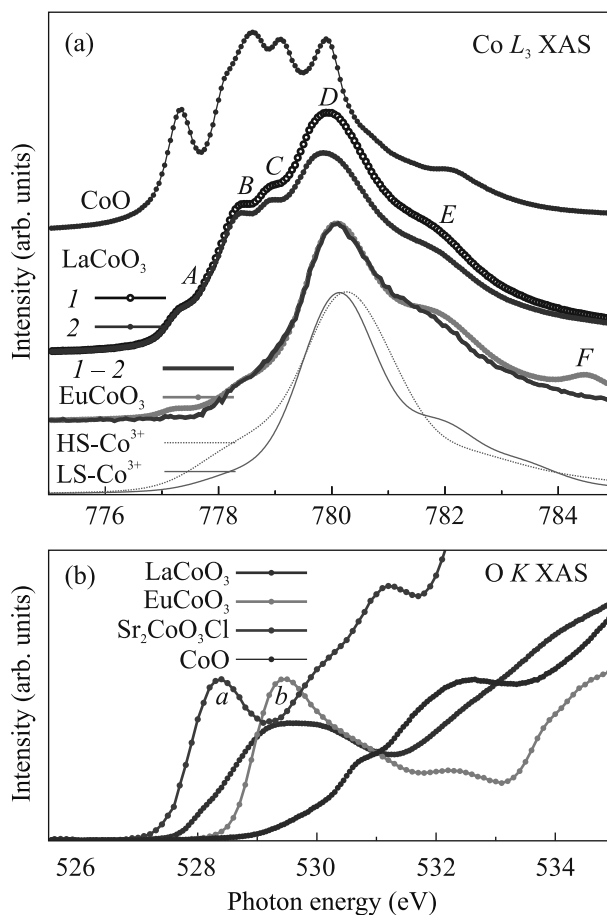


Рис. 3. (Цветной онлайн) (a) – Рентгеновские абсорбционные Co L₃-спектры монокристаллов CoO and LaCoO_3 . Спектры LaCoO_3 измерены при двух ориентациях образца относительно синхротронного луча: при почти перпендикулярном падении луча на поверхность образца (угол между лучом и плоскостью кристалла 70° , спектр 1) и при угле 40° (спектр 2). Спектр 1–2 – разностный, получен вычитанием из спектра 1 спектра 2 при соотношении интенсивностей, показанном на рисунке. Для сопоставления со спектром EuCoO_3 (LS-Co^{3+} -ионы) интенсивность разностного спектра умножена на 4.7. Приведены результаты мультиплетного расчета спектров Co^{3+} -ионов в высокоспиновом (HS) и низкоспиновом (LS) состояниях. (b) – Рентгеновские абсорбционные O K-спектры LaCoO_3 , EuCoO_3 , $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$ и CoO

двухвалентного кобальта, проявлялась в сложных кобальтитах: в гетероструктурах на основе кобальта и в слоистых кобальтитах $\text{LnBaCo}_2\text{O}_{6-\delta}$ [45, 46], в том числе после пластической деформации кобальтитов [47]. Двухвалентные ионы кобальта появляются в материале из-за небольшого дефицита кислорода либо благодаря восстановлению трехвалентных ионов кобальта на поверхности [48].

Теоретические спектры, рассчитанные для ионов HS-Co^{3+} и LS-Co^{2+} , показаны в нижней части рис. 3а. Характеристика высокоспиновых состояний ионов Co^{3+} — особенности B – C при 778–779 эВ. Особенность C имеет вклад как от ионов HS-Co^{3+} , так и от ионов HS-Co^{2+} . Особенность E определяется ионами LS-Co^{3+} .

Выделим спектральные сигналы ионов трехвалентного кобальта. Очевидно, что спектр, измеренный для образца, синхротронный луч на который падает под малым углом, в большей степени определяется вкладом поверхности, чем спектр, полученный при почти перпендикулярном падении луча на образец.

На рисунке 3а показаны два $\text{Co } L_3$ -спектра LaCoO_3 при одинаковой интенсивности пика A . Нормировка на пик A предполагает равный вклад ионов Co^{2+} в формирование этих спектров. Примененная геометрия регистрации спектра позволяет компенсировать вклад сигналов от поверхностных слоев. Можно предположить, что в поверхностные слои дают вклад ионы HS-Co^{2+} , HS-Co^{3+} и LS-Co^{3+} и, возможно, IS-Co^{3+} .

Разностный спектр, полученный при таком соотношении интенсивностей спектров, характеризует ионы Co^{3+} в объеме LaCoO_3 . Он практически совпадает со спектром кобальтита EuCoO_3 , в котором ионы Co^{3+} находятся в низкоспиновом состоянии [49], и с теоретическим спектром для LS-Co^{3+} -ионов. Особенность F в спектре EuCoO_3 — $\text{Ba } M_5$ -линия, возникающая из-за загрязнения образца примесью бария в процессе синтеза. Из этих экспериментов следует, что ионы Co^{3+} в объеме LaCoO_3 при комнатной температуре находятся в низкоспиновом состоянии. Это согласуется с результатами работы [29], в которой подобный вывод сделан на основе анализа формы абсорбционных $\text{Co } L_{2,3}$ -спектров.

Несколько иной результат следует из измерений рентгеновских абсорбционных $O K$ -спектров. На рисунке 3б показаны рентгеновские абсорбционные $O K$ -спектры LaCoO_3 , EuCoO_3 , $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$ и CoO . Эти спектры обусловлены электронным переходом $O 1s \rightarrow O 2p$. Поскольку электронные орбитали кобальта и кислорода смешаны, $O K$ -спектр отражает распределение незанятых состояний $\text{Co } 3d$ (t_{2g} и e_g).

Согласно работе [50] трехвалентные ионы кобальта в пирамидах $\text{Sr}_2\text{CoO}_3\text{Cl}$ находятся в высокоспиновом состоянии. Первый максимум спектра (a) сформирован незанятыми орбиталями $\text{Co } 3d_{xz}$, $3d_{yz}$ и $3d_{xy}$. В октаэдрах EuCoO_3 ионы Co^{3+} находятся в низкоспиновом состоянии [49]. Оболочка t_{2g} полностью занята и в спектре поглощения t_{2g} -орбитали не

проявляются. Пик b в спектре $O K$ отражает незанятые e_g -состояния. Спектр CoO находится гораздо выше по энергии и почти не покрывает спектральную область, в которой отображаются сигналы от трехвалентного кобальта. Спектр LaCoO_3 значительно шире спектра EuCoO_3 и простирается в область низких энергий. Это означает, что состояния t_{2g} в LaCoO_3 частично незаняты.

Имеется значительное расхождение между результатами измерений L -спектров кобальта и K -спектров кислорода, что можно объяснить различием состояний $\text{Co } 3d$ на поверхности и в объеме образца. Поскольку спектры рентгеновского поглощения измерены в поверхностно-чувствительном режиме полного выхода электронов, глубина анализа составляет около 5–10 нм. Благодаря изменению ориентации монокристалла относительно синхротронного пучка с помощью спектров кобальта удалось выделить состояния $\text{Co } 3d$ в объеме LaCoO_3 . С другой стороны, спектр кислорода отражает электронные состояния как в объеме, так и на поверхности. В отличие от спектров кобальта, эти вклады не были разделены. Таким образом, из измерений $O K$ -спектров следует, что на поверхности монокристалла LaCoO_3 ионы Co^{3+} находятся в смеси LS - и HS -состояний и, возможно, IS -состояния. На поверхности также находятся высокоспиновые Co^{2+} -ионы, которые были обнаружены с помощью $\text{Co } L$ -спектров.

Спиновые состояния ионов кобальта можно эффективно оценить по рентгеновским эмиссионным $\text{Co } K\beta_{1,3}$ -спектрам (электронный переход $3p \rightarrow 1s$). Благодаря обменному взаимодействию между $3p$ -дыркой и $3d$ -электронами в конечном состоянии процесса эмиссии эти спектры чувствительны к спиновому состоянию $3d$ -электронов (см., например, [51–54]). При условии отличного от нуля спина системы $3d$ -электронов $K\beta_{1,3}$ -спектр сопровождается низкоэнергетическим сателлитом $K\beta'$. Отношение интенсивности сателлита (I') к основной линии (I) определяется суммарным спином $3d$ -электронов: $I'/I = S/(S+1)$. Здесь S — полный спин $3d$ электронов. Разность энергий между линиями $K\beta_{1,3}$ и $K\beta'$ пропорциональна $(2S+1)$ при $S \neq 0$; если $S = 0$, то вышеприведенная формула неприменима, и разность энергий равна 0.

На рисунке 4 представлены $\text{Co } K\beta$ -спектры LaCoO_3 , измеренные при комнатной температуре и температуре около 100 К. Для сравнения приведен спектр CoO (высокоспиновые ионы Co^{2+} , $S = 3/2$). Как уже отмечено ранее, трехвалентные ионы в LaCoO_3 при температуре 100 К находятся в низкоспиновом состоянии. Спектры LaCoO_3 не имеют

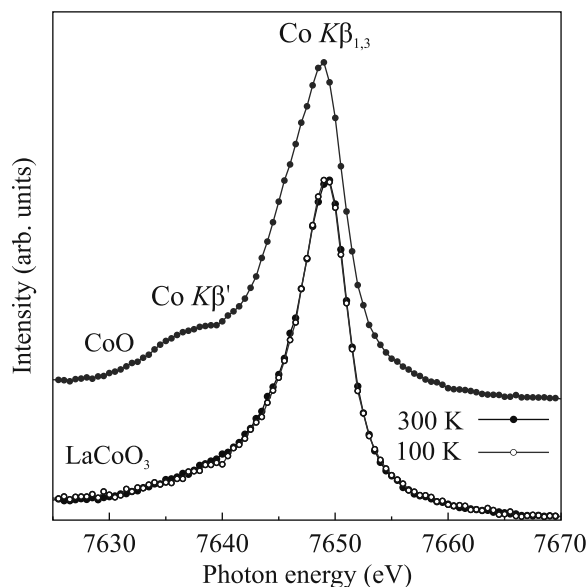


Рис. 4. (Цветной онлайн) Рентгеновские эмиссионные $\text{Co } K\beta_{1,3}$ -спектры монокристаллов CoO и LaCoO_3 . Спектры LaCoO_3 измерены при комнатной температуре и при 100 К

сателлитов, характерных для систем с ненулевым спином $3d$ -электронов. Повышение температуры от 100 К до комнатной практически не меняет спектр. Это означает отсутствие изменений в спиновом состоянии электронной системы кобальтита. Флюоресцентное излучение возбуждалось синхротронным пучком, следовательно, полученные результаты следует отнести к объему образца. Эксперимент подтверждает низкоспиновое состояние ионов трехвалентного кобальта в объеме LaCoO_3 .

Таким образом, исследования монокристаллического кобальтита LaCoO_3 методами рентгеновской спектроскопии позволили установить, что ионы Co^{3+} в объеме монокристаллического LaCoO_3 при комнатной температуре находятся в низкоспиновом состоянии, а на поверхности LaCoO_3 присутствуют ионы HS-Co^{2+} , HS-Co^{3+} , IS-Co^{3+} и LS-Co^{3+} .

Авторы благодарны проф. К. О. Квашниной (Европейский синхротрон, Гренобль, Франция) и д-ру В. В. Месилову (Yale-NUS College, Сингапур) за помощь в измерении рентгеновских эмиссионных $\text{Co } K\beta$ -спектров на линии BM20 (ESRF, Гренобль, проект HS-2890). Мы признательны Европейскому центру синхротронного излучения за предоставление оборудования для синхротронного излучения. Рентгеновские абсорбционные $\text{Co } L$ - и $\text{O } K$ -спектры были измерены при частичной финансовой поддержке Двусторонней программы “Российско-Германская лаборатория на BESSY”. Работа выполнена в рамках

Государственного задания Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (тема “Электрон”, # 122021000039-4).

1. G. Jonker and J. V. Santen, *Physica* **19**, 120 (1953).
2. P. M. Raccach and J. B. Goodenough, *Phys. Rev.* **155**, 932 (1967).
3. G. Thornton, B. Tofield, and D. Williams, *Solid State Commun.* **44**, 1213 (1982).
4. S. R. English, J. Wu, and C. Leighton, *Phys. Rev. B* **65**, 220407 (2002).
5. M. A. Korotin, S. Y. Ezhov, I. V. Solovyev, V. I. Anisimov, D. I. Khomskii, and G. A. Sawatzky, *Phys. Rev. B* **54**, 5309 (1996).
6. S. Yamaguchi, Y. Okimoto, and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **55**, R8666 (1997).
7. P. G. Radaelli and S.-W. Cheong, *Phys. Rev. B* **66**, 094408 (2002).
8. I. A. Nekrasov, S. V. Streltsov, M. A. Korotin, and V. I. Anisimov, *Phys. Rev. B* **63**, 235113 (2003).
9. G. Maris, Y. Ren, V. Volotchaev, C. Zobel, T. Lorenz, and T. T. M. Palstra, *Phys. Rev. B* **67**, 224423 (2003).
10. M. Magnuson, S. M. Butorin, C. S  the, J. Nordgren, and P. Ravindran, *Europhys. Lett.* **68**, 289 (2004).
11. D. Phelan, D. Louca, S. Rosenkranz, S.-H. Lee, Y. Qiu, P. J. Chupas, R. Osborn, H. Zheng, J. F. Mitchell, J. R. D. Copley, J. L. Sarrao, and Y. Moritomo, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 027201 (2006).
12. G. Vank  , J.-P. Rueff, A. Mattila, Z. N  meth, and A. Shukla, *Phys. Rev. B* **73**, 024424 (2006).
13. R. F. Klie, J. C. Zheng, Y. Zhu, M. Varela, J. Wu, and C. Leighton, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 047203 (2007).
14. V. V. Sikolenko, S. L. Molodtsov, M. Izquierdo, I. O. Troyanchuk, D. Karpinsky, S. I. Tiutiunnikov, E. Efimova, D. Prabhakaran, D. Novoselov, and V. Efimov, *Physica B: Condens. Matter.* **536**, 597 (2018).
15. В. В. Сиколенко, И. О. Троянчук, Д. В. Карпинский, А. Rogalev, F. Wilhelm, R. Rosenberg, D. Prabhakaran, E. A. Ефимова, В. В. Ефимов, С. И. Тютюнников, И. А. Бобриков, *Физика твердого тела* **60**, 283 (2018) [V. V. Sikolenko, I. O. Troyanchuk, D. V. Karpinsky, A. Rogalev, F. Wilhelm, R. Rosenberg, D. Prabhakaran, E. A. Efimova, V. V. Efimov, S. I. Tiutiunnikov, and I. A. Bobrikov, *Phys. Solid State* **60**, 288 (2018)].
16. M. Feygenson, D. Novoselov, S. Pascarelli, R. Chernikov, O. Zaharko, F. Porcher, D. Karpinsky, A. Nikitin, D. Prabhakaran, A. Sazonov, and V. Sikolenko, *Phys. Rev. B* **100**, 054306 (2019).
17. M. Zhuang, W. Zhang, and N. Ming, *Phys. Rev. B* **57**, 10705 (1998).
18. S. Noguchi, S. Kawamata, K. Okuda, H. Nojiri, and M. Motokawa, *Phys. Rev. B* **66**, 094404 (2002).

19. K. Knížek, J. Hejtmánek, and P. Novák, *J. Phys. Condens. Matter* **18**, 3285 (2006).
20. A. Podlesnyak, S. Streule, J. Mesot, M. Medarde, E. Pomjakushina, K. Conder, A. Tanaka, M. W. Haverkort, and D. I. Khomskii, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 247208 (2006).
21. M. W. Haverkort, Z. Hu, J. C. Cezar, T. Burnus, H. Hartmann, M. Reuther, C. Zobel, T. Lorenz, A. Tanaka, N. B. Brookes, H. H. Hsieh, H.-J. Lin, C. T. Chen, and L. H. Tjeng, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 176405 (2006).
22. M. Medarde, C. Dallera, M. Grioni, J. Voigt, A. Podlesnyak, E. Pomjakushina, K. Conder, T. Neisius, O. Tjernberg, and S. N. Barilo, *Phys. Rev. B* **73**, 054424 (2006).
23. N. Sundaram, Y. Jiang, I. E. Anderson, D. P. Belanger, C. H. Booth, F. Bridges, J. F. Mitchell, T. Proffen, and H. Zheng, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 026401 (2009).
24. K. Knížek, J. Hejtmánek, Z. Jiráček, P. Tomeš, P. Henry, and A. André, *Phys. Rev. B* **79**, 134103 (2009).
25. V. Křápek, P. Novák, J. Kuneš, D. Novoselov, D. M. Korotin, and V. I. Anisimov, *Phys. Rev. B* **86**, 195104 (2012).
26. Р. Ю. Бабкин, К. В. Ламонова, С. М. Орел, С. Г. Овчинников, Ю. Г. Пашкевич, *Письма в ЖЭТФ* **99**, 547 (2014) [R. Yu. Babkin, K. V. Lamonova, S. M. Orel, S. G. Ovchinnikov, and Yu. G. Pashkevich, *JETP Lett.* **99**, 476 (2014)].
27. S. R. Barman and D. D. Sarma, *Phys. Rev. B* **49**, 13979 (1994).
28. S. K. Pandey, A. Kumar, S. Patil, V. R. R. Medicherla, R. S. Singh, K. Maiti, D. Prabhakaran, A. T. Boothroyd, and A. V. Pimpale, *Phys. Rev. B* **77**, 045123 (2008).
29. Z. Shen, M. Qu, J. Shi, F. E. Oropeza, V. A. de la Pena O'Shea, G. Gorni, C. Tian, J. P. Hofmann, J. Cheng, J. Li, and K. H. Zhang, *J. Energy Chem.* **65**, 637 (2022).
30. J. Suntivich, W. T. Hong, Y.-L. Lee, J. M. Rondinelli, W. Yang, J. B. Goodenough, B. Dabrowski, J. W. Freeland, and Y. Shao-Horn, *J. Phys. Chem. C* **118**, 1856 (2014).
31. E. Stavitski and F. M. F. de Groot, *Micron* **41**, 687 (2010).
32. R. P. Vasquez, *Phys. Rev. B* **54**, 14938 (1996).
33. T. Saitoh, T. Mizokawa, A. Fujimori, M. Abbate, Y. Takeda, and M. Takano, *Phys. Rev. B* **55**, 4257 (1997).
34. K. A. Stoerzinger, W. T. Hong, E. J. Crumlin, H. Bluhm, M. D. Biegalski, and Y. Shao-Horn, *J. Phys. Chem. C* **118**, 19733 (2014).
35. B. W. Veal and D. J. Lam, *J. Appl. Phys.* **49**, 1461 (1978).
36. L. Richter, S. D. Bader, and M. B. Brodsky, *Phys. Rev. B* **22**, 3059 (1980).
37. J. Kemp, D. Beal, and P. Cox, *J. Solid State Chem.* **86**, 50 (1990).
38. M. Abbate, J. C. Fuggle, A. Fujimori, L. H. Tjeng, R. P. C. T. Chen, G. A. Sawatzky, H. Eisaki, and S. Uchida, *Phys. Rev. B* **47**, 16124 (1993).
39. L. Heymann, M. L. Weber, M. Wohlgemuth, M. Risch, R. Dittmann, C. Baeumer, and F. Gunkel, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **14**, 14129 (2022).
40. D. Takegami, L. Nicolaï, T. C. Koethe, D. Kasinathan, C. Y. Kuo, Y. F. Liao, K. D. Tsuei, G. Panaccione, F. Offi, G. Monaco, N. B. Brookes, J. Minár, and L. H. Tjeng, *Phys. Rev. B* **99**, 165101 (2019).
41. T. Y. Ma, S. Dai, M. Jaroniec, and S. Z. Qiao, *J. Amer. Chem. Soc.* **136**, 13925 (2014).
42. L. Xu, Q. Jiang, Z. Xiao, X. Li, J. Huo, S. Wang, and L. Dai, *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **55**, 5277 (2016).
43. Y. Liu, X. Kong, X. Guo, Q. Li, J. Ke, R. Wang, Q. Li, Z. Geng, and J. Zeng, *ACS Catal.* **10**, 1077 (2020).
44. A. Hariki, A. Yamanaka, and T. Uozumi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **84**, 073706 (2015).
45. S. L. Wachowski, I. Szpunar, M. H. Sørby, A. Mielewczyk-Gryń, M. Balaguer, C. Ghica, M. C. Istrate, M. Gazda, A. E. Gunnæs, J. M. Serra, T. Norby, and R. Strandbakke, *Acta Mater.* **199**, 297 (2020).
46. I. Szpunar, R. Strandbakke, M. H. Sørby, S. L. Wachowski, M. Balaguer, M. Tarach, J. Serra, A. Witkowska, E. Dzik, T. Norby, M. Gazda, and A. Mielewczyk-Gryń, *Materials* **13**, 4044 (2020).
47. В. Р. Галахов, М. С. Удинцева, С. В. Наумов, С. Н. Шамин, Б. А. Гижевский, *Письма в ЖЭТФ* **116**, 358 (2022) [V. R. Galakhov, M. S. Udintseva, S. V. Naumov, S. N. Shamin, and B. A. Gizhevskii, *JETP Lett.* **116**, 367 (2022)].
48. M. García-Fernández, V. Scagnoli, U. Staub, A. M. Mulders, M. Janousch, Y. Bodenthin, D. Meister, B. D. Patterson, A. Mirone, Y. Tanaka, T. Nakamura, S. Grenier, Y. Huang, and K. Conder, *Phys. Rev. B* **78**, 054424 (2008).
49. Z. Hu, H. Wu, M. W. Haverkort, H. H. Hsieh, H. J. Lin, T. Lorenz, J. Baier, A. Reichl, I. Bonn, C. Felser, A. Tanaka, C. T. Chen, and L. H. Tjeng, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 207402 (2004).
50. C. S. Knee, D. J. Price, M. R. Lees, and M. T. Weller, *Phys. Rev. B* **68**, 174407 (2003).
51. J.-P. Rueff, C.-C. Kao, V. V. Struzhkin, J. Badro, J. Shu, R. J. Hemley, and H. K. Mao, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3284 (1999).
52. G. Vankó, T. Neisius, G. Molnár, F. Renz, S. Kárpáti, A. Shukla, and F. M. F. de Groot, *J. Phys. Chem. B* **110**, 11647 (2006).
53. J. Herrero-Martín, J. L. García-Munoz, K. Kvashnina, E. Gallo, G. Subías, J. A. Alonso, and A. J. Barón-González, *Phys. Rev. B* **86**, 125106 (2012).
54. J.-M. Chen, Y.-Y. Chin, M. Valldor, Z. Hu, J.-M. Lee, S.-C. Haw, N. Hiraoka, H. Ishii, C.-W. Pao, K.-D. Tsuei, J.-F. Lee, H.-J. Lin, L.-Y. Jang, A. Tanaka, C.-T. Chen, and L. H. Tjeng, *J. Am. Chem. Soc.* **136**, 1514 (2014).

Уникальные структурные особенности ленточных вискеро NbS₃В. П. Мартовицкий⁺¹⁾, А. Ю. Клоков⁺, В. Я. Покровский*⁺ Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

* Институт радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова РАН, 125009 Москва, Россия

Поступила в редакцию 5 июня 2023 г.

После переработки 29 июня 2023 г.

Принята к публикации 30 июня 2023 г.

Рентгенодифракционный анализ ленточных вискеро NbS₃ выявил в них три различных особенности структуры: 1) мелкокристаллическое строение по всему объему с преимущественной ориентацией вдоль направления [001], перпендикулярного к длинной оси вискера **b**; 2) сочетание кристаллических макроблоков длиной до 0.5 мм с мелкими кристаллитами различных ориентаций и 3) сочетание кристаллических макроблоков с закручиванием плоскостей вокруг оси **b** по левому венту с шагом 1.25° на каждые 0.2 мм и возвращением в следующем блоке к начальной ориентации. Структурные особенности 2) и 3) вискеро NbS₃ ранее не наблюдались, и авторам неизвестны кристаллы неорганических материалов с подобными свойствами. Все кристаллиты характеризуются практически прямыми углами элементарной ячейки с примерно одинаковым значением параметра решетки вдоль оси **c** (18.130 Å), в то время как постоянные решетки **a** и **b** заметно отличаются в одном и том же образце. При этом все кристаллиты можно отнести не к фазе I, как ожидалось, а к фазе IV. Прямой угол между осями **a** и **c** можно объяснить двойникованием фазы I вдоль оси **c**. Различия в параметрах решетки в макроблоках свидетельствуют о больших напряжениях структур. Подобные напряжения в области двойников (и/или дефектов упаковки) могут существенно влиять на концентрацию свободных электронов и играть ключевую роль в формировании волн зарядовой плотности в разных фазах NbS₃.

DOI: 10.31857/S1234567823150089, EDN: hxolmx

Соединение NbS₃ получено в виде многочисленных полиморфов [1–3] (табл. 1), еще ряд полиморфов предсказан теоретически [4]. Наиболее широко исследованы триклинная (NbS₃-I) [5] и моноклинная (NbS₃-II) [6] фазы. Моноклинная фаза интересна благодаря трем волнам зарядовой плотности (ВЗП), наблюдающимся в ней, две из которых формируются выше комнатной температуры. В этом смысле, соединение NbS₃-II уникально: в отличие от других родственных соединений, в которых тоже наблюдались ВЗП (NbSe₃, TaS₃), только в NbS₃ структурный переход с появлением ВЗП наблюдается выше комнатной температуры, что предполагает возможность практического применения этих вискеро. Первые результаты на фазе II были получены в 1980-х гг., однако интенсивное изучение NbS₃-II началось примерно с 2009 г., когда были установлены воспроизводимые условия синтеза этой фазы [7, 8]. Ранее, как правило, в выращенных “коконах” преобладала фаза I. В этой фазе отсутствуют ВЗП, которые могли бы переносить ток. Удвоение периода вдоль направления роста вискеро, оси **b**, можно рассматривать как

особый случай ВЗП, которая, в принципе, не может скользить. Тем не менее, в NbS₃-I наблюдалась нелинейная проводимость, вид которой зависел от условий синтеза [9, 10]. Природа этого явления до конца не выяснена.

Таблица 1. Параметры элементарных ячеек полиморфов NbS₃, известные из предыдущих экспериментов. Для фазы IV из [1] оси **a** и **b** переставлены местами²⁾

# фазы	a , Å	b , Å	c , Å	α , °	β , °	γ , °	Ссылка
I	4.963	6.730	9.144	90	97.17	90	[1]
II	9.6509	3.3459	19.850	90	110.695	90	[13]
IIa	8.6–8.8	3.3	21.7				[2]
IV	4.9736	6.7515	18.1312	90	90.116	90	[1]
V	4.950	3.358	9.079	90	97.35	90	[1]
VI	4.961	6.743	9.137	90	97.05	90	[3]

Среди известных полиморфов фаза I обладает самой простой структурой [11]. В элементарной ячейке

²⁾ Авторы [1] для фазы IV переставили местами оси **a** и **b**. Такую перестановку осей можно допустить при исследовании поликристаллов, но вискеро NbS₃ всех полиморфных структур с квазидвухосной структурой всегда растут вдоль самой сильной связи, которая с первой работы [5] обозначена как ось **b**.

¹⁾ e-mail: victormart@yandex.ru

ке содержатся всего 2 цепочки Nb, поэтому ячейку данной фазы можно рассматривать как “кирпичик”. Комбинируя 4 таких “кирпичика”, можно составить элементарную ячейку фазы II, содержащую 8 цепочек [12, 13]. Перечисленные выше особенности NbS₃-I объясняют необходимость точного знания структурных свойств этой фазы. Тем более, с учетом недавних результатов [1–4], структура NbS₃-I требует, как минимум, уточнения. Также интересно было бы изучить дефектную структуру этой фазы.

Цель настоящей работы заключалась в исследовании вискеро́в, выращенных в ИРЭ и, на основании их электрофизических свойств, номинально аттестованных как фаза I. Мы обнаружили, что вискеры этой фазы, согласно классификации [1], относятся к IV типу полиморфной структуры и могут кристаллизоваться как в виде мелких кристаллитов, так и в виде сочетания крупных и мелких кристаллитов, а также в виде только крупных макроблоков до 0.5 мм в направлении длинной оси. В последнем случае наблюдается закручивание кристаллической решетки по левостороннему винту вокруг оси **b**, совпадающей с длинной осью вискера.

Структурные исследования проводились на рентгеновском дифрактометре Panalytical X'Pert MRD с первичным гибридным монохроматором.

Все исследованные образцы были получены в одном цикле роста из газовой фазы. В ампулу загружались ниобий и сера (с небольшим избытком) и поддерживался градиент температуры 570–610 °С. Из семи ленточных вискеро́в, расположенных параллельно друг другу с расстоянием около 2 мм между ними, образец #1 был на 2 мм длиннее остальных, что позволило получить его структурные параметры. Однако, при попытке переместить его на отдельный кристаллодержатель для съемки дифрактограммы он превратился в клубок спутанных волокон. Остальные 6 образцов были близки по структуре к образцу #2, характеристики которого подробно представлены в данной статье, с различной концентрацией мелких кристаллитов. Попытки удалить эти вискеры для анализа лучшего по морфологии образца #2 также привели к превращению их в клубки волокон. Таким образом, всего было исследовано 3 образца, причем образец #3 был изначально отобран как наиболее совершенный по внешнему виду, не содержащий видимых дефектов – признаков мелких кристаллитов.

На рисунке 1 приведены дифрактограммы двух вискеро́в: #3, состоящего исключительно из крупных кристаллических блоков (верхняя кривая), и #2, содержащего также мелкие разориентированные

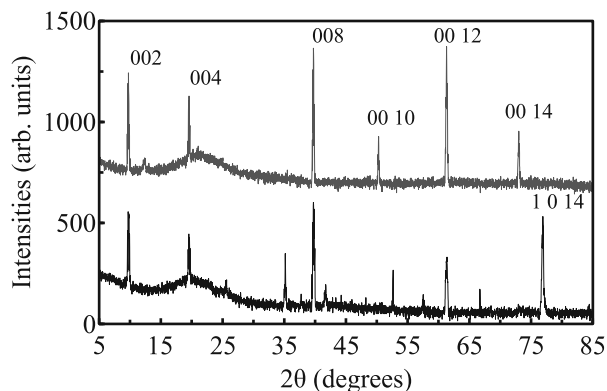


Рис. 1. (Цветной онлайн) Дифрактограммы образца #2 (внизу) и образца #3 (вверху). На верхней кривой присутствуют только рефлексы (00*l*) типа. На нижней кривой, помимо этих рефлексов, присутствует целый ряд рефлексов от разориентированных кристаллитов и сильный рефлекс (1 0 14) от блока другой ориентации

кристаллиты (нижняя). Боковая поверхность обоих вискеро́в, представляющих собой слегка уплощенные ленты, совпадает с гранью (001). Эта грань перпендикулярна к слабой ван-дер-ваальсовой связи между двойными пакетами трехгранных призм. Именно от этой грани были записаны дифрактограммы. На верхней дифрактограмме (образец #3) видны только рефлексы серии (00*l*), тогда как на нижней дифрактограмме (образец #2), помимо этой же серии рефлексов, присутствуют более слабые рефлексы от мелких кристаллитов и сильный рефлекс (1 0 14) от блока другой ориентации.

На рисунке 2 приведены кривые качания в диапазоне углов от $\omega - \theta = -4$ до 4 образца #2, где ω – угол падения рентгеновского луча на образец, θ – угол дифракции. На верхней кривой (008) присутствует пик только от монокристаллического блока, тогда как на средней кривой (0012), помимо пика от того же монокристаллического блока, видны слабые пики от мелких кристаллитов, которая полностью доминирует в образце #1 и не содержит рефлексов (002), (004) и (008). На вставке к рис. 2 приведены кривые $(2\theta - \omega)$ -сканирования с третьим кристаллом анализатором на рефлексе (0012) для основного блока и одного из мелких кристаллитов. Полуширина рефлекса мелкого кристаллита уширена из-за малой толщины, его максимум сдвинут в сторону меньших углов по сравнению с максимумом пика от основного кристалла. При скользящем падении рентгеновских лучей на ленту после поворота образца на 88° вокруг горизонтальной оси интенсивность и число пиков от мелких кристаллитов возрастает (нижняя кривая на рис. 2).

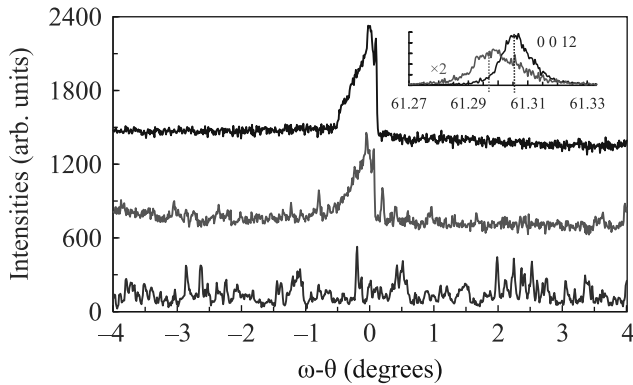


Рис. 2. (Цветной онлайн) Кривые качания образца # 2 на рефлексах (008) (верхняя) и (0 0 12) (средняя), а также на рефлексе (0 2 12) после наклона образца от вертикали на 88° (нижняя). На вставке: кривые $(2\theta - \omega)$ -сканирования с третьим кристаллом-анализатором на рефлексе (0 0 12) для определения параметров решетки вдоль оси *c* крупных и мелких кристаллитов

Для определения параметров решетки вдоль осей **a** и **b**, а также углов между этими осями и осью **c**, нами использовались пары асимметричных рефлексов (1 0 12) – ($\bar{1}$ 0 12) и (028) – ($0\bar{2}$ 8), соответственно.

На рисунке 3 приведены кривые $(2\theta - \omega)$ -сканирования с третьим кристаллом-анализатором

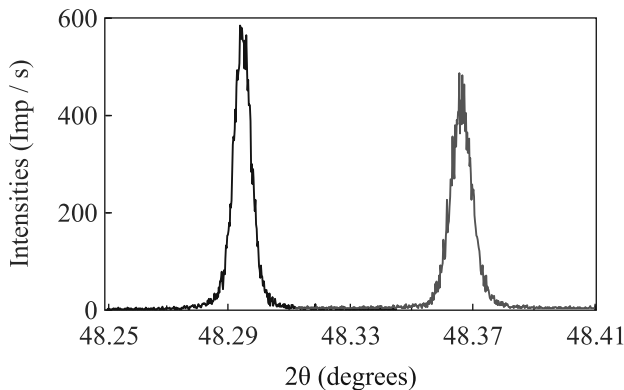


Рис. 3. (Цветной онлайн) Кривые $(2\theta - \omega)$ – сканирования с третьим кристаллом-анализатором на рефлексах ($0\bar{2}$ 8) (черная) и (028) (красная) образца # 2. Присутствует небольшое моноклинное искажение угла α между осями **b** и **c**

на рефлексах ($0\bar{2}$ 8) (черная) и (028) (красная) образца # 2. Присутствует небольшое моноклинное искажение угла между осями **b** и **c**. При известном значении $c_{M(004)} = 18.1312 \text{ \AA}$ находим по формулам кристаллографии для моноклинной решетки $b_M = 6.7518 \text{ \AA}$, $\alpha_M = 90.087^\circ$. На рисунке 4 для этого же образца приведены кривые $(2\theta - \omega)$ -сканирования

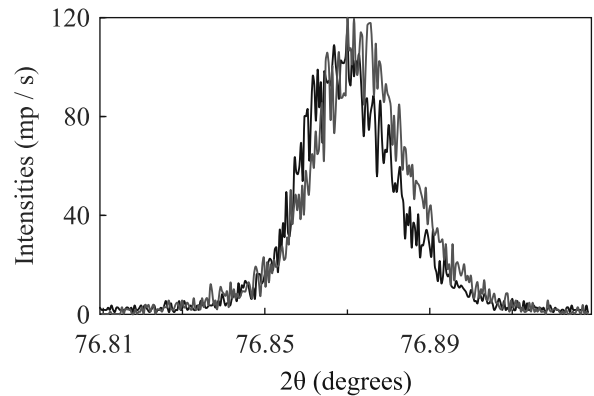


Рис. 4. (Цветной онлайн) Кривые $(2\theta - \omega)$ -сканирования с третьим кристаллом-анализатором со щелью 0.1 мм на асимметричных рефлексах ($\bar{1}$ 0 14) (черная) и (1 0 14) (красная) образца # 2. Угол β между осями **a** и **c** прямой

с третьим кристаллом-анализатором со щелью 0.1 мм на асимметричных рефлексах ($\bar{1}$ 0 14) с углом наклона $\psi_1 = -15.5^\circ$ (черная) и (1 0 14) с $\psi_2 = 18.4^\circ$ (красная). Для среднего значения $2\theta = 76.874^\circ$ находим по формулам кристаллографии $M = 4.260 \text{ \AA}$ с расчетным углом наклона $\psi_{(001)/(1\ 0\ 14)} = 16.9^\circ$ при допущении перпендикулярности осей **a** и **c**, что хорошо совпадает со средним экспериментальным значением угла наклона.

Полученные результаты собраны в таблицу³⁾. Все кристаллиты соответствуют IV типу структуры по классификации авторов работы [1]⁴⁾.

Как видно из табл. 2, для всех кристаллитов угол $\beta = 90^\circ$, в то время как фаза NbS₃-I предполагает между осями **a** и **c** угол $\beta = 97.17^\circ$ [5, 11]. Элементарную же ячейку фазы IV можно представить как комбинацию двух ячеек фазы I, находящихся в двойниковом положении по отношению друг к другу вдоль оси **c** (рис. 5)⁵⁾. В этом случае постоянная решетки вдоль оси **c** удваивается, а угол β становится прямым. Таким образом, хотя исследуемые образцы

³⁾ Наш эксперимент пока не позволил определить, есть ли удвоение параметров решетки вдоль осей **b** и **c**. Мы привели наши результаты в соответствие с известными данными для IV фазы. [1]. Об удвоении вдоль оси **b** также свидетельствует высокое удельное сопротивление образцов.

⁴⁾ К такому же выводу привел анализ наших образцов коллегами из университета Джорджии (США), авторами работы [1].

⁵⁾ В структуре, предложенной авторами [1] для фазы IV, одна пара треугольных призм также находится в двойниковом положении по отношению ко второй паре, однако со сдвигом вдоль оси **a** (в их обозначении – **b**). Большое значение R-фактора уточнения wR , 11.38 % [1], позволяет нам предложить альтернативный вариант, который представляется более естественным.

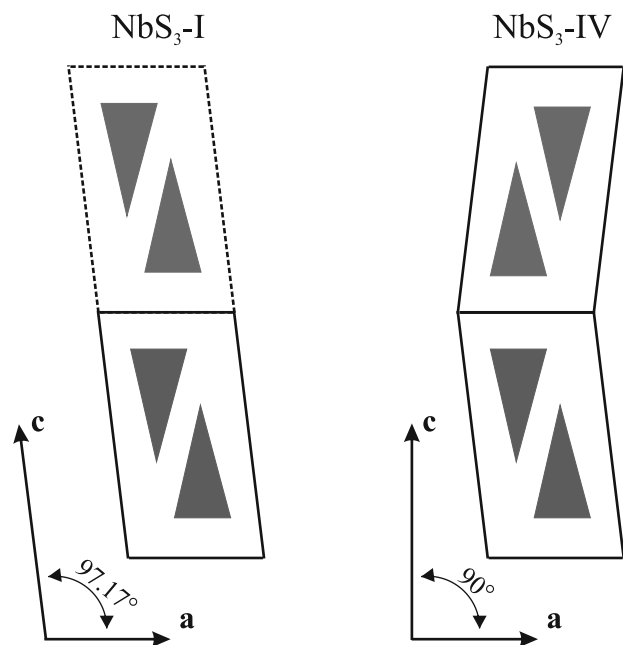


Рис. 5. (Цветной онлайн) Проекция элементарных ячеек NbS₃-I и NbS₃-IV вдоль цепочек ниобия, находящихся в центрах трехгранных призм. Вероятной причиной образования прямого угла между осями **a** и **c** в фазе IV является двойниковое положение второй пары цепочек при удвоении параметра решетки вдоль оси **c**

не относятся к фазе I, фаза IV, по-видимому, составлена из двух ячеек фазы I, которую, как и ранее, можно рассматривать как “элементарный кирпичик” [12, 13].

Таблица 2. Параметры элементарной ячейки вискеро NbS₃. 2_M и 2_P – моно- и поликристаллическая части образца # 2

#	a, Å	b, Å	c, Å	α, °	β, °	γ, °
1	3.806	6.594	18.1332	90	90	90
2 _M	4.260	6.7518	18.1312	90.087	90	90
2 _P	4.759	6.5964	18.1328	90.0	90	90
3	5.025	6.7662	18.1312	90.093	90	90

Подчеркнем, что среди всех известных политипов NbS₃ только в структуре фазы IV все три угла элементарной ячейки близки к 90°, тогда как для других фаз значение одного угла близко либо к 97°, либо к 110° [1].

Для мелких кристаллитов образца # 2 нами были использованы пары рефлексов (1 0 12)–($\bar{1}$ 0 12) и (0 2 12)–(0 $\bar{2}$ 12) для определения параметров решетки вдоль осей **a** и **b**, соответственно. Полученные значения соответствуют ромбической структуре $a_P = 4.759 \text{ Å}$, $b_P = 6.5964 \text{ Å}$ и заметно отличаются от параметров структуры основных кристаллических блоков этого образца.

На рисунке 6 приведены кривые X-сканирования со щелью 0.1 мм на рефлексе (0 0 12) вдоль горизон-

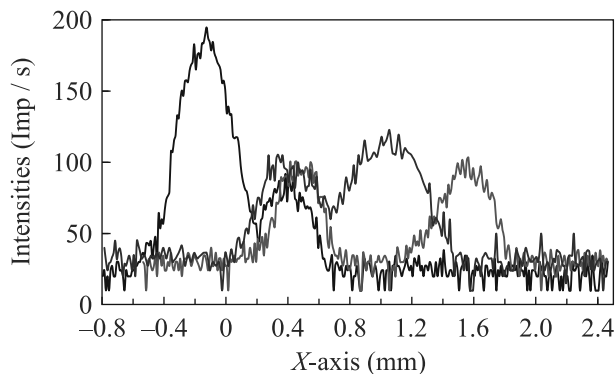


Рис. 6. (Цветной онлайн) Кривые X-сканирования со щелью 0.1 мм на рефлексе (0 0 12) вискера 3, расположенного горизонтально, при углах отклонения образца вокруг горизонтальной оси на $\psi_1 = -3.5^\circ$ (черная тонкая), $\psi_2 = -5^\circ$ (синяя) и $\psi_3 = -2^\circ$ (красная)

тально расположенной длинной оси вискера образца # 3 при различных углах отклонения (ψ) кристаллодержателя от вертикали. Из рисунка 6 видно, что вискер состоит, по крайней мере, из четырех блоков. На самом деле, самый интенсивный пик в положении $X = -0.2 \text{ мм}$ соответствует двум блокам с небольшой разориентацией между ними. Поэтому измерения проводились на отдельно стоящем, самом дальнем блоке с $X \approx 1.6 \text{ мм}$. На рисунке 7 приведены кривые ψ -сканирования в локальных точках этого блока

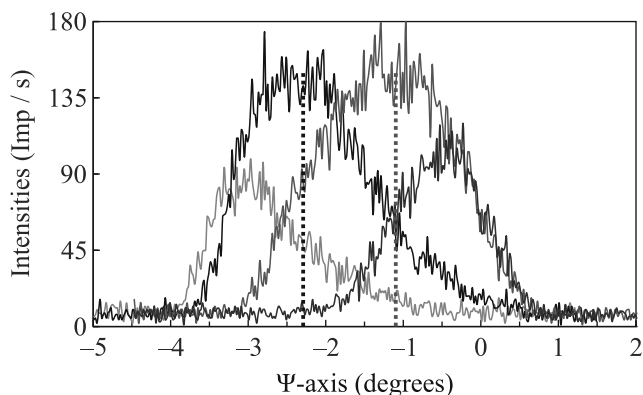


Рис. 7. (Цветной онлайн) Кривые ψ -сканирования на рефлексе (0 0 12) со щелью 0.1 мм для самого правого блока в точках $X = 1.35 \text{ мм}$ (зеленая), $X = 1.55 \text{ мм}$ (черная), $X = 1.75 \text{ мм}$ (красная), $X = 1.95 \text{ мм}$ (синяя). По мере движения к концу вискера 3 плоскость (001) закручивается вокруг его оси по левому винту

со щелью 0.1 мм и шагом 0.2 мм по оси X . Несмотря на малую чувствительность интенсивности к углу поворота образца вокруг горизонтальной оси, хорошо видно возрастание среднего значения угла ψ при

сдвиге точки измерения в сторону больших значений по оси X . Это соответствует закручиванию кристаллических плоскостей (001) в измеряемом блоке по левостороннему винту вблизи центра блока в 1.25° на 0.2 мм. Закручивание наблюдается в каждом отдельном блоке исследованного образца, но в других блоках оно менее наглядно из-за частичного наложения одного блока на другой. Тем не менее, отчетливо видно, что блок с максимальной интенсивностью при $X = 1.0$ мм на рис. 6 имеет минимальное значение по оси $\psi = -5^\circ$, а в оптическом микроскопе по отблеску от грани видно, что среднее положение плоскости (001) этого вискера остается неизменным по всей его длине. Из этого можно предположить, что левостороннее закручивание периодически сбрасывается в противоположном направлении, что и может быть причиной разбиения вискера на блоки.

Закручивание кристаллических плоскостей вокруг оси вискера заметно понижает интенсивность асимметричных рефлексов, имеющих компоненту вдоль оси a , тогда как интенсивность других рефлексов практически не изменяется. Значит, слабейшей связью в структуре NbS₃ IV типа является связь между атомами ниобия и серы из соседних трехгранных призм. Поэтому для определения параметра решетки вдоль оси a нам пришлось использовать вместо третьего кристалла-анализатора параллельный анализатор, точность углового определения которого примерно на порядок ниже, зато интенсивность рефлекса на тот же порядок выше. Полученное значение ($= 5.025 \text{ \AA}$) заметно отличается от значения в кристалле # 2 ($4.260 \text{ \AA}$), тогда как другие параметры близки ($b = 6.7682 \text{ \AA}$, $c = 18.1312 \text{ \AA}$, $\alpha = 90.093^\circ$).

Вариации значений параметров решетки вдоль оси b и, еще более существенные, — вдоль оси a (табл. 1), свидетельствуют о больших внутренних напряжениях в вискерах. Об этих напряжениях свидетельствует и превращение кристаллов в клубки волокон даже при легком прикосновении к ним. Вариации параметров решетки естественно связать с отклонениями от стехиометрии, приводящими к появлению двойников и дефектов упаковки. При этом моноклинная решетка способствует возникновению внутренних напряжений при столкновении растущих фрагментов двойников. Этот эффект может оказаться ключом для понимания физики образования ВЗП в разных фазах NbS₃. Так, значение параметра решетки вдоль оси a связано с расстоянием между атомами серы в соседних трехгранных призмах, и его возрастание повышает вероятность принадлежности к зоне проводимости одного электрона у каждого атома серы. Таким образом, концентрация свобод-

ных электронов может существенно варьироваться даже в пределах одного политипа. Этим, возможно, объясняется различие между низкоомными образцами NbS₃-II, в которых происходит образование ВЗП (ВЗП-2) при 150 К, и высокоомными образцами той же фазы, в которых ВЗП-2 не образуется [14, 15]. Наибольшие напряжения можно ожидать в области двойников или дефектов упаковки, что может стать причиной возникновения на них ВЗП толщиной в несколько атомных слоев [16].

В заключение, в настоящей работе установлено, что вискеры NbS₃, номинально относившиеся к фазе I, относятся к IV политипу с небольшой моноклинризацией (менее одной десятой градуса от прямого угла между осями b и c). Наиболее вероятно, элементарную ячейку этого политипа можно представить как комбинацию двух ячеек фазы I, находящихся одна по отношению к другой в двойниковом положении. При этом выявлено три разновидности вискеро:

- состоящие исключительно из мелких кристаллитов с преимущественной ориентацией вдоль оси c ;
- сочетающие крупные блоки размером до 0.5 мм с облепляющими их мелкими кристаллитами;
- состоящие исключительно из крупных блоков, кристаллические плоскости которых закручены относительно оси вискера по левостороннему винту.

И сочетание крупных кристаллических блоков с мелкими разориентированными кристаллитами в одном и том же вискере, и закручивание по левостороннему винту с периодическим возвратом к среднему азимутальному положению ранее не наблюдалось. Учитывая высокий уровень внутренних напряжений, на вискеры NbS₃-IV всех трех обнаруженных типов могла оказать влияние послеростовая трансформация структуры различной глубины, в зависимости от их стехиометрического состава. Внутренние напряжения, приводящие к огромным вариациям постоянной решетки в пределах одной фазы (вдоль оси a — более 30 %), а, значит, — и концентрации свободных электронов, могут играть ключевую роль в формировании волн зарядовой плотности в различных политипах NbS₃, в частности, — на двойниках и/или дефектах упаковки.

Авторы благодарны М. В. Никитину за помощь в подготовке образцов.

Работа выполнена при финансовой поддержке проекта Российского научного фонда 22-12-00319.

1. M. A. Bloodgood, P. Wei, E. Aytan, K. N. Bozhilov, A. A. Balandin, and T. T. Salguero, APL Mater. **6**, 026602 (2018).

2. С. Г. Зыбцев, Н. Ю. Табачкова, В. Я. Покровский, С. А. Никонов, А. А. Майзлах, С. В. Зайцев-Зотов, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 36 (2021).
3. M. A. Bloodgood, Y. Ghafouri, P. Wei, and T. T. Salguero, *Appl. Phys. Lett.* **120**, 173103 (2022).
4. S. Conejeros, B. Guster, P. Alemany, J.-P. Pouget, and E. Canadell, *Chemistry of Materials* **33**, 5449 (2021).
5. J. Rijnsdorp and F. Jellinek, *J. Solid State Chem.* **25**, 32 (1978).
6. S. Kikkawa, N. Ogawa, and M. Kuizumi, *J. Solid State Chem.* **41**, 315 (1982).
7. S. G. Zybtssev, V. Ya. Pokrovskii, V. F. Nasretdinova, and S. V. Zaitsev-Zotov, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 152112 (2009).
8. В. Я. Покровский, С. Г. Зыбцев, М. В. Никитин, И. Г. Горлова, В. Ф. Насретдинова, С. В. Зайцев-Зотов, *УФН* **183** 33 (2013).
9. M. E. Itkis, F. Ya. Nad', S. V. Zaitsev-Zotov, and F. Lévy, *Solid State Commun.* **71**, 895 (1989).
10. V. Nasretdinova and S. Zaitsev-Zotov, *Physica B* **407**, 1984 (2012).
11. P. Monceau, *Adv. Phys.* **61**, 325, (2012).
12. A. Prodan, A. Budkowski, S. W. Boswell, V. Marinkovic, J. C. Bennett, and J. M. Corbett, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **21** 4171 (1988).
13. E. Zupanic, H. J. P. van Midden, M. van Midden, S. Šturm, E. Tchernychova, V. Ya. Pokrovskii, S. G. Zybtssev, V. F. Nasretdinova, S. V. Zaitsev-Zotov, W. T. Chen, Woei Wu Pai, J. C. Bennett, and A. Prodan, *Phys. Rev. B* **98**, 174113 (2018).
14. M. Abdel-Hafiez, R. Thiyagarajan, A. Majumdar, R. Ahuja, W. Luo, A. N. Vasiliev, A. A. Maarouf, S. G. Zybtssev, V. Ya. Pokrovskii, S. V. Zaitsev-Zotov, V. V. Pavlovskiy, W. W. Pai, W. Yang, and L. V. Kulik, *Phys. Rev. B* **99**, 235126 (2019).
15. S. G. Zybtssev, V. Ya. Pokrovskii, V. F. Nasretdinova et al. (Collaboration), *Phys. Rev. B* **95**, 035110 (2017).
16. W. W. Pai, M. W. Chu, W. T. Chen, V. Ya. Pokrovskii, S. V. Zaitsev-Zotov, S. G. Zybtssev, V. F. Nasretdinova, M. D. Ustenko, E. Zupanič, H. J. P. van Midden, M. van Midden, S. Šturm, A. Prodan, E. Tchernychova, and J. C. Bennett, *Труды XXII Международного симпозиума, Издательство Нижегородского госуниверситета им. Н. И. Лобачевского, Н. Новгород* (2018).

Генерация гигантских магнитных полей в поллой мезоразмерной сфере

О. В. Минин¹+, С. Джоу^{*1)}, И. В. Минин¹+2)

⁺Томский политехнический университет, 634050 Томск, Россия

^{*}Jiangsu Key Laboratory of Advanced Manufacturing Technology, Faculty of Mechanical and Material Engineering, Huaiyin Institute of Technology, 223003 Huai'an, China

Поступила в редакцию 26 июня 2023 г.

После переработки 29 июня 2023 г.

Принята к публикации 30 июня 2023 г.

На основе теории Ми представлены результаты численного моделирования эффекта суперрезонанса для поллой диэлектрической сферы. Впервые показано, что слабодиссипативные мезоразмерные сферы с воздушной полостью поддерживают резонанс Фано высокого порядка, связанного с внутренними модами Ми. Достижение суперрезонанса в поллой сфере обеспечивается точным выбором радиуса полости, в то время как для монолитной диэлектрической сферы он обеспечивается точным выбором внешнего диаметра частицы. При этом относительные интенсивности резонансных пиков как для магнитного, так и электрического полей в окрестности полюсов сферы в оптическом диапазоне могут достигать огромных значений порядка 10^6 – 10^7 при превышении интенсивности магнитного поля над электрическим более 15 раз для поллой сферы с параметром размера Ми около 40.

DOI: 10.31857/S1234567823150090, EDN: hxosad

1. Введение. Диэлектрические сферы поддерживают широкий набор мод (множество электромагнитных резонансов, называемых модами Ми) с различными спектральными характеристиками, что делает их идеальной платформой для самых разнообразных применений. Например, в последнее десятилетие аналоги Фано резонансов наблюдались в различных плазмонных наноструктурах [1, 2] с параметром размера Ми $q = \pi D/\lambda < 1$ (D – диаметр частицы, λ – длина волны освещающего излучения). Рассеяние света сферическими наносферами, состоящими из композитов металл/диэлектрик было рассмотрено в [3]. Показано, что при оптимальных условиях свет сильнее усиливается внутри диэлектрического материала. При этом поведение резонанса Фано зависит от зазора между ядром и оболочкой сферы [4].

Резонансные свойства двуслойной наносферы диаметром 180 нм в диапазоне длин волн 320–450 нм рассмотрены в [5]. Показано что резонансы ядра и оболочки слоистой сферической частицы могут перекрываться друг с другом в энергетическом спектре, что приводит к Фано резонансам в спектрах прямого или обратного рассеяния. Неожиданные цветовые эффекты в полых наночастицах кремнезе-

ма с диаметром около 400 нм, сравнимым с длиной волны видимого света, и с тонкими оболочками (< 15 нм) были исследованы в [6], резонансные свойства мод шепчущей галереи (МШГ) внутри заполненной жидкостью поллой стеклянной сферы с диаметром от 20 до 115 микрон были изучены в [7], а резонансные свойства диэлектрических сфер субволновых размеров в оптическом и терагерцевом диапазонах исследовались в [8]. Подобные диэлектрические структуры позволяют экстремально манипулировать светом, аналогично тому, как было достигнуто с помощью плазмонных наноструктур [1–4].

Интерес к диэлектрическим сферическим частицам с диаметром порядка длины волны возник еще более века назад при изучении необычных оптических эффектов рассеяния света взвесами мелкодисперсной серы [9]. Однако в последнее десятилетие для таких частиц (параметр размера Ми $q \sim 10$) был обнаружен целый ряд новых необычных оптических явлений, включая магнитный свет, фотонный наноджет, оптические нановихри, резонансы Фано высокого ($l > 5$) порядка и др., обзор которых дан в [10–12].

Моды шепчущей галереи в двуслойных диэлектрических частицах диаметром около 8 микрон рассматривались в [13], а в поллой 90-микронной сфере с толщиной оболочки 892 нм изучались в [14]. Настраиваемый посредством изменения плазменной частоты

¹⁾S. Zhou.

²⁾e-mail: prof.minin@gmail.com

Фано резонанс в многослойной частице, состоящей из сферического плазменного ядра и трехслойных диэлектрических оболочек, изучался в [15]. Особенности субволновой локализации света в мезоразмерных диэлектрических сферах с полостью рассматривались в [16, 17].

Ранее в [10, 18] было продемонстрировано, что реализация Фано резонансов высокого порядка, связанных с внутренними модами Ми, возникает при определенных значениях как параметра размера частицы q , так и ее показателя преломления, и могут давать коэффициенты усиления напряженности как магнитного, так и электрического поля порядка $10^5 \dots 10^7$. Отметим, что резонансное возбуждение в диэлектрической частице внутренних существенно субволновых локализованных магнитных полей в оптике является нетривиальной задачей, поскольку при использовании природных диэлектрических материалов сильный магнетизм в оптическом диапазоне не может быть достигнут [19]. Резонансы Фано высокого порядка, для которого коэффициент усиления напряженности поля может достигать указанных выше значений, весьма чувствительны как к параметру размера частицы и диссипативным потерям в ее материале [10–12], так и характеристикам окружающей среды [20, 21].

При фиксированном показателе преломления материала сферы, ранее условия суперрезонанса [10, 18] достигались в указанных выше работах за счет выбора точного внешнего размера (радиуса) сплошной частицы. В то же время, насколько нам известно, до сих пор не было предложено ни одного исследования, демонстрирующего эффект суперрезонанса в диэлектрической полой сфере с фиксированными, заранее заданными показателем преломления и внешним диаметром частицы.

С целью расширения границ и механизмов существования данного эффекта для частиц с заданными показателем преломления и внешним размером, в этом письме мы используем наш более ранний подход [10, 18] для возбуждения Фано резонансов высокого порядка в полой мезоразмерной диэлектрической сферической частице. На примере частицы с показателем преломления 1.5, характерного для диэлектриков в оптическом диапазоне, мы показываем, что при оптимальном выборе размера сферической полости, в окрестности полюсов полой диэлектрической сферы также наблюдается гигантское локальное усиление магнитного и электрического полей. Как и ранее, мы проводим наши исследования на основе строгой теории Ми [22] и выявляем вклад отдельной моды, а также подтверждаем, что в полой сферической ча-

стице с параметром размера $q \sim 40$ возможно возбуждение Фано резонансов высокого порядка (номер моды 52) с существенным усилением (до 10^8) интенсивностей магнитного и электрического полей.

2. Модель. Структура волн внутри и вблизи поверхности полой сферической частицы может быть точно определена с использованием теории рассеяния Ми с точки зрения свойств материала частицы и окружающей среды, параметра размера этой частицы и размера полости. Для сферы с полостью рассеянное поле вне частицы также представляется в виде мультипольного разложения, в котором выражения, связывающие различные парциальные сечения с коэффициентами рассеяния, формально совпадают с таковыми для однослойной частицы [22, 23, 24]. Однако сами коэффициенты рассеяния определяются через рекуррентные соотношения [24]. В то же время, в такой конфигурации появляется дополнительная степень свободы: меняя пространственный размер полости, можно управлять положением различных резонансов. Не снижая общности задачи в качестве примера, в соответствии с теорией Ми [22] мы рассматриваем рассеяние плоской, линейно поляризованной электромагнитной волны на полой сферической частице с показателем преломления 1.5, характерного для большинства диэлектриков в оптическом диапазоне [10], параметром размера $q \sim 10$ (с фиксированным внешним диаметром 5, 6 и 8 микрон) на длине волны гелий-неонового лазера ($\lambda = 632.8$ нм [24]). Предполагается, что полость и сфера находится в вакууме с показателем $n = 1$. Эффекты диссипации энергии внутри материала сферы считались пренебрежительно малыми [10, 21]. Более подробно методика проведения моделирования описана в [10, 18, 21]. Использовался алгоритм [24] для моделирования рассеяния на сфере с полостью. Геометрия задачи показана на вставке к рис. 1а.

3. Результаты моделирования и обсуждения. На рисунке 1 приведены спектры рассеяния на полых диэлектрических сферах с внешним диаметром 5, 6 и 8 мкм в зависимости от параметра δ , который определяет соотношение внешнего диаметра сферы и размера полости в ней в соответствии с выражением: $R_{\text{core}} = \delta R$ (рис. 1а). Резонансное значение размера полости δ в данном случае выбиралось исходя из максимального значения относительной интенсивности резонансных пиков в теневом полюсе сферы (точка “А” на вставке к рис. 1а).

На рисунках 2 и 3 показаны распределение интенсивностей электрического и магнитного полей для сфер различного внешнего диаметра с оптимальной

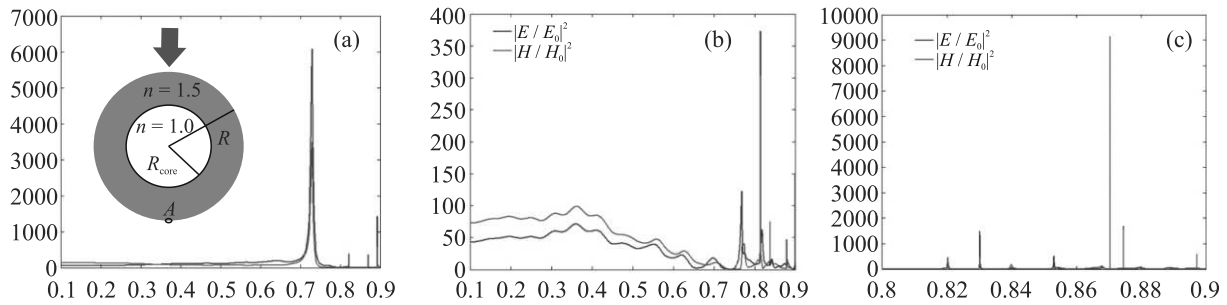


Рис. 1. (Цветной онлайн) Спектры рассеяния на полый сфере внешним диаметром: (a) – 5 мкм; (b) – 6 мкм; (c) – 8 мкм, соответственно, от относительного радиуса полости δ

Таблица 1. Резонансные характеристики мезоразмерных полых сфер

Внешний диаметр (мкм)/ параметр q	Резонансный параметр δ	Max ($ E/E_0 ^2$)	Max ($ H/H_0 ^2$)	Коэффициент резонансной моды [21]
5/24.8	0.7291	$1.55 \cdot 10^4$	3388.9	$ ^m A_{32} $
6/29.8	0.8137542	$1.80 \cdot 10^5$	$4.214 \cdot 10^4$	$ ^m A_{39} $
8/39.75	0.8702807	$9.57 \cdot 10^5$	$1.438 \cdot 10^7$	$ ^m A_{52} $

полостью. При этом соответствующие распределения интенсивности на рис. 2 показаны в линейной, а на рис. 3 – в логарифмической шкале. Как видно из рис. 2, 3, как и в случае сплошной сферы [10, 18, 21], в условиях суперрезонанса поле внутри сферической частицы приобретает форму, характерную для распределения поля одиночной собственной моды, находящейся в резонансе. Такая структура поля в теории Ми [22] соответствует существенному преобладанию только одного члена в ряду внутренних полей (коэффициентов c_n или d_n Ми [22] в зависимости от типа резонанса – электрического или магнитного), ответственного за возбужденную резонансную моду [10, 26].

Для суперрезонанса [10, 18, 21] характерно наличие двух “горячих точек” в полюсах сферы вдоль направления распространения излучения (на освещенной и теневой частях соответственно – рис. 2). В этих точках резко возрастает амплитуда внутреннего магнитного и электрического полей благодаря конструктивной интерференции одной резонансной моды с широким спектром мод внутри частицы [10, 18]. Кроме того, конфигурация полей, соответствующих модам шепчущей галереи [27, 28] (рис. 3) сохраняется, но их интенсивность на 4–5 порядков меньше интенсивности поля в горячих точках, что характерно для резонансов Фано [10, 18] и не наблюдается в структуре поля, характерного для резонанса МШГ [27], а также для цилиндрических частиц. Как видно (рис. 2с, 3с), в условиях суперрезонанса интенсивность магнитного поля в рассматриваемом случае бо-

лее чем на порядок превышает интенсивность электрического поля.

Следуя идеологии ранее выполненных работ [10, 18, 21, 26], проведенный анализ внутренних коэффициентов Ми для полых сфер показал, что амплитуды всех мод достаточно малы, за исключением единственной резонансной моды, номер которой зависит от внешнего размера сферы и резонансного диаметра полости. Эффект определяющего влияния моды внутреннего резонанса высокого порядка на суперрезонанс продемонстрирован на рис. 4 для непоглощающей сферической частицы с показателем преломления $n = 1.5$ и внешним диаметром 5, 6 и 8 мкм, соответственно. В таблице 1 представлены сводные резонансные характеристики полых диэлектрических сфер (здесь $|^e A_n|$ и $|^m A_n|$ – значения амплитуд коэффициентов компонент электромагнитного поля в условиях суперрезонанса, пропорциональных коэффициентам Ми c_n и d_n [21, 24]).

С возрастанием внешнего диаметра сферы от 5 до 8 микрон возрастает как резонансный внутренний диаметр полости, так и номер резонансной моды, аналогично сплошной сфере [18]. Если для полый сферы с параметром размера $q \sim 24$ амплитуда резонансной моды с номером 32 выше остальных мод примерно в 5 раз, то для частицы с $q \sim 39$ амплитуда резонансной моды с номером 52 больше остальных мод уже примерно в 60 раз – такое высокое значение коэффициента Ми обусловлено конструктивной интерференцией единственной парциальной вол-

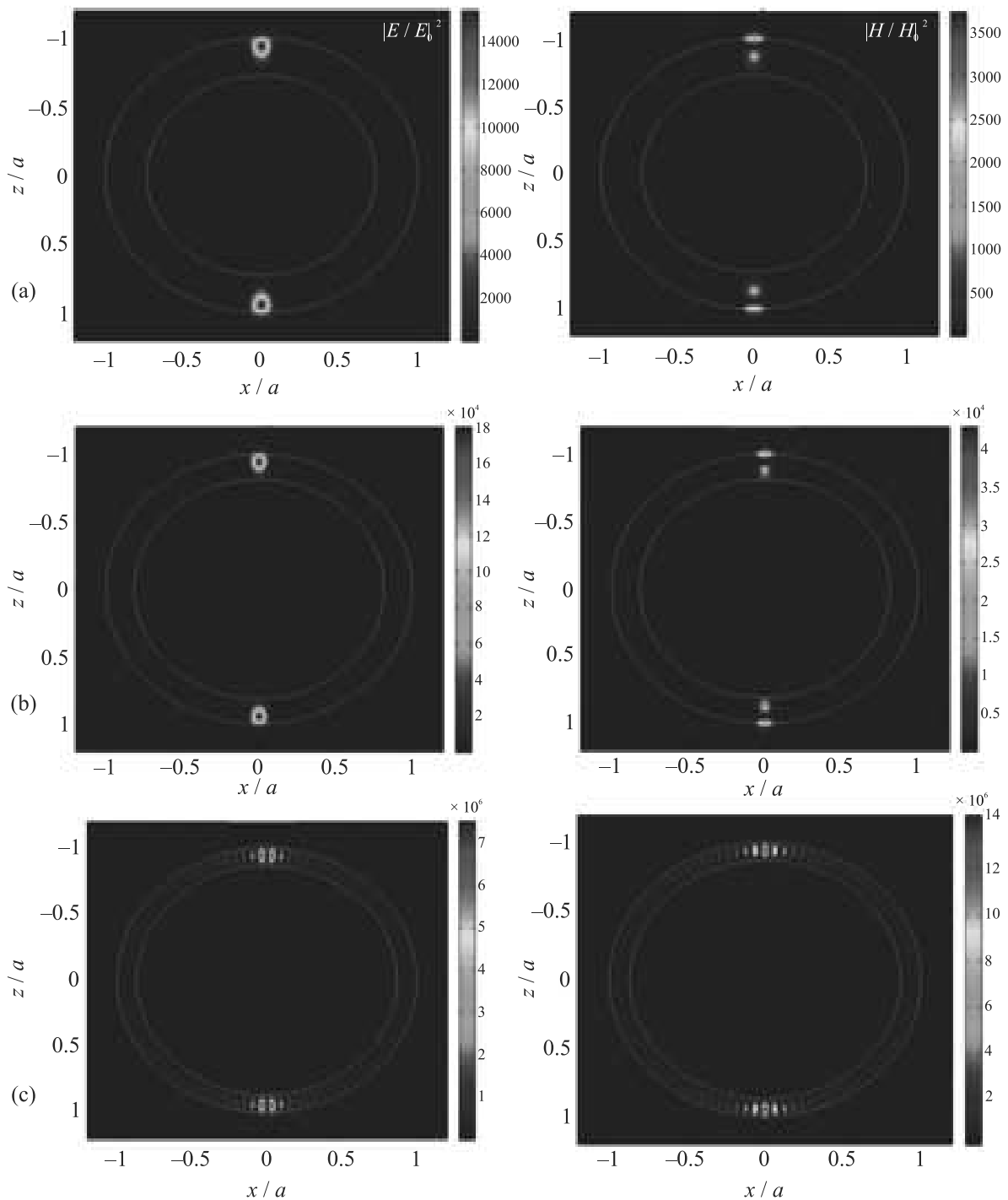


Рис. 2. (Цветной онлайн) Распределение относительных интенсивностей электрического (левая колонка) и магнитного (правая колонка) полей в полых сферах внешним диаметром: (a) – 5 мкм, (b) – 6 мкм и (c) – 8 мкм в линейном масштабе

ны внутри поллой сферы. При этом если для частицы с $q = 24.8$ превышение относительной интенсивности магнитного поля над электрическим составляет всего около 2, то для частицы с $q = 39.75$ это превышение составляет уже более 15 раз. Таким образом, мы

можем контролировать взаимодействие между модами, регулируя размер внутренней полости.

Заметим, что высокочастотные резонансы достаточно требовательны к точности изготовления поверхности сферической частицы. Как объемные

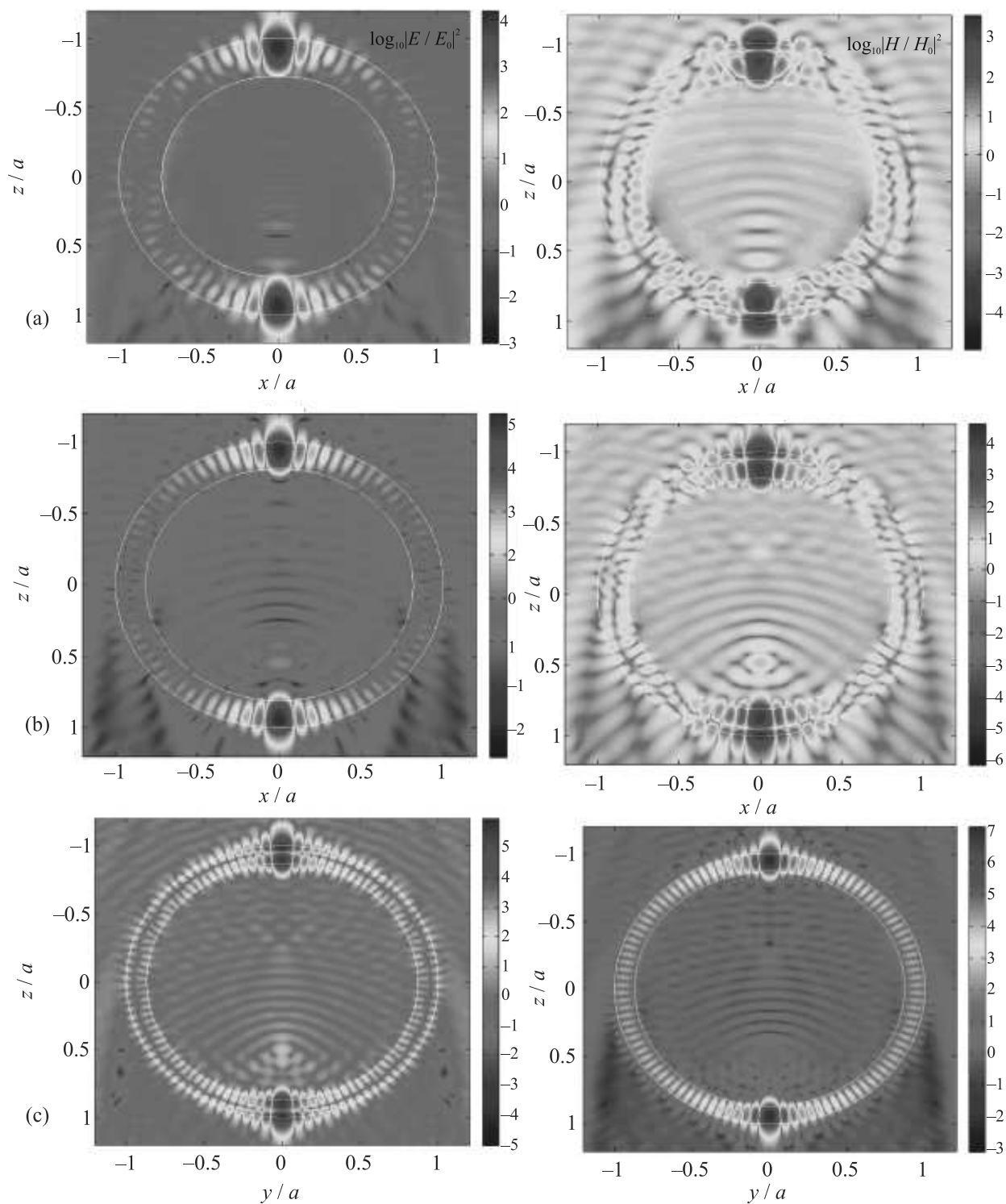


Рис. 3. (Цветной онлайн) То же, что на рис. 2, в логарифмическом масштабе

неоднородности, так и шероховатость поверхности, можно описать флуктуацией диэлектрической проницаемости материала сферы [29]. В оптическом диапазоне толщина рассеивающего поверхностного слоя,

как правило, составляет величину несколько нанометров [30] или даже меньше [31], что много меньше толщины слоя МШГ и характерных размеров горячих точек в полюсах сферы при суперрезонансе. При

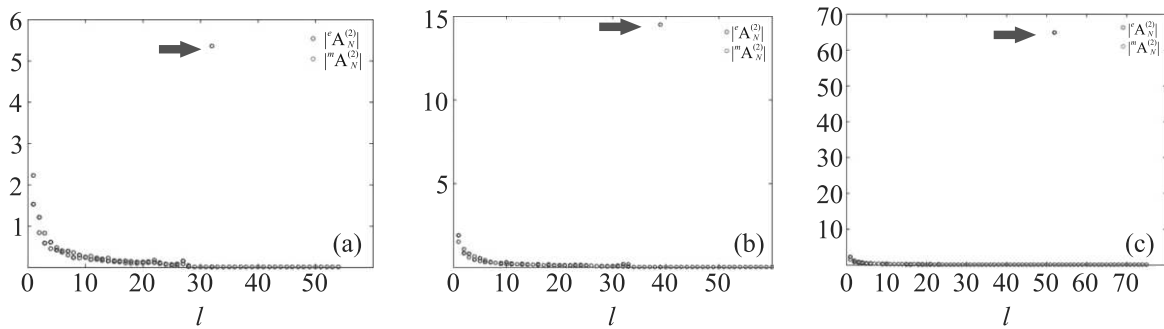


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость амплитуд мод от внешнего диаметра полый диэлектрической сферы: (а) – 5 мкм; (б) – 6 мкм; (с) – 8 мкм. Стрелкой показаны значения и положение резонансной моды

этом добротность рассеяния обратно пропорциональна квадрату величины шероховатости поверхности сферы [29–31]. В условиях суперрезонанса ширина резонансной линии составляет порядка λ/Q , где Q – добротность ($Q \sim 10^7 - 10^{11}$) [12, 21]. Следовательно, ширина резонансной линии пропорциональна квадрату величины шероховатости поверхности. В этом случае любые неоднородности порядка ширины резонансной линии, вероятно, будут смещать и нарушать резонанс. Однако изучение влияния симметрии сферы, требований к ее поверхности и материалу на морфологию магнитных резонансов и связанных с ними существенно трехмерными сингулярностями представляется отдельной достаточно трудоемкой задачей, которая выходит за рамки настоящей работы и будет предметом отдельной статьи. Приведенные выше результаты для “идеальной” сферической частицы можно рассматривать как теоретический верхний предел уровня генерируемых полей.

4. Заключение. Кажущаяся простой диэлектрическая мезоразмерная сфера с полостью на самом деле представляет собой сложную систему для моделирования и понимания. Сферическая частица с параметром размера $q > 10$ поддерживает несколько спектрально резких мод рассеяния Ми, и точное моделирование влияния на них воздушной полости является сложной задачей, поскольку простые морфологические возмущения (наличие полости) приводят к значительным изменениям в распределении мод.

Для возбуждения резонансов Фано высокого порядка требуется прецизионная подгонка параметров размера сферы и полости при заранее заданных показателе преломления диэлектрика и внешнего диаметра сферы. Мы показали, что рассеяние света мезоразмерной полый диэлектрической сферой с малыми потерями позволяет наблюдать оптические эффекты резонанса Фано высокого порядка, обнаруженные ранее для монолитных сфер [10, 18, 21]. Ес-

ли в монолитной диэлектрической сфере достижение суперрезонанса обеспечивается точным выбором внешнего диаметра частицы, то в полый сфере при заранее заданном внешнем размере сферы, достижение суперрезонанса обеспечивается точным выбором размера радиуса полости. В мезотронике сферических диэлектрических частиц резонанс Фано обеспечивает резкий переход от локализованных полей с относительно слабой интенсивностью к гигантским магнитным полям. Так, для частицы с показателем преломления 1.5 и параметром размера $q \sim 40$ резонансная мода имеет номер $l = 52$. При этом возможна генерация электрического и магнитного полей с относительными интенсивностями в полюсах сферы около $10^6 \dots 10^7$ при превышении интенсивности магнитного поля над электрическим более 15 раз. Рассмотренные эффекты расширяют палитру возможных методов генерации экстремально высоких магнитных полей диэлектрическими мезоразмерными сферами. Заметим, что одна из возможных технологий изготовления полый сферы из боросиликатного стекла [21] описана в [32].

Исследование поддержано программой развития ТПУ и программой естественнонаучных исследований Хуайань (# НАВ202153).

1. B. Luk'yanchuk, N. I. Zheludev, S. A. Maier, N. J. Halas, P. Nordlander, H. Giessen, and C. T. Chong, *Nature Mater.* **9**, 707 (2010).
2. П. Тонкаев, Ю. Кившарь, *Письма в ЖЭТФ* **112**(10), 658 (2020).
3. A. E. Miroshnichenko, *Phys. Rev. A* **81**, 053818 (2010).
4. H. Chen, L. Shao, Y. C. Man, C. Zhao, J. Wang, and B. Yang, *Nano-micro small.* **8**(10), 1503 (2012).
5. S. Garg and M. Venkatapathi, *J. Opt.* **19**, 075603 (2017).
6. M. Retsch, M. Schmelzeisen, H.-J. Butt, and E. L. Thomas, *Nano Lett.* **11**, 1389 (2011).

7. S. Liu, B. Shi, Y. Wang, L. Cui, J. Yang, W. Sun, and H. Li, *Opt. Lett.* **42**(22), 4659 (2017).
8. Д.В. Стороженко, В.П. Дзюба, Ю.Н. Кульчин, *Письма в ЖТФ* **44**(16), 75 (2018).
9. B. Keen and A. Porter, *Roy. Soc. Proc. A* **89**, 370 (1913).
10. Z. Wang, B. Luk'yanchuk, L. Yue, B. Yan, J. Monks, R. Dhama, O.V. Minin, I.V. Minin, S. Huang, and A. Fedyanin, *Sci. Rep.* **9**, 20293 (2019).
11. L. Yue, B. Yan, J. Monks, Y. Joya, R. Dhama, O.V. Minin, and I.V. Minin, *Ann. Phys. (Berlin)* **532**, 2000373 (2020).
12. B.S. Luk'yanchuk, A. Bekirov, Z. Wang, I.V. Minin, O.V. Minin, and A. Fedyanin, *Physics of Wave Phenomena* **30**(4), 217 (2022).
13. V.R. Dantham and P.B. Bisht, *J. Opt. Soc. Am. B* **26**(2), 290 (2009).
14. S. Liu, B. Shi, W. Sun, H. Li, and J. Yang, *Appl. Phys. Express* **11**, 082201 (2018).
15. T. Yang, T. Fu, and Y. An, *Phys. Plasmas* **29**, 012103 (2022).
16. Y. Cao, Z. Liu, O.V. Minin, and I.V. Minin, *Nanomaterials* **9**(2), 186 (2019).
17. Y. Geints, O.V. Minin, and I.V. Minin, *Opt. Commun.* **524**, 128779 (2022).
18. I.V. Minin, O.V. Minin, and S. Zhou, *JETP Lett.* **116**(3), 144 (2022).
19. W. Cai, U. Chettiar, H. Yuan, V. de Silva, A. Kildishev, V. Drachev, and V. Shalaev, *Opt. Express* **15**, 3333 (2007).
20. I.V. Minin, O.V. Minin, and S. Zhou, *Tech. Phys. Lett.* **48**(18), 41 (2022).
21. O.V. Minin, I.V. Minin, and S. Zhou, *Optoelectronics, Instrumentation and Data Processing* **58**(5), 514 (2022).
22. C. Bohren and D. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*, WILEY-VCH Verlag, N.Y. (1998).
23. R.L. Hightower and C.B. Richardson, *Appl. Opt.* **27**(23), 4850 (1988).
24. I.L. Rasskazov, P.S. Carney, and A. Moroz, *OSA Continuum* **3**, 2290 (2020).
25. Г.П. Зограф, Й.Ф. Ю, К.В. Барышникова, А.И. Кузнецов, С.В. Макаров, *Письма в ЖЭТФ* **107**(11), 732 (2018).
26. T. Hoang, Y. Duan, X. Chen, and G. Barbastathis, *Opt. Express* **23**(9), 12337 (2015).
27. A. Chiasera, Y. Dumeige, P. Feron, M. Ferrari, Y. Jestin, G. Conti, S. Pelli, S. Soria, and G. Righini, *Laser Photonics Rev.* **4**(3), 457 (2010).
28. А.П. Тарасов, А.С. Лавриков, Л.А. Задорожная, В.М. Каневский, *Письма в ЖЭТФ* **115**(9), 554 (2022).
29. А.Н. Ораевский, *Квантовая электроника* **32**(5), 377 (2002).
30. D. Pluchon, N. Huby, V. Vie, P. Panizza, and B. Beche, *Optics and Photonics Journal* **3**(4), 291 (2013).
31. I. Kandas, B. Zhang, C. Daengngam, I. Ashry, C.-Y. Jao, B. Peng, S.K. Ozdemir, H.D. Robinson, J.R. Heflin, L. Yang, and Y. Xu, *Opt. Express* **21**, 20601 (2013).
32. X. Xie and X. Zhou, *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects* **386**, 158 (2011).

Пространственные расстояния внутри скомканного полимера со случайными петлями¹⁾

Б. Славов, К. Половников²⁾

Сколковский институт науки и технологий, 121205 Москва, Россия

Поступила в редакцию 15 июня 2023 г.

После переработки 29 июня 2023 г.

Принята к публикации 30 июня 2023 г.

В качестве минимальной модели организации хромосом была предложена модель скомканного полимера, дополнительно свернутого в случайные петли. Как петли влияют на пространственные расстояния в таком полимере? В данной работе мы исследуем статистику внутрицепочечных расстояний $R(s)$ на разных масштабах контурной длины s в ансамбле полимерных конфигураций с замороженным беспорядком петель. Мы описываем эффект петель, аналитически решая модель скомканной полимерной цепи, которая долгое время предлагалась как нулевая модель организации хроматина. Как мы показываем, цепочка компактизуется при добавлении петель и имеет характерную впадину на $R(s)$ на масштабе длины в несколько размеров петель λ . Количественно сравнивая $R(s)$ с поведением функции вероятности контакта $P_c(s)$, вычисленной нами ранее [1, 2], мы дополнительно демонстрируем нарушение известного приближения среднего поля между двумя наблюдаемыми величинами. Последний результат является ярким отражением негауссовости полимерного ансамбля, вызванным беспорядком петель. В совокупности наши теоретические выводы прокладывают путь к количественному анализу параметров хромосом с петлями из данных микроскопии *in vivo* и предостерегают исследователей от использования гауссовых методов анализа усредненных по популяции экспериментальных данных (например, Hi-C).

DOI: 10.31857/S1234567823150107, EDN: hyftlk

Введение. Полимеры хромосомной ДНК организованы в петли, которые выполняют как структурную, так и генную регуляторную роль внутри клеточного ядра [3, 4]. Сворачивание в хроматиновые петли обеспечивает эффективное уплотнение хромосом человека длиной 10 см внутри ядра микронного размера. Однако количественные оценки этого уплотнения в петли отсутствуют.

Экструзия петель с помощью когезинового мотора, как полагают, представляет собой ведущий механизм, ответственный за создание коротких петель. Предсказанная теоретически на основе полимерного моделирования данных Hi-C [5], экструдирующая способность когезина позже была независимо продемонстрирована при визуализации одиночных молекул двумя группами [6, 7], что позволяет предположить, что когезин действительно может составлять основной источник коротких петель в интерфазных хромосомах. Сворачивание в петли посредством активной экструзии петель в настоящее время признано одним из наиболее фундаментальных физических

механизмов в хромосомах, облегчающим их распутывание [8–10], генную регуляцию и репарацию ДНК [11–13], необходимо для конденсации и сегрегации хромосом при входе в митоз [9, 14], а также может играть важную роль при выходе из митоза [10]. Однако отсутствие аналитической модели полимера, свернутого в короткие случайные петли по механизму экструзии петель, ограничивает нашу способность интерпретировать экспериментальные данные.

Одной из основных трудностей теоретического описания трехмерной организации хромосом является неидеальная укладка хромосомного полимера с сильным эффектом “памяти” вдоль по конформации. Действительно, и микроскопия, и данные Hi-C показывают, что размеры сегментов $R(s)$ и функция вероятности контакта $P_c(s)$ на масштабах $s < 3$ Мб ведут себя примерно как $R(s) \sim s^{1/3}$ и $P_c(s) \sim s^{-1}$, соответственно. Такие зависимости разительно отличаются от предсказаний модели идеальной цепи ($R(s) \sim s^{1/2}$ и $P_c(s) \sim s^{-3/2}$) и соответствуют модели скомканной глобулы [15, 16], которая описывает конфигурации топологически стабилизированных полимеров. В контексте хроматина скомканная глобула была теоретически предположена в [17, 15]. Как показывают самые последние данные Hi-C [18, 19], возмущение

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

²⁾e-mail: kipolovnikov@gmail.com

когезиновых петель в клетке расширяет масштабы смятой глобулы в $P_c(s)$ до более коротких масштабов длины, $s \approx 50$ кб, что предполагает, что петли, опосредованные когезином, образуются поверх незацепленных цепочек [20–24]. Хотя сворачивание в петли как теоретическая идея укладки хромосом не нова (см. [20, 21, 22, 23, 24] и, совсем недавно, [25, 26]), как это сворачивание количественно влияет на пространственные расстояния в скомканном полимере, до сих пор являлось открытым вопросом.

В данной работе в рамках недавно предложенной аналитической модели фрактального полимера, свернутого в случайные петли, мы количественно исследуем внутрицепочечные пространственные расстояния в скомканном полимере с короткомасштабными случайными петлями. Как и в предыдущих работах [2, 1, 26], мы придерживаемся подхода “вмороженного” беспорядка, т.е. рассматриваем ансамбль равновесных полимерных конфигураций, каждая из которых характеризуется фиксированной последовательностью случайно расположенных петель. Кроме того, мы демонстрируем негауссовость, присущую такому ансамблю из-за беспорядка петель. Путем сравнения средних расстояний $R(s)$ в полимере с функцией вероятности контакта $P_c(s)$ в рамках модели мы получаем измеряемые характеристики негауссовости хромосом, доступные в микроскопии и Hi-C экспериментах. В теоретическом плане подчеркиваем, что связь между $R(s)$ и $P_c(s)$, вытекающая из приближения среднего поля и широко используемая в литературе по физике полимеров, нарушается из-за складывания в случайные петли.

Фрактальный полимер сложенный в случайные петли. Чтобы разделить эффект фрактальности и эффект петель, начнем с модели “бусинки на нити” гибкой полимерной цепи с фрактальной размерностью d_f , т.е. средний квадрат размера сегмента длины s равен

$$R_0^2(s) = b^2 s^{2/d_f}, \quad (1)$$

где b – масштаб одной бусинки (см. рис. 1a). В отсутствие каких-либо взаимодействий между бусинками, кроме гармонических соединений вдоль цепочки, статистика остается идеальной при $d_f = 2$ [27]. Топологические взаимодействия в скомканной глобуле в трех измерениях сворачивают цепочку в компактный объект с фрактальной размерностью $d_f = 3$ [15, 17]. В целом, для описания субдиффузионного полимера любой фрактальной размерности $d_f \geq 2$ в [28] был предложен квадратичный гамильтониан, который отображает фрактальные конформации полимера в траектории дробной броуновской частицы

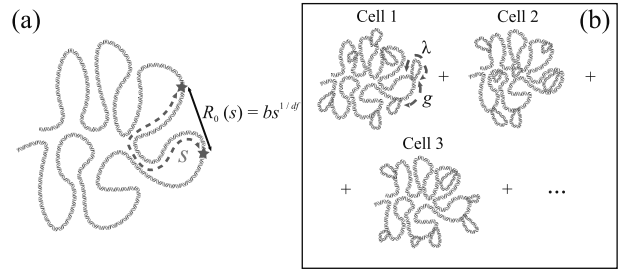


Рис. 1. (Цветной онлайн) Иллюстрация модели. (a) – Фрактальная цепь с фрактальной размерностью d_f . (b) – Ансамбль фрактальных петель, сложенных в случайные конфигурации петель со средней длиной g и разделенных промежутками средней длины λ . Петли фиксированы для каждой цепочки и показаны красным. Как пространственные расстояния между мономерами меняются в присутствии таких петель?

(fBm). Такой подход предлагает аналитическую основу для изучения различных аспектов структуры и динамики хромосом вследствие их фрактальности [29, 30]. В дальнейшем, как и в наших предыдущих работах [2, 1], для возможности аналитического исследования модели мы будем использовать эту гауссову модель фрактальных цепочек, изоморфную траекториям fBm [28]. Хотя экспериментальные наблюдения говорят в пользу частного случая скейлинга скомканной глобулы с $d_f = 3$ [18, 31], мы решаем модель в общем случае для произвольного d_f .

Далее, рассмотрим ансамбль фрактальных цепочек, свернутых в последовательности петель и промежутков (линейных сегментов), см. рис. 1b. Петли в каждой цепочке расположены случайным образом и имеют случайную длину, взятую из экспоненциального распределения со средним λ и разделены промежутками средней длины g . Следуя подходу вмороженного беспорядка, мы предполагаем, что каждая цепь в ансамбле находится в *тепловом равновесии* вместе со своим набором петель и промежутков. Фрактальная статистика (1) рассматривается как неотъемлемое свойство цепи, связанное со специфическими взаимодействиями в полимере (например, с крупномасштабными топологическими ограничениями), которые не разрушаются короткомасштабными петлями. На самом деле, длина зацепления скомканной хромосомы может измениться при добавлении петель, как это недавно было показано в [2]. Кроме того, предполагается, что каждая цепь в ансамбле разбита на (i) остов с фрактальной размерностью d_f и (ii) *независимо* флуктуирующие мосты (петли). Последнее предположение соответствует нетопологическому связыванию когезином, что подробно обсуждается в [1].

Вектор $\mathbf{R}(s)$ между двумя точками, разделенными контурной длиной s , может быть вычислен для каждой из четырех основных диаграмм, которые классифицируют взаимное расположение бусинок на цепочке относительно оснований случайных петель (см. рис. 2). Далее вклад каждой из диаграмм взве-

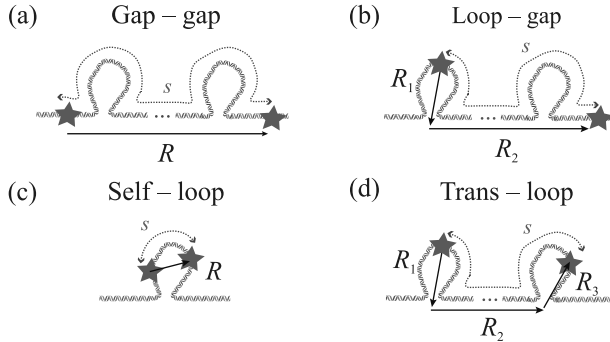


Рис. 2. (Цветной онлайн) Диаграммы зависимости среднего пространственного расстояния между бусинками $R(s)$ от контурного расстояния s : (a) – обе бусинки принадлежат промежуткам; (b) – одна бусинка сидит в петле, другая – в промежутке; (c) – обе бусинки принадлежат одной петле; (d) – бусинки принадлежат разным петлям

шивается соответствующим образом и усредняется по распределению петель и промежутков между ними (см. дополнительные материалы). Как показано на рис. 2, каждую реализацию вектора $\mathbf{R}$ можно разложить на независимые вклады внутренних векторов. Например, для межпетлевой диаграммы, изображенной на рис. 2d, $\mathbf{R} = \mathbf{R}_1 + \mathbf{R}_2 + \mathbf{R}_3$, где $\mathbf{R}_1$ и $\mathbf{R}_3$ описывают расстояния внутри моста и $\mathbf{R}_2$ лежит вдоль остова. Таким образом, $\mathbf{R}_2(s_2)$ следует статистике беспетлевого остова (1) с контурной длиной s_2 , а векторы $\mathbf{R}_1(L_1, s_1)$ и $\mathbf{R}_3(L_3, s_3)$ соответствуют точкам на расстояниях s_1 и s_3 от оснований двух fBm-мостов размеров L_1 и L_3 и фрактальной размерностью d_f (см. ниже).

Свободные гауссовы цепочки. В качестве обобщения идеальных гауссовых цепей в данной работе используются *фрактальные* гауссовские цепочки с $d_f \geq 2$, такие, что распределение вектора между мономерами при заданной контурной s остается гауссовым

$$P_{\text{eq}}(\mathbf{R} | s) = \left(\frac{3}{2\pi R_0^2(s)} \right)^{3/2} \exp \left(-\frac{3R^2}{2R_0^2(s)} \right), \quad (2)$$

где дисперсия $R_0^2(s)$ – это средний квадрат расстояния из (1). Поведение (2) определяет дробное броуновское движение (fBm), процесс, приращения

которого представляют собой интегралы по приращениям обычного броуновского движения, взвешенные с нелокальным алгебраическим ядром памяти [32]. Поскольку fBm является линейной комбинацией гауссовских процессов, он является гауссовым (2), однако сильно немарковским (корреляции вдоль траектории затухают алгебраически медленно). Немарковость и стационарность fBm позволяют использовать его для описания произвольных фрактальных полимерных цепей и для вывода эффективного нелокального гамильтониана таких состояний, как это сделано в [28, 30].

Гауссовы мосты. Для равновесного *идеального* гауссова моста размера L плотность вероятности вектора $\mathbf{R}$ между двумя узлами, разделенными контурным расстоянием s ($s < L$), определяется выражением

$$P_{\text{bridge}}(\mathbf{R} | s, L) = \left(\frac{3}{2\pi R_{\text{bridge}}^2(s | L)} \right)^{3/2} \exp \left(-\frac{3R^2}{2R_{\text{bridge}}^2(s | L)} \right), \quad (3)$$

где (см. [27])

$$R_{\text{bridge}}^2(s | L) = \frac{b^2 s(L-s)}{L}. \quad (4)$$

Используя эффективный гамильтониан для фрактальных гауссовых цепочек [28, 30], последнее уравнение можно обобщить для произвольной фрактальной размерности (см. вывод в [2]):

$$R_{\text{bridge}}^2(s | L) = R_0^2(s) \left(1 - \frac{(R_0^2(L) + R_0^2(s) - R_0^2(L-s))^2}{4R_0^2(s)R_0^2(L)} \right), \quad (5)$$

где $R_0^2(s)$ определяется как (1), т.е. среднее квадратичное расстояние для свободной цепи фрактальной размерности d_f . В частном случае $d_f = 2$ этот общий результат сводится к (4).

Вклады различных диаграмм для полимера с петлями. Каждая диаграмма (i) ($i = a, b, c, d$) определяется набором параметров $\{A\}_i$, таких как длина петель, плотность петель и т.д. Распределение $\mathbf{R}$ определяется средним квадратом расстояния $R_{(i)}^2(s | \{A\}_i)$ (см. (2)). Среднее значение любой функции F определяется как среднее значение $F(\mathbf{R})$, параметризованное радиус-вектором $\mathbf{R}$ между s -разделенными узлами полимера. Нас интересуют следующие три функции: вероятность контакта $P_c(s)$, средний квадрат расстояния $R^2(s)$ и плотность вероятности x -координаты $\rho(x | s)$ между узлами.

Каждое из них можно вычислить соответствующим образом, используя следующие функции от $\mathbf{R}$:

$$\begin{aligned} F_c(\mathbf{R}) &= \delta(\mathbf{R}), \\ F_R(\mathbf{R}) &= \mathbf{R}^2, \\ F_\rho(\mathbf{R} | x) &= \delta((\mathbf{R})_x - x). \end{aligned} \quad (6)$$

Среднее значение функции $F(\mathbf{R})$ для каждой диаграммы имеет вид

$$F_{(i)}(s | \{A\}_i) = \int_{\mathbb{R}^3} F(\mathbf{R}) \cdot P_{(i)}(\mathbf{R} | s, \{A\}_i) d\mathbf{R}, \quad (7)$$

где $P_{(i)}(\mathbf{R} | s, \{A\}_i)$ – нормальная плотность вероятности вектора $\mathbf{R}$ между парой мономеров для диаграммы (i) (см. рис. 1). Уравнение (7) для интересующих нас функций считается напрямую:

$$\begin{aligned} F_c &\rightarrow F_{(i)}(s | \{A\}_i) = \left(\frac{3}{2\pi R_{(i)}^2(s | \{A\}_i)} \right)^{3/2}, \\ F_R &\rightarrow F_{(i)}(s | \{A\}_i) = R_{(i)}^2(s | \{A\}_i), \\ F_\rho &\rightarrow F_{(i)}(x, s | \{A\}_i) = \\ &= \sqrt{\frac{3}{2\pi R_{(i)}^2(s | \{A\}_i)}} \exp\left(-\frac{3x^2}{2R_{(i)}^2(s | \{A\}_i)}\right). \end{aligned} \quad (8)$$

Наконец, каждая функция $F(s)$ (вероятность контакта, среднее квадратичное расстояние и плотность вероятности координаты x) усредняется по всем возможным конфигурациям полимера (беспорядок петель) и результат может быть выражен следующим образом:

$$F(s) = \sum_{i=a,b,c,d} \langle F_{(i)}(s | \{A\}_i) \rangle, \quad (9)$$

где скобки $\langle \dots \rangle$ обозначают усреднение по всевозможным значениям параметров.

Кратко повторим, какой порядок усреднения мы предполагаем. Во-первых, в рамках замороженного беспорядка мы классифицируем четыре типа взаимного расположения мономеров (см. рис. 1). Каждая замороженная конфигурация петель и промежутков обеспечивается соответствующим набором параметров $\{A\}_i$, который в равновесии дает гауссово распределение $\mathbf{R}_{(i)}(s | \{A\}_i)$. На данном этапе у нас есть четыре различных $F_{(i)}(s | \{A\}_i)$, четыре значения некоторой функции $F(\mathbf{R})$, усредненные по соответствующему распределению Гаусса. Во-вторых, нам нужно усреднить эти значения по всем возможным геномным позициям, разделенным контурной длиной s . Наконец, мы выполняем усреднение по распреде-

лению петель и промежутков. В результате для каждой диаграммы (i) имеем следующее выражение:

$$\begin{aligned} \langle F_{(i)}(s | \{A\}_i) \rangle &= \\ &= \int_{\{A\}_i} F_{(i)}(s | \{A\}_i) \cdot \mathcal{W}_i(\{A\}_i | s) d\{A\}_i, \end{aligned} \quad (10)$$

где $\mathcal{W}_i(\{A\}_i | s)$ – окончательный статистический вес диаграммы (i) . Мы вычисляем $\mathcal{W}_i$ и $\langle F_{(i)} \rangle$ явно в дополнительных материалах.

Среднеквадратичные расстояния между узлами скомканного полимера с петлями. Используя (10) и (8) с (9), можно получить окончательную усредненную вероятность контакта $P_c(s)$, среднее квадратичное расстояние $R^2(s)$ и плотность распределения $\rho(x | s)$ x -координаты вектора между мономерами, разделенными контурной длиной s (полные выражения см. в дополнительных материалах).

Рисунок 3 показывает зависимости $R^2(s)$, вычисленные численно для различной плотности пе-

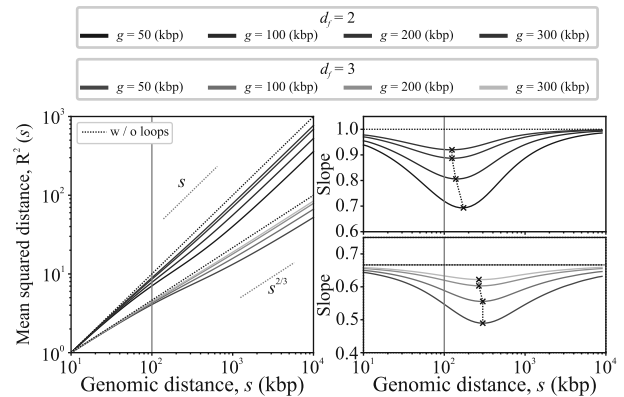


Рис. 3. (Цветной онлайн) Среднеквадратичное расстояние $R^2(s)$ для скомканного полимера с петлями с двумя значениями фрактальной размерности $d_f = 2, 3$, средней длиной петель $\lambda = 100$ кбп и различной средней длиной промежутков g . Каждая кривая нормирована так, что $R^2(s = 10) = 1$. Полимер без петель является просто фрактальной цепью, $R^2 \propto s^{2/d_f}$ (пунктирные черные линии). Вторая колонка: логарифмический наклон $d \ln R^2(s) / d \ln s$. Для $d_f = 2$ и $d_f = 3$ горизонтальные пунктирные линии соответствуют кривым s и $s^{2/3}$, соответственно

тель. Рассматриваются две фрактальные размерности: $d_f = 2$ (идеальное состояние) и $d_f = 3$ (скомканное состояние). Как и ожидалось, на усредненные пространственные расстояния наличие петель не влияет на малых масштабах, а на больших масштабах они несколько короче по сравнению со случа-

ем без петель. На масштабе $s \sim \lambda$ вклад диаграммы рис. 2с минимален, что приводит к максимальному провалу логарифмического наклона. Ясно, что на малых $s \ll \lambda$ и больших $s \gg \lambda$ масштабах типичное пространственное расстояние определяется диаграммой рис. 2а, поэтому кривая $R^2(s)$ в итоге восстанавливает исходный наклон фрактальной цепочки без петель, $\propto s^{2/d_f}$.

Рассматривая количественные различия в организации цепочек с петлями при различных фрактальных размерностях (см. рис. 3), видно, что влияние петель более выражено при $d_f = 2$. Подобное влияние петель на фрактальную цепочку ранее наблюдалось и для $P_c(s)$ [2]. Однако, в отличие от наклонов $P_c(s)$, положение провала в случае $d_f = 3$ сдвинуто от типичного размера петли λ почти в три раза. В случае идеальной цепи $d_f = 2$, характеризующемся отсутствием линейных корреляций между узлами полимера вдоль цепи, положение минимального наклона ближе к фактической длине петли λ . Интуитивно эту разницу можно понять следующим образом: так как из-за отрицательных корреляций в цепочке для $d_f = 3$ больше петель заполняет объем данной петли, эффективная длина петли увеличивается. Интересно, что положение провала в скомканном состоянии удивительно устойчиво к изменениям плотности петель. Это наблюдение облегчает извлечение размеров петель из данных микроскопии.

Негауссовость полимера, сложенного в петли. Ранее было высказано предположение, что функция вероятности контакта $P_c(s)$ полимера и пространственное расстояние $R(s)$, вообще говоря, не являются независимыми и могут быть связаны друг с другом в приближении среднего поля [27]. Аргумент основан на среднестатистическом приближении, согласно которому вероятность найти концевой мономер сегмента длины s в непосредственной близости от данного мономера обратно пропорциональна объему, занимаемому сегментом

$$P_c(s) \sim \frac{1}{V(s)} \sim R^{-3}(s). \quad (11)$$

Обратим внимание, что плотность вероятности фрактальных гауссовых цепей (2) автоматически дает тот же результат для произвольной фрактальной размерности d_f . Действительно, в пределах радиуса контакта $a \ll R_0$ вероятность контакта может быть аппроксимирована как $P_c \sim a^3 P_{eq}(\mathbf{0}) \sim R^{-3}$, т.е. как нормировочный коэффициент распределения Гаусса. В случае фрактального полимера с $d_f = 3$ приближение среднего поля дает $P_c \sim s^{-1}$, что приводит к логарифмической расходимости типичного

числа соседей одного мономера. На самом деле известно, что настоящие скомканые цепи (например, незаузеленные кольца) не являются гауссовыми и имеют показатель вероятности контакта несколько больше 1 [33].

В модели скомканного полимера с петлями мы начинаем с гауссовых цепей, т.е. каждая отдельная реализация представляет собой гауссов осто с присоединенными фиксированными гауссовыми мостами. Как мы уже обсуждали, приближение среднего поля $P_c \sim R^{-3}$ применимо для гауссовых цепей. Однако сохраняется ли это соотношение для конечных $P_c(s)$ и $R^2(s)$ после усреднения по распределению петель и промежутков? Оказывается, среднестатистическая оценка перестает работать после процедуры усреднения по замороженному беспорядку.

Чтобы выявить негауссовость, вызванную беспорядком петель, мы сначала сравним поведение функции вероятности контакта $P_c(s)$ с предсказанием среднего поля согласно (11). На рисунке 4а для $d_f = 2$ и рис. 4б для $d_f = 3$ показаны существенные количественные различия между кривыми $P_c(s)$ и $(R^2(s))^{-3/2}$.

Аналогично поведению функции $R^2(s)$ (см. рис. 3), статистика контактов на малых и больших масштабах следует беспетлевому режиму $\propto s^{-3/d_f}$, что делает промежуточные масштабы $s \sim \lambda$ наиболее интересными для анализа. Сразу можно отметить отсутствие характерного провала на кривой $(R^2(s))^{-3/2}$ в обоих случаях (идеальном, $d_f = 2$, и скомканном, $d_f = 3$). Кроме того, пик кривой $R^2(s)^{-3/2}$ смещен вправо по сравнению с пиком $P_c(s)$, который точно соответствует типичной длине петли λ . Последнее является следствием смещения наклона исходной кривой $R(s)$, которое обсуждалось выше (рис. 3).

Кроме того, негауссовость ансамбля полимеров с петлями может быть зафиксирована прямым вычислением плотности вероятности $(\mathbf{R})_x$ для различной контурной длины s (рис. 5). Поскольку ширина распределения зависит от s , мы дополнительно нормируем x . Как видно из рис. 5, после перемасштабирования сами кривые плотности трудно отличить от гауссовского распределения, характеризующего беспетлевую цепочку. С этой целью мы дополнительно строим двойной логарифм плотности: если случайная переменная ξ с нулевым средним имеет нормальное распределение, $\rho \propto \exp(-\xi^2/(2\sigma^2))$, то двойной логарифм этой плотности дает константу, $\ln \ln(\rho(0)/\rho) = 2$. Как и ожидалось, это в точности случай полимера без петель (пунктирные линии на рис. 5), что соответствует фрактальной (fBm) гаус-

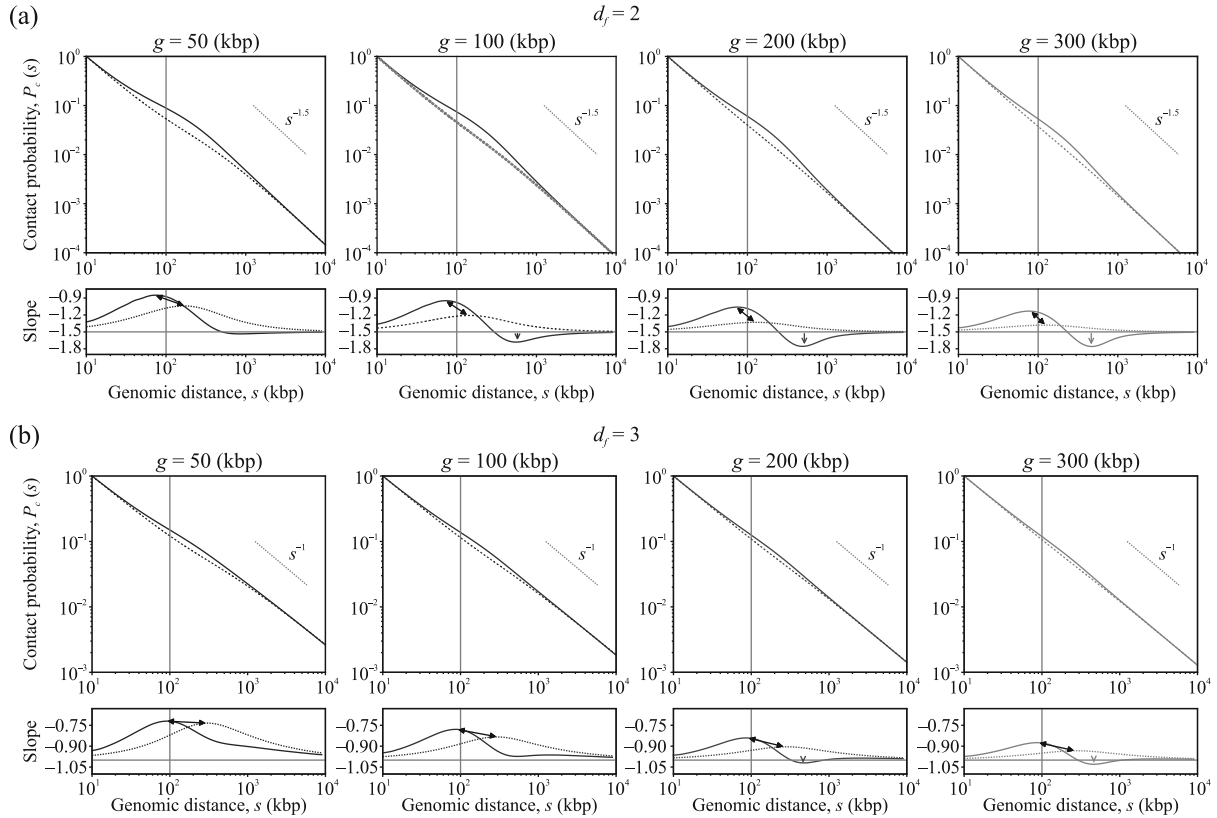


Рис. 4. (Цветной онлайн) Вероятность контакта $P_c(s)$ по сравнению с $(R^2(s))^{-3/2}$ (пунктирная линия) для скомканного полимера с петлями с фрактальной размерностью $d_f = 2$ (а) и $d_f = 3$ (б), средняя длина петель $\lambda = 100$ кбп и различной средней длиной промежутков g . Черные стрелки соединяют пики обеих кривых, а красные стрелки указывают на характерные провалы $P_c(s)$

совой цепи. Однако добавление петель меняет значение двойного логарифма на всех масштабах s . Примечательно, что интервал значений нормированного x , для которых $\ln \ln(\rho(0)/\rho) \approx 2$, растет с ростом s . Другими словами, с ростом длины сегмента s отличие от распределения Гаусса все больше вытесняется в область хвостов распределения. Поскольку диаграмма рис. 2а играет основную роль при больших значениях s , возникает соблазн представить весь полимер в этом масштабе как фрактальную гауссову свободную цепь длины $s_{\text{eff}} = s \cdot g/(\lambda + g)$. Действительно, как видно из рис. 5, $(\mathbf{R})_x$ точно следует распределению Гаусса, если значение x не превышает нескольких стандартных отклонений. Это согласуется с нашим анализом выше приближения среднего поля между $P_c(s)$ и $R(s)$ (рис. 4).

Выводы. В данной работе мы проанализировали влияние петель в модели скомканного полимера с точки зрения среднего квадрата расстояния $R^2(s)$ и вероятности контакта $P_c(s)$. Эти функции поддаются экспериментальному измерению, и часто считается, что они связаны в приближении среднего поля как

$P_c \sim R^{-3}$. Хотя это соотношение оправдано для гауссовой цепи (и вообще, для fBm-подобного полимера), мы показываем, что беспорядок петель на полимере разрушает гауссовость полимера, а также связь между двумя наблюдаемыми в приближении среднего поля. В частности, может показаться разумным думать про полимер с петлями на больших масштабах как про свободную полимерную цепь с некоторой эффективной длиной (как показано на диаграмме рис. 2а). Однако следует с осторожностью пользоваться этой интуицией при интерпретации экспериментальных данных по полимерным системам с петлями. Хотя это справедливо для типичных расстояний и, следовательно, дает правильные оценки для $P(s)$ и $R(s)$, плотность вероятности вектора расстояния ставится гауссовой только на масштабах, сильно превышающих размер петли.

Мы также показываем, что кривая $R^2(s)$ пригодна для измерения типичной длины петли λ из экспериментов (FISH) по положению минимума ее логарифмической производной. Это значение оказывается устойчивым к вариациям плотности петель в

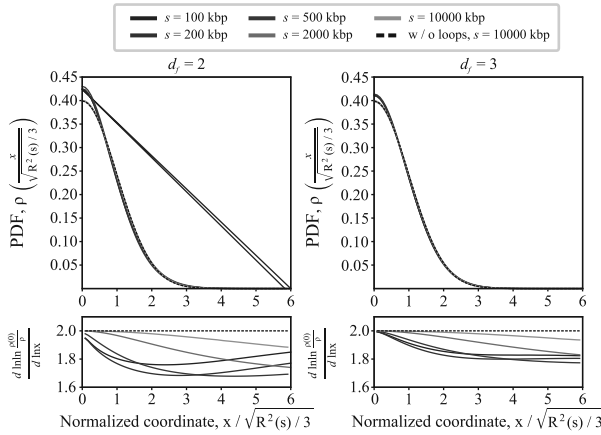


Рис. 5. (Цветной онлайн) Плотность распределения нормированной x -координаты вектора $\mathbf{R}$ между узлами, разделенными разной контурной длиной s . Левая панель соответствует фрактальной размерности $d_f = 2$, правая панель – $d_f = 3$. Длины петель и промежутков фиксированы и равны $\lambda = g = 100$ кбп. Нормирование x производится по его среднеквадратичному значению $\sqrt{R^2(s)/3}$, где $R^2(s)$ – средний квадрат расстояния между s -разделенными узлами полимера с петлями

скомканном состоянии ($d_f = 3$). Как правило, для обеих наблюдаемых, $P_c(s)$ и $R^2(s)$, эффект петель более выражен для идеальной цепи ($d_f = 2$), поскольку дополнительное уплотнение за счет петель менее заметно в уже скомканном состоянии. Однако, несмотря на меньшую амплитуду, положение провала в скомканном состоянии более устойчиво и, следовательно, облегчает получение λ из экспериментов.

Стоит отметить, что наша теоретическая модель использует распределение Гаусса для кривой $R^2(s)$ только при установлении связи (5) между средним квадратом расстояния в свободной цепи (остов) и мостом (петля). Как только эта связь установлена, окончательное выражение для $R^2(s)$ не зависит от явного вида распределения $\mathbf{R}$. Однако вычисление вероятности контакта $P_c(s)$ дополнительно опирается на соотношение Гаусса $F_i(s | \{A\}_i) \propto (R_{(i)}^2(s | \{A\}_i))^{-3/2}$ для каждой конкретной конфигурации цепочки со случайными петлями.

Наконец, представленная здесь теория позволяет выйти за рамки существующих аналитических моделей полимеров с петлями, которые ограничивались петлями на идеальной цепи с фрактальной размерностью $d_f = 2$ [26]. Как показали недавние эксперименты Hi-C [18] и FISH [31] на клетках без когезина, хромосомы без петель представляют собой скомканные объекты, характеризующиеся фрактальной размерностью $d_f \approx 3$. Допуская произвольную фрактальную размерность $d_f \geq 2$, наша теория позволяет ко-

личественно оценить соотношение между фрактальной укладкой цепи и случайными петлями, наложенными поверх фрактала. С растущим качеством данных FISH мы ожидаем, что наша модель предложит надежную оценку параметров петель из пространственных расстояний внутри полимера с петлями.

Мы благодарим Леонида Мирного, Сергея Нечаева, Мехрана Кардара, Хьюго Брандао, Витторе Сколари и Сергея Белана за полезные обсуждения по теме статьи.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант # 21-73-00176).

Кирилл Половников выражает признательность LPTMS (CNRS-Université Paris-Saclay) и Институту Кюри (Париж), где была проделана часть работы.

1. K. Polovnikov and B. Slavov, Phys. Rev. E **107**, 054135 (2023).
2. K. Polovnikov, B. Slavov, S. Belan, M. Imakaev, H. B. Brand'ao, and L. A. Mirny, bioRxiv (2023).
3. L. Mirny and I. Solovei, Nat. Rev. Mol. Cell Biol. **22**, 439 (2021).
4. E. J. Banigan and L. Mirny, Curr. Opin. Cell Biol. **64**, 124 (2020).
5. G. Fudenberg, N. Abdennur, M. Imakaev, A. Goloborodko, and L. Mirny, Harbor symposia on quantitative biology **82**, 45 (2017).
6. T. Terakawa, S. Bisht, J. M. Eeftens, C. Dekker, C. H. Haering, and E. C. Greene, Science **358**, 672 (2017).
7. M. Ganji, I. A. Shaltiel, S. Bisht, E. Kim, A. Kalichava, C. H. Haering, and C. Dekker, Science **360**, 102 (2018).
8. E. Orlandini, D. Marenduzzo, and D. Michieletto, Proceedings of the National Academy of Sciences **116**, 8149 (2019).
9. A. Goloborodko, J. F. Marko, and L. A. Mirny, Biophys. J. **110**, 2162 (2016).
10. E. Hildebrand, K. Polovnikov, B. Dekker, Y. Liu, D. Lafontaine, A. Fox, Y. Li, S. Venev, L. Mirny, and J. Dekker, bioRxiv (2022).
11. J. Dixon, S. Selvaraj, F. Yue, A. Kim, Y. Li, Y. Shen, M. Hu, J. Liu, and B. Ren, Nature **485**, 376 (2012).
12. C. Arnould, V. Rocher, A.-L. Finoux, T. Clouaire, K. Li, F. Zhou, P. Caron, P. Mangeot, E. Ricci, R. Mourad, J. Haber, D. Noordermeer, and G. Legube, Nature **590**, 660 (2021).
13. A. Piazza, H. Bordelet, A. Dumont, A. Thierry, J. Savocco, F. Girard, and R. Koszul, Nat. Cell Biol. **23**, 1176 (2021).
14. S. Brahmachari and J. Marko, Proceedings of the National Academy of Sciences **116**, 24956 (2019).
15. A. Grosberg, S. Nechaev, and E. Shakhnovich, Journal de physique **49**, 2095 (1988).

16. L. Mirny, *Chromosome Res.* **19**, 37 (2011).
17. A. Grosberg, Y. Rabin, S. Havlin, and A. Neer, *Europhysics Letters* **23**, 373 (1993).
18. T. Hsieh, C. Cattoglio, E. Slobodyanyuk, A.S. Hansen, X. Darzacq, and R. Tjian, *BioRxiv* (2021).
19. S. Rao, S.-C. Huang, B.-G. St Hilaire et al. (Collaboration), *Cell* **171**, 305 (2017).
20. C. Münkler, R. Eils, S. Dietzel, D. Zink, C. Mehring, G. Wedemann, T. Cremer, and J. Langowski, *J. Mol. Biol.* **285**, 1053 (1999).
21. R.K. Sachs, G. Van Den Engh, B. Trask, H. Yokota, and J.E. Hearst, *Academy of Sciences* **92**, 2710 (1995).
22. M. Bohn and D. Heermann, *Phys. Rev. E* **76**, 051805 (2007).
23. O. Shukron and D. Holcman, *Phys. Rev. E* **96**, 021503 (2017).
24. J. Mateos-Langerak, W. Bohn, M. de Leeuw, O. Giromus, E. Manders, P. Verschure, M. Indemans, H. Gierman, D. Heermann, R. van Driel, and S. Goetze, *PNAS* **106**, 3812 (2009).
25. S. A. Belan and D.E. Starkov, *JETP Lett.* **115**, 763 (2022).
26. S. Belan and V. Parfenyev, *arXiv:2301.03856* (2023).
27. A.Y. Grosberg and A.R. Khokhlov, *Statistical Mechanics of Macromolecules*, AIP, Woodbury, NY. (1994), p. 350.
28. K. Polovnikov, S. Nechaev, and M.V. Tamm, *Soft Matter* **14**, 6561 (2018).
29. K. Polovnikov, M. Gherardi, M. Cosentino-Lagomarsino, and M. Tamm, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 088101 (2018).
30. K. Polovnikov, S. Nechaev, and M. V. Tamm, *Phys. Rev. E* **99**, 032501 (2019).
31. B. Bintu, L. Mateo, J.-H. Su, N. Sinnott-Armstrong, M. Parker, S. Kinrot, K. Yamaya, A. Boettiger, and X. Zhuang, *Science* **362**, eaau1783 (2018).
32. B. Mandelbrot and J. Van Ness, *SIAM review* **10**, 422 (1968).
33. A. Grosberg, *Soft Matter* **10**, 560 (2014).

Surface-electrode ion trap development

T. Abbasov⁺¹⁾, S. Zibrov, I. Sherstov⁺*

⁺*Skolkovo Institute of Science and Technology, 121205 Moscow, Russia*

^{*}*P. N. Lebedev Physical Institute Russian Academy of Sciences, 117924 Moscow, Russia*

Submitted 3 July 2023

Resubmitted 10 July 2023

Accepted 10 July 2023

DOI: 10.31857/S1234567823150119, EDN: hygbjm

Since the first experiments with trapped ions were conducted in the late 50s of the 20th century [1–3], systems with stored ions became very popular in frequency standards and quantum simulation applications [4–8]. Precise frequencies are being used for accurate definition of physical units and timekeeping. Enough to mention, the resolution of global navigation satellite systems (GNSS) like GPS, GLONASS, and GALILEO rely on the stability of the onboard atomic clocks [9–10].

The further development of optical frequency standards for practical applications as (sat and inertial navigation, gravimetry etc.) requires a significant miniaturization of all key components of existing standards by factor of 10 [9]. The most promising architecture for a compact Paul trap typically used for frequency standard applications is a chip-based surface trap with electrodes located in one plane. Such architecture also has the advantage of optical access to the stored ion because ions are trapped above the surface of the trap. It allows guiding radiation from different laser systems into the ion, detecting it, and collecting light with a higher probability [11]. Also such architecture can be used with integrated photonic circuits which can help to minimize the sizes of the whole system and make it more convenient to use.

We chose a surface-electrode trap design in which all electrodes were aligned in the same plane. The model of our trap is based on the approach described in [11–13] and is shown in Fig. 1. A stripe of a ground (GND) electrode is located between two stripe-shaped radio frequency (RF) electrodes. The direct current (DC) voltages are applied to the segmented electrodes on both sides of the RF electrodes which confine the ions in the axial direction and compensate the secular motions. All electrodes are located on top of the dielectric substrate.

To have an additional optical access for the laser light to the stored ions and/or enable additional optical

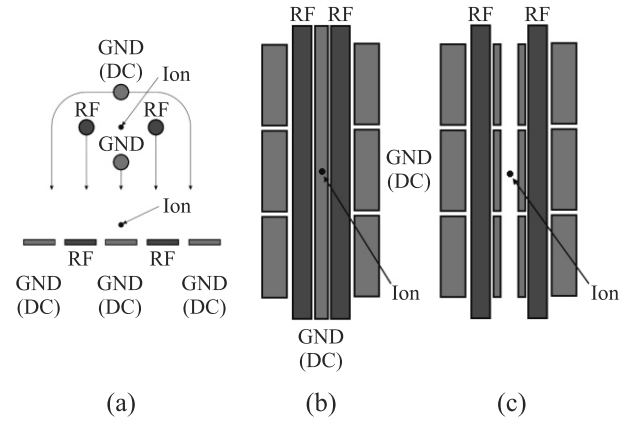


Fig. 1. (Color online) Planar ion trap design serve as equivalent to the rod electrodes. The surface electrodes from a side view (a), top view (b) and surface trap with the hole in the central electrode (c)

elements such as the photonic integrated circuits into the design of ion traps, it is possible to introduce a hole in the central electrode [11] under the stored ion, as shown in Fig. 1c.

As for the main trap parameters which we want to calculate, we chose the depth of the trap (d), the secular frequency (ω_{sec}), and the height of the ion above the surface of the electrodes (h). According to the linear Paul trap theory, which is described in [13], the depth of the trap can be defined as the highest value of a pseudopotential which the ion needs to overcome on its way to infinity. The pseudopotential can be written as:

$$\Psi(x, y, z) = \frac{Q}{4M\Omega^2} \times (|\nabla\Phi(x, y, z)|)^2, \quad (1)$$

where Q is a charge of the ion, M is a mass of the ion, Ω is a frequency of the RF field. From the simulations of Ψ , it is clear that in the xy –plane maximum of the Ψ is located on the y -axis (perpendicular to the trap xz -plane). So d can be calculated as:

$$d = \Psi(h_{\text{max}}) - \Psi(h), \quad (2)$$

¹⁾e-mail: timur.abbasov@skoltech.ru

where $h_{\max}$ is the coordinate (altitude) where the highest value of a pseudopotential on a y -axis above the ion is achieved. To estimate the secular frequency, we use the following equation from the linear Paul trap theory [13]:

$$\omega_{\text{sec}}(x, y) = \frac{q_0 \Omega}{2\sqrt{2}}, \quad (3)$$

where $q_0 = q \cdot \varepsilon$ is a stability parameter (q -parameter) of a non-hyperbolic trap, ε is an efficiency parameter (typically 0.2–0.3 for the surface trap as shown in [13]) and q is a q -parameter for a hyperbolic trap:

$$q = \frac{2QV_{rf}}{mR_0^2\Omega^2}, \quad (4)$$

where V_{rf} – is an amplitude of the RF voltage. To be in the experimental conditions convenient for the laser focusing, we have to consider $h > 150 \mu\text{m}$.

The following parameters were being changed during the optimization process: the width of the central electrode $w_c \in [200; 600] \mu\text{m}$ and $w_c \in [70; 100] \mu\text{m}$ for the trap with the hole in the central electrode, the width of RF electrodes $w_r \in [100; 400] \mu\text{m}$ and $w_r \in [70; 100] \mu\text{m}$ for the trap with the hole in the central electrode, and the width of the central hole $h_c \in [20; 50] \mu\text{m}$ for the trap with the hole in the central electrode. The following parameters were being calculated in our simulations: d – the trap depth, h – the height of the stored ion above trap surface, and ω_{sec} – the secular frequency of the stored ion. The frequency of the RF field (Ω) in our simulations was chosen to be $2\pi \cdot 10 \text{ MHz}$ and an amplitude of the RF voltage (V_{rf}) was chosen to be 100 V as a suitable value for electrodes situated at a distance of 5–10 μm to prevent electrical breakdown in the vacuum between them.

The simulation results indicate that by decreasing the geometrical parameters of the trap we have an increase in the trap depth and the secular frequency, while the height of the stored ion is decreased. There are no significant changes in these parameters with the variation of the width of the RF electrodes, particularly in comparison to changes resulting from the varying of other geometrical parameters.

Based on the calculated data, one can select appropriate parameters and fabricate the ion trap with customized characteristics to suit a specific range of applications.

Using the results of our calculations, we have identified several designs for our future surface ion trap. The parameters of these designs chosen to meet the specific requirements and based on the outcomes of this study.

Our study demonstrates the development process of the chip-based surface ion traps with the electrodes located in a plane.

In this research, we have presented the development process for the class of the segmented planar ion traps that is used for various applications. Our focus was primarily on the determination of the trap depth, the secular frequency, and the ion height above the surface. Our results can be used to design the traps with the designed characteristics and for the specific purposes. Furthermore, the scalability of the trap design allows the storage of extended chains of ions, making it a promising candidate for the quantum computation.

This is an excerpt of the article “Surface-electrode ion trap development”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023602063

1. W. Paul, O. Osberghaus, and E. Fischer, *Forsch. ber. Wirtsch. Verkehrsminist. Nordrh.-Westfal.* **415**, 42 (1958).
2. R. F. Wuerker, H. Shelton, and R. V. Langmuir, *J. Appl. Phys.* **30**, 342 (1959).
3. E. Fischer, *Z. Phys.* **156**, 1 (1959).
4. W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. E. Toschek, and H. Dehmelt, *Phys. Rev. A* **22**, 1137 (1980).
5. F. G. Major, V. N. Gheorghe, and G. Werth, *Charged Particle Traps*, Springer, Berlin (2010).
6. T. Rosenband, D. B. Hume, P. O. Schmidt et al. (Collaboration), *Science*. **319**, 1808 (2008).
7. C. W. Chou, D. B. Hume, J. C. J. Koelemeij, D. J. Wineland, and T. Rosenband, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 070802 (2010).
8. S. Seidelin, J. Chiaverini, R. Reichle et al. (Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **96**, 253003 (2006).
9. K. Khabarova, D. Kryuchkov, A. Borisenko, I. Zalivako, I. Semerikov, M. Aksenov, I. Sherstov, T. Abbasov, A. Tausenev, and N. Kolachevsky, *Symmetry* **10**, 2213 (2022).
10. R. Fritz, *Frequency Standards: Basics and Applications*, John Wiley & Sons, Weinheim (2006).
11. C. E. Pearson, *Theory and Application of Planar Ion Traps*, Master thesis, University of Washington, Seattle (2006).
12. J. Chiaverini, R. B. Blakestad, J. Britton, J. D. Jost, C. Langer, D. Leibfried, R. Ozeri, and D. J. Wineland, *Quantum Information and Computation* **5**(6), 419 (2005).
13. M. Niedermayr, *Cryogenic surface ion traps*, PhD thesis, University of Innsbruck, Innsbruck (2015).

Оптимизация ячеек адиабатических сверхпроводниковых логических устройств за счет использования джозефсоновских π -контактов¹⁾

Г. С. Хисматуллин^{+,*}, Н. В. Кленов^{×,°2)}, И. И. Соловьев^{+,°}

⁺НИИ ядерной физики имени Д. В. Скобельцына МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

^{*}Российский квантовый центр, 143025 Москва, Россия

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

[°]Национальный исследовательский технологический университет “МИСиС”, 119049 Москва, Россия

Поступила в редакцию 28 апреля 2023 г.

После переработки 27 июня 2023 г.

Принята к публикации 28 июня 2023 г.

Адиабатические сверхпроводниковые логические (АСЛ) схемы могут стать ключом к реализации на практике операций с диссипацией энергии менее предела Ландауэра. Однако практическая востребованность существующих решений ограничена из-за двух противоречащих друг другу требований: высокой энергоэффективности и достаточно высокого быстродействия устройств. Использование джозефсоновских контактов с отрицательным критическим током (π -контактов) позволяет получать определенный вид потенциальной энергии сверхпроводниковых цепей и, как следствие, требуемую на практике степень контроля над динамическими процессами в предложенных обратимых логических ячейках. Особенности токового транспорта и баланса джозефсоновских фаз в цепях с π -контактами позволяют улучшить более чем в два раза связь между частями обратимого вычислителя. Вместе с тем, непрерывная эволюция состояния обеспечивается при более высоких значениях критических токов и характерных напряжений основных джозефсоновских контактов ячеек АСЛ, что обуславливает возможность увеличения их быстродействия.

DOI: 10.31857/S1234567823150120, EDN: hygfzw

Введение. Обработка больших объемов данных требует поиска наиболее энергоэффективных способов выполнения вычислений. В этой связи применение сверхпроводящих материалов представляется перспективным [1–4]. На примере адиабатических сверхпроводниковых логических (АСЛ) устройств с физически обратимыми процессами переключения между устойчивыми состояниями (логическими “0” и “1”) продемонстрирована возможность выхода на уровень диссипации всего лишь зеттаджоулевой энергии на логическую операцию, длительность которой измеряется пикосекундами [5–10]. Устройства на базе АСЛ схем рассматриваются в качестве процессоров [11] для суперкомпьютеров следующего поколения, криогенной памяти [12], специализированных криптографических [13] и нейроморфных [14] процессоров. Особенно актуальны достоинства АСЛ-

систем в составе интерфейсных схем для квантовых вычислителей [15–20].

В основе АСЛ цепей лежит схема параметрического квантрона (ПК, см. рис. 1 слева) – одноконтактного сверхпроводящего интерферометра, в котором критический ток I_c джозефсоновского контакта может варьироваться под внешним воздействием.

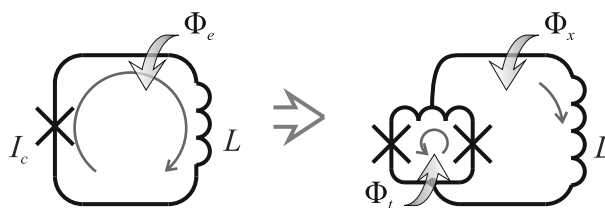


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема ПК показана слева. Состояние ячейки определяется потоком Φ_e , I_c – критический ток джозефсоновского перехода; L – индуктивность контура. Справа – схема ПК с заменой джозефсоновского перехода на интерферометр (СКВИД). Фазы переходов СКВИДа управляются независимым заданием потоков Φ_x , Φ_t

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

²⁾e-mail: nvklenov@mail.ru

Разберем “энергетическую картину” функционирования ПК. Потенциальная энергия (“потенциал”) складывается из энергии джозефсоновского тока и магнитной энергии, запасенной в индуктивности:

$$\frac{2\pi U}{E_J} = -\cos(\varphi) + \frac{(\varphi - \varphi_e)^2}{2l}, \quad (1)$$

где φ – джозефсоновская фаза контакта, $\varphi_e = \frac{2\pi\Phi_e}{\Phi_0}$, $l = 2\pi I_c L / \Phi_0$ – нормированные внешний магнитный поток и индуктивность, $E_J = I_c \Phi_0$ – джозефсоновская энергия контакта, Φ_0 – квант магнитного потока. Внешний магнитный поток Φ_e определяет ток, циркулирующий в сверхпроводящей петле, и, следовательно, фазу джозефсоновского контакта φ . При этом экранирование внешнего потока циркулирующим током зависит от параметров схемы: критического тока и индуктивности. Выражение (1) иллюстрирует связь между внешним магнитным потоком и джозефсоновской фазой: для заданного значения нормированного внешнего потока φ_e минимум энергии достигается при определенном значении джозефсоновской фазы φ . Причем увеличение критического тока I_c приводит к росту джозефсоновской энергии и нормированной индуктивности l , что дает уменьшение кривизны параболы индуктивного слагаемого потенциальной энергии. Тогда потенциальная энергия переходит от одноямынного к двухъямынному виду. Это изменение называется активацией ячейки, при которой определяется ее логическое состояние, “0” или “1”, соответствующее нахождению в одной из потенциальных ям. Двум состояниям соответствуют направления циркуляции тока в ПК (причем основному состоянию в одноямынном потенциале соответствует отсутствие циркулирующего тока). Передача информации при последовательной активации ячеек реализуется за счет магнитной связи их контуров. В логических схемах ячейки активируются периодически, а внешнее воздействие, вызывающее активацию, называют тактирующим, поскольку оно определяет частоту операций по обработке информации. При проектировании ячеек АСЛ требуется обеспечивать адиабатическую эволюцию потенциала, для чего необходима однозначная и желательна линейная зависимость координаты ячейки в фазовом пространстве от величины активирующего сигнала. Линейность этой зависимости отражает контролируемость ячейки. Также нужно добиваться наибольшей разницы фаз, соответствующих логическим состояниям, для их надежной различимости и передачи информации между ячейками. Отклонение значения фазы логического состояния ячейки в активированном состоянии от изначальной фазы, наведенной от

соседней ячейки, определяет усиление сигнала, передающего информацию. Данная работа показывает, как использование джозефсоновских гетероструктур с отрицательным критическим током (π -контактов) открывает новые пути для “балансировки” джозефсоновской и индуктивной энергии в электрической цепи. А новые возможности в настройке вида потенциальной энергии системы позволяют добиться практической реализации ее контролируемой динамики и тем самым продвинуться в создании перспективных ячеек АСЛ.

Параметрический квантрон на базе СКВИДа. На практике быстро управлять критическим током одиночного джозефсоновского перехода трудно, поэтому вместо него используют двухконтактный СКВИД, эффективный критический ток которого зависит от магнитного потока внутри его контура, см. рис. 1 справа; более детальная схема такого ПК представлена на рис. 2. Джозефсоновской энергией в системе управляет магнитный поток, задаваемый в СКВИД, Φ_t (рис. 1), ему соответствует фаза $2\varphi_t$ (рис. 2). Магнитному потоку, задаваемому в основной контур Φ_x соответствует фаза φ_x . Таким образом, состояние ячейки теперь определяется потоками Φ_t и Φ_x . Им отвечают две безразмерные фазы $2\varphi_t$ и φ_x , которыми можно управлять независимо, изменяя эти магнитные потоки.

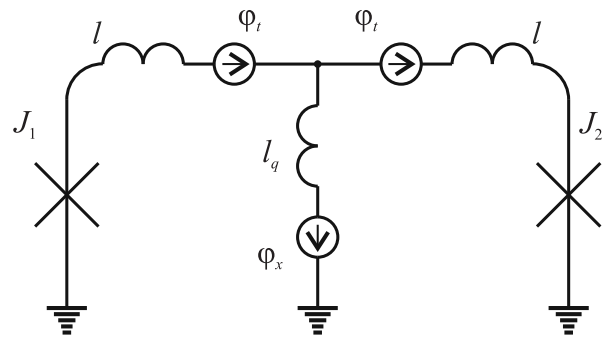


Рис. 2. Схема параметрического квантрона со СКВИДом вместо одного джозефсоновского перехода. Индуктивности l , l_q нормированы на один и тот же критический ток I_c , общая индуктивность СКВИДа $2l$

Заметим, что в силу симметрии схемы ПК ее можно активировать как изменяя фазу φ_t и передавая информацию в фазе φ_x , так и, наоборот, изменяя фазу φ_x и передавая информацию в фазе φ_t . Рассмотрим сперва последний из этих двух вариантов. Запишем уравнения для суммарной и разностной фазы джозефсоновских контактов 1 и 2 ПК в сверхпроводящем режиме:

$$\varphi_+ + (l + 2l_q) \sin(\varphi_+) \cos(\varphi_-) = \varphi_x, \quad (2a)$$

$$\varphi_- + l \sin(\varphi_-) \cos(\varphi_+) = \varphi_t, \quad (2б)$$

где $\varphi_+ = \frac{\varphi_1 + \varphi_2}{2}$, $\varphi_- = \frac{\varphi_1 - \varphi_2}{2}$.

К решению данной системы уравнений относительно φ_+ , φ_- можно прийти через поиск корня x_0 произвольной непрерывной функции $f(x)$, имеющей только один корень на заданном промежутке $[a, b]$. Таким образом можно найти зависимости $\varphi_-(\varphi_+)$, $\varphi_x(\varphi_+)$, и неявную зависимость $\varphi_-(\varphi_x)$, соответствующую изменению φ_- от 0 до 2π .

Степень контроля динамики ПК внешним тактирующим сигналом, φ_x , можно оценить по величине $\varphi_+ - \varphi_x$, где фаза (в данном случае φ_+), наиболее близко связанная с тактирующей, называется “ведущей” фазой ячейки. При малых значениях величины фазы логического состояния $\varphi_t \approx 0$, наведенного за счет связи с соседней ячейкой, и небольших индуктивностях, $l < 1$, имеем:

$$\varphi_+ - \varphi_x \approx (l + 2l_q) \sin(\varphi_+). \quad (3)$$

Таким образом, для точного определения динамики внешним сигналом необходимы минимально возможные значения индуктивности $l_q \rightarrow 0$. Поэтому в работах [21–25] эта индуктивность не учитывалась.

Еще один способ улучшить контроль динамики ПК тактирующим сигналом – введение отрицательной взаимной индуктивности между плечами СКВИДа, рис. 3. Тогда коэффициент взаимной индукции, m , будет меньше 0, а выражения (2) примут вид:

$$\varphi_+ + (l + 2l_q - m) \sin(\varphi_+) \cos(\varphi_-) = \varphi_x, \quad (4a)$$

$$\varphi_- + (l + m) \sin(\varphi_-) \cos(\varphi_+) = \varphi_t. \quad (4б)$$

Введенная индуктивная связь уменьшает разность $\varphi_+ - \varphi_x$ и увеличивает амплитуду нелинейного слагаемого в выражении (4б), обеспечивая возможность большего отклонения φ_- от φ_t , а значит большего усиления сигнала, несущего логическую информацию.

В случае, когда тактирование ПК осуществляется через фазу φ_t , а передача информации – через φ_x , по аналогии с решением системы уравнений (2a), (2б) можно получить зависимости $\varphi_+(\varphi_-)$, $\varphi_t(\varphi_-)$ и неявно $\varphi_+(\varphi_t)$. При таком способе тактирования необходимости в введении дополнительной взаимной индуктивности нет: контроль динамики ПК внешним сигналом (малость $\varphi_- - \varphi_t$) напрямую зависит от малости индуктивностей плеч СКВИДа l , а усиление

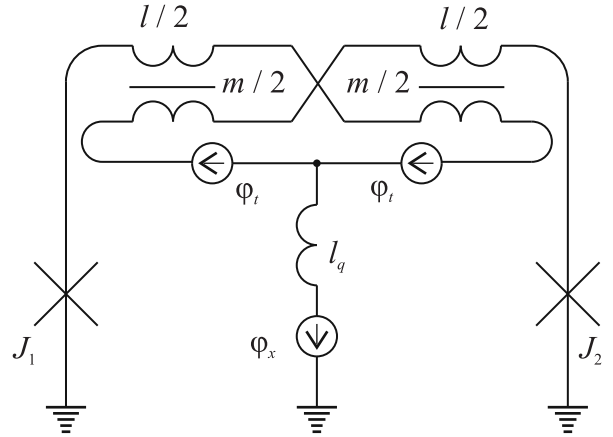


Рис. 3. Схема ПК со взаимной отрицательной магнитной связью индуктивных плеч СКВИД

сигнала, несущего информацию (разность φ_+ и φ_x), становится значительным при увеличении амплитуды нелинейного слагаемого в (2a).

Данному способу использования ПК в последнее время уделено большое внимание [5–13, 26–31]. Соответствующая адиабатическая ячейка называется адиабатическим квантовым потоковым параметроном (АКПП). Вариант схемы с отрицательной взаимной индуктивностью плеч, где φ_x используется для тактирования сигнала, а φ_t – для передачи информации, традиционно называют н-СКВИДом [21–25] (от английского “negative” – отрицательный).

Параметрический квантрон с π -контактами. Выражение для потенциальной энергии ПК имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} \frac{2\pi U}{E_J} = & -2 \cos(\varphi_+) \cos(\varphi_-) + \\ & + \frac{(\varphi_+ - \varphi_x)^2}{l + 2l_q} + \frac{(\varphi_- - \varphi_t)^2}{l}. \end{aligned} \quad (5)$$

На рисунке 4 показано джозефсоновское слагаемое из (5). В случае использования ПК как н-СКВИДа для реализации адиабатического процесса переключения мы предлагаем модифицировать этого слагаемое, как показано на рис. 5. Для этого нужна “отрицательная добавка” в джозефсоновскую энергию, что возможно в н-би-СКВИДе с π -контактом J_3 (рис. 6).

При этом в системе (4) в уравнении для разностной фазы появляется новое слагаемое, отвечающее добавленному контакту:

$$\varphi_+ + (l - m + 2l_q) \sin(\varphi_+) \cos(\varphi_-) = \varphi_x, \quad (6a)$$

$$\varphi_- + (l + m) \sin(\varphi_-) \cos(\varphi_+) - i_{c3} \sin(2\varphi_-) = \varphi_t. \quad (6б)$$

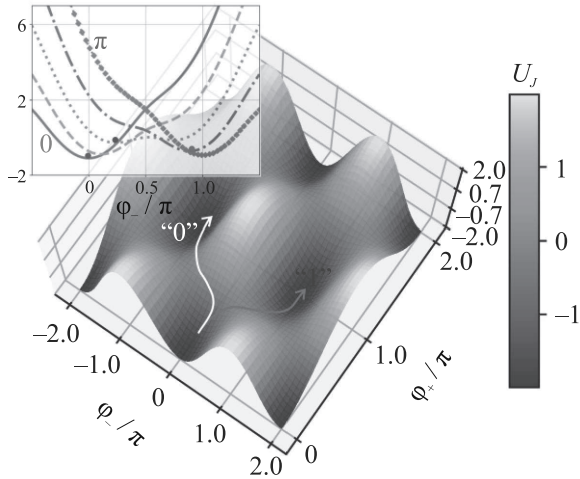


Рис. 4. (Цветной онлайн) Вид джозефсоновского слагаемого потенциальной энергии ПК U_J ; на вставке показаны профили потенциальной энергии U для ведущей фазы $\varphi_x = 0; 0.25\pi; 0.5\pi; 0.75\pi$ и π ; $\varphi_t = 1.5$, $l = 1.5$, $l_q = 0.08$. Точками соответствующего цвета показаны основные состояния для разных значений φ_x . Здесь и далее энергии нормированы на джозефсоновскую энергию E_J ; стрелками проиллюстрирована эволюция состояния при активации ячейки

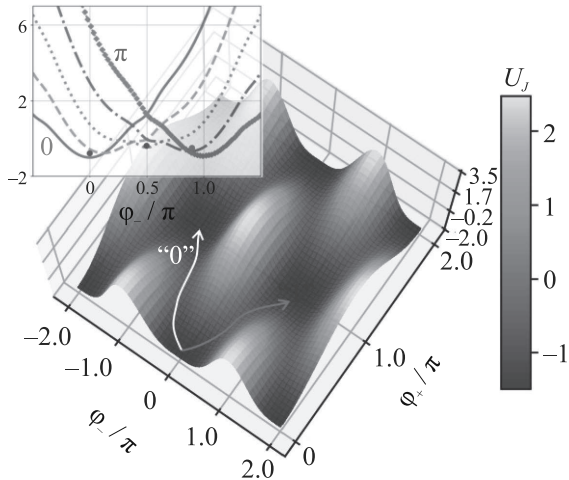


Рис. 5. (Цветной онлайн) Джозефсоновское слагаемое в выражении (7) потенциальной энергии н-би-СКВИДа с π -контактом, а также профили полной потенциальной энергии; $\varphi_t = 1.5$, $l = 3$, $l_q = 0.2$, $m = 2$, $i_{c3} = 0.5$. Обозначения и нормировки как на рис. 4

Выражение для потенциальной энергии н-би-СКВИДа имеет вид:

$$\begin{aligned} \frac{2\pi U}{E_J} = & -2 \cos(\varphi_+) \cos(\varphi_-) + \frac{(\varphi_+ - \varphi_x)^2}{l - m + 2l_q} + \\ & + \frac{(\varphi_- - \varphi_t)^2}{l} + i_{c3} \cos(2\varphi_-). \end{aligned} \quad (7)$$

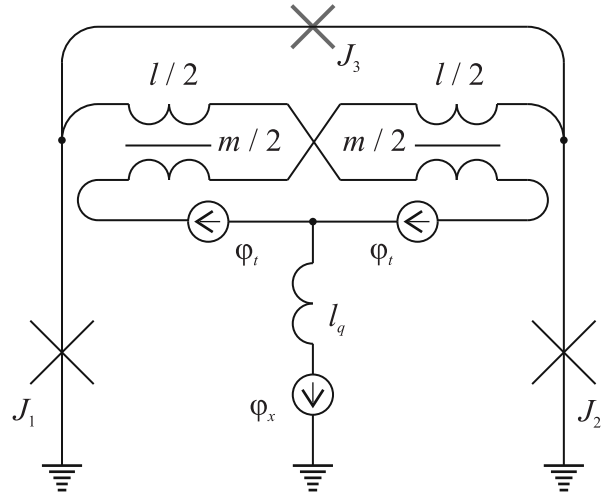


Рис. 6. (Цветной онлайн) Схема ПК со взаимной отрицательной магнитной связью индуктивных плеч би-СКВИДа с π -контактом J_3

Новое слагаемое с уменьшенным вдвое периодом по фазе φ_- уменьшает потенциальный барьер между ямами потенциала $\{\varphi_+, \varphi_-\} = \{0, 0\}$ и $\{\varphi_+, \varphi_-\} = \{\pi, \pi\}$. Эффект от модификации схемы наглядно виден при сравнении вставок с сечениями для полной энергии в процессе эволюции на рис. 4 и 5: при переходах между устойчивыми состояниями (при логических операциях) в н-би-СКВИДе с π -контактом приходится преодолевать почти вдвое меньший барьер.

Описанная модификация джозефсоновского слагаемого потенциальной энергии подходит в случае активации ПК посредством изменения фазы φ_x . Для противоположного случая, использующего тактирование посредством фазы φ_t , удобнее добавлять аналогичное слагаемое, но периодичное по суммарной фазе. Данный вариант можно реализовать добавлением к первоначальной схеме ПК (рис. 2) джозефсоновского π -контакта J_4 параллельно основной индуктивности контура l_q (рис. 7). Тогда уравнения системы (2) примут вид:

$$\begin{aligned} \varphi_+ + (l + 2l_q) \sin(\varphi_+) \cos(\varphi_-) - \\ - l_q i_{c4} \sin(\varphi_+ + l \sin(\varphi_+) \cos(\varphi_-)) = \varphi_x, \end{aligned} \quad (8a)$$

$$\varphi_- + l \sin(\varphi_-) \cos(\varphi_+) = \varphi_t, \quad (8б)$$

где i_{c4} – нормированный критический ток добавленного в контур контакта. Вид потенциальной энергии (5) изменится соответственно:

$$\frac{2\pi U}{E_J} = -2 \cos(\varphi_+) \cos(\varphi_-) + \frac{(\varphi_+ - \varphi_x)^2}{l + 2l_q} +$$

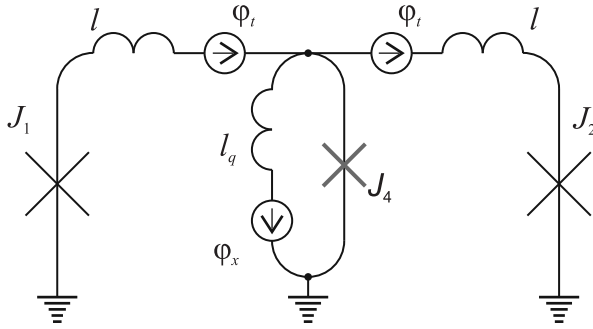


Рис. 7. (Цветной онлайн) Схема ПК с π -контактом J_4 , подключенным параллельно основной индуктивности контура, l_q

$$+ \frac{(\varphi_- - \varphi_t)^2}{l} + i_{c4} \cos(\varphi_+ + l \sin(\varphi_+) \cos(\varphi_-)) - \\ - \frac{l_q}{4} \left(1 - \frac{2l_q}{l + 2l_q} \right) i_{c4}^2 \cos(2[\varphi_+ + l \sin(\varphi_+) \cos(\varphi_-)]). \quad (9)$$

В варианте с тактированием ПК фазой φ_t новые слагаемые в уравнениях (8а), (9) не имеют строгой удвоенной периодичности по фазе φ_+ . Но их наличие позволяет поднять уровень потенциальной ямы джозефсоновского рельефа при $\{\varphi_+, \varphi_-\} = \{0, 0\}$ до уровня при $\{\varphi_+, \varphi_-\} = \{\pm\pi/2, \pm\pi/2\}$ (см. рис. 8), что снова позволяет реализовать адиабатический процесс переключения ПК. При этом значение критического тока добавочного контакта должно быть $i_{c4} \approx 2$.

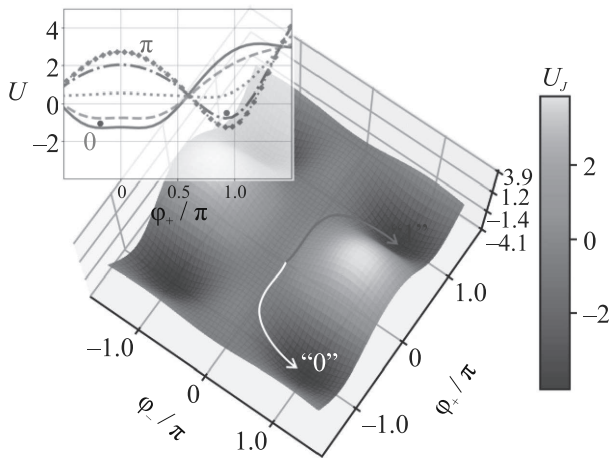


Рис. 8. (Цветной онлайн) Джозефсоновское слагаемое U_J в выражении (9) для потенциальной энергии ПК с π -контактом, подключенным параллельно основной индуктивности контура, l_q . На вставке показаны профили потенциальной энергии U для ведущей фазы $\varphi_t = 0; 0.25\pi; 0.5\pi; 0.75\pi$ и π . Параметры ПК с π -контактом: $l = 0.2, l_q = 3, i_{c4} = 2$

Универсальной схемой ПК, позволяющей наиболее свободно подбирать параметры для реализации адиабатического (и даже физически обратимого) процесса переключения при тактировании как с помощью φ_x , так и с помощью φ_t , будет являться ПК, содержащий в своем контуре два джозефсоновских контакта J_3, J_4 и обладающий отрицательной взаимной индуктивностью плеч СКВИДа (рис. 9).

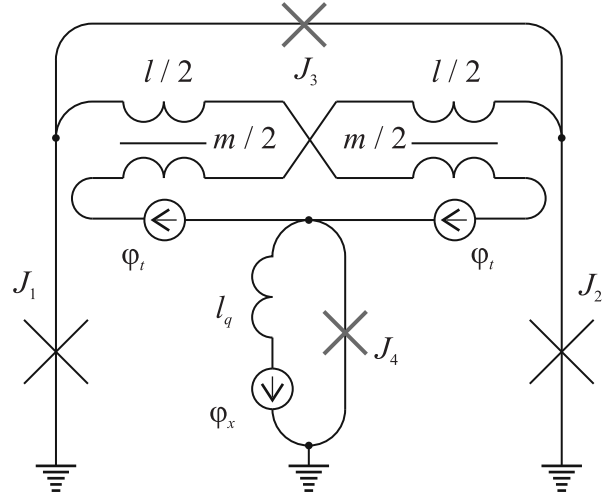


Рис. 9. (Цветной онлайн) Схема ПК с π -контактом J_4 , подключенным параллельно основной индуктивности контура l_q , на базе н-би-СКВИДа с π -контактом J_3

Уравнения для фаз такого ПК имеют вид:

$$\varphi_+ + (l - m + 2l_q) \sin(\varphi_+) \cos(\varphi_-) - \\ - l_q i_{c4} \sin(\varphi_+ + (l - m) \sin(\varphi_+) \cos(\varphi_-)) = \varphi_x, \quad (10a)$$

$$\varphi_- + (l + m) \times \\ \times (\sin(\varphi_-) \cos(\varphi_+) - i_{c3} \sin(2\varphi_-)) = \varphi_t. \quad (10b)$$

Потенциальная энергия будет иметь следующий вид:

$$\frac{2\pi U}{E_J} = -2 \cos(\varphi_+) \cos(\varphi_-) + \frac{(\varphi_+ - \varphi_x)^2}{l - m + 2l_q} + \\ + \frac{(\varphi_- - \varphi_t)^2}{l + m} + i_{c4} \cos(\varphi_+ + l \sin(\varphi_+) \cos(\varphi_-)) + \\ + i_{c3} \cos(2\varphi_-) - \frac{l_q}{4} \left(1 - \frac{2l_q}{l - m + 2l_q} \right) \times \\ \times i_{c4}^2 \cos(2[\varphi_+ + l \sin(\varphi_+) \cos(\varphi_-)]). \quad (11)$$

Последнее слагаемое в (11) будем малым как при $l \rightarrow 0$, что является случаем наиболее распространенного использования ПК с φ_t в роли ведущей фазы, так и при $l_q \rightarrow 0$, что есть необходимое условие для использования ПК как н-СКВИДа. При выборе

тактирования ПК посредством фазы φ_t можно взять положительную обратную индуктивную связь между плечами СКВИДа для увеличения отклонения φ_+ от φ_x (тогда в уравнении (11) знак у m следует изменить).

Оценка эффекта использования π -контактов. Добавление π -контактов в ПК дает возможность смягчить требования к дизайну логической ячейки. В качестве примера ниже будут рассмотрены н-СКВИД и АКПП, параметры которых взяты из работ [6, 25].

Подробный анализ проблем реализованных на практике адиабатических ячеек приведен в дополнительных материалах к статье. Здесь важно подчеркнуть, что экспериментаторы использовали джозефсоновские контакты с малым значением критического тока (и малыми характерными частотами) для того, чтобы нормированные значения индуктивности обеспечивали возможность адиабатической и однозначной эволюции состояния ПК. Для этого необходимо, чтобы при переходе от одноямыного к двухъямыному виду потенциала не образовывалось промежуточных состояний с тремя ямами. Иначе возникает возможность ошибки при передаче информации: за счет тепловых флуктуаций возможна смена знака фазы, ассоциированной с логическим состоянием, по отношению к фазе, заданной на вход ячейки.

Решить эту проблему также можно коррекцией джозефсоновского слагаемого в потенциальной энергии. Используя ПК с двумя π -контактами (рис. 9) с относительно большими критическими токами, мы перейдем от изначального (не обеспечивающего однозначной эволюции состояния) джозефсоновского рельефа к “требуемому”, что позволит работать при стандартной температуре 4.2 К. Детали расчетов и необходимые иллюстрации приведены в дополнительных материалах к статье.

Добавление джозефсоновских π -контактов в схему н-СКВИДа изменяет и характеристики траектории эволюции ПК состояния н-СКВИДа (см. рис. 10а, б): усиление сигнала передачи логической информации – отклонение разностной фазы φ_- от φ_t , а также “контролируемость” состояния внешним сигналом – отклонение суммарной фазы φ_+ от ведущей φ_x . На рисунке 10а сплошной линией показана зависимость разностной фазы н-СКВИДа с параметрами из эксперимента [30] от ведущей фазы $\varphi_-(\varphi_x)$. Отвечающая ей зависимость отклонения суммарной фазы н-СКВИДа φ_+ от ведущей фазы φ_x представлена на рис. 10с.

Для расчета использована система уравнений (4). Те же зависимости для н-СКВИДа с параметрами,

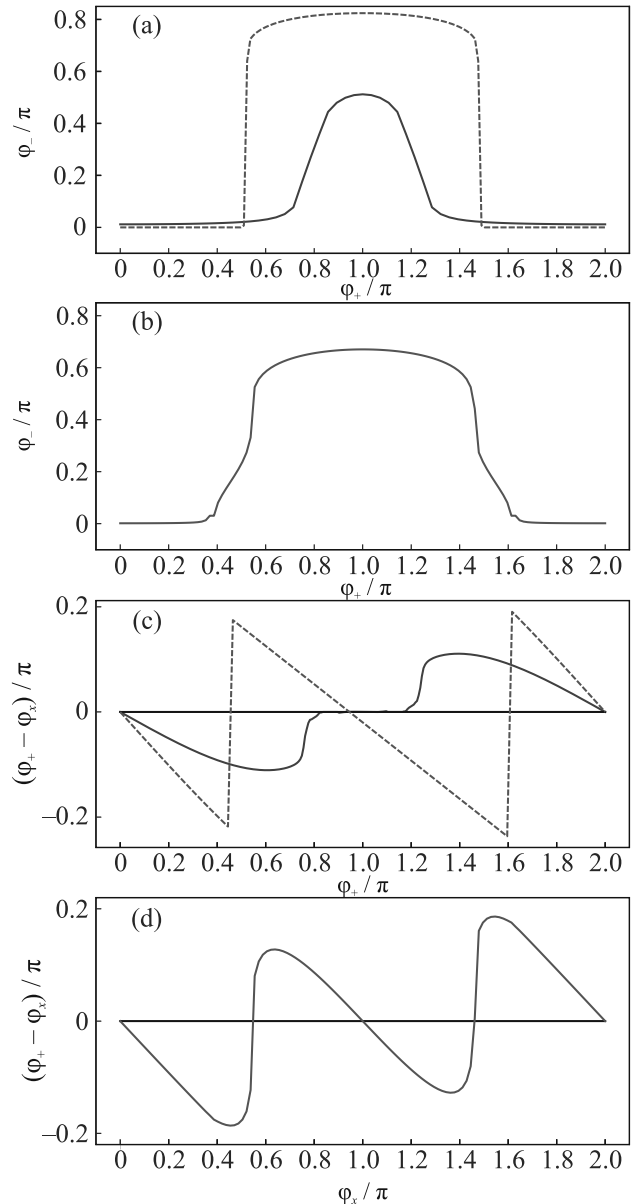


Рис. 10. (Цветной онлайн) Зависимость разностной фазы φ_- от ведущей фазы φ_x для н-СКВИДа (а) и ПК с π -контактами (б), а также разности фаз $(\varphi_+ - \varphi_-)$ от ведущей фазы φ_x для н-СКВИДа (с), и ПК с π -контактами (д). Значения параметров либо соответствуют экспериментальным реализациям [30] (сплошная линия, (а), (с)), либо трехкратному увеличению критических токов джозефсоновских контактов по сравнению с экспериментом (пунктирная линия, (а), (с)), а также параметрам, взятым для построения рис. S4 с добавлением в схему π -контактов (рис. 9б, д). Значение фазы, соответствующей входному логическому сигналу, $\varphi_t = 0.1$

соответствующими трехкратному увеличению критических токов джозефсоновских контактов, показаны пунктирными линиями на рис. 10а, с. Поскольку

ку участки зависимостей с отрицательным наклоном производных $\frac{d\varphi_-}{d\varphi_x}$ и $\frac{d(\varphi_+ - \varphi_x)}{d\varphi_x}$ в эксперименте не реализуются, динамика такой ячейки не может быть адиабатической и сопровождается скачками фазы.

Рассматриваемые зависимости для ПК, отвечающие привнесению в схему π -контактов (значения параметров аналогичны использованным для построения, рис. S4), полученные с помощью системы уравнений (10), показаны на рис. 10b, рис. 10d соответственно. Наличие π -контактов позволяет реализовать адиабатический процесс переключения ПК. Для ячейки с π -контактами возрастает и магнитный поток при передаче логического состояния, причем в широком диапазоне значений ведущей фазы. Это обстоятельство смягчает требования к трансформатору магнитного потока, связывающего ячейки в схеме.

Но точность контроля динамики ячейки внешним сигналом падает: площадь под графиком $|\varphi_+ - \varphi_x|/\pi$, увеличивается на 50 %, что уменьшает максимальную скорость ее работы.

Развитие концепции АКПП. Усовершенствование схемы АКПП в режиме представления тактирующего сигнала ПК фазой φ_t (рис. 2) также возможно за счет использования π -контактов (рис. 9). Для удобства в ряде работ [5, 7, 8, 10, 26–29] индуктивность основного контура АКПП делили на две части (рис. 11a), что позволило создать отдельные магнитные связи для задания/считывания сигнала.

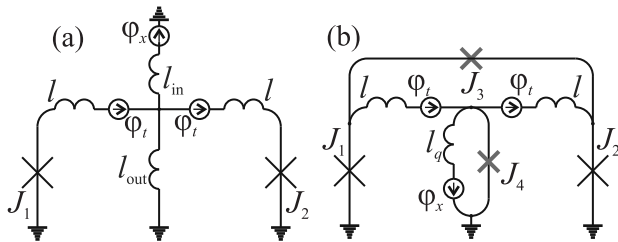


Рис. 11. (Цветной онлайн) Схема АКПП с разделением основной индуктивности контура l_q на две части (l_{in} , l_{out}) (а) и с добавлением двух π -контактов (б)

При этом эффективная индуктивность всего контура оставалась сравнительно небольшой. Уравнения, описывающие такой вариант АКПП, имеют вид:

$$\varphi_+ + \left(l + 2 \frac{l_{in} l_{out}}{l_{in} + l_{out}} \right) \times \sin(\varphi_+) \cos(\varphi_-) = \varphi_x \frac{l_{out}}{l_{in} + l_{out}}, \quad (12a)$$

$$\varphi_- + l \sin(\varphi_-) \cos(\varphi_+) = \varphi_t. \quad (12б)$$

Очевидно, что уравнения (12a), (12б) можно свести к уравнениям (2a), (2б), если ввести следующие обозначения: $l_q = \frac{l_{in} l_{out}}{l_{in} + l_{out}}$, $\varphi_x = \varphi_x \frac{l_{out}}{l_{in} + l_{out}}$.

Оптимальными параметрами АКПП, определенными в работе [6], являются: $l = 0.2$, $l_q = 1.6$. При этих параметрах динамика переключения будет однозначной. Однако при минимально допустимом значении критического тока джозефсоновских контактов, $I_c = 50$ мкА, индуктивность СКВИДа, соответствующую столь малому нормированному значению ($l = 0.2$), реализовать проблематично. В ряде экспериментов [5, 29] удалось добиться нормированного значения индуктивности, равного только лишь $l = 0.4$, что вдвое больше. При таком значении индуктивности динамика АКПП перестанет быть однозначной (рис. 12).

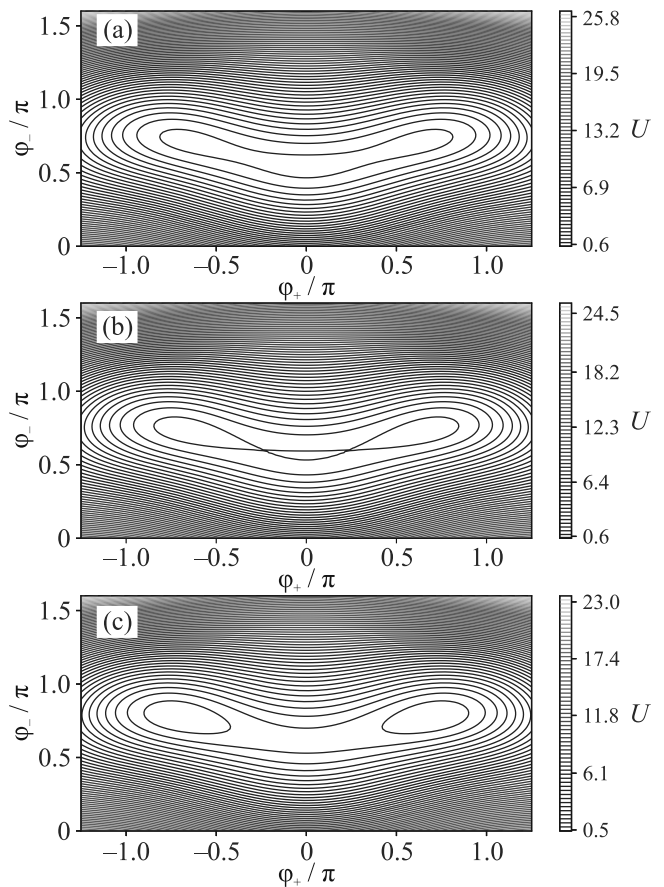


Рис. 12. (Цветной онлайн) Потенциальная энергия АКПП, рассчитанная с помощью выражения (5), с нормированными значениями индуктивностей $l = 0.4$, $l_q = 1.6$, для значений фаз, отвечающих внешним источникам магнитного потока (см. рис. 11a): $\varphi_x = 0$, и $\varphi_t = 2.1$ (а); $\varphi_t = 2.22$ (б), $\varphi_t = 2.3$ (с)

Посредством добавления в схему двух π -контактов (рис. 11b) можно добиться однознач-

ной и более контролируемой эволюции состояния данной ячейки. Уравнения, описывающие такую ячейку, будут аналогичны (10), (11) с учетом отсутствия магнитной связи между индуктивными плечами СКВИДа, $m = 0$. При значениях критических токов π -контактов $i_{c3} = 0.6$, $i_{c4} = 1.4$, джозефсоновское слагаемое потенциальной энергии изменяется, как показано на рис. 13. При этом даже при больших значениях индуктивностей, $l = 0.4$, $l_q = 2.4$, динамика АКПП оказывается однозначной (рис. 14). Сравнения усиления сигнала, несущего логическую информацию, и качества контроля состояния АКПП представлены на рис. 15. На “количественном уровне” можно утверждать, что передача магнитного потока увеличилась на 125 %, а контролируемость – на 40 %.

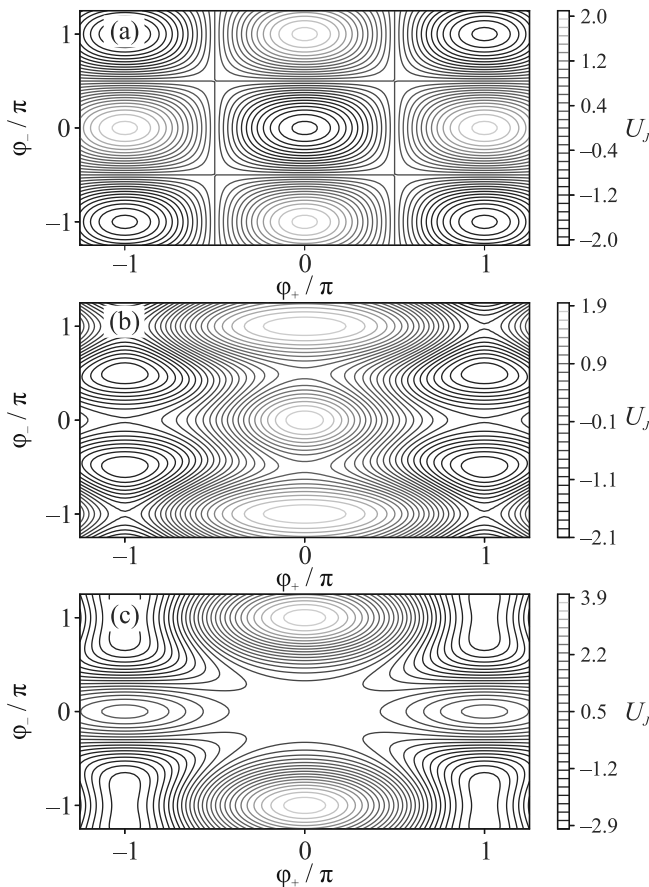


Рис. 13. (Цветной онлайн) Джозефсоновский рельеф потенциальной энергии АКПП (a); рельеф, отвечающий дополнительным слагаемым в (11) (b); джозефсоновский рельеф АКПП с π -контактами (рис. 11b) (c). Значений параметров: $l = 0.4$, $l_q = 2.4$, $i_{c3} = 0.6$, $i_{c4} = 1.4$

Закключение. На основе полученных результатов можно сделать вывод, что добавление в схему

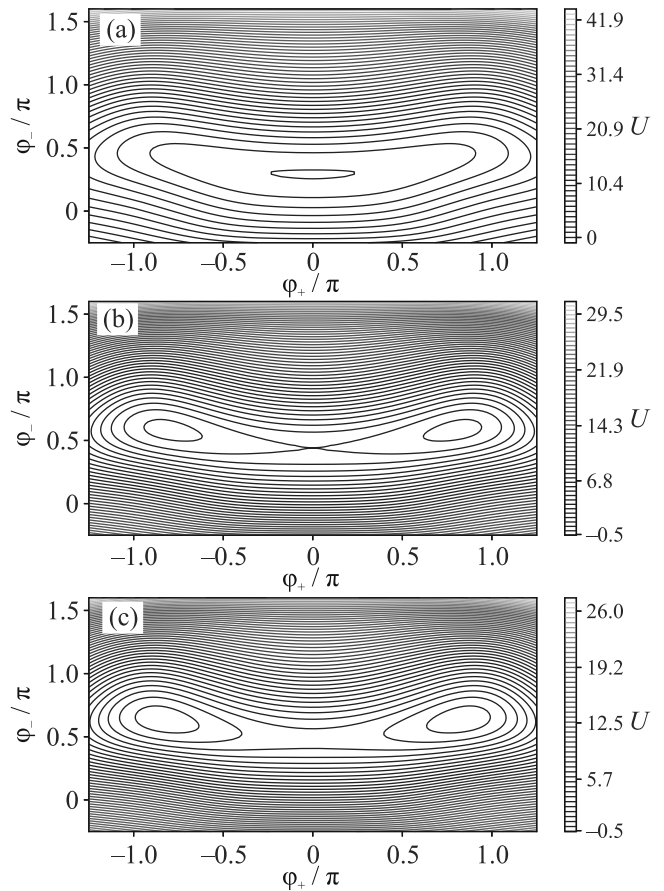


Рис. 14. (Цветной онлайн) Потенциальная энергия АКПП, рассчитанная с помощью выражения (11), с нормированными значениями индуктивностей $l = 0.4$, $l_q = 2.4$, и критических токов π -контактов, $i_{c3} = 0.6$, $i_{c4} = 1.4$, для значений фаз, отвечающих внешним источникам магнитного потока (см. рис. 11b): $\varphi_x = 0$, и $\varphi_t = 1$ (a); $\varphi_t = 1.68$ (b); $\varphi_t = 1.9$ (c)

ПК π -контактов позволило не только обеспечить однозначность динамики ячеек н-СКВИДа и АКПП в диапазоне практически реализуемых значений параметров, но и улучшить усиление передаваемого сигнала, а в случае АКПП и качество контроля состояния схемы.

В то же время расширился диапазон значений тактирующего сигнала, в котором происходит усиление по магнитному потоку. Этот результат позволяет уменьшить количество фаз тактирующего сигнала при многофазном тактировании переменным током.

Кроме того, увеличение критических токов (и характерных напряжений) основных джозефсоновских переходов схем дает возможность для увеличения их быстродействия. Таким образом, применение π -контактов представляется перспективным для улучшения параметров многокомпонентных схем, таких

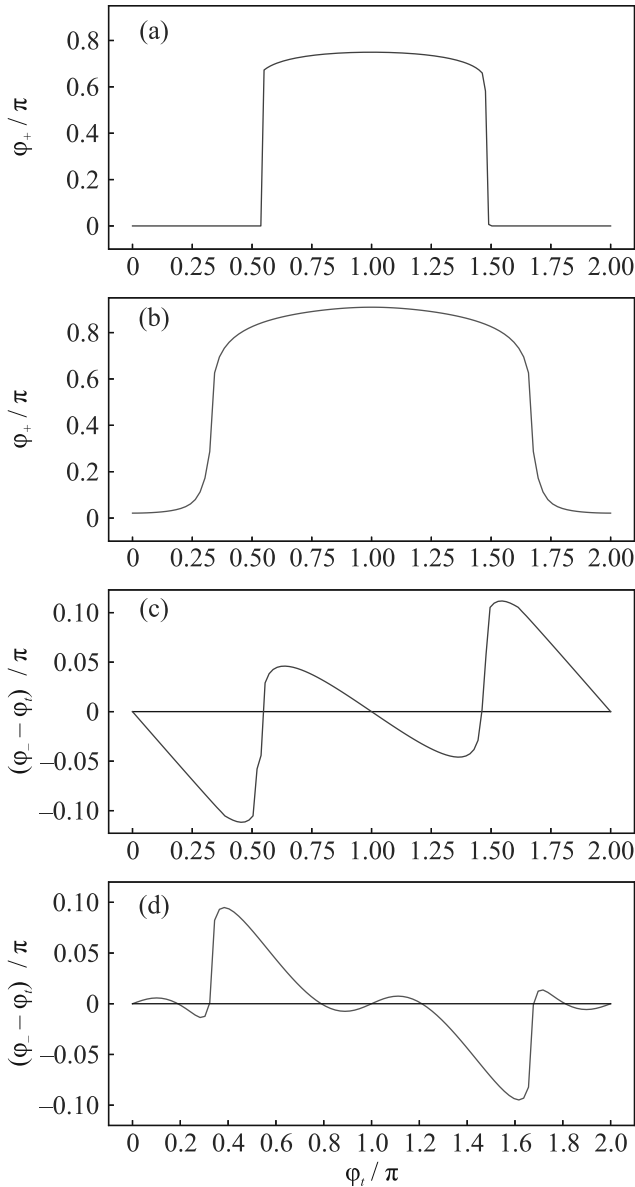


Рис. 15. (Цветной онлайн) Зависимости суммарной фазы φ_+ от ведущей фазы φ_t для обычной АКПП (а) и АКПП с добавлением в схему π -контактов (б). Также зависимости разности фаз $\varphi_+ - \varphi_t$ от ведущей фазы φ_t для обычной АКПП (с) и АКПП с добавлением в схему π -контактов (д). Расчеты для АКПП проводились для значений параметров из известных экспериментальных работ [23, 31]: $l = 0.4$, $l_q = 1.6$ (а), (с); для предлагаемой ячейки считали, что $l = 0.4$, $l_q = 2.4$, $i_{c3} = 0.6$, $i_{c4} = 1.4$ (б), (с). Значение фазы, соответствующей входному логическому сигналу, φ_x , выбрано равным 0.1

как адиабатические микропроцессоры [11, 13, 14] и интерфейсы для сверхпроводниковых квантовых процессоров [20, 32, 33], на базе адиабатической сверхпроводниковой логики.

Усовершенствование схемы параметрического квантрона за счет использования джозефсоновских π -контактов выполнено в рамках проекта Российского научного фонда # 20-69-47013. Обзор исследований схем адиабатической сверхпроводниковой логики выполнен при финансовой поддержке Программы стратегического академического лидерства “Приоритет-2030” (грант НИТУ “МИСиС” # K2-2022-029).

1. D. S. Holmes, A. L. Ripple, and M. A. Manheimer, IEEE Trans. Appl. Supercond. **23**, 1701610 (2013).
2. S. K. Tolpygo, Low Temp. Phys. **42**, 361 (2016).
3. I. I. Soloviev, N. V. Klenov, S. V. Bakurskiy, M. Y. Kupriyanov, A. L. Gudkov, and A. S. Sidorenko, Beilstein J. Nanotechnol. **8**, 2689 (2017).
4. M. Cuthbert, E. DeBenedictis, R. L. Fagaly et al. (Collaboration), International roadmap for devices and systems. Cryogenic electronics and quantum information processing. 2022 Edition (IEEE, 2022).
5. N. Takeuchi, D. Ozawa, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa, Supercond. Sci. Technol. **26**, 035010 (2013).
6. N. Takeuchi, K. Ehara, K. Inoue, and Y. Yamanashi, IEEE Trans. Appl. Supercond. **23**, 1700304 (2013).
7. N. Takeuchi, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa, Appl. Phys. Lett. **102**, 052602 (2013).
8. N. Takeuchi, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa, Appl. Phys. Lett. **103**, 062602 (2013).
9. N. Takeuchi, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa, Sci. Rep. **4**, 6354 (2014).
10. N. Takeuchi, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa, Supercond. Sci. Technol. **28**, 015003 (2015).
11. C. L. Ayala, T. Tanaka, R. Saito, M. Nozoe, N. Takeuchi, and N. Yoshikawa, IEEE J. Solid-State Circuits **56**(4), 1152 (2020).
12. H. Takayama, N. Takeuchi, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa, J. Phys. Conf. Ser. **1054**, 012063 (2018).
13. C. L. Ayala, T. Tanaka, R. Saito, and N. Yoshikawa, Superconducting News Forum, STP723, 1EO2B-0, Institute of Electrical and Electronics Engineers, N.Y., NY, United States (2023).
14. R. Cai, A. Ren, O. Chen, N. Liu, C. Ding, X. Qian, J. Han, W. Luo, N. Yoshikawa, and Y. Wang, 2019 ACM/IEEE 46th Annual International Symposium on Computer Architecture (ISCA), 19339165, Association for Computing Machinery, N.Y., NY, United States (2019).
15. V. A. Vozhakov, M. V. Bastrakova, N. V. Klenov, I. I. Soloviev, W. V. Pogozov, D. V. Babukhin, A. A. Zhukov, and A. M. Satanin, Phys.-Uspekhi **65**, 421 (2022).

16. I. I. Soloviev, N. V. Klenov, A. L. Pankratov, L. S. Revin, E. Il'ichev, and L. S. Kuzmin, *Physical Review B* **92**, 014516 (2015).
17. R. Harris, A. J. Berkley, M. W. Johnson, P. Bunyk, S. Govorkov, M. C. Thom, S. Uchaikin, A. B. Wilson, J. Chung, E. Holtman, J. D. Biamonte, A. Yu. Smirnov, M. H. S. Amin, A. M. van den Brink, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 177001 (2007).
18. R. Harris, T. Lanting, A. J. Berkley, J. Johansson, M. W. Johnson, P. Bunyk, E. Ladizinsky, N. Ladizinsky, T. Oh, and S. Han, *Phys. Rev. B* **80**, 052506 (2009).
19. N. Takeuchi, T. Yamae, W. Luo, F. Hirayama, T. Yamamoto, and N. Yoshikawa, *Phys. Rev. Res.* **5**, 013145 (2023).
20. M. V. Bastrakova, N. V. Klenov, V. I. Ruzhickiy, I. I. Soloviev, and A. M. Satanin, *Supercond. Sci. Technol.* **35**(5), 055003 (2022).
21. Semenov, G. V. Danilov, and D. V. Averin, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **13**, 938 (2003).
22. V. K. Semenov, G. V. Danilov, and D. V. Averin, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **17**, 455 (2007).
23. J. Ren, V. K. Semenov, Y. A. Polyakov, D. V. Averin, and J. S. Tsai, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **19**, 961 (2009).
24. J. Ren and V. K. Semenov, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **21**, 780 (2011).
25. H. Li, J. Liu, Y. Zhang, H. Cai, G. Li, Q. Liu, S. Han, and W. Chen, *Supercond. Sci. Technol.* **30**, 035012 (2017).
26. N. Takeuchi, T. Orllepp, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa, *J. Appl. Phys.* **115**, 103910 (2014).
27. N. Takeuchi, Y. Yamanashi, and N. J. Yoshikawa, *J. Appl. Phys.* **117**, 173912 (2015).
28. Q. Xu, C. L. Ayala, N. Takeuchi, Y. Murai, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **27**, 1301905 (2017).
29. N. Takeuchi, *Ph. D. Thesis*, The Department of Physics, Electrical and Computer Engineering, Yokohama National University, Yokohama, Japan (2014).
30. N. Takeuchi, K. Arai, and N. Yoshikawa, *Supercond. Sci. Technol.* **33**, 065002 (2020).
31. T. Yamae, N. Takeuchi, and N. Yoshikawa, *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **33**, 1300704 (2023).
32. M. V. Bastrakova, D. S. Pashin, D. A. Rybin, A. E. Schegolev, N. V. Klenov, I. I. Soloviev, A. A. Gorchavkina, and A. M. Satanin, *Beilstein J. Nanotechnol.* **13**, 653 (2022).
33. V. Vozhakov, M. Bastrakova, N. Klenov, A. Satanin, and I. Soloviev, *Quantum Science and Technology* **8**(3), 035024 (2023).

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 118

Выпуск 4

25 августа 2023

*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.ac.ru>

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

Распады $\pi^0, \eta, \eta' \rightarrow \gamma\gamma$ и явное нарушение киральной симметрии

А. А. Осипов¹⁾

Объединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Россия

Поступила в редакцию 3 июля 2023 г.

После переработки 3 июля 2023 г.

Принята к публикации 19 июля 2023 г.

Изучаются поправки к аномалии Весса–Зумино–Виттена, обусловленные явным нарушением киральной $SU(3) \times SU(3)$ симметрии. С этой целью используется эффективный мезонный лагранжиан, построенный на базе модели Намбу–Иона–Лазинио, в котором проводится одновременное разложение по производным, массам токовых кварков и степеням $1/N_c$. Вычислены лидирующий вклад и первая поправка для амплитуд распадов $\pi^0/\eta/\eta' \rightarrow \gamma\gamma$ и контактного члена в амплитудах $\eta/\eta' \rightarrow \pi^+\pi^-\gamma$. Результаты сравниваются с аналогичными вычислениями в $1/N_c$ киральной теории возмущений и имеющимися экспериментальными данными.

DOI: 10.31857/S1234567823160012, EDN: isxaww

Электромагнитные распады нейтральных псевдоскаляров π^0, η и η' на два фотона возможны благодаря нарушению киральной симметрии. Киральная симметрия в квантовой хромодинамике (КХД) нарушается массами легких кварков, а также посредством неабелевой $SU(3)_L \times SU(3)_R$ аномалии Весса–Зумино–Виттена (ВЗВ) [1, 2]. Соответствующий лагранжиан имеет порядок $\mathcal{O}(p^4)$. Здесь мы следуем стандартным правилам счета, принятым в киральной теории возмущений (χ ТВ) [3, 4]. Согласно этой теории низкоэнергетическая динамика октета псевдоголдстоуновских состояний описывается эффективным лагранжианом, представляющим собой разложение по степеням малых импульсов p_μ и масс $m_{i=u,d,s} = \mathcal{O}(p^2)$ токовых кварков.

Последовательное включение в теорию η' -мезона требует привлечения дополнительных аргументов, связанных с $1/N_c$ разложением КХД [5–9], и, как следствие, расширения группы киральной симметрии до $U(3)_L \times U(3)_R$ преобразований. Добавление еще одного параметра ведет к модификации стандартного разложения χ ТВ. Модифицированный подход, который для краткости будем называть $1/N_c\chi$ ТВ, использует эффективный лагранжиан [6]

$$\mathcal{L}_{\text{eff}} = \mathcal{L}^{(0)} + \mathcal{L}^{(1)} + \dots, \quad (1)$$

где члены ряда классифицируются по степеням δ , указанным в скобках. Введение параметра δ удобно, поскольку позволяет представить разложение, осуществляемое по трем малым величинам $1/N_c = \mathcal{O}(\delta)$, $p^2 = \mathcal{O}(\delta)$ и $m_i = \mathcal{O}(\delta)$ в единой форме. В $1/N_c\chi$ ТВ

лагранжиан ВЗВ имеет порядок $\mathcal{O}(p^4 N_c) = \mathcal{O}(\delta)$ и таким образом содержится в $\mathcal{L}^{(1)}$.

Данная теория позволяет систематизировать вычисление адронных поправок, связанных с явным нарушением киральной симметрии массами легких кварков, что, в частности, открывает принципиальную возможность для контроля точности теоретических оценок, в том числе и для ширин двухфотонных распадов π^0, η и η' мезонов [10–12]. Альтернативные вычисления основываются на применении техники правил сумм, которые также отличаются высокой точностью теоретических оценок [5, 13, 14].

Современный интерес к проблеме $\pi^0/\eta/\eta' \rightarrow \gamma\gamma$ распадов связан с ростом точности экспериментов, проводимых на установках η -фабрики JLab. В частности, на основе данных PrimEx-I и PrimEx-II удалось достичь рекордной 1.5 % точности в измерении ширины распада нейтрального пиона [15]

$$\Gamma(\pi^0 \rightarrow \gamma\gamma) = 7.802 \pm 0.052(\text{stat.}) \pm 0.105(\text{syst.}) \text{ ЭВ.}$$

Обзор физической π^0 - η - η' программы JLab, представлен в работе [16]. Там же обсуждаются различные теоретические методы, применяемые для описания распадов псевдоголдстоуновских состояний.

В данной заметке мы приводим результаты вычислений ширин $\pi^0/\eta/\eta' \rightarrow 2\gamma$ распадов, полученных на основе $1/N_c$ модели Намбу–Иона–Лазинио (НИЛ) [17–21]. Интерес к использованию модели НИЛ для подобного рода расчетов возник давно [5]. Однако, для реализации данной программы необходимо было развить аппарат, позволяющий учесть, в процессе получения эффективного мезонного лагранжиана модели НИЛ, эффекты явного нарушения киральной

¹⁾e-mail: aaosipov@jinr.ru

симметрии, что было сделано сравнительно недавно [22–24]. Подчеркнем, что разложение по степеням масс легких кварков, возникающее в результате принятия правила счета $m_i = \mathcal{O}(\delta)$ в модели НИЛ, делает такой подход близким к $1/N_c \chi\text{ТВ}$, но не тождественным ей. Помимо очевидной разницы между методами эффективной теории поля, используемыми в $1/N_c \chi\text{ТВ}$, и расчетами в рамках модели, основанной на эффективных четырех-кварковых взаимодействиях, имеется целый ряд отличий, главные из которых мы отметим ниже.

В отсутствие внешних источников лидирующая часть лагранжиана $1/N_c \chi\text{ТВ}$ имеет вид

$$\mathcal{L}^{(0)} = \frac{F^2}{4} \langle \partial_\mu U \partial^\mu U^\dagger + \chi U^\dagger + \chi^\dagger U \rangle - \frac{\lambda_U}{2} \phi_0^2, \quad (2)$$

где $F = \mathcal{O}(\sqrt{N_c})$ – константа распада псевдоголдстоуновских бозонов в киральном пределе $m_i = 0$. Нонет псевдоскалярных полей $\phi = \sum_{a=0,\alpha} \phi_a \lambda_a$ принимает значения в алгебре Ли группы $U(3)$, $\lambda_0 = \sqrt{2/3}$, λ_α – матрицы Гелл-Манна. Эффективное поле $U = \exp(i\phi)$ отвечает экспоненциальной параметризации фактор-пространства голдстоуновских мод при $N_c = \infty$. Скобки $\langle \dots \rangle$ обозначают шпур в ароматическом пространстве; матрица $\chi = 2B_0 m$, $m = \text{diag}(m_u, m_d, m_s)$, а вторая низкоэнергетическая константа $B_0 = -\langle \bar{q}q \rangle / F^2$ связана с кварковым конденсатом. Последнее слагаемое в (2) – массовый член η' мезона. Его появление связано с решением $U(1)$ проблемы [25–30]. Обратим внимание, что в пределе $N_c \rightarrow \infty$ масса η' мезона обращается в нуль [31]. В результате в теории возникает девятый голдстоуновский бозон, а киральная группа симметрии расширяется до $U(3) \times U(3)$. Коэффициент $\lambda_U = \mathcal{O}(N_c^0)$ – топологическая проницаемость.

В $1/N_c$ модели НИЛ свободный лагранжиан нейтральных членов псевдоскалярного нонета возникает из вычислений кварковых однопетлевых диаграмм и поэтому зависит от масс конstituентных M_i и токовых m_i кварков

$$\mathcal{L}_{\phi^2} = \sum_{i=u,d,s} \left[\frac{\kappa_{Aii}}{16G_V} (\partial_\mu \phi_i)^2 - \frac{M_i m_i}{4G_S} \phi_i^2 \right] - \frac{\lambda_U}{2} \phi_0^2. \quad (3)$$

Константы G_S и G_V характеризуют силу $U(3) \times U(3)$ кирально симметричных четырех-кварковых взаимодействий со спином 0 и 1 соответственно. Они размерны $[G_{S,V}] = M^{-2}$ и при больших значениях N_c убывают, как $\mathcal{O}(1/N_c)$. Диагональные элементы матрицы κ_A в (3) имеют вид

$$\kappa_{Aii}^{-1} = 1 + \frac{\pi^2}{N_c G_V M_i^2 J_1(M_i)}, \quad (4)$$

где $J_1(M)$ – логарифмически расходящаяся часть однопетлевой кварковой диаграммы

$$J_1(M) = \ln \left(1 + \frac{\Lambda^2}{M^2} \right) - \frac{\Lambda^2}{\Lambda^2 + M^2}. \quad (5)$$

Для устранения расходимости вводится ковариантное обрезание Λ , величина которого ассоциируется с масштабом спонтанного нарушения киральной симметрии $\Lambda = 1.1 \text{ ГэВ} \simeq 4\pi f_\pi$. Более подробную информацию о деталях получения приведенных выше выражений можно найти в работах [18, 20, 24].

Практическое использование лагранжиана (3) в рассматриваемом здесь подходе требует предварительного разложения функции $M_i(m_i)$ в ряд по степеням $m_i = \mathcal{O}(\delta)$

$$M_i(m_i) = M_0 + M'(0) m_i + \mathcal{O}(m_i^2), \quad (6)$$

где $M_0 = \mathcal{O}(\delta^0)$ – решение уравнения щели при $m_i = 0$. Положив $M_i = M_0$ в (3), мы получаем лидирующий вклад $\mathcal{L}_{\phi^2}^{(0)}$, который полностью соответствует свободной части лагранжиана (2). При этом низкоэнергетические константы F и B_0 выражаются через параметры модели НИЛ:

$$F = \sqrt{\frac{\kappa_{A0}}{4G_V}} = \mathcal{O}(\sqrt{N_c}), \quad (7)$$

$$B_0 = \frac{M_0}{2G_S F^2} = \frac{2G_V M_0}{G_S \kappa_{A0}} = -\frac{\langle \bar{q}q \rangle_0}{F^2} = \mathcal{O}(1). \quad (8)$$

Здесь и далее индекс 0 у знака функции, зависящей от кварковых масс m_i , означает, что функция вычисляется в пределе $m_i \rightarrow 0$, так $\kappa_{A0}^{-1} = \lim_{m_i \rightarrow 0} (\kappa_A)_{ii}^{-1}$. В лидирующем приближении три параметра модели НИЛ: G_S , G_V и Λ – определяют величины констант F и B_0 . Это вызвано тем, что в модели учитываются векторные и аксиально-векторные степени свободы. В частности, благодаря устранению из лагранжиана недиагональных переходов псевдоскаляр – аксиал-вектор, в выражении для константы F присутствует зависимость от константы G_V .

Следующий шаг в разложении (1) имеет порядок $\mathcal{O}(\delta)$. Соответствующий лагранжиан $\mathcal{L}^{(1)}$ содержит четыре безразмерные константы L_5 , $L_8 = \mathcal{O}(N_c)$, и Λ_1 , $\Lambda_2 = \mathcal{O}(1/N_c)$

$$\begin{aligned} \mathcal{L}^{(1)} = & L_5 \langle \partial_\mu U^\dagger \partial^\mu U (\chi^\dagger U + U^\dagger \chi) \rangle + \\ & + L_8 \langle \chi^\dagger U \chi^\dagger U + \text{h.c.} \rangle + \frac{1}{2} \Lambda_1 F^2 \partial_\mu \phi_0 \partial^\mu \phi_0 + \\ & + \frac{i\Lambda_2}{2\sqrt{6}} F^2 \phi_0 \langle \chi^\dagger U - U^\dagger \chi \rangle + \mathcal{L}_{\text{wzw}}. \end{aligned} \quad (9)$$

Сделаем несколько замечаний:

(а) Члены с L_5 и L_8 – единственные из десяти известных в стандартной χ ТВ структур порядка $\mathcal{O}(p^4)$, которые входят в лагранжиан $\mathcal{L}^{(1)}$. Остальные имеют более высокий порядок по δ , что делает $1/N_c \chi$ ТВ очень полезной на практике. В $1/N_c$ модели НИЛ низкоэнергетические константы L_5 и L_8 вычисляются путем подстановки разложения (6) в лагранжиан (3) и последующего выделения членов порядка $\mathcal{O}(\delta)$. Это дает

$$L_5 = \frac{\bar{a} G_S F^4}{8M_0^2}, \quad L_8 = \frac{a G_S F^4}{16M_0^2}, \quad (10)$$

где

$$a = M'(0) = \frac{\pi^2}{N_c G_S M_0^2 J_1^0} = \frac{G_V}{G_S} (\kappa_{A0}^{-1} - 1), \quad (11)$$

$$\bar{a} = 2a(1 - \kappa_{A0}) \left[1 - \frac{\Lambda^4}{J_1^0(\Lambda^2 + M_0^2)} \right] \quad (12)$$

и $J_1^0 \equiv J_1(M_0)$.

(б) Члены с Λ_1 и Λ_2 нарушают правило Окубо–Цвейга–Иизуки (ОЦИ), и поэтому их происхождение связывают с глюонным обменом. В дальнейшем мы полагаем $\Lambda_1 = 0$, что уменьшает число независимых параметров, используемых в нашем анализе. Качественные соображения в пользу такого предположения были приведены в работе [5]. Таким образом, в $1/N_c$ модели НИЛ лагранжиан $\mathcal{L}^{(1)}$ имеет только одну новую низкоэнергетическую константу, а именно, Λ_2 , величина которой однозначно фиксируется (вместе с величиной константы λ_U) из экспериментальных значений масс η и η' мезонов.

(в) Киральные логарифмы, возникающие от вычисления однопетлевых диаграмм, построенных на базе лагранжиана $\mathcal{L}^{(0)}$, имеют порядок $m_i/N_c \ln m_i = \mathcal{O}(\delta^2)$, т.е. при вычислениях с точностью $\mathcal{O}(\delta)$ их вкладом можно пренебречь. В $1/N_c$ модели НИЛ такой же порядок имеет и третье слагаемое в (6). Поэтому для его вычисления необходимо изменить стандартное уравнение щели

$$M_i \left(1 - \frac{N_c G_S}{2\pi^2} J_0(M_i) \right) = m_i, \quad (13)$$

где

$$J_0(M_i) = \Lambda^2 - M_i^2 \ln \left(1 + \frac{\Lambda^2}{M_i^2} \right), \quad (14)$$

включив в него слагаемые, описывающие вклады мезонных однопетлевых диаграмм – “головастиков”.

(г) Лагранжиан $\mathcal{L}_{\text{wzw}}$ отвечает аномалии ВЗВ. Благодаря ему устраняется случайная, не имеющая место в КХД, симметрия лагранжиана $\mathcal{L}^{(0)} + \mathcal{L}^{(1)}$ относительно замены $U \rightarrow U^{-1}$. $\mathcal{L}_{\text{wzw}}$ нарушает эту дискретную симметрию и однозначно (с точностью

до общего множителя N_c) определяется топологией отображения пространства Минковского в факторпространство голдстоуновских полей, осуществляемое матрицей $U(x)$. В частности, лагранжиан, отвечающий за двухфотонные распады π^0, η и η' мезонов, имеет вид

$$\mathcal{L}_{\text{wzw}} = -\frac{N_c \alpha}{4\pi} F_{\mu\nu} \tilde{F}^{\mu\nu} \langle Q^2 \phi \rangle + \dots, \quad (15)$$

где $\tilde{F}^{\mu\nu} = \frac{1}{2} \epsilon^{\mu\nu\rho\sigma} F_{\rho\sigma}$, а $\alpha = e^2/4\pi$, $F_{\mu\nu}$ и Q обозначают постоянную тонкой структуры, тензор напряженности электромагнитного поля A_μ и матрицу электрических зарядов кварков $3Q = \text{diag}(2, -1, -1)$. В том, что эти вершины имеют порядок δ легко убедиться, если учесть правило счета электрического заряда $e = \mathcal{O}(\sqrt{\delta})$.

(д) Лагранжиан $\mathcal{L}^{(0)} + \mathcal{L}^{(1)}$ представляет достаточно разумное приближение к полному эффективному лагранжиану $\mathcal{L}_{\text{eff}}$. Он позволяет точно описать спектр нонета псевдоголдстоуновских состояний, вычислить отношения масс легких кварков, избегая неопределенности, вносимой преобразованием симметрии Каппана–Манохара [32], получить величины низкоэнергетических констант связи и углов смешивания. В $1/N_c$ модели НИЛ все это достигается при следующих значениях основных параметров модели: $G_S = 6.6 \text{ ГэВ}^{-2}$, $G_V = 7.4 \text{ ГэВ}^{-2}$, $\Lambda = 1.1 \text{ ГэВ}$, $m_u = 2.6 \text{ МэВ}$, $m_d = 4.6 \text{ МэВ}$, $m_s = 84 \text{ МэВ}$, $\lambda_U = (285 \text{ МэВ})^4$ и $\Lambda_2 = 0.46$ [19–21].

После этих замечаний обратимся непосредственно к задаче вычисления ширин двухфотонных распадов в $1/N_c$ модели НИЛ. Для этого в (15) необходимо перейти от затравочного безразмерного поля ϕ к переменным, отвечающим физическим π^0, η и η' состояниям. Подробное решение данной задачи изложено в [20]. Воспользовавшись этим результатом, находим

$$\langle Q^2 \phi \rangle = \frac{1}{9} (4\phi_u + \phi_d + \phi_s) = \frac{1}{3f_{\pi^0}} \sum_{P=\pi^0, \eta, \eta'} c_P P, \quad (16)$$

где $c_P = c_P^{(0)} + c_P^{(1)}$. Как следствие, ширина двухфотонного распада принимает вид

$$\Gamma(P \rightarrow \gamma\gamma) = \frac{\alpha^2 m_P^3}{64\pi^3 f_{\pi^0}^2} c_P^2. \quad (17)$$

В лидирующем порядке (ЛО) получаем

$$\begin{aligned} c_{\pi^0}^{(0)} &= 1 + \frac{1}{\sqrt{3}} \left[\epsilon_0 (c_0 - \sqrt{8}s_0) + \epsilon'_0 (s_0 + \sqrt{8}c_0) \right], \\ c_\eta^{(0)} &= \frac{1}{\sqrt{3}} (c_0 - \sqrt{8}s_0) - \epsilon_0, \\ c_{\eta'}^{(0)} &= \frac{1}{\sqrt{3}} (s_0 + \sqrt{8}c_0) - \epsilon'_0, \end{aligned} \quad (18)$$

где $c_0 \equiv \cos \theta_0$, $s_0 \equiv \sin \theta_0$, угол η - η' смешивания $\theta_0 = -14.97^\circ$, а углы π^0 - η и π^0 - η' смешивания равны $\epsilon_0 = 0.0177$ и $\epsilon'_0 = 0.0033$ соответственно.

В следующем порядке (NLO) формулы (18) получают дополнительные вклады $c_P^{(1)}$, возникающие от малых поправок к углам смешивания: $\Delta\theta = -0.79^\circ$, $\Delta\epsilon = -6.3 \cdot 10^{-3}$, $\Delta\epsilon' = -1.2 \cdot 10^{-3}$, и линейной зависимости констант распада от масс токовых кварков $f_{i=u,d,s} = F(1 + \bar{a}m_i/(2M_0))$. Соответствующие выражения имеют вид

$$\begin{aligned} c_{\pi^0}^{(1)} &= \frac{1}{\sqrt{3}} [(\Delta\epsilon + \Delta\theta\epsilon'_0)(c_0 - \sqrt{8}s_0) + (\Delta\epsilon' - \Delta\theta\epsilon_0) \times \\ &\quad \times (s_0 + \sqrt{8}c_0)] - \frac{\bar{a}}{6M_0} \left\{ 4m_u - m_d + \right. \\ &\quad \left. + \frac{5\hat{m}}{\sqrt{3}} [\epsilon'_0(s_0 + \sqrt{2}c_0) + \epsilon_0(c_0 - \sqrt{2}s_0)] + \right. \\ &\quad \left. + \sqrt{\frac{2}{3}} m_s [\epsilon'_0(c_0 - \sqrt{2}s_0) - \epsilon_0(s_0 + \sqrt{2}c_0)] \right\}, \\ c_\eta^{(1)} &= -\Delta\epsilon - \frac{\Delta\theta}{\sqrt{3}} (s_0 + \sqrt{8}c_0) + \frac{\bar{a}}{6\sqrt{3}M_0} \left[3\sqrt{3}\hat{m}\epsilon_0 + \right. \\ &\quad \left. + (4m_u + m_d)(\sqrt{2}s_0 - c_0) + \sqrt{2}m_s(s_0 + \sqrt{2}c_0) \right], \\ c_{\eta'}^{(1)} &= -\Delta\epsilon' + \frac{\Delta\theta}{\sqrt{3}} (c_0 - \sqrt{8}s_0) + \frac{\bar{a}}{6\sqrt{3}M_0} \left[3\sqrt{3}\hat{m}\epsilon'_0 - \right. \\ &\quad \left. - (4m_u + m_d)(\sqrt{2}c_0 + s_0) - \sqrt{2}m_s(c_0 - \sqrt{2}s_0) \right]. \quad (19) \end{aligned}$$

При получении этих вкладов мы систематически пренебрегали малыми членами $(m_d - m_u)^2$, а также воспользовались общепринятым обозначением $\hat{m} = (m_u + m_d)/2$.

Обсудим полученный результат:

(а) Начнем с формулы (16), где мы заменили общую константу F на $f_{\pi^0} = 92.277 \pm 0.095$ МэВ. Это фиксирует нормировку аномалии. Как известно [1], тождества Уорда определяют эффективные вершины аномальной части лагранжиана с точностью до произвольной константы F , которую обычно связывают с константой распада нейтрального пиона f_{π^0} , а ее численное значение можно извлечь из константы слабого распада заряженного пиона $f_{\pi^\pm}$. Они отличаются от F только в следующем порядке кирально-го разложения, что несущественно при рассмотрении лидирующего вклада. В частности, отсюда следует известный результат для ширины распада π^0 -мезона

$$\Gamma(\pi^0 \rightarrow 2\gamma) = \frac{\alpha^2 m_{\pi^0}^3}{64\pi^3 f_{\pi^0}^2} = 7.750 \pm 0.016 \text{ эВ}, \quad (20)$$

который возникает из (18), если пренебречь эффектами смешивания, т.е., при $c_{\pi^0}^{(0)} = 1$. Ошибка в (20) связана с ошибкой в определении величины f_{π^0} .

Учет смешивания дает $c_{\pi^0}^{(0)} = 1.022$, что приводит к увеличению ширины распада на 4.4 %, $\Gamma_{\pi^0 \rightarrow 2\gamma} = 8.094 \pm 0.017$ эВ. Если говорить о роли отдельных вкладов в (18), то мы наблюдаем доминирование π^0 - η смешивания, на долю которого приходится 3.4 % указанного выше роста; смешивание π^0 - η' добавляет еще 1.0 %. Точно такая же картина наблюдается и в $1/N_c \chi\text{TB}$ [10]. Альтернативные вычисления, использующие χTB и учитывающие эффекты кварковых масс и динамических фотонов, дают оценку $\Gamma_{\pi^0 \rightarrow 2\gamma} = 8.06 \pm 0.02 \pm 0.06$ эВ [33]. Налицо общая тенденция: учет смешивания в лидирующем приближении ведет к увеличению ширины распада π^0 -мезона приблизительно на 4.5 %.

Это противоречит экспериментальным данным, представленным PDG: $\Gamma_{\pi^0 \rightarrow 2\gamma} = 7.72 \pm 0.12$ эВ [34], а также приведенному выше объединенному результату коллабораций PrimEx-I и PrimEx-II. Феноменологические данные с большой точностью подтверждают предсказание киральной аномалии (20). Отсюда следует важность изучения высших поправок в используемых теоретических схемах. Задача становится еще более актуальной, если учесть, что ранее сделанные оценки указывали на стабильность LO-результата, относительно учета NLO поправок [10]. Единственным известным автору исключением является результат совместного использования дисперсионных соотношений и правил сумм. Этот метод позволил получить оценку $\Gamma_{\pi^0 \rightarrow 2\gamma} = 7.93 \pm 0.12$ эВ [13], которая, с одной стороны, обладает точностью, отвечающей точности измерений коллабораций PrimEx, а с другой – указывает на то, что учет эффектов смешивания приводит лишь к небольшому (2.3 %) росту ширины распада (20). В рамках приведенных ошибок здесь наблюдается согласие с экспериментом.

Теперь обратимся к формулам (19) и посмотрим, что к описанной выше картине могут добавить наши вычисления NLO вкладов. Поскольку все параметры модели, входящие в формулу (19), известны, находим

$$c_{\pi^0}^{(1)} = -(6.15 + 1.66 - 0.3 + 8.6) \cdot 10^{-3} = -0.016. \quad (21)$$

Здесь соответственно приведены вклады, отвечающие поправкам $\Delta\epsilon$, $\Delta\epsilon'$, $\Delta\theta$ к углам смешивания $\epsilon = \epsilon_0 + \Delta\epsilon$, $\epsilon' = \epsilon'_0 + \Delta\epsilon'$, $\theta = \theta_0 + \Delta\theta$, а также вклад явно зависящий от масс токовых кварков, который пропорционален $\bar{a}$. В совокупности с лидирующим вкладом это дает: $c_{\pi^0} = 1.006$ или

$$\Gamma(\pi^0 \rightarrow 2\gamma) = 7.84 \pm 0.02 \text{ эВ}. \quad (22)$$

Важно, что поправка $c_{\pi^0}^{(1)}$ отрицательна и приводит к существенному (3.1 %) подавлению эффектов смешивания в амплитуде распада пиона, ширина распада

которого в итоге согласуется, как с экспериментальными данными [15, 34], так и с предсказанием правила сумм [13]. Приведенная в (22) ошибка учитывает только разброс в значении f_{π^0} . Неопределенности в оценке киральных поправок здесь не рассматривались.

Подавление эффектов смешивания не случайно. Помешать этому мог бы вклад $\propto \Delta\theta$, но в $1/N_c$ модели НИЛ поправка к углу η - η' смешивания пренебрежимо мала (напомним, что в $1/N_c\chi$ ТВ она составляет около 50 %). Мы уже сталкивались с похожей ситуацией при обсуждении проблемы $\eta \rightarrow 3\pi$ распада [21], где отмечалась особая роль $U(1)$ аксиальной аномалии в подавлении эффекта η - η' смешивания. Распад $\pi^0 \rightarrow \gamma\gamma$ дает нам еще один пример, когда существенное нарушение изоспиновой симметрии в лидирующем приближении подавляется после учета NLO поправок.

(б) Перейдем к обсуждению результатов, полученных нами для случая двухфотонных распадов η и η' мезонов. Существенным отличием данных процессов от распада пиона с точки зрения теории является иная роль эффектов смешивания. Для распада $\pi^0 \rightarrow \gamma\gamma$ они малы, а значит, задача теории – объяснить механизм такого подавления. Наоборот, если пренебречь смешиванием при описании распадов $\eta, \eta' \rightarrow \gamma\gamma$, то формулы (18) дают известный отвечающий $U(3)$ симметрии результат: $c_\eta^{(0)} = 1/\sqrt{3} \simeq 0.58$, $c_{\eta'}^{(0)} = \sqrt{8}/\sqrt{3} \simeq 1.63$, который значительно расходится с экспериментальными оценками $c_\eta = 0.997 \pm \pm 0.017$, $c_{\eta'} = 1.243 \pm 0.028$ [34]. Поэтому теоретическое описание двухфотонных распадов η и η' мезонов являются еще одним важным этапом в понимании механизма явного нарушения киральной симметрии в КХД.

В лидирующем порядке формулы (18) дают $c_\eta^{(0)} = 0.962$ и $c_{\eta'}^{(0)} = 1.425$, т.е., учет η - η' смешивания заметно улучшает результат – наблюдаемые значения амплитуд отличаются от предсказываемых не более чем на 13 %. Если же принять во внимание NLO поправки (19), то согласие станет еще лучше: $c_\eta = 1.10$ и $c_{\eta'} = 1.24$. При этом доминирующий вклад в константы $c_\eta^{(1)} = 0.137$ и $c_{\eta'}^{(1)} = -0.185$ приходится на члены, содержащие множитель $\bar{a}$, которые соответственно дают 0.111 и -0.173 . Теоретическая оценка ширины распада $\Gamma_{\eta' \rightarrow 2\gamma} = 4.26 \pm 0.01$ КэВ полностью согласуется с усредненным значением, приводимым PDG $\Gamma_{\eta' \rightarrow 2\gamma} = 4.28 \pm 0.19$ КэВ, а ширина распада η -мезона $\Gamma_{\eta \rightarrow 2\gamma} = 0.626 \pm 0.001$ КэВ оказывается выше экспериментального значения $\Gamma_{\eta \rightarrow 2\gamma} = 0.515 \pm 0.018$ КэВ.

Таким образом, $1/N_c$ модель НИЛ дает хороший результат для всех трех двухфотонных распадов. Дальнейший прогресс здесь может быть связан с выходом за рамки NLO приближения [43], или рассмотрением нового взаимодействия, нарушающего правило Цвейга [36]. Последнее возможно при наличии недиагональных членов в кинетической части эффективного лагранжиана, диагонализация которой требует использования уже двух углов η - η' смешивания. В обоих указанных случаях увеличивается число свободных параметров, а значит появляются дополнительные возможности для успешного описания двухфотонных распадов [37].

Обратимся наконец к вычислению контактной части амплитуд $\eta/\eta' \rightarrow \pi^+\pi^-\gamma$ распадов, которая описывается лагранжианом

$$\mathcal{L}_{\text{wzw}} = \frac{i e N_c}{24\pi^2} e^{\mu\nu\rho\sigma} A_\mu \langle Q \partial_\nu \phi \partial_\rho \phi \partial_\sigma \phi \rangle. \quad (23)$$

Вклад четырехугольной аномалии является предметом постоянного внимания коллабораций, изучающих радиационные распады $\eta/\eta' \rightarrow \pi^+\pi^-\gamma$ (WASA-at-COSY, ARGUS, KLOE, MARK II, JADE, CELLO, PLUTO, WA76, TASSO, TPC, Crystal Barrel, BESIII). С одной стороны, данные моды позволяют протестировать контактный член неабелевой аномалии ВЗВ, с другой – при высокой статистике событий возникает возможность изучения эффектов явного нарушения симметрии в контактном взаимодействии. Этот аспект исследований не менее интересен, поскольку способствует более глубокому проникновению в тонкости механизма явного нарушения киральной симметрии в КХД.

Без надежных методов расчета (как аналитических, так и на решетке) здесь трудно ожидать успеха. Задача усложняется, поскольку требует тщательного учета сильных взаимодействий, отвечающих за рождение $\pi^+\pi^-$ -пары. Для теоретического описания распадов $\eta/\eta' \rightarrow \pi^+\pi^-\gamma$ используют методы киральной теории возмущений [38], а также эффективные мезонные лагранжианы, учитывающие вклад векторных частиц [39, 40]. Предприняты попытки и комбинированного применения дисперсионных методов и аппарата эффективной киральной теории поля [41]. Такой подход позволяет воспроизвести аналитические свойства амплитуды, принять во внимание взаимодействие пионов в конечном состоянии, а также учесть эффекты явного нарушения изоспиновой симметрии за счет ρ - ω смешивания. В результате удастся с большой точностью описать данные коллаборации BESIII, обладающие к тому же очень высокой статистикой (9.7×10^5 событий $\eta' \rightarrow \pi^+\pi^-\gamma$)

[42]. Наиболее точное теоретическое описание спектральных данных, отвечающих двух-пионным событиям, получается в результате фитирования, при котором контактный вклад α_0 рассматривается, как свободный параметр. Этот фит имеет наименьший $\chi^2 = 1.74$ и дает значение

$$\alpha_0 = 18.41 \pm 0.19 \text{ ГэВ}^{-3} \quad [41]. \quad (24)$$

С другой стороны, величину α_0 можно рассчитать теоретически

$$\alpha_0 = \frac{\sqrt{2}N_c}{18\sqrt{3}\pi^2 f_{\pi^0}^3 \Omega_1^1(4m_\pi^2)} c_{\eta'\pi^+\pi^-}, \quad (25)$$

где $c_{\eta'\pi^+\pi^-} = \sin \theta_P + \sqrt{2} \cos \theta_P$, а θ_P – угол η - η' смешивания. $\Omega_1^1(s)$ – функция Омнеса, которая возникает в результате учета перерассеяния пионов в конечном состоянии. Выбор точки $s = 4m_\pi^2$ – киральная подгонка, которая позволяет уменьшить число параметров в амплитуде, соответственно $\Omega_1^1(4m_\pi^2) = 1.159$. С учетом величины угла смешивания $\theta_P = -21.37^\circ$, из (25) следует, что $\alpha_0 = 14.37 \text{ ГэВ}^{-3}$. Схема с двумя углами смешивания приводит к значению $\alpha_0 = 15.17 \text{ ГэВ}^{-3}$ [41], что ближе к (24). При этом авторы воспользовались параметрами, полученными в NNLO приближении $U(3)$ χ ТВ [43].

Найдем значение параметра α_0 в $1/N_c$ модели НИЛ, ограничившись, как и раньше, NLO приближением. Соответствующие вклады в коэффициент $c_{\eta'\pi^+\pi^-} = c_{\eta'\pi^+\pi^-}^{(0)} + c_{\eta'\pi^+\pi^-}^{(1)}$ имеют вид

$$\begin{aligned} c_{\eta'\pi^+\pi^-}^{(0)} &= s_0 + \sqrt{2}c_0 - \sqrt{3}\epsilon'_0, \\ c_{\eta'\pi^+\pi^-}^{(1)} &= \Delta\theta(c_0 - \sqrt{2}s_0) - \sqrt{3}\Delta\epsilon' + 3\sqrt{3}\frac{\hat{m}\bar{a}}{2M_0}\epsilon'_0 - \\ &\quad - \frac{\bar{a}}{2M_0}(2m_u + m_d)(\sqrt{2}c_0 + s_0). \end{aligned} \quad (26)$$

При подстановке в (25) это дает

$$\alpha_0 = (15.60 \pm 0.05) \text{ ГэВ}^{-3}. \quad (27)$$

С учетом указанных ошибок это на 14% ниже величины (24), но тем не менее (27) ближе всех из приведенных выше теоретических оценок к данным BESIII. Видно, что NLO поправка уменьшает LO результат, который равен $\alpha_0^{(0)} = 16.69 \pm 0.05 \text{ ГэВ}^{-3}$. Отдельные слагаемые в (26) дают следующие вклады $\alpha_0^{(1)} = (-0.28 + 0.03 + 0.00 - 0.84 = -1.09) \text{ ГэВ}^{-3}$. Как и можно было ожидать, здесь доминируют вклады отвечающие за нарушение $SU(3)$ симметрии. Поправки от нарушения изоспиновой симметрии невелики, меньше 3%. NNLO вычисления в $1/N_c$ модели НИЛ могут еще более улучшить согласие с (24).

Для полноты картины приведем результаты аналогичных расчетов для распада $\eta \rightarrow \pi^+\pi^-\gamma$. В данном случае $c_{\eta\pi^+\pi^-} = c_{\eta\pi^+\pi^-}^{(0)} + c_{\eta\pi^+\pi^-}^{(1)}$, где

$$\begin{aligned} c_{\eta\pi^+\pi^-}^{(0)} &= c_0 - \sqrt{2}s_0 - \sqrt{3}\epsilon_0, \\ c_{\eta\pi^+\pi^-}^{(1)} &= -\Delta\theta(s_0 + \sqrt{2}c_0) - \sqrt{3}\Delta\epsilon + 3\sqrt{3}\frac{\hat{m}\bar{a}}{2M_0}\epsilon_0 + \\ &\quad + \frac{\bar{a}}{2M_0}(2m_u + m_d)(\sqrt{2}s_0 - c_0). \end{aligned} \quad (28)$$

Современные экспериментальные данные по распаду $\eta \rightarrow \pi^+\pi^-\gamma$ пока не обладают необходимой статистикой, позволяющей с высокой точностью фиксировать величину контактного вклада. Поэтому мы ограничимся вычислением контактного члена (25) (с очевидной заменой $c_{\eta'\pi^+\pi^-} \rightarrow c_{\eta\pi^+\pi^-}$ и соответственно $\alpha_0 \rightarrow \alpha_{0\eta}$), величина которого будет дополнительным тестом $1/N_c$ модели НИЛ при сравнении с будущими прецизионными измерениями. Из формул (28) находим

$$\alpha_{0\eta} = (19.11 \pm 0.06) \text{ ГэВ}^{-3}. \quad (29)$$

Здесь результат NLO вычислений оказывается меньше, чем в случае с η' -мезоном, но тенденция остается та же: первая поправка $\alpha_{0\eta}^{(1)} = (0.23 + 0.16 + 0.03 - 1.01 = -0.59) \text{ ГэВ}^{-3}$ уменьшает лидирующий вклад $\alpha_{0\eta}^{(0)} = (19.70 \pm 0.06) \text{ ГэВ}^{-3}$. Интересно, что в данном случае оказывается заметным эффект от нарушения изоспиновой симметрии. На его долю приходится около 24% NLO поправки.

В заключение автор хотел бы поблагодарить Д. И. Казакова и М. К. Волкова за интерес к работе и полезные обсуждения.

-
1. J. Wess and B. Zumino, Phys. Lett. B **37**, 95 (1971).
 2. E. Witten, Nucl. Phys. B **223**, 422 (1983).
 3. S. Weinberg, Physica A **96**, 327 (1979).
 4. J. Gasser and H. Leutwyler, Nucl. Phys. B **250**, 465 (1985).
 5. B. Moussallam, Phys. Rev. D **51**, 4939 (1995).
 6. H. Leutwyler, Phys. Lett. B **374**, 163 (1996).
 7. H. Leutwyler, Phys. Lett. B **374**, 181 (1996).
 8. P. Herrera-Siklody, J. I. Latorre, P. Pascual, and J. Taron, Nucl. Phys. B **497**, 345 (1997).
 9. R. Kaiser and H. Leutwyler, Eur. Phys. J. C **17**, 623 (2000).
 10. J. L. Goity, A. M. Bernstein, and B. R. Holstein, Phys. Rev. D **66**, 076014 (2002).
 11. A. M. Bernstein and B. R. Holstein, Rev. Mod. Phys. **85**, 49 (2013).
 12. P. Bickert and S. Scherer, Phys. Rev. D **102**, 074019 (2020).

13. B. L. Ioffe and A. G. Oganesian, *Phys. Lett. B* **647**, 389 (2007).
14. S. Khlebnov, Y. Klopov, A. Oganesian, and O. Teryaev, *Phys. Rev. D* **104**, 016011 (2021).
15. I. Larin, Y. Zhang, A. Gasparian et al. (PrimEx-II Collaboration), *Science* **368**, 506 (2020).
16. L. Gan, B. Kubis, E. Passemar, and S. Tulin, *Phys. Rep.* **945**, 1 (2022).
17. A. A. Osipov, *JETP Lett.* **115**, 305 (2022).
18. A. A. Osipov, *JETP Lett.* **115**, 371 (2022).
19. A. A. Osipov, *Phys. Rev. D* **108**, 016014 (2023).
20. A. A. Osipov, *arXiv:hep-ph/2303.01865* (2023).
21. A. A. Osipov, *Письма ЖЭТФ* **117**, 894 (2023).
22. A. A. Osipov, *JETP Lett.* **113**, 413 (2021).
23. A. A. Osipov, *Phys. Lett. B* **817**, 136300 (2021).
24. A. A. Osipov, *Phys. Rev. D* **104**, 105019 (2021).
25. G. Veneziano, *Nucl. Phys. B* **159**, 213 (1979).
26. C. Rosenzweig, J. Schechter, and G. Trahern, *Phys. Rev. D* **21**, 3388 (1980).
27. P. Di Vecchia and G. Veneziano, *Nucl. Phys. B* **171**, 253 (1980).
28. K. Kawarabayashi and N. Ohta, *Nucl. Phys. B* **175**, 477 (1980).
29. P. Di Vecchia, F. Nicodemi, R. Pettorino, and G. Veneziano, *Nucl. Phys. B* **181**, 318 (1981).
30. K. Kawarabayashi and N. Ohta, *Prog. Theor. Phys.* **66**, 1709 (1981).
31. E. Witten, *Nucl. Phys. B* **156**, 269 (1979).
32. D. B. Kaplan and A. V. Manohar, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 2004 (1986).
33. B. Ananthanarayan and B. Moussallam, *JHEP* **05**, 052 (2002).
34. R. L. Workman, V. D. Burkert, V. Crede et al. (Particle Data Group), *Prog. Theor. Exp. Phys.* **2022**, 083C01 (2022).
35. X.-K. Guoa, Z.-H. Guoa, J. A. Oller, and J. J. Sanz-Cillero, *JHEP* **06**, 175 (2015).
36. J. Schechter, A. Subbaraman, and H. Weigel, *Phys. Rev. D* **48**, 339 (1993).
37. R. Escribano and J.-M. Frère, *JHEP* **0506**, 029 (2005).
38. J. Bijnens, A. Bramon, and F. Cornet, *Phys. Lett. B* **237**, 488 (1990).
39. M. Benayoun, P. David, L. DelBuono, Ph. Leruste, and H. B. O'Connell, *Eur. Phys. J. C* **31**, 525 (2003).
40. A. A. Osipov, A. A. Pivovarov, M. K. Volkov, and M. M. Khalifa, *Phys. Rev. D* **101**, 094031 (2020).
41. L.-Y. Dai, X.-W. Kang, U.-G. Meißner, X.-Y. Song, and D.-L. Yao, *Phys. Rev. D* **97**, 036012 (2018).
42. M. Ablikim, M. N. Achasov, S. Ahmed et al. (BESIII Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **120**, 242003 (2018).
43. X. K. Guo, Z. H. Guo, J. A. Oller, and J. J. Sanz-Cillero, *JHEP* **175**, 1506 (2015).

Вероятность высоких интенсивностей световой волны, распространяющейся в турбулентной атмосфере

И. В. Колоколов¹⁾, В. В. Лебедев

Институт теоретической физики имени Л. Д. Ландау РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 101000 Москва, Россия

Поступила в редакцию 13 июля 2023 г.

После переработки 13 июля 2023 г.

Принята к публикации 14 июля 2023 г.

Мы исследуем статистику флуктуаций интенсивности лазерного луча при его распространении в турбулентной атмосфере. Нас интересуют относительно большие расстояния распространения и дальний хвост функции распределения вероятности. Хвост определяется растянутой экспонентой, мы находим ее показатель.

DOI: 10.31857/S1234567823160024, EDN: isxdlh

Предметом нашей работы является теоретическое изучение физических свойств лазерного луча, распространяющегося в турбулентной атмосфере или, более общо, электромагнитной волны в турбулентной среде. Основной эффект, который исследуется в рамках данной проблемы – дифракция лазерного луча на флуктуациях коэффициента преломления, которые индуцируются флуктуациями давления турбулентных пульсаций. Флуктуации коэффициента преломления являются случайным полем, свойства которого описываются статистически. Поэтому теоретические предсказания поведения лазерного луча касаются средних значений (или соответствующих функций распределения вероятности), которые получаются усреднением по статистике флуктуаций.

Задача о распространении лазерного луча в атмосфере имеет долгую историю. Базисные теоретические результаты, касающиеся распространения лазерного луча в турбулентной атмосфере, были получены еще в шестидесятые-семидесятые годы прошлого века, они подытожены в ряде монографий [1–5]. В последнее время наблюдается возрождение интереса к данной тематике [6–10], связанное в основном с численным моделированием процесса распространения лазерного луча (электромагнитной волны) в турбулентной среде, которое позволяет получить детальную информацию о процессе.

Известные теоретические результаты описывают в основном типичное поведение лазерного луча в атмосфере. В то же время в уравнении для электромагнитного поля случайный показатель преломле-

ния является мультипликативным шумом, что ведет к весьма нетривиальным статистическим свойствам электромагнитного поля. Можно ожидать, что вероятность редких событий, когда та или иная величина (скажем, интенсивность электромагнитного поля) имеет аномально большое значение, окажется существенно выше наивных оценок, основанных на анализе типичных процессов. В качестве примера подобного поведения можно привести статистику квантовых частиц в случайном потенциале (см., например, [11]), который является мультипликативным шумом в уравнении Шредингера для квантовой частицы.

Мы теоретически изучаем распространение монохроматической электромагнитной волны в неограниченной турбулентной среде. Все характерные масштабы задачи (размер волнового пакета, длина его распространения) предполагаются значительно превышающими длину волны, так что применимо описание волны в терминах комплексной огибающей Ψ . В силу большого значения скорости света можно считать, что состояние среды не меняется за время распространения волны и использовать стационарное приближение для описания ее огибающей, т.е. считать Ψ функцией координаты z в направлении распространения волны, и двумерного радиус-вектора $\mathbf{r}$ в плоскости, перпендикулярной направлению распространения. Конечно, состояние турбулентной среды меняется со временем. В принятом приближении огибающая $\Psi(\mathbf{r}, z)$ адиабатически подстраивается под текущее состояние среды.

В данной работе мы считаем интенсивность электромагнитной волны достаточно малой, так что нелинейные эффекты (типа самофокусировки) явля-

¹⁾e-mail: igor.kolokolov@gmail.com

ются несущественными. Тогда уравнение для огибающей $\Psi(\mathbf{r}, z)$ в подходящих единицах измерения имеет вид двумерного уравнения Шредингера

$$i\partial_z \Psi + \nabla^2 \Psi + \xi \Psi = 0, \quad (1)$$

где ∇ – двумерный градиент в поперечной к направлению распространения плоскости, а $\xi(\mathbf{r}, z)$ – флуктуирующая составляющая показателя преломления. В силу уравнения (1) огибающая Ψ является полем, зависящим от реализации ξ . Последняя меняется со временем, приводя к изменению огибающей. Поэтому Ψ можно рассматривать как случайное поле, статистические свойства которого можно извлечь усреднением по большим временам.

Расстояние, пройденное волной, предполагается существенно превышающим интегральный масштаб турбулентности, тогда как поперечный размер волнового пакета предполагается меньшим, чем интегральный масштаб. В этом случае показатель преломления ξ быстро флуктуирует вдоль направления распространения волны. Нас интересуют интегральные характеристики, связанные с ξ , поэтому в силу центральной предельной теоремы статистика ξ может считаться Гауссовой. Эта статистика определяется парной корреляционной функцией флуктуаций показателя преломления:

$$\langle \xi(\mathbf{r}_1, z_1) \xi(\mathbf{r}_2, z_2) \rangle = \delta(z_1 - z_2) [\text{const} - r_{12}^c], \quad (2)$$

где угловые скобки означают усреднение по реализациям состояния среды, $r_{12} = |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|$ и c – некоторое число. Выражение (2) справедливо для расстояний r_{12} , лежащих в инерционном интервале турбулентности. Константа в соотношении (2) определяется турбулентными флуктуациями на интегральном масштабе, а степенная поправка – флуктуациями на масштабах $\sim r_{12}$. Флуктуации показателя преломления ξ в турбулентной среде определяются в основном флуктуациями давления. Для колмогоровского спектра показатель степени c в выражении (2) равен $c = 5/3$. В дальнейшем показатель c будет считаться произвольным числом, лежащим в интервале $1 < c < 2$.

Мы сосредоточимся в основном на статистических свойствах интенсивности I лазерного луча (электромагнитной волны) в некоторой точке наблюдения, которую мы выберем за начало координат: $I = |\Psi(\mathbf{r} = 0, z)|^2$. Расстояние z , пройденное лучом, будет считаться большим, $z \gg 1$ в наших единицах. Это означает, что эффекты, связанные со случайной дифракцией, являются сильными. В качестве начального состояния мы выбираем плоскую волну,

$\Psi(\mathbf{r}, 0) = 1$. Обобщение нашей схемы вычислений на другие случаи, скажем, на начальный Гауссов пучок, будет опубликовано в другом месте. Нас будут интересовать моменты $\langle I^n \rangle$ при больших значениях n . Именно эти величины определяют вероятность событий с аномально большим значением интенсивности.

Среднее значение $\langle I^n \rangle$ может быть записано, как $\langle I^n \rangle = F_{2n}(\mathbf{0}, \dots, \mathbf{0}, z)$, где F_{2n} – $2n$ -точечная корреляционная функция огибающей:

$$F_{2n}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_{2n}, z) = \langle \Psi(\mathbf{r}_1, z) \dots \Psi(\mathbf{r}_n, z) \Psi^*(\mathbf{r}_{n+1}, z) \dots \Psi^*(\mathbf{r}_{2n}, z) \rangle. \quad (3)$$

Эта корреляционная функция представляется в виде свертки с функцией Грина $\mathcal{G}_{2n}$:

$$F_{2n} = \int d^2 x_1 \dots d^2 x_{2n} \mathcal{G}_{2n} \Psi_{in}(\mathbf{x}_1) \dots \Psi_{in}^*(\mathbf{x}_{2n}). \quad (4)$$

Здесь $\Psi_{in}(\mathbf{r}) = \Psi(\mathbf{r}, z = 0)$ – начальное значение огибающей, а функция Грина

$$\mathcal{G}_{2n} = \mathcal{G}_{2n}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_{2n}, \mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_{2n}, z) \quad (5)$$

зависит от z и $4n$ радиус-векторов.

Функция Грина может быть представлена в виде интеграла по путям, который выводится из уравнения Шредингера (1). После усреднения по флуктуациям показателя преломления в соответствии с выражением (2), мы приходим к интегралу по переменным $\mathbf{y}_j$, которые являются функциями координаты ζ , $0 < \zeta < z$:

$$\mathcal{G}_{2n} = \int \prod_{j=1}^{2n} D\mathbf{y}_j \exp \left\{ \int_0^z d\zeta \left(\frac{i}{4} K + W \right) \right\}, \quad (6)$$

$$K = \left(\frac{d\mathbf{y}_1}{d\zeta} \right)^2 + \dots + \left(\frac{d\mathbf{y}_n}{d\zeta} \right)^2 - \left(\frac{d\mathbf{y}_{n+1}}{d\zeta} \right)^2 - \dots - \left(\frac{d\mathbf{y}_{2n}}{d\zeta} \right)^2, \quad (7)$$

$$W = \sum_{i=1}^n \sum_{j=i+1}^n y_{ij}^c + \sum_{i=n+1}^{2n} \sum_{j=i+1}^{2n} y_{ij}^c - \sum_{i=1}^n \sum_{j=n+1}^{2n} y_{ij}^c. \quad (8)$$

Граничными условиями для траекторий $\mathbf{y}_j(\zeta)$ при $\zeta = 0$ и $\zeta = z$ являются аргументы функции Грина $\mathbf{x}_j$ и $\mathbf{r}_j$, см. (5). “Потенциал” W (8) зависит от переменных $y_{ij} = |\mathbf{y}_i - \mathbf{y}_j|$. Как и следует, константа, фигурирующая в выражении (2), выпадает из рассмотрения.

Можно найти явное выражение для парной функции Грина $\mathcal{G}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, z)$:

$$\mathcal{G} = \frac{\theta(z)}{16\pi^2 z^2} \exp \left[\frac{i}{2z} (\mathbf{r} - \mathbf{x})(\mathbf{R} - \mathbf{X}) - z \int_0^1 d\chi |\chi \mathbf{x} + (1 - \chi)\mathbf{r}|^c \right], \quad (9)$$

которая определяет поведение парной корреляционной функции. Здесь введены обозначения $\mathbf{R} = (\mathbf{r}_1 + \mathbf{r}_2)/2$, $\mathbf{r} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2$, $\mathbf{X} = (\mathbf{x}_1 + \mathbf{x}_2)/2$, $\mathbf{x} = \mathbf{x}_1 - \mathbf{x}_2$.

Для начального состояния в виде плоской волны, когда $\Psi_{in} = 1$, парная корреляционная функция имеет простой вид [12, 13]:

$$F(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, z) = \int d^2x d^2X \mathcal{G} = \exp(-z|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^c). \quad (10)$$

Таким образом, характерное расстояние между точками 1 и 2 на расстоянии z равно $r_{ph} = z^{-1/c} \ll 1$. Эта величина имеет смысл длины сбоя фазы за счет флуктуаций показателя преломления. Характерное же значение переменной X оценивается, как $z^{1/c+1}$.

Анализ $2n$ -точечной функции Грина (5) показывает, что при $z \gg 1$ она имеет резкие максимумы на конфигурациях, когда имеется n пар близких точек $\mathbf{x}_j$, находящихся на расстояниях порядка r_{ph} , и разделенных гораздо большими расстояниями [13, 14]. При этом первая точка пары берется из набора $\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_n$, а вторая – из набора $\mathbf{x}_{n+1}, \dots, \mathbf{x}_{2n}$. Остаются близкими и траектории $\mathbf{y}_j(\zeta)$ в интеграле по путям (6), стартующие с близких точек $\mathbf{x}_j$. В этом случае “потенциал” W (8) может быть приближен суммой y_{ij}^c по парам, а остальные слагаемые в сумме (8) взаимно сокращают друг друга. Тогда функция Грина факторизуется. Например, для близких пар $(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_{n+1}), \dots, (\mathbf{x}_n, \mathbf{x}_{2n})$

$$\mathcal{G}_{2n} = \mathcal{G}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_{n+1}, \mathbf{x}_1, \mathbf{x}_{n+1}, z) \dots \mathcal{G}(\mathbf{r}_n, \mathbf{r}_{2n}, \mathbf{x}_n, \mathbf{x}_{2n}, z). \quad (11)$$

Очевидно, имеется $n!$ подобных вкладов, по числу разбиений $\mathbf{x}_j$ на пары.

Таким образом, пространство интегрирования по начальным координатам в выражении для моментов интенсивности

$$\langle I^n \rangle = \int d^2x_1 \dots d^2x_{2n} \mathcal{G}_{2n}(\mathbf{0}, \dots, \mathbf{0}, \mathbf{x}_1 \dots \mathbf{x}_{2n}), \quad (12)$$

в случае начальной плоской волны разбивается на $n!$ областей, соответствующих различным разбиениям точек на пары. Вклады всех таких областей одинаковы и в главном приближении для моментов интенсивности мы получаем $\langle I^n \rangle = n!$, что означает экспоненциальную функцию распределения вероятности $P(I) = \exp(-I)$. Отметим, что $P(I) = \exp(-I)$ соответствует Гауссовой статистике поля Ψ , естественной для комплексного поля со случайной фазой.

В работах [13–15] показано, что поправки к приближению (11), связанные с отброшенными членами в выражении (8) для W , пропорциональны параметру α :

$$\alpha = z^{-a}, \quad a = \frac{4}{c} - c, \quad (13)$$

малому при $z \gg 1$. Для колмогоровского спектра турбулентности показатель a равен $a = 11/15$. Поправки к значению $\langle I^n \rangle = n!$ растут с номером n и становятся существенными, когда $\alpha n \sim 1$. В данной работе мы определяем значение $\langle I^n \rangle$ при $\alpha n \gg 1$ и демонстрируем, что они существенно превышают $n!$. Другими словами, при $I \gg \alpha^{-1}$ возникает хвост функции распределения вероятности $P(I)$, существенно превышающий $\exp(-I)$.

При $\alpha n \gg 1$ пространство интегрирования в интеграле (12) по-прежнему разбивается на $n!$ областей, соответствующих хорошо разделенным парам траекторий $\mathbf{y}_j(\zeta)$, дающим одинаковый вклад в $\langle I^n \rangle$. Выберем для определенности одно из таких разбиений на пары: $(\mathbf{y}_1, \mathbf{y}_{n+1}), \dots, (\mathbf{y}_n, \mathbf{y}_{2n})$. Вводя переменные $\mathbf{Y}_j = (\mathbf{y}_j + \mathbf{y}_{j+n})/2$ и $\boldsymbol{\rho}_j = \mathbf{y}_j - \mathbf{y}_{j+n}$, где j пробегает значения от 1 до n , мы получим функциональное представление для функции Грина с аргументами в выбранной области в виде:

$$\mathcal{G} = \int \prod_{j=1}^n D\mathbf{Y}_j D\boldsymbol{\rho}_j \exp(-S). \quad (14)$$

В интеграле по путям (14) подразумеваются некоторые ненулевые начальные значения $\mathbf{Y}_j(0) = \mathbf{X}_j$ и нулевые конечные значения (при $\zeta = z$) для траекторий $\mathbf{Y}_j$ и $\boldsymbol{\rho}_j$, которые диктуются исследуемой величиной $\langle I^n \rangle$.

Как следует из представления (6), действие S в выражении (14) равно

$$S = -\frac{i}{2} \sum_j \int_0^z d\zeta \frac{d\mathbf{Y}_j}{d\zeta} \frac{d\boldsymbol{\rho}_j}{d\zeta} + \sum_j \int_0^z d\zeta \rho_j^c + \sum_{j>k} \int_0^z d\zeta U(\mathbf{Y}_j - \mathbf{Y}_k, \boldsymbol{\rho}_j, \boldsymbol{\rho}_k). \quad (15)$$

В этом выражении индексы j, k пробегает значения от 1 до n . Величина U при $\boldsymbol{\rho}_j$, малых в сравнении с характерными значениями $\mathbf{Y}_j - \mathbf{Y}_k$, определяется формулой, следующей из выражения (8):

$$U(\mathbf{R}, \boldsymbol{\rho}_1, \boldsymbol{\rho}_2) \approx \rho_{1,\alpha} \rho_{2,\beta} V_{\alpha\beta}(\mathbf{R}), \quad (16)$$

$$V_{\alpha\beta}(\mathbf{R}) = cR^{c-2} \left[\delta_{\alpha\beta} + (c-2) \frac{R_\alpha R_\beta}{R^2} \right]. \quad (17)$$

Здесь греческие индексы α, β нумеруют компоненты векторов в плоскости, поперечной к направлению распространения волны.

Как мы увидим ниже, значения $\mathbf{Y}_j$ в интеграле (14) параметрически велики по n . Это позволяет вычислять интеграл по $\mathbf{Y}_j$ в выражении (14) в перевальном приближении. Интеграл же по ρ_j не является перевальным.

Исследуем сначала перевальное значение $\mathbf{Y}_j$, которое определяется условием экстремума $\delta\mathcal{G}/\delta\mathbf{Y}_j = 0$. Подставляя сюда выражение (14), находим уравнение

$$\frac{i}{2} \frac{d^2 \bar{\rho}_j}{d\zeta^2} + \sum_{k \neq j} \frac{\partial V_{\alpha\beta}}{\partial \mathbf{Y}_j} (\mathbf{Y}_j - \mathbf{Y}_k) \bar{\rho}_{j\alpha} \bar{\rho}_{k\beta} = 0. \quad (18)$$

Здесь $\bar{\rho}_j$ – среднее значение ρ_j , наличие которого связано с ненулевыми начальными значениями $\mathbf{X}_j$ траекторий $\mathbf{Y}_j$. При выводе соотношения (18) мы заменили среднее от произведения $\rho_{j\alpha} \rho_{k\beta}$ на произведение средних. Причина этого заключается в том, что флуктуации ρ_j определяются в основном вторым слагаемым в действии (15), которое диагонально по j . Поэтому вклад флуктуаций в среднее $\rho_{j\alpha} \rho_{k\beta}$, где $j \neq k$, оказывается пренебрежимо малым.

В теории поля среднее значение флуктуирующего поля находится из условия экстремума так называемого квантового эффективного действия (см., например, [16]). В исследуемой задаче это условие эквивалентно соотношению $\delta\mathcal{G}/\delta\bar{\rho}_j = 0$, которое определяет среднее $\bar{\rho}_j$. Используя выражение (14), находим уравнение

$$\frac{i}{2} \frac{d^2 Y_{j\alpha}}{d\zeta^2} + \sum_{k \neq j} V_{\alpha\beta} (\mathbf{Y}_j - \mathbf{Y}_k) \bar{\rho}_{k\beta} = 0, \quad (19)$$

при выводе которого мы пренебрегли вкладом второго слагаемого в действии (15). Дело в том, что флуктуации ρ_j (которые определяются в основном этим членом) оказываются много больше $\bar{\rho}_j$, в силу чего зависимость второго слагаемого от $\bar{\rho}_j$ слаба. В дальнейшем мы обоснуем это пренебрежение. Отметим, что условие экстремума по начальному значению $\bar{\rho}_j(0)$ приводит к условию $d\mathbf{Y}_j/d\zeta(0) = 0$, в силу структуры действия (15).

Уравнения (18), (19) показывают, что перевальное значение выражения (14) записывается в виде

$$\begin{aligned} \ln \mathcal{G}_{sp} &= \frac{i}{2} \sum_j \int_0^z d\zeta \frac{d\mathbf{Y}_j}{d\zeta} \frac{d\bar{\rho}_j}{d\zeta} - \\ &- \sum_{j>k} \int_0^z d\zeta \bar{\rho}_{1,\alpha} \bar{\rho}_{2,\beta} V_{\alpha\beta} (\mathbf{Y}_j - \mathbf{Y}_k) = \\ &= \sum_{j>k} \int_0^z d\zeta V_{\alpha\beta} (\mathbf{Y}_j - \mathbf{Y}_k) \bar{\rho}_{j,\alpha} \bar{\rho}_{k,\beta}. \end{aligned} \quad (20)$$

Последнее равенство в (20) получено после интегрирования по частям с учетом уравнения (19) и граничных условий. Величина (20) отрицательна, поскольку $\mathbf{Y}_j$ – вещественные величины, тогда как средние $\bar{\rho}_j$ – чисто мнимые величины, а функция $V_{\alpha\beta}(\mathbf{Y}_j - \mathbf{Y}_k)$ положительна для рассматриваемых здесь значений показателя c : $1 < c < 2$.

Система уравнений (18), (19) позволяет оценить перевальное значение (20). Считая, что все величины $\mathbf{Y}_j$ вместе с их граничными значениями имеют один порядок $Y_j \sim X$, равно как и средние $\bar{\rho}_j \sim i\bar{\rho}$, мы приходим к оценкам

$$\bar{\rho} \sim (nz^2)^{-1} X^{3-c}, \quad \ln \mathcal{G}_{sp} \sim -\frac{1}{3} X^{4-c}. \quad (21)$$

Отметим отсутствие зависимости от n в оценке для $\ln \mathcal{G}_{sp}$.

Теперь мы переходим к учету флуктуационного вклада в $\mathcal{G}_{2n}$. Флуктуации ρ_j могут быть оценены как $z^{-1/c}$, что много больше среднего $\bar{\rho}$ (21). Это приводит к тому, что после сдвига ρ_j на его среднее значение и сдвига $\mathbf{Y}_j$ на его перевальное значение эффектами, связанными с “потенциалом взаимодействия” (16) можно пренебречь (оценку точноности см. ниже). В результате мы приходим к факторизованному приближению типа (11). Таким образом, выражение для функции Грина факторизуется $\mathcal{G}_{2n} = \mathcal{G}_{sp} \mathcal{G}_{fl}$, где $\mathcal{G}_{sp}$ определяется выражением (20) и флуктуационный множитель дается произведением парных функций Грина

$$\mathcal{G}_{fl} = \prod_{j=1}^n \frac{1}{16\pi^2 z^2} \exp \left[-\frac{z}{c+1} |\mathbf{x}_j - \mathbf{x}_{j+n}|^c \right]. \quad (22)$$

Стоящее здесь выражение для парной функции Грина получено из общей формулы (9) после подстановки $\mathbf{r} = \mathbf{R} = \mathbf{0}$ и с учетом того, что начальные значения сдвинутых переменных $\mathbf{Y}_j - \mathbf{X}_j$ являются нулевыми.

Возвращаясь к выражению (12) для моментов интенсивности, мы находим

$$\frac{\langle I^n \rangle}{n!} = \int d^2 x_1 \dots d^2 x_{2n} \mathcal{G}_{sp} \mathcal{G}_{fl}. \quad (23)$$

Фактор $\mathcal{G}_{sp}$ зависит только от координат центров пар $\mathbf{X}_j = (\mathbf{x}_j + \mathbf{x}_{j+n})/2$, поэтому после интегрирования по разностям $\mathbf{x}_j - \mathbf{x}_{j+n}$ мы находим

$$\frac{\langle I^n \rangle}{n!} \sim z^{-2(1+1/c)} \int d^2 X_1 \dots d^2 X_n \mathcal{G}_{sp}. \quad (24)$$

При большом n значение интеграла (24) оценивается как:

$$\ln \frac{\langle I^n \rangle}{n!} \sim 2n \ln X - 2n \left(1 + \frac{1}{c}\right) \ln z - \frac{C}{z^3} X^{4-c}, \quad (25)$$

где C – константа порядка единицы. Здесь X – введенное выше характерное значение переменных $\mathbf{X}_j$.

Оптимизируя выражение (25) по X , находим:

$$X^{4-c} \sim n z^3. \quad (26)$$

Подстановка (26) в (25) дает искомую асимптотику высоких моментов интенсивности:

$$\ln \frac{\langle I^n \rangle}{n!} \sim \frac{2}{4-c} n \ln n - \frac{2(4-c^2)}{(4-c)c} n \ln z. \quad (27)$$

Соответствующая асимптотика функции распределения вероятности $P(I)$ имеет вид

$$\ln P \sim -\frac{1}{\alpha} (\alpha I)^\beta, \quad \beta = \frac{4-c}{6-c}. \quad (28)$$

Для колмогоровского спектра $\beta = 7/13$. Поскольку $\beta < 1$, мы приходим к выводу о более высокой вероятности больших значений I в сравнении с экспоненциальным распределением $\exp(-I)$. Формула (28) находится в соответствии с результатами недавнего численного моделирования [17]. Отметим, что соотношение (28) означает существенную негауссовость волнового поля Ψ , хаотизованного рассеянием на турбулентных флуктуациях.

Асимптотика моментов (27) переходит в $\langle I^n \rangle = n!$ при $\alpha n \sim 1$ или $z \sim n^{c/(4-c^2)}$, как и должно быть. Аналогичное утверждение справедливо и для функции распределения, которая сшивается с экспонентой $\exp(-I)$ при $I \sim 1/\alpha$. Из (26) следует также характерный размер области на фронте волны, определяющей I^n при $n \gg 1/\alpha$:

$$X \sim (\alpha n)^{1/(4-c)} z^{1/c+1}. \quad (29)$$

При $\alpha n \gg 1$ величина (29) оказывается параметрически больше, чем оценка $z^{1/c+1}$ для X в Гауссовом режиме. Физически это означает, что для создания высоких значений интенсивности требуется собрать энергию с большой площади исходной волны. Из выражения (29) следует оценка для средних значений $\bar{\rho}$ (21)

$$\bar{\rho} \sim \frac{1}{n z^2} X^{3-c} \sim r_{ph} (n \alpha)^{-1/(4-c)}. \quad (30)$$

Эти средние малы в сравнении с характерной амплитудой флуктуаций: $\bar{\rho} \ll r_{ph}$, что оправдывает приближение (22). Заметим, однако, что перевальное действие (20) определяется именно этими средними, причем в действии (20) эта малость компенсируется большим числом слагаемых.

Найденная нами асимптотика моментов (27) ограничена сверху по n . Это ограничение определяется средним квадратом отброшенной нами флуктуационной составляющей взаимодействия пар между собой. Для него справедлива оценка

$$z^2 n^2 r_{ph}^4 X^{2(c-2)} \sim n \left(n^{c/4} \alpha \right)^{4/(4-c)}.$$

Малость этой величины по сравнению с основной величиной флуктуационного действия, которое оценивается как $\sim n$, приводит к условию применимости нашего подхода $n \ll \alpha^{-4/c}$. Обратный предельный случай требует специального анализа.

Мы теоретически установили, что при распространении лазерного луча в турбулентной среде на расстояниях, где существенную роль играет дифракция на случайных флуктуациях показателя преломления, вероятность аномально больших флуктуаций интенсивности существенно выше оценок, сделанных на основе Гауссовой статистики огибающей электромагнитной волны Ψ . Это связано с мультипликативностью показателя преломления в уравнении на огибающую и является универсальным свойством подобных стохастических систем. Мы нашли форму функции распределения вероятности аномально больших значений интенсивности. Наши выводы сделаны для простейшего случая начальной плоской волны, хотя сама схема анализа применима и к другим начальным формам лазерного луча. Результаты их исследования будут опубликованы в другом месте. Отдельного анализа требует случай чрезвычайно высоких значений интенсивности. Отдельного анализа требует также учет нелинейности (например, эффекта самофокусировки), которая может оказаться существенной для рассматриваемых нами больших интенсивностей электромагнитной волны.

Работа поддержана научной программой Национального Центра Физики и Математики, проект “Физика высоких плотностей энергии”, этап 2023–2025. Авторы благодарят П. М. Лушникову за полезные обсуждения.

1. В. И. Татарский, *Распространение волн в турбулентной атмосфере*, Наука, М. (1967) [V. I. Tatarskii, *The Effects of the Turbulence Atmosphere on Wave Propagation*, Israel Program for Scientific Translations, Jerusalem (1971)].
2. J. W. Goodman, *Statistical Properties of Laser Speckle Pattern*, in *Laser Speckle and Related Phenomena*, ed. by J. C. Dainty, Springer-Verlag, Berlin (1975).
3. С. М. Рытов, Ю. А. Кравцов, В. И. Татарский, *Введение в статистическую радиофизику, ч. II, Случайные поля*, Физматлит, М. (1978) [M. S. Rytov,

- Yu. A. Kravtsov, and V. I. Tatarskii, *Principles of Statistical Radiophysics 4: Wave Propagation through Random Media*, Springer-Verlag, Berlin (1989)].
4. *Laser Beam Propagation in the Atmosphere*, ed. by J. W. Strohbehn, Springer, N.Y. (1978).
5. L. C. Andrews and R. L. Phillips, *Laser Beam Propagation Through Random Media*, Press Monograph Series, PM53 (1998).
6. M. A. Vorontsov, G. W. Carhart, V. S. R. Gudimetla, T. Weyrauch, E. Stevenson, S. L. Lachinova, L. A. Beresnev, J. Liu, K. Rehder, and J. F. Riker, *Proc. 2010 AMOS Conf.* (2010).
7. M. A. Vorontsov, V. R. Gudimetla, G. W. Carhart, T. Weyrauch, S. L. Lachinova, E. Polnau, J. R. L. A. Beresnev, J. Liu, and J. F. Riker, *Proc. 2011 AMOS Conf.* (2011).
8. S. L. Lachinova and M. A. Vorontsov, *J. Opt.* **18**, 025608 (2016).
9. П. М. Лушников, Н. Владимирова, Письма в ЖЭТФ **108**, 611 (2018) [*JETP Lett.* **108**, 571 (2018)].
10. T. Fahey, M. Islam, A. Gardi, and R. Sabatini, *Atmosphere* **12**, 918 (2021).
11. F. Evers and A. D. Mirlin, *Rev. Mod. Phys.* **80**, 1355 (2008).
12. В. И. Татарский, ЖЭТФ **56**, 2106 (1969) [*Sov. Phys. JETP* **29**, 1133 (1969)].
13. В. Н. Заворотный, В. И. Кляцкин, В. И. Татарский, ЖЭТФ **73**, 481 (1977) [*Sov. Phys. JETP* **46**, 252 (1977)].
14. I. Kolokolov, V. Lebedev, and P. Lushnikov, *Phys. Rev. E* **101**, 042137 (2020).
15. M. I. Charnotskii, *Waves in Random Media* **4**, 243 (1994).
16. С. Вайнберг, *Квантовая теория поля*, Физматлит, М. (2015), т. 2 [S. Weinberg, *The quantum theory of fields*, Cambridge University Press, Cambridge (2001), v. 2].
17. П. М. Лушников, частное сообщение. Личная страница: <https://math.unm.edu/plushnik/>.

Обнаружение “медленного” света в спектрах фототока в слоях квантовых точек Ge/Si, сопряженных с фотонным кристаллом

А. И. Якимов⁺¹⁾, В. В. Кириенко⁺, А. В. Двуреченский⁺⁺, Д. Е. Уткин⁺⁺

⁺Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

⁺⁺Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 5 июля 2023 г.

После переработки 17 июля 2023 г.

Принята к публикации 17 июля 2023 г.

Исследованы спектральные характеристики фототока в ближней инфракрасной области в вертикальных Ge/Si pin фотодиодах с квантовыми точками Ge, встроенными в двумерный фотонный кристалл. Из зависимостей фототока от угла падения света определены дисперсионные соотношения для блоховских фотонных мод, взаимодействие с которыми приводит к резонансному увеличению чувствительности фотодиодов. На дисперсионных характеристиках обнаружены участки, характеризующиеся групповой скоростью фотонов, стремящейся к нулю. Установлено, что максимальное усиление фототока, достигающее значений ~ 60 относительно фотодиода без фотонного кристалла, является результатом взаимодействия квантовых точек с “медленными” блоховскими модами.

DOI: 10.31857/S1234567823160036, EDN: isyof0

Кремний является базовым материалом современной микроэлектроники. Однако этот полупроводник прозрачен для фотонов с длинами волн больше 1 мкм, что сдерживает применение кремниевой фотоники для создания эффективных источников излучения и фотоприемников. Существенный прорыв в этой области мог бы состоять в использовании бездефектных гетероструктур Ge/Si с квантовыми точками (КТ) Ge, способных регистрировать оптическое излучение в ближнем инфракрасном (ИК) диапазоне длин волн (1–2 мкм) за счет межзонных оптических переходов в КТ. Свежие обзоры по фундаментальным и прикладным аспектам полупроводниковых КТ можно найти в работах [1, 2]. Проблема, ограничивающая широкое применение КТ Ge, заключается в малом коэффициенте поглощения света как результат малой плотности состояний, связанных с КТ [3–6], пространственным разделением электронов и дырок на гетерогранице Ge-Si [7–10] и большой эффективной массой носителей заряда. Недавно было обнаружено, что встраивание слоев КТ Ge/Si в двумерный фотонный кристалл (ФК) приводит к многократному (до 5 раз) усилению фототока в ближнем ИК диапазоне [11]. ФК представлял собой регулярную двумерную решетку отверстий в гетероструктуре Si/Ge/Si с периодом, существенно меньшем длины волны излучения. Результаты были объяснены

комбинацией двух эффектов: (1) возбуждением падающей световой волной планарных мод ФК, распространяющихся вдоль слоев Ge/Si и эффективно взаимодействующих с межзонными переходами в КТ, и (2) уменьшением коэффициента отражения от микроструктурированной поверхности из-за более низкого эффективного показателя преломления структуры с отверстиями. В литературе метаповерхности, позволяющие за счет оптической дифракции перенаправлять падающий по нормали к поверхности свет в латеральном направлении, получили название структур с фотонными ловушками (*photon-trapping structures*) [12–19]. Вопросы распространения света и его связь со структурой ФК детально обсуждались в работах [20, 21]. В общем случае, для увеличения коэффициента поглощения света структуры с фотонными ловушками не обязаны представлять собой ФК с его характерной зонной структурой [22]. Необходимо лишь осуществить генерацию волноводных мод в латеральном направлении – вдоль слоев с КТ. Однако недавние результаты моделирования фотонных наноструктур показали, что специфика распространения световых волн в ФК может существенно повлиять на процессы возникновения фототока и стать причиной резонансного поглощения электромагнитного излучения в солнечных элементах [23].

Отличительной особенностью ФК является наличие в материале пространственно периодической модуляции диэлектрической проницаемости с периодом

¹⁾e-mail: yakimov@isp.nsc.ru

меньше длины волны оптического излучения [24]. Микро- или наноотверстия, как правило, являются потенциальными барьерами как для фотонных, так и для электронных волн. С точки зрения квантовой механики, в двумерной периодической решетке формируются электронные блоховские волны. По аналогии с электронами, блоховские моды могут возникать и для фотонов в результате интерференции волн, отраженных от отверстий, формируя зоны Бриллюэна. Дисперсионные соотношения для этих блоховских волн $\omega(k_{||})$ характеризуются наличием пологих участков, на которых групповая скорость фотонов $v_g = d\omega/dk_{||}$ близка к нулю (“медленный” свет), здесь ω и $k_{||}$ – частота и планарный волновой вектор блоховской моды [25, 26]. Большое время жизни “медленных” фотонов увеличивает эффективность взаимодействия света с веществом и может являться фактором значительного усиления оптического поглощения в слабо поглощающих материалах. В настоящей работе впервые измерены дисперсионные характеристики оптических возбуждений в слоях КТ Ge/Si, встроенных в ФК. Обнаружено, что максимальное увеличение фототока (до 60 раз) в гибридной структуре с ФК осуществляется за счет взаимодействия межзонных переходов в КТ с “медленными” блоховскими модами.

Образцы выращивались методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложках кремний-на-изоляторе (КНИ) и представляли собой вертикальные pin фотодиоды (рис. 1а). Подробное описание электронной структуры КТ Ge/Si и условий роста, таких как температура и скорость роста, было представлено ранее в [10, 22]. Толщина скрытого слоя SiO₂ составляла 2 мкм. Активная область детекторов состояла из десяти слоев КТ Ge, разделенных кремниевыми барьерами толщиной 10 нм. Для роста барьеров использовался двухстадийный процесс. Для синтеза массивов КТ Ge использовалось явление самоорганизации полупроводниковых наноструктур в процессе гетероэпитаксиального роста материалов с большим несоответствием параметров решетки (механизм роста Странского–Крастанова). Осаждение слоев Ge с номинальной толщиной покрытия 0.9 нм проводилось при температуре 250 °С со скоростью 0.04 нм/с. Согласно данным сканирующей туннельной микроскопии КТ точки Ge имели форму hut-кластеров [10]. Плотность КТ составляет $5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$, длина основания $\simeq 10 \text{ нм}$, высота $\sim 1 \text{ нм}$. На заключительном этапе на выращенных структурах выполнялось формирование двумерного ФК. Массив круглых отверстий диаметром 0.85 мкм создавался с помощью реактивного

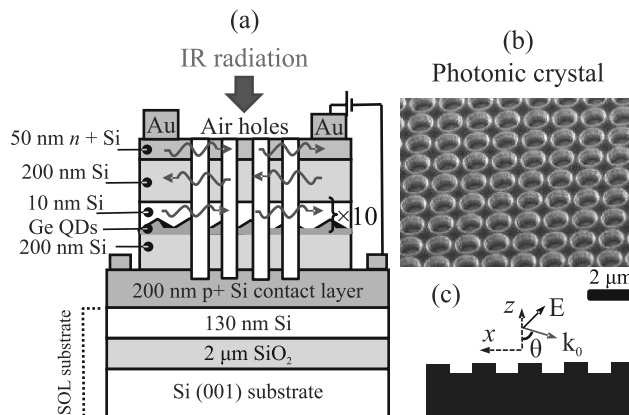


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Схематический разрез вертикального pin фотодиода с КТ Ge в матрице Si на подложке КНИ, встроенными в 2D ФК. (б) – Изображение регулярной решетки микроотверстий в слоях Si/Ge/Si, представляющей собой двумерный ФК, полученное с помощью сканирующей электронной микроскопии. Диаметр отверстий 0.85 мкм, период решетки 1.3 мкм, глубина 0.68 мкм. (с) – Геометрия измерений. Здесь θ – угол падения света относительно нормали к плоскости образца, k_0 – волновой вектор падающей волны, E – напряженность электрического поля

ионного травления слоев Ge/Si через металлическую маску. Маской служила перфорированная пленка Cr толщиной 30 нм, сформированная на поверхности гетероструктуры посредством электронно-лучевой литографии, осаждения металла в вакууме и последующего lift-off процесса. Отверстия упорядочены в прямоугольной решетке с периодом $p = 1.3 \text{ мкм}$ и проникают на глубину 0.68 мкм (рис. 1б). Для выявления особенностей фототока, связанных с возбуждением мод ФК, были изготовлены также стандартные pin фотодиоды Ge/Si с КТ Ge. Их отличие от микроструктурированных образцов заключалось лишь в отсутствии отверстий.

Измерения спектров фототока проводились при комнатной температуре с помощью ИК фурье-спектрометра Bruker Vertex 70 в режиме Rapid-Scan с разрешением 10 см^{-1} в комбинации с низковольтным токовым предусилителем SR 570 компании Stanford Research System. Источником излучения служила галогеновая лампа. Полученные с помощью фурье-преобразования спектры фототока нормировались на спектр излучения галогеновой лампы, измеренный пироэлектрическим детектором DLaTGS. Измерения зависимостей фототока от обратного смещения U_b показали, что при $U_b \geq 1 \text{ В}$ фотоотклик не зависит от напряжения, что свидетельствует об эффективном сборе всех фотовозбужденных носителей заряда [27]. Диспер-

сионные соотношения для мод ФК были получены из измерений спектральных характеристик фототока при различных углах падения света θ [28]. Пусть поверхность образцов совпадает с плоскостью (x, y) . Тогда, вращая образцы вокруг оси y , можно восстановить закон дисперсии блоховских волн в направлении $k_x = |\mathbf{k}_0| \sin \theta$ (рис. 1с). В экспериментах образцы крепились на вращающейся платформе с электронным управлением. Угол θ варьировался от 0° до 70° с точностью 1° . Свет был линейно поляризован перпендикулярно оси вращения.

На рисунке 2а приведены спектральные характеристики токовой чувствительности двух фотодиодов Ge/Si с КТ Ge для $\theta = 0^\circ$. Первый образец (контрольный) не содержит решетки отверстий, отличие второго фотодиода от первого заключается в наличии двумерного ФК, в который встроены КТ Ge (рис. 2а, кривая 2). Осцилляции фототока на спектре контрольного образца являются результатом вертикальных резонансов типа Фабри–Перо, обусловленных интерференцией волн, отраженных от границ раздела воздух/Si и Si/SiO₂ [22, 29]. Фотодиод с ФК характеризуется более слабыми вертикальными резонансами, что свидетельствует об успешном преобразовании исходной падающей вертикальной плоской волны в ансамбль поперечно распространяющихся мод, поглощение которых КТ приводит к значительному росту фототока. Наиболее сильно этот эффект наблюдается в длинноволновой части спектра – в области длин волн от 2 до 3 мкм. На рисунке 2б приведена спектральная зависимость фактора усиления чувствительности фотодиода K фотонным кристаллом в этой области. Величина $K(\lambda)$ определялась как отношение спектральных характеристик фототока образца с ФК и без него. Наблюдается серия узких резонансов, отвечающих возбуждению блоховских мод ФК, основные из которых обозначены на рис. 2б буквами А, В, С, D и Е. Важным является то, что величина усиления фототока составляет $K \simeq 50$ и значительно превышает наблюдаемые ранее величины $K \simeq 5$ [11].

На рисунке 3 приведены спектральные характеристики токовой чувствительности в диапазоне длин волн от 2 до 3.1 мкм при различных углах падения света на поверхность фотодиода с ФК. Сразу обращает на себя внимание, что резонансы В и Е на длинах волн $\lambda = 2.5$ и 2.8 мкм существуют только в узком диапазоне θ вблизи 0° и исчезают в спектрах уже при $\theta > 10^\circ$. Такое поведение говорит о том, что они обусловлены взаимодействием оптических переходов в КТ Ge/Si с модами ФК вблизи точки Г зоны Бриллюэна [23]. Наиболее интересным оказалось поведе-

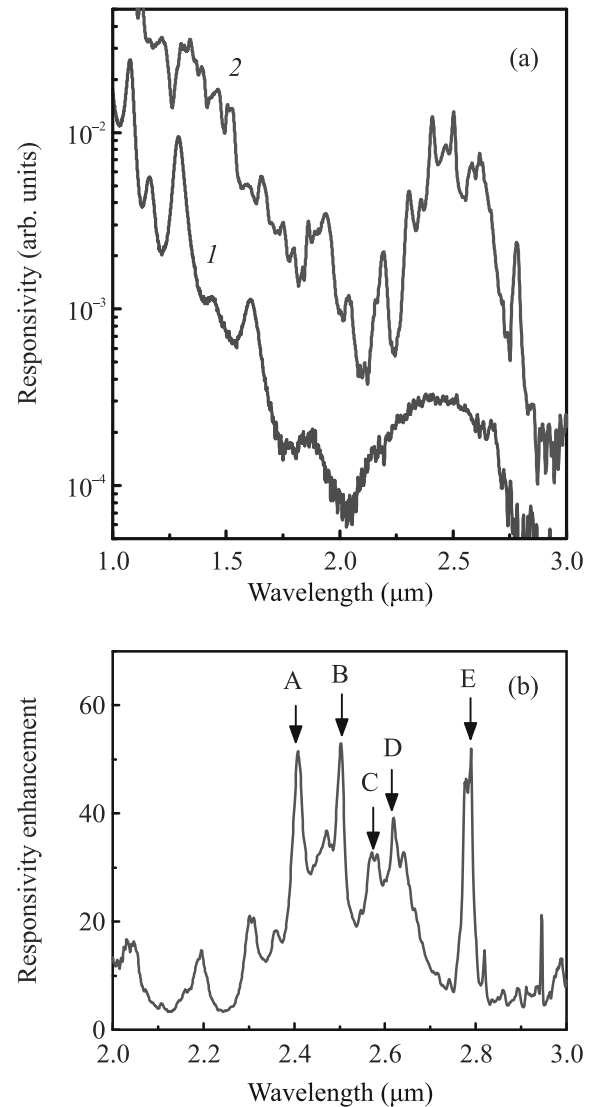


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Спектры фототока контрольного фотодиода Ge/Si без ФК (кривая 1) и гибридного образца, в котором слой КТ встроены в 2D фотонный кристалл (кривая 2), для $\theta = 0^\circ$. К образцам приложено напряжение 2 В. (б) – Спектральная характеристика фактора усиления фототока K в структуре с фотонным ФК в диапазоне длин волн 2–3 мкм

ние моды С. Амплитуда этого резонанса минимальна при малых углах и сильно возрастает с увеличением θ . При $\theta \geq 30^\circ$ он становится доминирующим резонансом в структуре, для которого фактор усиления фототока достигает значений $K \simeq 60$ (рис. 3с).

На рисунке 4 показаны зависимости нормированной угловой частоты $\omega p/2\pi c$ резонансов А, С и D от планарного волнового вектора k_x . Здесь $\omega = 2\pi c/\lambda$, c – скорость света в вакууме. Дисперсионная характеристика моды D носит осциллирующий характер. Это говорит о том, что она является результатом пе-

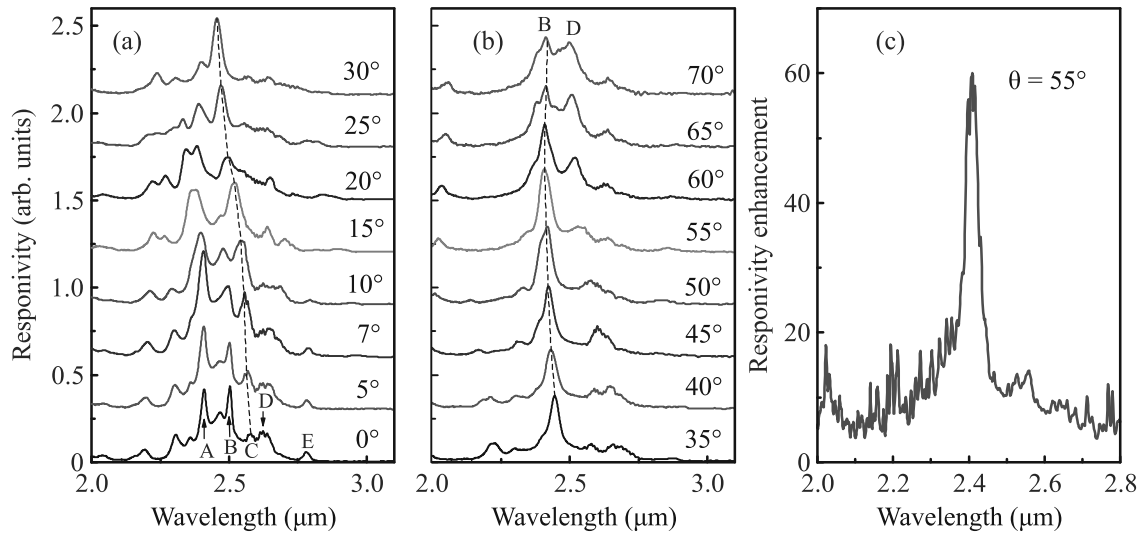


Рис. 3. (Цветной онлайн) (a), (b) – Спектральные характеристики чувствительности фотодиода, интегрированного с ФК, при углах падения света θ от 0° до 30° (a) и от 35° до 70° (b). Угол θ отсчитывается от нормали к поверхности образца. Для удобства восприятия спектры сдвинуты по вертикали на 0.3 единицы. (c) – Спектральная характеристика фактора усиления фототока K для $\theta = 55^\circ$

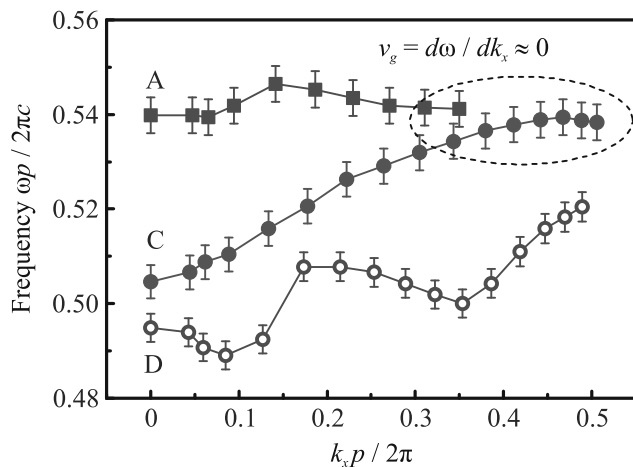


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимости нормированной частоты оптических резонансов в фотодиоде с КТ Ge/Si, сопряженного с ФК, от компоненты волнового вектора фотонов в плоскости ФК

ресека соседних взаимодействующих ветвей блоховских волн [24, 30]. Энергия моды С растет с ростом k_x , приближаясь к ветви А, и вырождается при $k_x > 0.34(2\pi/p)$ ($\theta > 40^\circ$). В этой области волновых векторов моды А и С вырождаются, групповая скорость фотонов v_g стремится к нулю и наблюдается многократное (до 60 раз) увеличение фототока относительно фотодиода без ФК (рис. 3с). Этот результат позволяет сделать вывод о том, что максимальное увеличение фототока в гетероструктурах Ge/Si с КТ Ge, встроенными в ФК, является результатом взаимодействия КТ с “медленными” блоховскими модами ФК.

В заключении следует обратить внимание на то, что размещение КТ в наноструктурированных материалах может приводить к формированию и других необычных, например, нелинейных, эффектов [31].

Электронная литография была проведена в Научно-исследовательском центре физического факультета Новосибирского государственного университета.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект # 19-12-00070-П).

1. А. И. Аржанов, А. О. Севостьянов, К. А. Магарян, К. Р. Каримуллин, А. В. Наумов, Фотоника **15**, 622 (2021).
2. А. И. Аржанов, А. О. Севостьянов, К. А. Магарян, К. Р. Каримуллин, А. В. Наумов, Фотоника **16**, 96 (2022).
3. S. Tong, J. L. Liu, J. Wan, and K. L. Wang, Appl. Phys. Lett. **80**, 1189 (2002).
4. A. Algundo, N. Usami, T. Ujihara, K. Fujiwara, G. Sasaki, K. Nakajima, and Y. Shiraki, Appl. Phys. Lett. **83**, 1258 (2003).
5. A. Elfving, G. V. Hansson, and W.-X. Ni, Physica E **16**, 528 (2003).
6. A. I. Yakimov, V. V. Kirienko, V. A. Armbrister, A. A. Bloshkin, and A. V. Dvurechenskii, Mater. Res. Express **3**, 105032 (2016).
7. K. Brunner, Rep. Prog. Phys. **65**, 27 (2002).
8. O. G. Schmidt, K. Eberl, and Y. Rau, Phys. Rev. B **62**, 16715 (2000).
9. D. Grützmacher, T. Fromherz, C. Dais, J. Stangl, E. Müller, Y. Ekinici, H. Solak, H. Sigg, R. Lechner,

- E. Wintersberger, S. Birner, V. Holý, and G. Bauer, *Nano Lett.* **7**, 3150 (2007).
10. A. I. Yakimov, V. V. Kirienko, A. A. Bloshkin, A. V. Dvurechenskii, and D. E. Utkin, *J. Appl. Phys.* **128**, 143101 (2020).
11. А. И. Якимов, А. А. Блошкин, В. В. Кириенко, А. В. Двуреченский, Д. Е. Уткин, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 501 (2021).
12. J. L. Donnelly, B. C. P. Sturmberg, K. B. Dossou, L. C. Botten, A. A. Asatryan, C. G. Poulton, R. C. McPhedran, and M. de Sterke, *Opt. Express* **22**, A1343 (2014).
13. Y. Gao, H. Cansizoglu, K. G. Polat, S. Ghandiparsi, A. Kaya, H. H. Mamtaz, A. S. Mayet, Y. Wang, X. Zhang, T. Yamada, E. Ponizovskaya Devine, A. F. Elrefaie, S. Y. Wang, and M. S. Islam, *Nat. Photonics* **11**, 301 (2017).
14. H. Cansizoglu, C. Bartolo-Perez, Y. Gao, E. Ponizovskaya Devine, S. Ghandiparsi, K. G. Polat, H. H. Mamtaz, T. Yamada, A. F. Elrefaie, S. Y. Wang, and M. S. Islam, *Photonics Res.* **6**, 734 (2018).
15. S. Ghandiparsi, A. F. Elrefaie, A. S. Mayet, T. Landolsi, C. Bartolo-Perez, H. Cansizoglu, Y. Gao, H. H. Mamtaz, H. R. Golgir, E. Ponizovskaya Devine, T. Yamada, S. Y. Wang, and M. S. Islam, *J. Light. Technol.* **37**, 5748 (2019).
16. H. Zhou, S. Xu, Y. Lin, Y. C. Huang, B. Son, Q. Chen, X. Guo, K. H. Lee, S. C. K. Gon, X. Gong, and C. S. Tan, *Opt. Express* **28**, 10280 (2020).
17. H. Cansizoglu, E. Ponizovskaya Devine, Y. Gao, S. Ghandiparsi, T. Yamada, A. F. Elrefaie, S. Y. Wang, and M. S. Islam, *IEEE Trans. Electron Devices* **65**, 372 (2018).
18. T. Yamada, E. Ponizovskaya Devine, S. Ghandiparsi, C. Bartolo-Perez, A. S. Mayet, H. Cansizoglu, Y. Gao, A. Ahamed, S. Y. Wang, and M. S. Islam, *Nanotechnology* **32**, 365201 (2001).
19. C. Bartolo-Perez, S. Chandiparsi, A. S. Mayet, H. Cansizoglu, Y. Gao, W. Qarony, A. Ahamed, S. Y. Wang, S. R. Cherry, M. S. Islam, and G. Arino-Estrada, *Opt. Express* **29**, 19024 (2021).
20. Yu. V. Dvuzhilova, I. S. Dvuzhilov, and M. B. Belonenko, *Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys.* **85**, 1354 (2021).
21. П. С. Емельянец, Н. И. Пышков, С. Е. Свяховский, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 826 (2023).
22. A. I. Yakimov, V. V. Kirienko, D. E. Utkin, and A. V. Dvurechenskii, *Nanomaterials* **12**, 2993 (2022).
23. D. Duché, L. Escoubas, J. J. Simon, P. Torchio, W. Vervisch, and F. Flory, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 193310 (2008).
24. J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, J. N. Winn, and R. D. Meade, *Photonic crystals: Molding the flow of light*, Princeton University Press, Princeton (2008).
25. T. Baba, *Nat. Photonics* **2**, 465 (2008).
26. И. А. Колмычек, И. В. Малышева, В. Б. Новиков, А. И. Майдыковский, А. П. Леонтьев, К. С. Напольский, Т. В. Мурзина, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 727 (2021).
27. А. И. Якимов, А. В. Двуреченский, А. И. Никифоров, С. В. Чайковский, С. А. Тийс, *ФТП* **37**, 1383 (2003).
28. A. I. Yakimov, V. V. Kirienko, V. A. Armbrister, A. A. Bloshkin, and A. V. Dvurechenskii, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 171107 (2018).
29. K. Zang, X. Jiang, Y. Huo, X. Ding, M. Morea, X. Chen, C. Y. Lu, J. Ma, M. Zhou, Z. Xia, Z. Yu, T. I. Kamins, Q. Zhang, and J. S. Harris, *Nat. Commun.* **8**, 628 (2017).
30. H. Shigeta, M. Fujita, Y. Tanaka, A. Oskooi, H. Ogawa, Y. Tsuda, and S. Noda, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 161103 (2012).
31. Ю. М. Серов, А. И. Галимов, А. А. Торопов, *Известия Российской академии наук. Серия физическая* **87**, 885 (2023).

Гигантское комбинационное рассеяние света на поверхностях из плазмонных металлов как метод контроля их функциональных и надмолекулярных структурных характеристик

Н. П. Ковалец^{+*1)}, И. В. Разумовская⁺, С. А. Бедин⁺, А. В. Наумов⁺

⁺Московский педагогический государственный университет (МПГУ), 119991 Москва, Россия

^{*}Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН,
Троицкое обособленное подразделение (ТОП ФИАН), 108840 Троицк, Москва, Россия

Поступила в редакцию 19 июля 2023 г.

После переработки 19 июля 2023 г.

Принята к публикации 19 июля 2023 г.

Разработаны фундаментальные основы и рассмотрены возможности применения спектроскопии гигантского комбинационного рассеяния света (ГКРС) для анализа некоторых структурных характеристик поверхностей и агломератов наноструктур из плазмонных металлов. Представлен пример реализации неразрушающего дистанционного экспресс-метода ГКРС-диагностики степени локального растрескивания металлического покрытия и влияния дефектов/трещин на проводимость тонкой металлизированной пленки (одноосно растянутой трековой полимерной мембраны из полиэтилентерефталата с серебряным 50 нм покрытием).

DOI: 10.31857/S1234567823160048, EDN: ittlwf

Спектроскопия гигантского комбинационного рассеяния света (ГКРС) или поверхностно-усиленного комбинационного рассеяния (англ. *surface-enhanced Raman scattering*, SERS) используется во все новых и новых областях, от медицины до идентификации старинных предметов искусства. Соответственно не уменьшается интерес к разработке новых SERS-активных поверхностей (см., например, [1–6]) для анализа новых органических соединений [7], полупроводниковых квантовых точек [8], гибридных металл-органических нанокомпозитов [9], лекарств, отравляющих и взрывоопасных веществ [10], обнаружения вирусов [11] и т.п. Плазмон-усиленное комбинационное рассеяние света (КРС) в слоевых структурах металл-диэлектрик позволяет контролировать локальную плотность электромагнитных состояний [12].

Однако, может быть поставлена и обратная задача: с помощью известного, в достаточной мере изученного вещества-аналита, использовать SERS-спектроскопию для характеристики некоторых структурных особенностей активных поверхностей, если они имеют и другие области применения [13]. Например, в работах [14, 15] было показано, что в металлизированных нанопроволочных поверхностных структурах, выращенных методом шаблонного

синтеза в трековых мембранах (ТМ), происходит слипание нанопроволок (НП). Для такого слипания было выведено основанное на энергетическом критерии соотношение между длиной НП и их диаметром (начиная с некоторой критической поверхностной плотности пор ТМ, на которых они выращены, и меньше которой слипание невозможно по геометрическим причинам). Поскольку именно в таких агломератах НП возникают так называемые “горячие точки”, при попадании в которые анализируемое вещество проявляет эффект гигантского усиления КРС [4, 5], в принципе можно по величине SERS-сигнала определить некоторые структурные характеристики (или их сочетания) для ансамбля НП из плазмонного металла, что может быть полезно при использовании его в различных технологиях (излучающие и преобразующие элементы в дисплеях, активные структуры солнечных батарей, топливные элементы, сенсоры).

Как было показано в работе [6], созданные в результате одноосного растяжения микро- и нанотрещины в серебряном или золотом покрытии ТМ представляют собой “горячие точки”, на которых происходит существенное усиление КРС-сигнала. Это превращает растянутые металлизированные ТМ в весьма эффективные SERS-активные металлоповерхности. Таким образом, становится возможной “обратная” постановка задачи, и функциональная связь “поверх-

¹⁾e-mail: np.kovaletc@mpgu.su

ностная плотность микротрещин – интенсивность SERS-сигнала” может быть использована для создания дистанционной неразрушающей методики диагностики степени локального растрескивания металлических покрытий из плазмонных металлов на диэлектрических подложках (полимеры, стекла, кремний).

Металлизированные поверхности широко применяются в технике. В частности, они актуальны в космической промышленности [16]. Так, телескоп Уэбба имеет составное зеркало из бериллия с золотым напылением. Активно используются металлизированные полимерные пленки с напылением серебра [17, 18] и алюминия [19, 20]. Они применяются на космических аппаратах в качестве термоокислительно-стабилизационных покрытий, рефлекторов или коллекторов световой энергии, в солнечных парусах.

Зачастую условия эксплуатации приводят к развитию дефектов и микротрещин в металлическом покрытии. Это резкие перепады температур, связанные с переходом устройства из области, освещенной Солнцем, в тень; космическая пыль; влияние собственной внешней атмосферы и пр. Повреждения и микротрещины могут быть не видимы невооруженным глазом, но при этом влиять на функциональные свойства металлического покрытия [21, 22]: отражательную способность, проводимость, прочность, защитные свойства. При этом в последние годы существенно изменились требования к материалам для космических аппаратов с точки зрения надежности и сроков активного существования.

Металлизированные полимерные пленки, благодаря своей гибкости, находят также применение в различных областях наземной техники, как токопроводящие и нагревательные элементы. Широко используются отражательные способности таких пленок.

Отдельный интерес представляют металлизированные полимерные трековые мембраны, чьи прочностные, оптические, электрические характеристики специфически меняются в результате деформаций [23, 24].

Все вышеперечисленное требует разработки новых оригинальных методов неразрушающего оперативного контроля наличия поверхностных дефектов и трещин.

В данной работе продемонстрирована возможность ГКРС (SERS)-диагностики/визуализации поверхностных дефектов и трещин в металлическом тонкопленочном покрытии применительно к металлическим покрытиям из плазмонных металлов (серебра, золота, меди), нанесенным на поверхность ди-

электриков, исследованы закономерности образования горячих ГКРС-областей.

Как было показано в нашей работе [6], одноосное растяжение полимерных ТМ с нанесенными на них тонкопленочными металлизированными (Ag, Au) покрытиями приводит к возникновению сети трещин и/или дефектов, в окрестности которых возникают горячие точки двух видов – “острие” и “зазор” (англ., “*tip hot spot*”, “*gap hot spot*”). Данные относятся к металлизированному коммерческим ТМ из полиэтилентерефталата с системой пересекающихся пор, направленных под углом около 43° к поверхности мембраны, производства ЛЯР ОИЯИ, г. Дубна [25, 26]. Толщина пленки составляла 10 мкм, диаметр пор – 100 нм, характерное среднее расстояние между порами – 290 нм, характеризующее поверхностную плотность пор $n = 1,2 \cdot 10^9 \text{ см}^{-2}$. Толщина серебряного покрытия 50 нм. Контролируемое растяжение тонкопленочного образца с размерами 5×40 мм осуществлялось с помощью минитестовой разрывной машины со скоростью 4 мм/мин. Оптический контроль структуры образца проводился с использованием микроскопа Nikon LV100 (Япония). Наблюдение за изменением свойств пленки после снятия нагрузки осуществлялось в течение 60 мин.

Часть опытов на разрывной машине проводилась с одновременным измерением электрического сопротивления (проводимости) образца с использованием мостового измерителя импеданса UNIT UT-612LCR. Ток через образец подавался от регулируемого источника постоянного тока, гарантирующего достаточную стабильность во времени. Погрешность измерения сопротивления не превышала 3 %.

При нанесении на такие поверхности анализируемого вещества (здесь и в случае [6] хорошо изученного красителя малахитовый зеленый (MG) с концентрацией 100 мкг/мл) в районе трещин и дефектов наблюдается существенное усиление сигнала КРС (см. рис. 1, адаптированный из [6]). Для измерения использовался лабораторный КРС-спектрометр Horiba LabRam Evolution с лазером на длине волны 532 нм, мощность 8.5 мВт (5 % от максимальной мощности).

Основное предположение нашей модели усиления SERS-сигнала на микротрещинах заключается в том, что “горячие области” располагаются по краям (“берегам”) микротрещин, и чем длиннее микротрещина, тем больше ее вклад в сигнал. Такое предположение основано на сопоставлении двух временных зависимостей [6]: интенсивности SERS-сигнала и поверхностной проводимости металлизированной ТМ (рис. 2). Время наблюдения на графиках рис. 2 включает: увеличение деформации растяжения об-

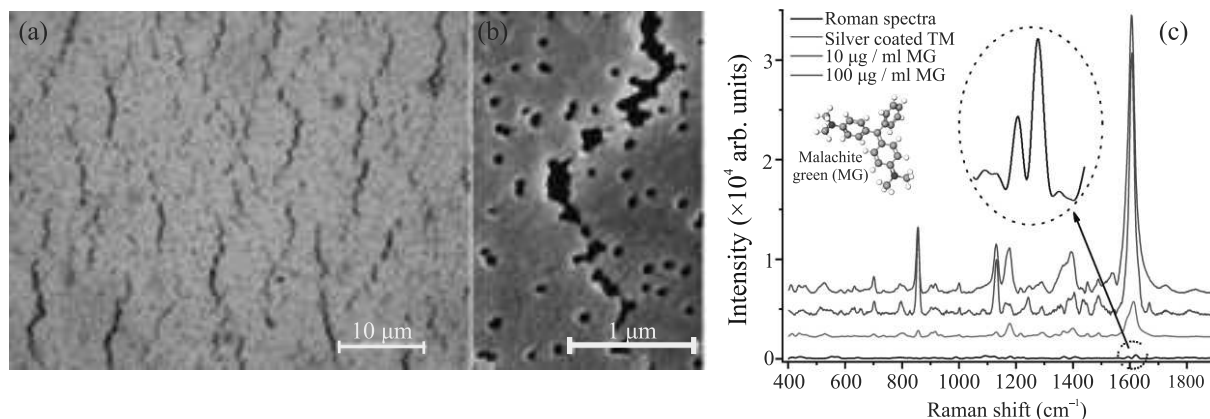


Рис. 1. (Цветной онлайн) Одноосно растянутая Ag-металлизированная ПЭТФ-полимерная трековая мембрана, как ГКРС-активная поверхность [6]. (a) – Оптическая микрофотография поверхности с трещинами. (b) – Увеличенное изображение трещины, полученной с использованием просвечивающего электронного микроскопа. (c) – Спектр ГКРС малахитового зеленого на поверхности ТМ для двух различных концентраций в сравнении с обычным спектром КРС малахитового зеленого

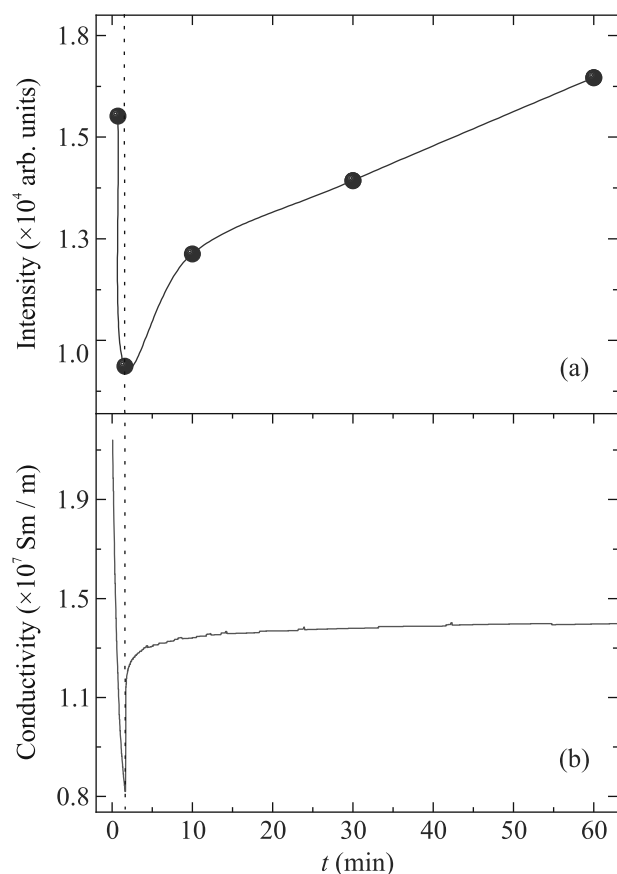


Рис. 2. (Цветной онлайн) Временные зависимости: (a) – интенсивности SERS-сигнала (спектральный пик на 1600 см^{-1}); (b) – проводимости образца металлизированной серебром ТМ

разца (и соответствующее увеличение концентрации микротрещин); его разгрузку и упругое восстановление длины в момент t_1 ; дальнейшую релаксацию длины образца. Здесь под интенсивностью ГКРС-сигнала мы понимаем интегральную интенсивность (площадь) наиболее интенсивного пика в спектре малахитового зеленого в области $\sim 1600\text{ см}^{-1}$ (рис. 1с).

Как было показано в [6], проводимость тонкопленочных покрытий и ее зависимость от различных параметров служит важным дополнительным параметром для характеристики синтезированных структур. Эксперимент показывает, что временная зависимость интенсивности ГКРС-сигнала на всем протяжении четко коррелирует с соответствующей зависимостью поверхностной проводимости. Но последняя явно должна зависеть не только от концентрации микротрещин, но и от их длины. Хотя условие к расстоянию между “берегами” трещины для разрыва электрической цепи может несколько отличаться от аналогичного условия для обеспечения сигнала ГКР, но наблюдается общая тенденция.

Плазмонный резонанс возникает также в нанометровом зазоре в концах трещин, где ее “берега” асимптотически смыкаются, но мы предполагаем, что при достаточно большой длине трещины этим эффектом можно пренебречь.

Далее формулируются две модели, основанные на вышеупомянутом предположении о зависимости как поверхностной проводимости, так и интенсивности ГКРС-сигнала от длины трещин.

Модель влияния микротрещин на проводимость. В случае напыления плазмонного металла на диэлектрическую подложку (в нашем случае –

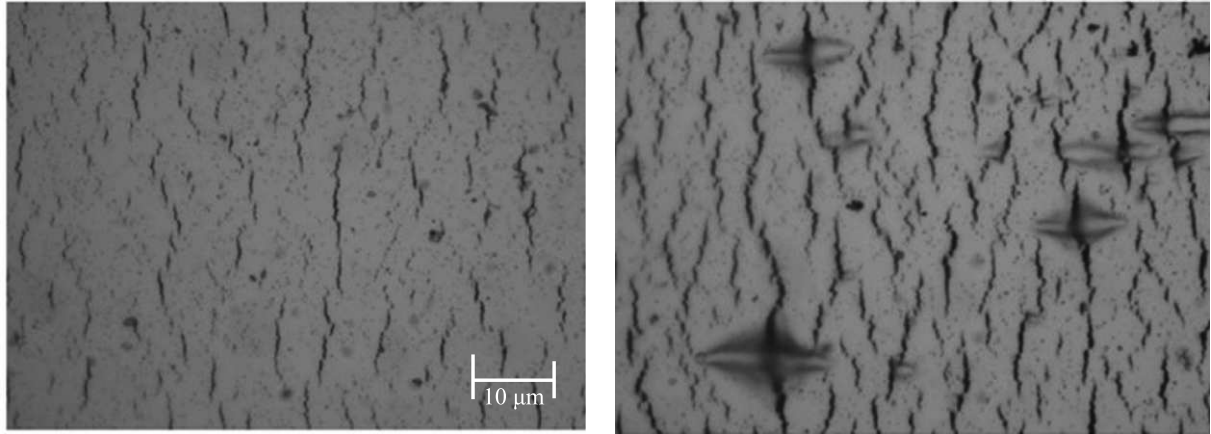


Рис. 3. Трещины на посеребренной поверхности трековой мембраны при деформации 10.5 и 18 % в оптическом микроскопе Nikon Eclipse LV100. Увеличение 100х. Направление растяжения по горизонтали. Толщина покрытия 50 нм

ТМ) электропроводность фактически является поверхностной, за счет металлической пленки. Предполагаем, что микротрещины распространяются на всю глубину достаточно тонкого покрытия, причем они практически все перпендикулярны направлению растяжения пленки (рис. 3).

Величина проводимости дает возможность косвенно судить о количестве трещин, ширина которых достаточно велика, чтобы уменьшать фактическое сечение электрической цепи (рис. 4), и о их средней

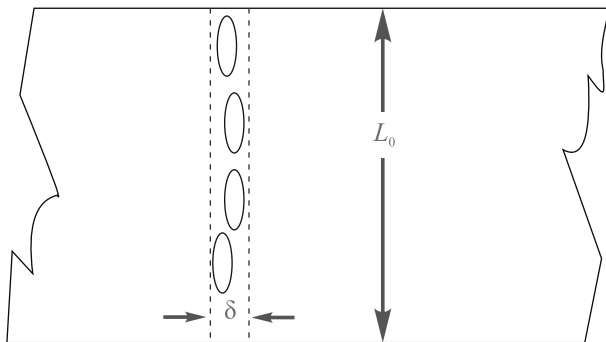


Рис. 4. (Цветной онлайн) Схема, иллюстрирующая возникновение микротрещин в тонкой металлизированной пленке, что приводит к изменению поверхностной проводимости металлического покрытия

длине. Полагаем, что отношение реального поперечного сечения проводника S_{real} к сечению номинальному S_{nom} равно

$$S_{\text{real}}/S_{\text{nom}} = (L_0 - L)/L_0, \quad (1)$$

где L_0 – ширина образца, L – вклад трещин, перпендикулярных растяжению, который можно интерпретировать как среднее значение суммы длин всех

трещин в некотором поперечном сечении металлического проводника шириной δ (рис. 4). Величина δ порядка ширины микротрещины. Проводимость σ_{real} пропорциональна реальному сечению:

$$\sigma_{\text{real}}/\sigma_{\text{nom}} = S_{\text{real}}/S_{\text{nom}} \quad (2)$$

где σ_{nom} – проводимость при отсутствии трещин.

Ведем среднюю величину длины трещины l . Тогда

$$L = N_1 l = L_0 n l \delta, \quad (3)$$

где N_1 – число микротрещин в слое шириной δ , n – поверхностная плотность микротрещин.

Подставляя значение L в формулу (1) и учитывая (2), находим

$$\sigma_{\text{real}} = \sigma_{\text{nom}}(1 - n l \delta) = \sigma_{\text{nom}} - A n, \quad (4)$$

где величина $A = \sigma_{\text{nom}} l \delta$.

Модель влияния концентрации и длины микротрещин на интенсивность ГКРС-сигнала. Полагая, что интенсивность J SERS-сигнала при освещении лазером пятна площадью S пропорциональна суммарной длине микротрещин внутри пятна (“горячие области” сосредоточены на краях микротрещин), получаем

$$J = j S n l = C n, \quad (5)$$

где j – величина условного “единичного” сигнала, рассчитанного на единицу длины микротрещины, $C = j S l$.

Таким образом, по нашей простой модели как реальная проводимость, так и интенсивность ГКРС-сигнала линейно зависят от поверхностной плотности микротрещин n . Это дает возможность прове-

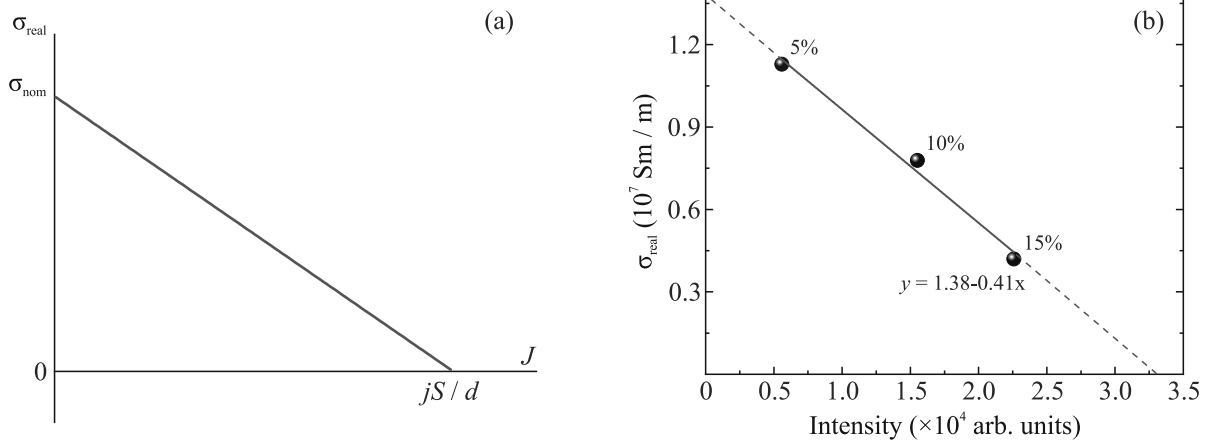


Рис. 5. (Цветной онлайн) (a) – Теоретическая зависимость (6) между проводимостью σ_{real} и интенсивностью SERS-сигнала при заданной поверхностной плотности микротрещин n ; (b) – экспериментальная зависимость $\sigma_{\text{real}} - J$ для трех значений n , соответствующих деформации образца 5, 10 и 15 %, рассчитанная по данным [6]

рить модель, согласно которой между этими величинами также существует линейная зависимость, используя экспериментальные данные [6].

Из (4) и (5) следует, что при данной концентрации микротрещин n :

$$\sigma_{\text{real}} = \sigma_{\text{nom}}(1 - J\delta/jS) = \sigma_{\text{nom}} - (\sigma_{\text{nom}}\delta/jS)J. \quad (6)$$

Заметим, что в конечную формулу (6) не входит среднее значение длины трещины l . На рисунке 5a дан график $\sigma_{\text{real}} - J$, соответствующий формуле (6).

На рисунке 5b представлена экспериментальная зависимость $\sigma_{\text{real}} - J$ при трех значениях поверхностной плотности микротрещин, которая менялась за счет разной степени деформации металлизированной ТМ. Линейный характер зависимости соответствует формуле (6). Тем самым подтверждается определяющая роль в ГКРС-сигнале “горячих точек” на “берегах” трещин.

В случае напыления плазмонного металла на проводящую подложку рассмотренная выше модель влияния микротрещин на проводимость, естественно, не применима. Но и в этом случаях возможно применима формула (5). Именно эта формула является основой общего метода локальной экспресс-диагностики растрескивания покрытий из плазмонных металлов.

Изменение эксплуатационных характеристик покрытия зависит как от поверхностной плотности микротрещин, так и от их размеров (длины). Это справедливо не только для электропроводности, но и для прочности, отражательной способности и других физических характеристик. Поэтому в качестве

характеристики повреждения поверхности мы предлагаем принять произведение nl .

Следует отметить, что в работе [27] был предложен критерий повреждения металлизированной полимерной пленки при ее одноосном растяжении с точки зрения влияния на поверхностную проводимость. Критерием является произведение $n_l l$, где n_l – линейная плотность трещин (число трещин на линии, проведенной по поверхности образца перпендикулярно растяжению). Очевидно, что $n = n_l^2$. Указанный критерий относится к частному случаю повреждений и подразумевает одинаковую ориентацию всех трещин. В наших экспериментальных данных также существовала выделенная ориентация микротрещин, заданная приложенным к образцу растяжением. Однако эти результаты использованы только для обоснования предлагаемого оптического метода, который, в отличие от метода электропроводности, является более общим и применим для произвольной ориентации трещин. Между тем в случае влияния на растрескивание поверхности различных факторов распределение по ориентации трещин действительно может быть различным, так как различные эксплуатационные воздействия имеют разную симметрию. Но во всех случаях величина nl остается естественной характеристикой степени повреждения покрытия.

При определении по формуле (5) величины nl необходимо знать параметр j . Чтобы обойти эту проблему, следует иметь эталонный образец с известным значением $n_e l_e$ для данного вида покрытия, величины площади S пятна от лазера, его мощности и вида анализа, применяемого в SERS-спектроскопии. Кон-

трольное измерение даст для него величину сигнала J_e . При других измерениях величина nl равна

$$nl = n_e l_e (J/J_e). \quad (7)$$

По данным рис. 5b можно определить значение произведения $jS/\delta \approx 3.3 \cdot 10^4$ отн. ед. В эксперименте [6] $S \approx 25 \text{ мкм}^2$. Величина δ зависит от механизма электропроводности покрытия при наличии микротрещин с нанометровой шириной. Упрощая модель, можно считать значение δ порядка ширины микротрещины. Это и другие упрощения определяются экспрессным характером предлагаемой методики. Если, в соответствии с данными микроскопии, принять в качестве величины δ среднюю ширину микротрещины, примерно 100 нм, то $j \approx 0.1$ отн. ед./нм.

Таким образом, проведенный анализ позволяет сформулировать методику оперативного дистанционного контроля функциональных характеристик (в данном случае, поверхностной проводимости) металлизированных покрытий с использованием ГКРС-спектроскопии, изменяющихся вследствие наноструктурирования и/или формирования трещин, дефектов, шероховатостей.

1. Предложено использовать ГКРС-спектроскопию для анализа некоторых функциональных (проводимость) и надмолекулярных структурных характеристик активных подложек (поверхностей и наноагломератов из плазмонных металлов), которые имеют дополнительные области применения.

2. В качестве примера рассмотрен метод диагностики с помощью ГКРС-спектроскопии локальной степени растрескивания покрытий из плазмонных металлов.

3. В качестве характеристики повреждения поверхности предложено принять произведение nl , где n – концентрация микротрещин, l – их средняя длина.

4. Для серебряного покрытия толщиной 50 нм, напыленного на трековую мембрану, и малахитового зеленого (MG) в качестве аналита получена теоретическая оценка средней величины ГКРС-сигнала с единицы длины микротрещины.

Работа поддержана Министерством Просвещения РФ (тема государственного задания Московского Педагогического Государственного Университета АААА-А20-120061890084-9) и Министерством науки и высшего образования РФ (тема ГЗ ФИАН им. П. Н. Лебедева АААА-А19-119083090053-9).

Авторы являются членами Ведущей научной школы РФ (Грант Президента РФ НШ-776.2022.1.2).

1. G. Barbillon, *Int. J. Mol. Sci.* **23**(18), 10592 (2022).

2. M. Jahn, S. Patze, I. J. Hidi, R. Knipper, A. I. Radu, A. Muhlig, S. Yuksel, V. Peksa, K. Weber, T. Mayerhofer, D. Cialla-May, and J. Popp, *Analyst* **141**(3), 756 (2016).
3. В. И. Кукушкин, В. Е. Кирпичев, Е. Н. Морозова, В. В. Соловьев, Я. В. Федотова, И. В. Кукушкин, *Письма в ЖЭТФ* **112**(1), 38 (2020) [V. I. Kukushkin, V. E. Kirpichev, E. N. Morozova, V. V. Solov'ev, Ya. V. Fedotova, and I. V. Kukushkin, *JETP Lett.* **112**(1), 31 (2020)].
4. E. P. Kozhina, S. N. Andreev, V. P. Tarakanov, S. A. Bedin, I. M. Doludenko, and A. V. Naumov, *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.* **84**, 1465 (2020).
5. E. P. Kozhina, S. A. Bedin, N. L. Nechaeva, S. N. Podoyntsyn, V. P. Tarakanov, S. N. Andreev, Y. V. Grigoriev, A. V. Naumov, *Appl. Sci.* **11**, 1375 (2021).
6. N. P. Kovalets, E. P. Kozhina, I. V. Razumovskaya, S. A. Bedin, A. A. Pirayezov, Y. V. Grigoriev, and A. V. Naumov, *J. Chem Phys.* **156**(3), 034902 (2022).
7. M. Fan, G. F. Andrade, and A. G. Brolo, *Anal Chim Acta.* **693**(1–2), 7 (2011).
8. А. Г. Милехин, Л. Л. Свешникова, Т. А. Дуда, Н. В. Суровцев, С. В. Адищев, Д. Р. Т. Цан, *Письма в ЖЭТФ* **88**(12), 918 (2008) [A. G. Milekhin, L. L. Sveshnikova, T. A. Duda, N. V. Surovtsev, S. V. Adichtchev, and D. R. T. Zahn, *JETP Lett.* **88**(12), 799 (2008)].
9. М. Д. Тюгаев, А. В. Харитонов, А. Р. Газизов, А. И. Фишман, М. Х. Салахов, А. А. Дедкова, А. М. Алексеев, А. В. Шелаев, С. С. Харинцев, *Письма в ЖЭТФ* **110**(12), 772 (2019).
10. A. Hakonen, P. O. Andersson, M. Stenbaek, Schmidt, T. Rindzevicius, and M. Kall, *Anal Chim Acta.* **893**, 1 (2015).
11. E. Zavyalova, O. Ambartsumyan, G. Zhdanov et al. (Collaboration), *Nanomaterials* **11**, 1394 (2021); <https://doi.org/10.3390/nano11061394>.
12. A. R. Gazizov, M. K. Salakhov, and S. S. Kharintsev, *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.* **86**(Suppl 1), S71 (2022).
13. Патент РФ на изобретение. Заявка # 2022133942 от 22.12.2022.
14. N. P. Kovalec, E. P. Kozhina, I. M. Doludenko, I. V. Razumovskaya, S. A. Bedin, Y. V. Grigoriev, and V. M. Kanevsky, *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.* **85**(8), 854 (2021).
15. I. V. Razumovskaya, N. P. Kovalets, S. A. Bedin, Y. V. Grigor'ev, *JETP* **132**(5), 818 (2021).
16. L. L. Muhina, I. V. Razumovskaja, S. K. Kudaikulova, B. A. Zhubanov, and M. J. M. Abadie, *Eurasian Chemico-Technological Journal* **6**, 37 (2004).
17. R. E. Southward and D. W. Thompson, *Mater. Des.* **22**(7), 565 (2001).

18. H.G. Pippin, *Analysis of Silverized Teflon Thermal Control Material Flown on the Long Duration Exposure Facility*, NASA CR-4663 (July 1995).
19. О. А. Ананьева, В. К. Милинчук, Д. Л. Загорский, *Химия высоких энергий* **41**(6), 445 (2007).
20. B.A. Banks, K.K. de Groh, Sh.K. Miller, and D.L. Waters, *Low Earth AIP Conf. Proc.* **1087**, 312 (2009); <https://doi.org/10.1063/1.3076845>.
21. S.L. Bazhenov, I.N. Nasrullaev, I.V. Razumovskaya, S.K. Kudaikulova, B.A. Zhubanov, and M.J.M. Abadie, *Eurasian Chemico-Technological Journal* **6**(1), 41 (2004).
22. V.A. Bogatov, A.G. Krynin, O.V. Popkov, and Y.A. Khokhlov, *Proceedings of VIAM* **1**, 42 (2016); DOI: 10.18577/2307-6046-2016-0-1-42-49.
23. В. Н. Гумирова, И. В. Разумовская, А. В. Наумов, *Известия РАН. Серия физическая* **86**(12), 1746 (2022).
24. V. Gumirova, I. Razumovskaya, P. Apel, S. Bedin, and A. Naumov, *Membranes* **12**, 1168 (2022).
25. P.Y. Apel, O.M. Ivanov, N.E. Lizunov, T.I. Mamonova, A.N. Nechaev, K. Olejniczak, J. Vacik, and S.N. Dmitriev, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.* **365**, 641 (2015).
26. P.Y. Apel, O.V. Bobreshova, A.V. Volkov, V.V. Volkov, V.V. Nikonenko, I.A. Stenina, A.N. Filippov, Y.P. Yampolskii, and A.B. Yaroslavl'tsev, *Membr. Technol.* **1**, 45 (2019).
27. O. Glushko, P. Kraker, and M.J. Cordill, *Appl. Phys. Lett.* **110**(19), 191904 (2017).

Поглощение СВЧ-волн при нагреве плазмы на второй гармонике электронно-циклотронного резонанса в токамаках и стеллараторах: линейная теория и эксперимент

Ю. Н. Днестровский⁺, А. В. Мельников^{++*1)}, В. Ф. Андреев⁺, С. Е. Лысенко⁺, М. Р. Нургалиев⁺,
А. Г. Шалашов[°]

⁺Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

^{*}Научно-исследовательский ядерный университет МИФИ, 115409 Москва, Россия

[×]Московский физико-технический институт, 141701 Долгопрудный, Россия

[°]Институт прикладной физики РАН, 603000 Н. Новгород, Россия

Поступила в редакцию 21 июня 2023 г.

После переработки 20 июля 2023 г.

Принята к публикации 20 июля 2023 г.

В работе приведены результаты исследования поглощения мощности СВЧ-нагрева необыкновенной волной на второй гармонике электронно-циклотронного резонанса (ЭЦР X2) на токамаке T-10 и стеллараторе TJ-II в широком диапазоне плотностей плазмы, и их сравнение с классическими формулами для поглощения вводимой ЭЦР-мощности в плазме. На основании численного моделирования переноса тепла по транспортной модели канонических профилей получены эмпирические соотношения для эффективности поглощения и для критической плотности плазмы n_{cr} , разделяющей области полного и неполного поглощения вводимой ЭЦР-мощности. Показано, что для обеих установок существуют области плотностей, в которых, согласно классическим формулам, поглощение практически полное, а согласно эмпирическому соотношению, поглощается лишь небольшая доля мощности. Полученные соотношения позволяют оптимизировать условия ЭЦР-нагрева в тороидальных системах с магнитным удержанием плазмы.

DOI: 10.31857/S123456782316005X, EDN: ityxd0

Введение. СВЧ (сверхвысокочастотный) нагрев на гармониках электронно-циклотронного резонанса (ЭЦР) является одним из наиболее эффективных методов дополнительного нагрева плазмы современных термоядерных установок с магнитным удержанием – токамаков и стеллараторов. Однако известно, что при нерелятивистской формулировке уравнений, СВЧ-волны с чисто поперечным распространением не поглощаются. В пионерской работе Б. А. Трубникова [1] были определены элементы тензора диэлектрической проницаемости плазмы в релятивистской формулировке. Затем было показано, что в слаборелятивистском приближении полное поглощение реализуется только для первой гармоники обыкновенной СВЧ-волны (O1) и для второй гармоники необыкновенной СВЧ-волны (X2), а для других типов волн поглощение малое [2]. Впоследствии эти результаты были обобщены на произвольное на-

правление распространения СВЧ-волн [3]. Дальнейшее развитие работ описано в обзорах [4–7].

Различные физические эффекты, которые могли бы приводить к неполному поглощению СВЧ-волн, рассмотрены в работах [8–13], однако, полностью эта задача пока не решена.

Наряду с нагревом электронной компоненты плазмы в токамаках и стеллараторах, СВЧ-волны могут возбуждать или воздействовать на различные типы плазменных колебаний, которые, в свою очередь, могут влиять на аномальный перенос. Знание величины поглощенной мощности необходимо для установления свойств этих колебаний и нахождения параметрических зависимостей для их описания [14–16], а также для количественного моделирования переноса.

В работах [17–20] проблема поглощения волн типа X2, распространяющихся перпендикулярно магнитному полю, обсуждается со стороны эксперимента на токамаке T-10 и стеллараторе TJ-II [21]. Были предложены общие принципы эквивалентности

¹⁾e-mail: melnikov_AV@nrcki.ru

между разрядами токамака и разрядами стелларатора. Для пары эквивалентных разрядов была показана близость их электронных и ионных температур [19, 21]. Установлены общие свойства переноса энергии в токамаках и стеллараторах.

В данной работе мы анализируем общепринятую теоретическую формулу для оптической толщины плазмы при поглощении Х2-моды СВЧ-волн, сравниваем ее с результатами экспериментов на Т-10 по нагреву на первой и второй гармонике ЭЦР. Из анализа экспериментов по Транспортной модели канонических профилей (ТМКП) выводится эмпирическая формула для поглощенной СВЧ-мощности, которая сравнивается с теоретической формулой, и оценивается эффективность ЭЦР-нагрева в токамаке Т-10 и стеллараторе ТЖ-II. Далее обсуждается возможность перехода к полному поглощению СВЧ волн. В заключении формулируются основные выводы.

Оптическая толщина плазмы. В указанных выше работах поглощение СВЧ-волны в лучевом приближении принято характеризовать в терминах оптической толщины плазмы, определяемой как

$$\tau = \int 2\text{Im } k_s ds, \quad (1)$$

где интегрирование производится по резонансной области траектории луча, s – координата вдоль луча, $\text{Im } k_s$ – мнимая часть волнового вектора, определяемая решением дисперсионного уравнения

$$D(\omega, k) = 0, \quad (2)$$

где D – тензор диэлектрической проницаемости плазмы. Доля поглощенной мощности определяется выражением

$$\eta = 1 - \exp(-\tau). \quad (3)$$

В настоящей работе мы ограничимся случаем распространения необыкновенной волны моды Х2 поперек магнитного поля. Рассмотрим приближенное выражение для оптической толщины плазмы из работы [4]:

$$\tau_{X2} = \pi \frac{\omega_p^2}{\omega_B^2} \frac{T_e}{mc^2} \mu_2^X \frac{\omega_B R}{c}. \quad (4)$$

Здесь $\omega_p^2 = 4\pi ne^2/m$ – квадрат плазменной частоты, $\omega_B = eB/mc$ – циклотронная частота электронов. Значения плотности плазмы и магнитного поля при интегрировании в (1) берутся в резонансной области. Параметр μ_2^X изменяется в пределах от 1.1 до 1.3 вдали от отсечки по плотности.

Перейдем в (4) к практическим единицам: плотность n будем измерять в $[10^{19} \text{ м}^{-3}]$, температуру

электронов T_e в $[\text{кэВ}]$, магнитное поле B в $[\text{Тл}]$. Тогда $T_e/mc^2 = T_e [\text{кэВ}]/511$, и вместо (4), будем иметь

$$\tau_{X2} \approx 5.6 \frac{n T_e}{B} \frac{R}{1.5}. \quad (5)$$

Здесь большой радиус токамака R мы нормировали на большой радиус установки Т-10 ($R_{T-10} = 1.5 \text{ м}$), параметр μ_2^X положен равным единице, и это определяет точность оценки оптической толщины в 10–30 %.

Анализ экспериментальных результатов. Поглощение СВЧ-волн первой и второй гармоник ЭЦР в токамаке Т-10 рассмотрено в работах [17, 18]. Количественный анализ процесса ЭЦР-нагрева с помощью ТМКП привел к следующим выводам [18–20]. Несмотря на то, что при фиксированном магнитном поле оптическая толщина зависит не только от плотности, но и от температуры электронов, при достаточно высокой средней плотности n реализуется полное поглощение СВЧ-волн. При достаточно низкой плотности поглощение может стать неполным. Границу перехода из неполного поглощения в полное мы называем критической плотностью и обозначаем через n_{cr} .

Итак, если

$$n > n_{cr}, \quad (6)$$

то поглощение является полным независимо от температуры электронов. В противоположном случае

$$n < n_{cr}, \quad (7)$$

характер поглощения зависит от величины парциального давления электронов p_e . Если условие (7) выполняется, но давление электронов достаточно велико:

$$p_e = n T_e > 8.8 \cdot (R_{T-10}/R), \quad (8)$$

то сохраняется полное поглощение СВЧ-волн, поскольку оптическая толщина плазмы увеличивается за счет температуры. Если же при условии (7) давление электронов невелико:

$$p_e = n T_e < 8.8 \cdot (R_{T-10}/R), \quad (9)$$

то поглощение остается неполным.

Итоги анализа работ [18–21] собраны на рис. 1. Здесь на плоскости (плотность – температура электронов) показаны импульсы с ЭЦР-нагревом плазмы на первой гармонике О1 и на второй гармонике Х2. Видна резкая разница в температурах при нагреве плазмы с низкой плотностью, $n < 3 \times 10^{19} \text{ м}^{-3}$. При ЭЦР-нагреве на первой гармонике [22] в этой

области температура T_e быстро возрастает с уменьшением плотности. При ЭЦР-нагреве на второй гармонике температура также несколько возрастает, но очень медленно. В результате при плотности $n \sim 2$ разность температур составляет 4–5 раз. Причину такого различия мы видим в неполном поглощении СВЧ-волн второй гармоники моды X2.

Синяя линия на рис. 1 обозначает границу областей полного и неполного поглощения СВЧ-волны (8). Она описывает условие полного поглощения,

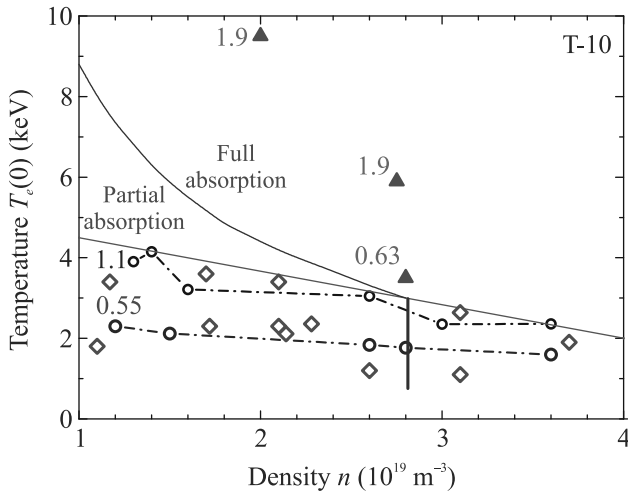


Рис. 1. (Цветной онлайн) Сравнение ЭЦР-нагрева на первой и второй гармонике в токамаке T-10. Зеленые треугольники – нагрев на первой гармонике моды O1, $B = 2.8$ Тл, $f = 75\text{--}81.4$ ГГц [22]. Указана мощность нагрева для каждого из импульсов. Ниже красной линии лежит область температур, полученных в кампаниях 2013–2018 гг. в разрядах с ЭЦР-нагревом на второй гармонике моды X2 в диапазоне мощности $0.4 < Q_{EC} < 2.3$ МВт (пустые символы) [19]. Кружками и штрих-пунктиром обозначены две серии разрядов с мощностью нагрева $Q_{EC} \sim 1.1$ и 0.55 МВт, $B = 2.32$ Тл и графитовым лимитером. Синяя линия ($T_e = 8.8/n$) разделяет области частичного и полного поглощения СВЧ-волн, $n_{cr} = 2.8 \times 10^{19} \text{ м}^{-3}$

найденное эмпирически для установки T-10, см. условие (5) из работы [19], имеющее вид

$$n_0 T_{e0} > 10 [10^{19} \text{ м}^{-3} \text{ кэВ}], \quad (10)$$

где n_0 и T_{e0} – плотность и температура электронов в центре шнура. Более подробный анализ экспериментальных данных показал, что постоянную 10 в соотношении (10) следует уменьшить до 8.8, а центральное значение плотности плазмы без больших погрешностей заменить на среднее значение. Тогда

для границы области полного поглощения получаем зависимость, показанную синей линией на рис. 1:

$$T_e = 8.8/n. \quad (11)$$

Интересны также две серии импульсов с разными плотностями, но с различной мощностью 1.1 и 0.55 МВт (кружки и штрихпунктирные линии на рис. 1). Видно, что температура электронов в этих сериях очень слабо возрастает с уменьшением плотности, что подтверждает наше предположение об уменьшении эффективности поглощения СВЧ-волн при уменьшении плотности. Отметим также, что положение экспериментальных точек при мощности 1.1 МВт для этой серии практически совпадает с верхней границей для достигнутых электронных температур в экспериментах с мощностью нагрева от 0.4 до 2.3 МВт (см. рис. 5 в [19]). На рисунке 1 – это красная линия. Это произошло потому, что экспериментальные серии разрядов с мощностью 1.1 МВт были проведены в плазме с графитовым лимитером. Позже, когда мощность гиротронов на установке достигла 2.3 МВт, графитовый лимитер был заменен на вольфрамовый. При таком лимитере электронная температура оказалась более низкой, чем при графитовом. Напомним, что в 1980-х годах, когда нагрев от гиротронов проводился на первой гармонике ЭЦР, лимитер был также графитовым.

Итак, рис. 1 показывает, наличие эффекта уменьшения поглощения СВЧ-волн при снижении плотности как в режимах с различной мощностью нагрева, так и в режимах с различным материалом лимитера.

Из рисунка 1 видно, что при средней плотности $n = 2 \times 10^{19} \text{ м}^{-3}$, достаточно дополнительно подогреть плазму на 1.5 кэВ, чтобы оптическая толщина плазмы выросла настолько, что поглощение стало полным. Для этого нужно использовать какой-либо другой метод дополнительного нагрева, например, нейтральную инжекцию (Neutral Beam Injection, NBI). В результате температура электронов может оказаться достаточно высокой, чтобы удовлетворить условию полного поглощения СВЧ-волн (8). После этого дополнительный подогрев, например, NBI, можно отключить, но плазма останется в области полного поглощения. Конечно, описанный процесс является сильно нелинейным, поскольку переход через синюю кривую сопровождается переходом от частичного поглощения волн к их полному поглощению. В области ниже синей кривой поглощение линейно зависит от плотности [19], в области выше синей кривой поглощение полное и от плотности не зависит.

Анализ экспериментальных данных с помощью ТМКП [17–21] показал, что доля поглощенной мощности $\eta = Q_{ab}/Q_{EC}$ в случае (7), (9) линейно возрастает с плотностью плазмы. Здесь Q_{ab} – поглощенная мощность, Q_{EC} – введенная мощность. Таким образом, полная уточненная эмпирическая формула для доли поглощенной мощности имеет вид:

$$\left. \begin{aligned} \eta &= n/n_{cr} && \text{при } n < n_{cr} \text{ и } (nT_e) \leq 8.8 \cdot (R_{T-10}/R) \\ \eta &= 1 && \text{при } n < n_{cr} \text{ и } (nT_e) > 8.8 \cdot (R_{T-10}/R) \\ \eta &= 1 && \text{при } n > n_{cr} \\ \eta &= 0 && \text{при } n > n_{cut-off} \end{aligned} \right\}. \quad (12)$$

Для критической плотности справедлива эмпирическая формула [19]:

$$n_{cr} = 1.2B. \quad (13)$$

Формула (13) связывает границу перехода от полного к частичному поглощению с магнитным полем. Для установки Т-10 при поле $B = 2.4$ Тл, критическая плотность оказывается на уровне $2.8 \times 10^{19} \text{ м}^{-3}$. В работе [21] мы исследовали поглощение СВЧ-волн на стеллараторе ТЖ-П на второй гармонике в режиме Х2, где при поле $B = 1$ Тл критическая плотность близка к $1.2 \times 10^{19} \text{ м}^{-3}$.

Заметим, что соотношения (8) и (9) применимы к тороидально симметричным системам (токамаки), но не всегда применимы к стеллараторам, имеющим различную топологию магнитного поля. Для стеллараторов вместо R правильнее писать $B/(dB/ds)$, где вектор s параллелен пучку ЭЦ-волн.

Оптическая толщина плазмы для второй гармоники ЭЦР (Х2) по эмпирическим и классическим формулам. Оптическая толщина плазмы в практических единицах дается формулой (5), а доля поглощенной мощности η выражается классической формулой (3). Формулы (3)–(5) теперь нужно сравнить с эмпирическими формулами (12) и (13).

Сначала сравним эти формулы при малой плотности. Предполагая, что

$$\tau_{X2} \ll 1, \quad (14)$$

и используя разложение экспоненты по малому аргументу ($\exp(x) \sim 1 + x$), для установок Т-10 и ТЖ-П получим:

$$\eta = \tau_{X2} = 5.6 \frac{nT_e}{B}. \quad (15)$$

Для удобства сравнения выпишем рядом формулу (12) с учетом (13):

$$\eta = n/1.2B. \quad (16)$$

Формулы (15) и (16) различаются как в числовом множителе в 6.7 раза, так и в зависимости от параметров. В классическую формулу (15) входит электронная температура T_e , которой нет в формуле (16). Большое различие в числовом множителе означает, что наклон прямой в зависимости от плотности в (15) гораздо более крутой, чем в (16). Физически это означает, что область с частичным поглощением в случае (15) хотя и существует, но очень мала. Видимо, по этой причине этот эффект не рассматривался в опубликованных теоретических работах.

Зависимость η от магнитного поля в (15) также искажена из-за наличия увеличенного числового множителя. Если в (16) критическая плотность определяется соотношением (13) ($n_{cr} = 1.2B$), то в (15) оно имеет вид:

$$n_{cr} = B/(5.6T_e), \quad (17)$$

что гораздо меньше.

В установке Т-10 [18] для импульсов с плотностью $n < n_{cr}$ электронная температура изменяется произвольно в диапазоне $2.1 < T_e < 3.6$ кэВ, т.е. в 1.7 раза. В соответствии с (15), экспериментальные точки вдоль наклонной $\eta(n)$ должны быть разбросаны по области такой ширины. Однако разброс точек гораздо меньше (см. рис. 12 в [19]), что указывает на отсутствие зависимости η от температуры в эксперименте.

Теперь сравним классическую формулу (3) для η с эмпирической формулой (12) в широком диапазоне плотности. В качестве аргумента экспоненты используем формулу (15). На рисунке 2 показана зависимость эффективности нагрева от плотности плазмы для токамака Т-10 при магнитном поле $B = 2.4$ Тл. Кривые с насыщением соответствуют теоретическим формулам (3)–(5) при температуре $T_e(0) = 1$ и 2 кэВ. Пунктирная ломаная линия соответствует эмпирической формуле (12). Синими квадратами отмечены значения эффективности нагрева для импульсов Т-10 с разными плотностями и мощностями нагрева. Видно, что при указанном магнитном поле расхождения между классической формулой (3) и эмпирической формулой (12) находятся в диапазоне изменения плотности

$$0 < n < 2.8 \times 10^{19} \text{ м}^{-3}. \quad (18)$$

Например, при плотности $n = 1.4 \times 10^{19} \text{ м}^{-3}$ по классической формуле поглощается почти вся ЭЦР-мощность, а по эмпирической формуле – лишь ее половина.

На рисунке 3 показана эффективность нагрева в зависимости от плотности для стелларатора ТЖ-П

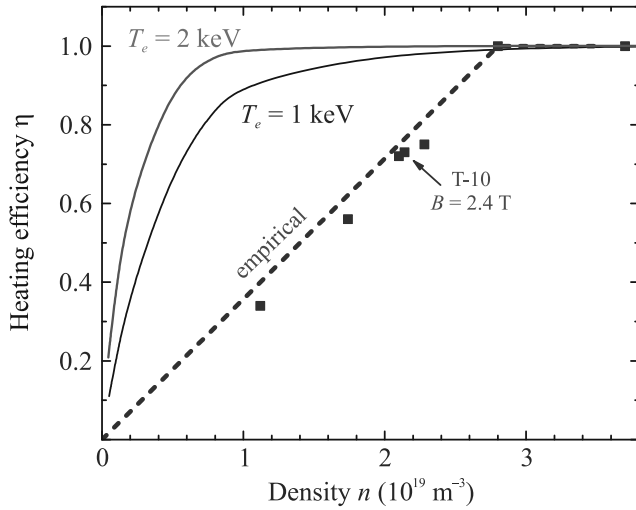


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость эффективности ЭЦР-нагрева от плотности плазмы для токамака Т-10 при магнитном поле 2.4 Тл. Сплошные кривые соответствуют теоретическим формулам (4), (5) при температуре 1 и 2 кэВ. Пунктирная ломаная линия соответствует эмпирической формуле (12). Синими квадратами отмечены значения эффективности нагрева для импульсов Т-10 с разными плотностями и мощностями нагрева [19]

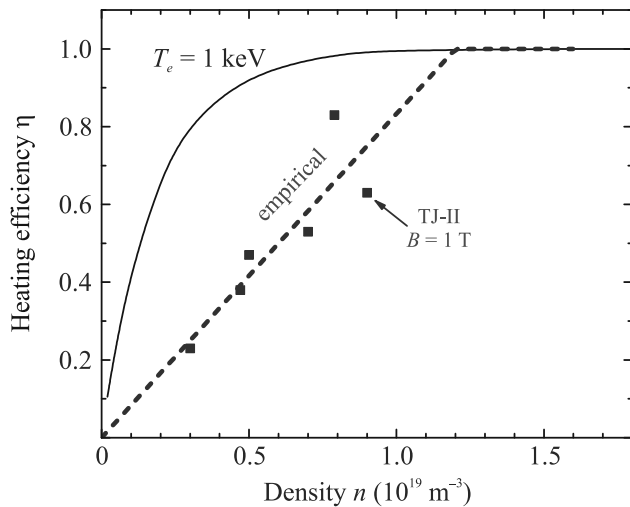


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость эффективности ЭЦР-нагрева от плотности плазмы для стелларатора ТЖ-П при магнитном поле 1 Тл. Сплошная кривая соответствует теоретическим формулам (4), (5) при температуре 1 кэВ. Пунктирная ломаная линия соответствует эмпирической формуле (12). Синими квадратами отмечены значения эффективности нагрева для импульсов с разными плотностями и мощностями нагрева [21]. Все экспериментальные точки лежат в области с частичным поглощением

при поле $B = 1$ Тл, полученная с помощью ТМКП. При моделировании разрядов ТЖ-П использовались эквивалентные разряды токамака. Условия эквивалентности были определены в [21]. Согласно (13), критическая плотность при указанном магнитном поле составляет $n_{cr} = 1.2 \times 10^{19} \text{ м}^{-3}$, поэтому расхождения между формулами (3), (4) и (12) находятся в диапазоне

$$0 < n < 1.2 \times 10^{19} \text{ м}^{-3}. \quad (19)$$

Символами отмечены экспериментальные точки ТЖ-П. Поскольку при поле 1 Тл плотность отсечки $n_{\text{cut-off}} = 1.6 \times 10^{19} \text{ м}^{-3}$, то фактически все экспериментальные точки находятся в зоне частичного поглощения (19).

Преодоление области с частичным поглощением. В работе [17] было показано, что существование области с частичным поглощением связано с эффектом “температурного порога” (недостаточной электронной температуры). Если этот порог превзойти, то поглощение становится полным и при плотности ниже критической (условии (7)). Условие преодоления порога (8) требует увеличения давления электронов. Если при имеющейся мощности ЭЦР-нагрева условие (8) не выполняется, то для достижения полного поглощения можно действовать двумя путями. Первый путь – это увеличение вводимой мощности Q_{EC} . Поскольку при неизменной плотности плазмы доля поглощаемой мощности сохраняется, то увеличение Q_{EC} приведет также к увеличению поглощаемой мощности Q_{ab} . По этому пути пошла команда стелларатора W7-X, нарастив поглощаемую мощность до 5 МВт. При такой мощности температурный порог преодолевается и достигается полное поглощение. Второй путь – это использование дополнительной мощности другой природы. Чаще всего используется дополнительный нагрев за счет инжекции пучка горячих нейтралов (NBI) (токамаки DIII-D [23], ASDEXUpgrade [24]). На токамаке EAST используется дополнительный нагрев за счет ввода нижнегибридной мощности [25]. Во многих случаях применяется лишь импульсный ввод дополнительной мощности длительностью десятки миллисекунд. При переходе в режим с полным поглощением (8) существующей мощности ЭЦР-нагрева уже хватает, чтобы поддерживать стационарный режим с высокой температурой электронов без возврата в режим (9) с частичным поглощением.

Преодоление области неполного поглощения может быть достигнуто также и за счет увеличения большого радиуса установки, приводящего к соответствующему увеличению оптической толщины, см.

множитель $R/1.5$ в (5), или размеру резонансной области. Эта возможность реализуется на стеллараторе W7-X, имеющем большой радиус установки $R_{W7-X} = 5.5$ м ($R_{W7-X}/1.5 = 3.7$).

Токамак Т-15МД имеет $R = 1.5$ м и будет работать при магнитных полях $B = 1-2$ Тл [26], т.е. при параметрах, сравнимых с Т-10 и ТЖ-II, поэтому там тоже возможно неполное поглощение СВЧ-волн [19]. Для перехода в режим полного поглощения можно будет использовать NBI, либо ионно-циклотронный нагрев [27, 28]. Имеется также возможность организовать специальный сценарий, в котором разряд начинается при плотности чуть больше критической с полным поглощением, а затем плотность уменьшается с небольшим подогревом так, чтобы выполнялось условие (8), и электронная температура оставалась выше синей кривой на рис. 1.

Заключение. Анализ экспериментов на токамаке Т-10 и стеллараторе ТЖ-II показал, что при достаточно низкой плотности мощность ЭЦР-нагрева на второй гармонике Х2 поглощается лишь частично. Построена эмпирическая формула для доли поглощенной мощности в зависимости от плотности плазмы, магнитного поля и электронной температуры. Ее сравнение с классическими формулами для оптической толщины плазмы и для доли поглощаемой ЭЦР-мощности показало, что интервал плотности с частичным поглощением существует и в результатах классического описания СВЧ-волн. На примере токамака Т-10 и стелларатора ТЖ-II показано, что этот интервал плотности на порядок меньше, чем определяется эмпирической формулой. Дана оценка величины необходимого увеличения температуры электронов для перехода в зону полного поглощения мощности ЭЦР-нагрева на второй гармонике Х2.

Работа частично поддержана Российским научным фондом, проект 23-72-00042.

1. Б. А. Трубников, *Электромагнитные волны в релятивистской плазме при наличии магнитного поля*, в сб. *Физика плазмы и проблема управляемых термоядерных реакций*, ред. М. А. Леонтович, АН СССР, М. (1958), т. 3, с. 104 [B. A. Trubnikov, in *Plasma Physics and the Problem of Controlled Thermonuclear Reactions*, ed. by M. A. Leontovich, Pergamon, London (1960), v. 4, p. 363].
2. Ю. Н. Днестровский, Д. П. Костомаров, Н. В. Скрыдлов, *ЖТФ* **33**, 922 (1963) [Y. N. Dnestrovskii, D. P. Kostomarov, and N. V. Skrydlov, *Sov. Phys.-Tech. Phys.* **8**, 691 (1964)].
3. I. P. Shkarofsky, *Phys. Fluids* **9**, 570 (1966); <https://doi.org/10.1063/1.1761711>.

4. M. Bornatichi, *Plasma Physics* **24**(6), 629 (1982); DOI:10.1088/0032-1028/24/6/005.
5. M. Bornatichi, R. Cano, O. De Barbier, and F. Engelman, *Nucl. Fusion* **23**(9), 1153 (1983); DOI:10.1088/0029-5515/23/9/005.
6. В. В. Аликаев, Е. В. Суворов, А. Г. Литвак, А. А. Фрайман, *Электронно-циклотронный нагрев плазмы в тороидальных системах*, в кн. *Высокочастотный нагрев плазмы*, ИПФ АН СССР, Горький (1983), с. 6 [V. V. Alikeev, A. G. Litvak, E. V. Suvorov, and A. A. Fraiman, *Electron cyclotron resonance heating of toroidal plasmas*, in *High-Frequency Plasma Heating*, ed. by A. G. Litvak, American Institute of Physics, N.Y. (1992), p. 1]; <https://link.springer.com/book/9780883187654>.
7. R. Prater, *Phys. Plasmas* **11**, 2349 (2004); DOI:10.1063/1.1690762.
8. G. Giruzzi, *Nucl. Fusion* **28**, 1413 (1988); DOI:10.1088/0029-5515/28/8/009.
9. А. Г. Шалашов, Е. В. Суворов, *Физика плазмы* **28**(1), 51 (2002) [A. G. Shalashov and E. V. Suvorov, *Plasma Phys. Rep.* **28**, 46 (2002)]; <https://doi.org/10.1134/1.1434295>.
10. A. G. Shalashov and E. V. Suvorov, *Plasma Phys. Control. Fusion* **45**, 1779 (2003); <https://doi.org/10.1088/0741-3335/45/9/314>.
11. Е. З. Гусаков, А. Ю. Попов, *УФН* **190**, 396 (2020) [E. Z. Gusakov and A. Yu. Popov, *Phys.-Uspekhi* **63**, 365 (2020)]; DOI: 10.3367/UFNe.2019.05.038572.
12. Е. З. Гусаков, А. Ю. Попов, *ЖЭТФ* **154**, 179 (2018) [E. Z. Gusakov and A. Yu. Popov, *JETP* **127**, 155 (2018)]; <https://doi.org/10.1134/S1063776118070063>.
13. Е. З. Гусаков, А. Ю. Попов, *Письма в ЖЭТФ* **109**, 723 (2019) [E. Z. Gusakov and A. Yu. Popov, *JETP Lett.* **109**, 689 (2019)]; <https://link.springer.com/article/10.1134/S0021364019110080>.
14. A. V. Melnikov, L. I. Krupnik, E. Ascasibar et al. (Collaboration), *Plasma Phys. Control. Fusion* **60**, 084008 (2018); doi.org/10.1088/1361-6587/aac97f.
15. А. В. Мельников, В. А. Вершков, С. А. Грашин, М. А. Драбинский, Л. Г. Елисеев, И. А. Земцов, В. А. Крупин, В. П. Лахин, С. Е. Лысенко, А. Р. Немец, М. Р. Нурғалиев, Н. К. Харчев, Ф. О. Хабанов, Д. А. Шелухин, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 360 (2022) [A. V. Melnikov, V. A. Vershkov, S. A. Grashin, M. A. Drabinskij, L. G. Eliseev, I. A. Zemtsov, V. A. Krupin, V. P. Lakhin, S. E. Lysenko, A. R. Nemets, M. R. Nurgaliev, N. K. Khartchev, P. O. Khabanov, and D. A. Shelukhin, *JETP Lett.* **115**, 324 (2022)]; DOI: 10.1134/S0021364022200279; http://jetpletters.ru/ps/2369/article_35068.shtml.
16. Г. А. Саранча, Л. Г. Елисеев, А. В. Мельников, Ф. О. Хабанов, Н. К. Харчев, *Письма в ЖЭТФ* **116**, 96 (2022) [G. A. Sarancha,

- L. G. Eliseev, Ph. O. Khabanov, N. K. Kharchev, and A. V. Melnikov, *JETP Lett.* **116**, 98 (2022)]; <https://link.springer.com/article/10.1134/S0021364022601178>.
17. Ю. Н. Днестровский, В. А. Вершков, А. В. Данилов, А. Ю. Днестровский, С. Е. Лысенко, А. В. Мельников, Г. Ф. Субботин, Д. Ю. Сычугов, С. В. Черкасов, Д. А. Шелухин, *Физика плазмы* **45**, 207 (2019) [Y. N. Dnestrovskij, V. A. Vershkov, A. V. Danilov, A. Yu. Dnestrovskij, S. E. Lysenko, A. V. Melnikov, G. F. Subbotin, D. Yu. Sychugov, S. V. Cherkasov, and D. A. Shelukhin, *Plasma Phys. Reports* **45**, 226 (2019)]; DOI:10.1134/S1063780X19020053.
 18. Ю. Н. Днестровский, А. В. Данилов, А. Ю. Днестровский, Л. А. Ключников, С. Е. Лысенко, А. В. Мельников, А. Р. Немец, М. Р. Нурғалиев, Г. Ф. Субботин, Н. А. Соловьев, А. В. Сушков, Д. Ю. Сычугов, С. В. Черкасов, *Физика плазмы* **46**, 387 (2020) [Yu. N. Dnestrovskij, A. V. Danilov, A. Yu. Dnestrovskij, L. A. Klyuchnikov, S. E. Lysenko, A. V. Melnikov, A. R. Nemets, M. R. Nurgaliev, G. F. Subbotin, N. A. Soloviev, A. V. Sushkov, D. Yu. Sychugov, and S. V. Cherkasov, *Plasma Phys. Reports* **46**, 477 (2020)]; DOI: 10.1134/S1063780X20050037.
 19. Yu. N. Dnestrovskij, A. V. Danilov, A. Yu. Dnestrovskij, S. E. Lysenko, A. V. Melnikov, A. R. Nemets, M. R. Nurgaliev, G. F. Subbotin, N. A. Soloviev, D. Yu. Sychugov, and S. V. Cherkasov, *Plasma Phys. Control. Fusion* **63**, 055012 (2021); <https://doi.org/10.1088/1361-6587/abdc9b>.
 20. Ю. Н. Днестровский, А. В. Данилов, А. Ю. Днестровский, С. Е. Лысенко, А. В. Мельников, А. Р. Немец, М. Р. Нурғалиев, Г. Ф. Субботин, Н. А. Соловьев, Д. Ю. Сычугов, С. В. Черкасов, *ВАНТ. Сер. Термоядерный синтез* **45**(1), 9 (2022) [Yu. N. Dnestrovskij, A. V. Danilov, A. Yu. Dnestrovskij, S. E. Lysenko, A. V. Melnikov, A. R. Nemets, M. R. Nurgaliev, G. F. Subbotin, N. A. Soloviev, D. Yu. Sychugov, and S. V. Cherkasov, *Physics of Atomic Nuclei* **85**(1), S34 (2022)]; DOI: 10.1134/S1063778822130051.
 21. Yu. N. Dnestrovskij, A. V. Melnikov, D. Lopez-Bruna, A. Yu. Dnestrovskij, S. V. Cherkasov, A. V. Danilov, L. G. Eliseev, F. O. Khabanov, S. E. Lysenko, and D. Yu. Sychugov, *Plasma Phys. Control. Fusion* **65**, 015011 (2023)]; DOI: 10.1088/1361-6587/aca35a.
 22. В. В. Аликаев, А. А. Багдасаров, Н. Л. Васин, Ю. Н. Днестровский, Ю. В. Есипчук, А. Я. Кислов, Г. Е. Ноткин, К. А. Разумова, В. С. Стрелков, К. Н. Тарасян, *Физика плазмы* **14**, 1027 (1988) [V. V. Alikaeiev, A. A. Bagdasarov, N. L. Vasin, Yu. N. Dnestrovskij, Yu. V. Esipchuk, A. Ya. Kislov, G. E. Notkin, K. A. Razumova, V. S. Strelkov, and K. N. Tarasyan, *Plasma Phys. Rep.* **14**, 601 (1988)].
 23. C. C. Petty and the DIII-D Team, *Nucl. Fusion* **59**, 112002 (2019); DOI: 10.1088/1741-4326/ab024a.
 24. U. Stroth, J. Adamek, L. Aho-Mantila et al. (Collaboration), *Nucl. Fusion* **53**, 104003 (2013); DOI: 10.1088/0029-5515/53/10/104003.
 25. J. W. Liu, Q. Zang, Y. Liang, et al. (Collaboration), *Nucl. Fusion* **63**, 016011 (2023); DOI: 10.1088/1741-4326/aca168.
 26. A. V. Melnikov, A. V. Sushkov, A. M. Belov et al. (Collaboration), *Fusion Eng. Design* **96–97**, 306 (2015); <http://dx.doi.org/10.1016/j.fusengdes.2015.06.080>.
 27. J. Ongena, A. M. Messiaen, A. V. Melnikov, R. Ragona, Ye. O. Kazakov, D. van Eester, Yu. N. Dnestrovskii, P. P. Khvostenko, I. N. Roy, and A. N. Romannikov, *Fusion Eng. Design* **146A**, 787 (2019); <https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2019.01.080>.
 28. A. V. Melnikov, J. Ongena, A. M. Messiaen, R. Ragona, A. V. Sushkov, Ye. O. Kazakov, D. van Eester, Yu. N. Dnestrovskii, P. P. Khvostenko, and I. N. Roy, *AIP Conf. Proc.* **2254**, 070007 (2020); <https://doi.org/10.1063/5.0014265>.

Эффект “преломления” магнитных доменных границ на электрических неоднородностях

А. А. Подклетнова⁺, М. А. Колющенко⁺, Н. В. Мясников⁺, Е. П. Николаева⁺, А. С. Каминский⁺,
А. В. Николаев^{+,*}, А. П. Пятаков^{+,1)}

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

^{*} Сколковский институт науки и технологий Территория Инновационного Центра “Сколково”,
121205 Москва, Россия

Поступила в редакцию 22 июня 2023 г.

После переработки 9 июля 2023 г.

Принята к публикации 10 июля 2023 г.

Рассмотрена разновидность магнитоэлектрического эффекта, проявляющаяся как “преломление” доменных границ в месте локализации электрода, напыленного на поверхность пленки феррита граната. Относительный “показатель преломления” зависит от приложенного к электроду электрического напряжения и меняется в пределах от 0.6 до 1.2. В качестве механизма эффекта предложено электроиндуцированное изменение поверхностной энергии доменной границы за счет неоднородного магнитоэлектрического взаимодействия.

DOI: 10.31857/S1234567823160061, EDN: iubimv

1. Введение. Представление о поверхностном натяжении как о силе, стремящейся сократить поверхность раздела фаз, является одной из универсальных идей, широко используемой в теоретических моделях, в том числе, для решения задач, далеко отстоящих от проблем собственно физики: механизмы формирования границ между биологическими тканями [1] и территориальными диалектами [2] также объясняют на основе представления о дополнительной энергии, связанной с поверхностями или линиями раздела.

Границы между магнитными доменами, с характерной шириной, много меньшей размера доменов, в классических моделях микромагнетизма рассматриваются как бесконечно тонкие стенки с поверхностной энергией, определяемой только магнитными параметрами образца и не зависящей от места расположения, ориентации и кривизны границы [3]. Такое упрощение, в частности, позволяет объяснить возникновение и устойчивость цилиндрических магнитных доменов в магнитных пленках и пластинках ферро- и ферримагнитных материалов [4].

В недавней статье [5] был продемонстрирован эффект “преломления” доменной границы на топографических неоднородностях образца: доменная стенка в магнитоэлектрическом материале Cr_2O_3 при проходе под ступенчатым выступом на поверхности

кристалла меняла направление, миновав же выступ, возвращалась к исходному направлению. При этом соотношение углов “падения” и “преломления” соответствовало закону Снеллиуса. Аналогия с преломлением основывалась на принципе Ферма в оптике: траектория луча соответствует минимуму функционала оптической длины пути, в случае же доменной стенки роль показателя преломления выполняет поверхностная плотность энергии границы между доменами, зависящая от топографических особенностей кристалла, а конфигурация доменной стенки минимизирует ее полную энергию.

Как было показано в серии работ [6–9], поверхностная энергия доменных границ в магнитоэлектриках и тонких пленках магнитных материалов зависит от электрического поля, поэтому представляет интерес исследовать явление “преломления” доменных границ на полосковых электродах, нанесенных на поверхность пленки феррита граната. В этом случае “показателем преломления” можно управлять, прикладывая к электроду напряжение различной величины и знака.

2. Поверхностная энергия доменной границы. Ориентация доменных границ в плоскости образца определяется соображениями минимизации энергии доменной границы:

$$W = \int_a^b \sigma(l) h dl, \quad (1)$$

¹⁾ e-mail: pyatakov@physics.msu.ru

где σ – поверхностная плотность энергии доменной границы, h – толщина пленки, l – длина фрагмента границы.

Поверхностная плотность энергии доменной границы зависит от компоненты напряженности электрического поля, нормальной к плоскости пленки [6, 7]:

$$\sigma = 4\sqrt{AK} - \gamma\pi E, \quad (2)$$

где A – обменная жесткость, K – магнитная анизотропия (магнитостатическим вкладом в энергию доменной границы за счет наличия неелевской компоненты намагниченности пренебрегаем вследствие малости намагниченности насыщения – около 5 Гс), γ – коэффициент неоднородного магнитоэлектрического взаимодействия [10], определяемого вкладом в свободную энергию [11]:

$$F_{МЭ} = \gamma \mathbf{E} \cdot \{ \mathbf{m} (\nabla \cdot \mathbf{m}) + [\mathbf{m} \times [\nabla \times \mathbf{m}]] \}, \quad (3)$$

где $\mathbf{E}$ – вектор напряженности электрического поля, $\mathbf{m}$ – единичный вектор намагниченности. В современной литературе этот вклад также называют флексомагнитоэлектрическим по аналогии с флексоэлектрическим эффектом в жидких кристаллах [11, 12], и рассматривают как разновидность взаимодействия Дзялошинского–Мории, зависящего от электрического поля [8].

По аналогии с принципом Ферма в оптике доменная граница располагается таким образом, что синусы углов “падения” и “преломления” относятся как поверхностная энергия доменной границы в присутствии энергетической неоднородности к поверхностной энергии невозмущенной доменной границы:

$$\frac{\sin \theta_1}{\sin \theta_2} = 1 - \frac{\gamma\pi E}{4\sqrt{AK}} + C = n, \quad (4)$$

где θ_1 – угол “падения”, θ_2 – угол “преломления”, n – относительный показатель преломления, $C = \text{const}$.

Наличие константы C обусловлено тем, что нанесенный на пленку феррита граната электрод сам по себе создает на поверхности образца энергетическую неоднородность, являясь не только топографической особенностью, но и образуя контактную область металла с диэлектриком, поэтому доменная граница, проходя через него, будет “преломляться” даже в отсутствие приложенного к нему электрического напряжения.

3. Описание эксперимента. В настоящей работе исследовался эффект “преломления” доменных границ вблизи заряженных полосковых электродов. На поверхность образца пленки феррита граната ((BiLu)₃(FeGa)₅O₁₂), выращенной методом

жидкофазной эпитаксии на подложке из гадолиний-галлиевого граната с кристаллографической ориентацией (210), напылена система палладиевых полосковых электродов, к одному из которых подается электрическое напряжение. Доменная структура пленки наблюдалась с помощью магнитооптического эффекта в геометрии Фарадея. Ориентацию полосковой доменной структуры относительно электрода можно было менять, подавая импульс магнитного поля в плоскости пленки. Если на значительном удалении от полоскового электрода доменные стенки составляли с ним некоторый угол θ_1 (угол “падения”), то вблизи него доменные стенки изменяли свою ориентацию, образуя с электродом угол θ_2 (угол “преломления”), отличный от θ_1 . Схема эксперимента и типичное магнитооптическое изображение, наблюдаемое при подаче напряжения между электродом и подложкой, представлены на рис. 1а и б, соот-

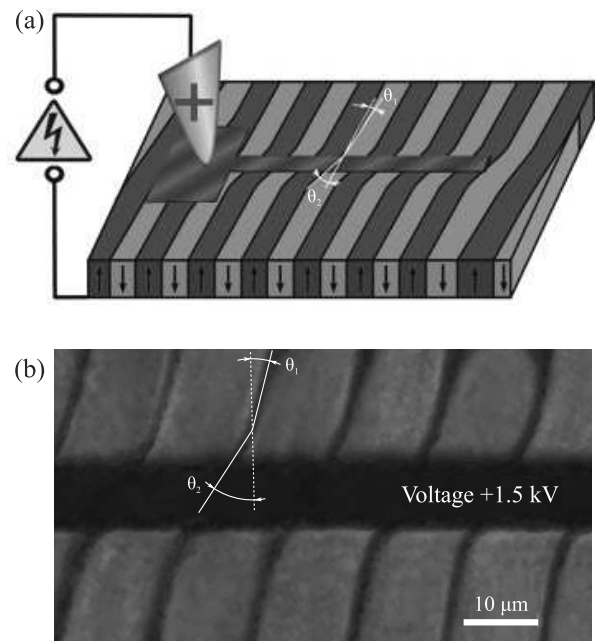


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Принципиальная схема эксперимента. Стрелки обозначают направление намагниченности в доменах. (б) – Магнитооптическое изображение полосковой доменной структуры и электрода при подаче положительного напряжения на электрод относительно подложки

ветственно. Явление “преломления” воспроизводится независимо от выбранного электрода и места исследования на поверхности образца. Особо отметим, что “преломление” наблюдается уже на некотором расстоянии от электрода, вследствие наличия там ненулевого электрического поля.

4. Результаты и обсуждение. Зависимости синуса угла “падения” θ_1 от синуса угла “преломления” θ_2 при различных значениях приложенного к электроду напряжения (всего было получено более двух десятков таких зависимостей) показаны на рис. 2. Как и следует из предположения о минимизации

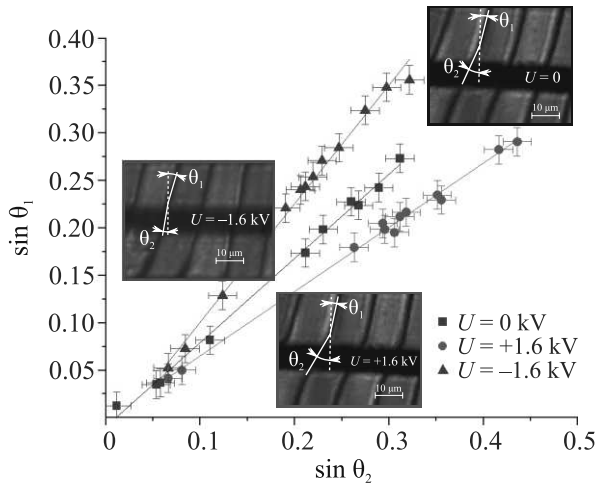


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость синуса угла “падения” θ_1 от синуса угла “преломления” θ_2 при различных значениях приложенного к электроду напряжения. На вставках – примеры магнитооптических изображений для трех случаев: положительного напряжения на электроде (внизу по центру), отрицательного напряжения (слева), и в отсутствие напряжения (в правом верхнем углу)

энергии доменной границы, они оказались линейными, аналогично закону Снеллиуса из геометрической оптики: тангенс угла наклона прямых на рис. 2 соответствует эффективному показателю преломления n при данном электрическом напряжении. Отметим, что поскольку поверхностная энергия доменной границы в электрическом поле может, в зависимости от электрической полярности, не только увеличиваться, но и уменьшаться, то относительный показатель преломления может принимать значения как большие, так и меньшие единицы.

Это обстоятельство связано с тем, что в спонтанном состоянии доменные границы уже имеют определенное направление разворота намагниченности (киральность), изменение которой, как следует из экспериментов [13, 14], требует приложения магнитного поля около 50 Э. Согласно теоретическому анализу на основе микроскопического рассмотрения антисимметричного обмена в кристалле феррита граната [15] показано, что градиент механических деформаций вследствие эпитаксиальных напряжений в пленках, вызывает нарушение инверсионной симметрии в кри-

сталле, формирование доменных границ определенной киральности и возникновение ненулевого вклада в энергию от взаимодействия Дзялошинского–Мории. Величина данного вклада, оцененная по рас-согласованию постоянных решеток пленки феррита граната и подложки, согласуется с характерной энергией магнитоэлектрического взаимодействия [15].

На рисунке 3 показаны экспериментально полученные данные для зависимости относительного показателя преломления от электрического напряжения между электродом и подложкой.

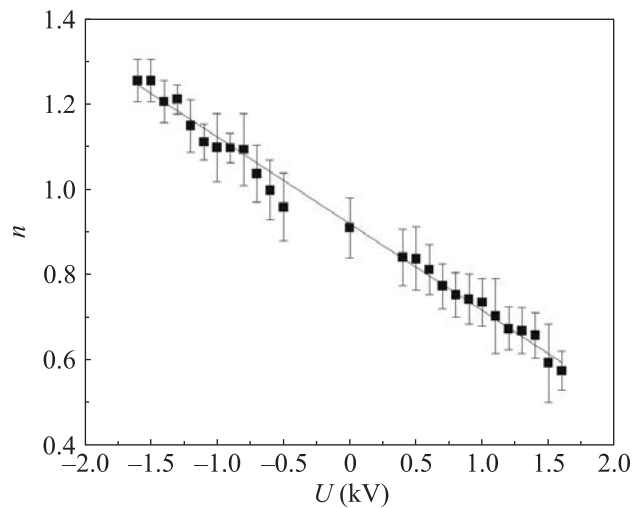


Рис. 3. Зависимость относительного показателя “преломления” от приложенного к электроду напряжения

Согласно формуле (4) линейная аппроксимация графика на рис. 3, с учетом характерных параметров исследуемого образца (параметр поверхностной плотности энергии доменной границы $\sqrt{AK} \cong 0.01 \frac{\text{Эрг}}{\text{см}^2}$, ширина электрода $w = 10^{-3} \text{ см}$), позволяет определить как константу $C = -0.078$, так и величину магнитоэлектрического коэффициента, соответствующего наклону графика:

$$\gamma = (0.85 \pm 0.05) \cdot 10^{-6} \sqrt{\frac{\text{Эрг}}{\text{см}}}.$$

Чтобы проиллюстрировать величину магнитоэлектрического эффекта, оценим вклад в поверхностную энергию доменной границы (второе слагаемое в уравнении (2)) для максимального прикладываемого в эксперименте электрического напряжения ($U = 1.6 \text{ кВ}$):

$$\sigma(U = 1.6 \text{ кВ}) = (1.4 \pm 0.1) \cdot 10^{-2} \frac{\text{Эрг}}{\text{см}^2}.$$

Таким образом, величина магнитоэлектрического вклада в свободную энергию при максимальных напряжениях составляет около трети от поверхностной

плотности энергии доменной границы вдали от электрода. При повышении электрического поля (за счет увеличения напряжения или уменьшения размеров электрода) поверхностная энергия доменной границы может, согласно формуле (2), обратиться в нуль. Такая возможность, действительно, существует, что подтверждается наблюдением электроиндуцированного зарождения новых доменов – явлением, ранее обнаруженным в работе [16].

5. Заключение. Таким образом, рассмотренная в работе разновидность магнитоэлектрического эффекта – “преломление” полосовой доменной структуры на полосковом электроде – может быть объяснена в рамках модели поверхностной энергии доменных границ, модулируемой электрическим полем, а полученные из эксперимента оценки магнитоэлектрической константы согласуются с величинами, полученными в экспериментах по электроиндуцированному зарождению магнитных доменов [6, 16] и движению доменных границ [17].

Работа выполнена при поддержке гранта Российский научный фонд # 23-22-00162 “Электрическая модуляция поверхностной энергии доменных границ в микромагнетизме и физике спиновых волн”.

1. M. Daniel Sussman, J. M. Schwarz, M. Cristina Marchetti, and M. L. Manning, *Phys. Rev. Lett.* **120**(5), 58001 (2017).
2. J. Burrridge, *Phys. Rev. X* **7**, 031008 (2017).
3. A. A. Thiele, *Bell System Technical Journal* **48**(10), 3287 (1969).
4. A. A. Thiele, *J. Appl. Phys.* **41**(3), 1139 (1970).
5. N. Hedrich, K. Wagner, O. V. Pylypovskyi, B. J. Shields, T. Kosub, D. D. Sheka, D. Makarov, and P. Maletinsky, *Nature Phys.* **17**, 574 (2021).
6. D. P. Kulikova, T. T. Gareev, E. P. Nikolaeva, T. B. Kosykh, A. V. Nikolaev, Z. A. Pyatakova, A. K. Zvezdin, and A. P. Pyatakov, *Physica Status Solidi – Rapid Research Letters* **12**, 1800066 (2018).
7. M. Schott, A. Bernand-Mantel, L. Ranno, S. Pizzini, J. Vogel, H. Béa, C. Baraduc, S. Auffret, G. Gaudin, and D. Givord, *Nano Lett.* **17**(5), 3006 (2017).
8. T. Srivastava, M. Schott, R. Juge et al. (Collaboration), *Nano Lett.* **18**(8), 4871 (2018).
9. K. S. Antipin, T. T. Gareev, N. V. Myasnikov, E. P. Nikolaeva, and A. P. Pyatakov, *J. Appl. Phys.* **129**, 024103 (2021).
10. V. G. Baryakhtar, V. A. Lvov, and D. A. Yablonskii, *JETP Lett.* **37**(12), 673 (1983).
11. A. Sparavigna, A. Strigazzi, and A. Zvezdin, *Phys. Rev. B* **50**, 2953 (1994).
12. A. P. Pyatakov, T. T. Gareev, A. S. Kaminskiy, K. S. Antipin, E. P. Nikolaeva, D. P. Kulikova, A. S. Sergeev, and A. V. Nikolaev, *Magnetoelectricity of chiral micromagnetic structures*, in *Chirality, magnetism, and magnetoelectricity*, ed. by E. Kamenetskii, Springer, Cham (2021), ch. 6, p. 127.
13. A. P. Pyatakov, D. A. Sechin, A. S. Sergeev, A. V. Nikolaev, E. P. Nikolaeva, A. S. Logginov, and A. K. Zvezdin, *Europhysics Lett.* **93**(1), 17001 (2011).
14. А. П. Пятаков, А. С. Сергеев, Е. П. Николаева, Т. Б. Косых, А. В. Николаев, К. А. Звездин, А. К. Звездин, *УФН* **185**(10), 1077 (2015).
15. A. S. Kaminskiy, N. V. Myasnikov, and A. P. Pyatakov, *Phys. Met. Metallogr.* **124**(2), 181 (2023).
16. D. P. Kulikova, A. P. Pyatakov, E. P. Nikolaeva, A. S. Sergeev, T. B. Kosykh, and Z. A. Pyatakova, *JETP Lett.* **104**(3), 197 (2016).
17. A. S. Logginov, G. A. Meshkov, A. V. Nikolaev, E. P. Nikolaeva, A. P. Pyatakov, and A. K. Zvezdin, *Appl. Phys. Lett.* **93**(18), 182510 (2008).

Влияние эффектов электронного конфайнмента на ширину запрещенной зоны почти монокристаллических слоев EuS_2

Е. А. Екимов⁺, С. Н. Николаев*, М. В. Кондрин⁺¹⁾, В. С. Кривобок^{*×1)}

⁺ Институт физики высоких давлений им. Л. Ф. Верещагина РАН, 108840 Троицк, Москва, Россия

* Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

× Московский физико-технический институт, 141701 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 30 мая 2023 г.

После переработки 19 июля 2023 г.

Принята к публикации 21 июля 2023 г.

Дисульфид европия является слоистым полупроводником с квази-ионным типом связи. Ранее было продемонстрировано, что механическим расщеплением из этого материала можно создавать почти монокристаллические пленки. В данной работе с помощью первопринципных расчетов установлена энергетически наиболее выгодная структура монокристаллических пленок и исследовано поведение запрещенной зоны в зависимости от количества монослоев в пленке. Для установления роли нелокальных поправок и поправок, связанных со спин-орбитальным взаимодействием, результаты расчетов сравнивались с экспериментальной оценкой положения прямого края фундаментального поглощения объемных кристаллов по спектрам горячей фотолюминесценции и микроотражения. Установлено, что непрямой характер запрещенной зоны сохраняется и в тонких пленках. При этом оказалось, что эффекты конфайнмента (размерной локализации электронов) вызывают неоднородное уширение запрещенной зоны по объему зоны Бриллюэна. На границах зоны Бриллюэна ширина щели практически не меняется между объемным материалом и его пленками, а значительное изменение происходит только в центре зоны Бриллюэна. В пленках EuS_2 толщиной порядка 10 монокристаллических слоев предсказана сингулярность плотности состояний, вызванная выравниванием энергии для D и E_0 точек зоны Бриллюэна.

DOI: 10.31857/S1234567823160073, EDN: iugkya

1. Введение. В последнее время пристальное внимание приковано к поведению монокристаллических слоев различных материалов, в первую очередь, таких как графен и дихалькогениды переходных (и пост-переходных) металлов [1–7]. В первую очередь этот интерес обусловлен возможностью создания гетероструктур с необычными электронными и спиновыми свойствами путем физического наложения одного монокристаллического слоя поверх другого [8]. В таком подходе неявно предполагается, что монокристаллические слои в материале связаны ван-дер-Ваальсовыми силами. Это значительно облегчает задачу расщепления материала на монокристаллические слои. Вместе с тем, среди слоистых материалов имеются материалы, связанные ионными и ковалентными связями (квазионные материалы), которые тоже могут быть подвергнуты почти монокристаллическому расщеплению. Под почти монокристаллическим мы подразумеваем возможность расщепления материала до толщин, сравнимых с размером элементарной кристаллической ячейки.

К числу таких материалов относятся дихалькогениды редкоземельных элементов (в частности дисульфиды) [9–27]. Несмотря на практически синонимическое название с дихалькогенидами переходных металлов, их структура существенно отличается, и вместо ван-дер-Ваальсовых связанных слоев с тригональной симметрией внутри слоя они состоят из ионно связанных двойного катионного слоя $[RE - S]$ с тетрагональной симметрией, разделенного слоем из определенным образом упорядоченного анионного слоя, состоящего из связанных одинарной ковалентной связью анионов димеров серы $[S_2]$. В качестве примера, структура недавно синтезированного EuS_2 с моноклинной сингонией (обусловленной упорядочением димеров серы) [28] приведена на рис. 1. Относительный заряд слоя $[RE - S]$ равен +1, в то время как относительный заряд слоя $[S_2] - -2$, так что элементарная ячейка, состоящая из двух катионных и одного анионного слоя, электрически нейтральна. Отметим также, что дихалькогениды редкоземельных элементов привлекали внимание исследователей довольно давно, но только недавно бы-

¹⁾ e-mail: mkondrin@hppi.troitsk.ru; kolob7040@gmail.com

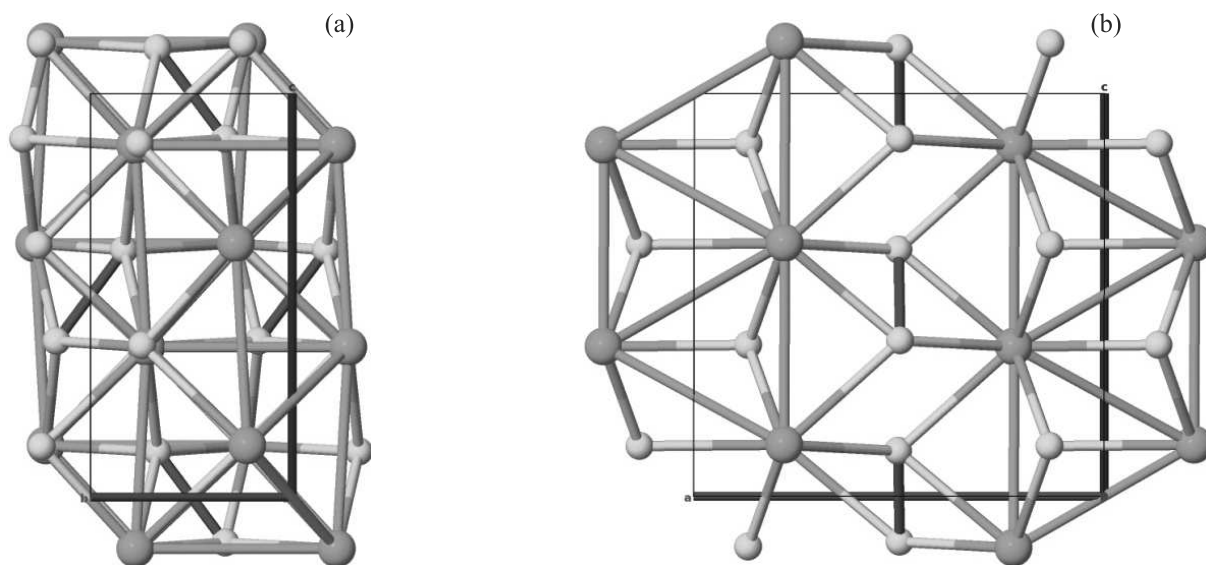


Рис. 1. (Цветной онлайн) Кристаллическая структура EuS_2 . Панель (a) показывает структуру соединения перпендикулярно слоям, вдоль которых происходит расщепление, панель (b) – вдоль слоев. Изумрудные большие сферы отвечают атомам редкоземельного элемента, маленькие желтые – атомам серы. Красным цветом отмечена единственная ковалентная связь в этих квази-ионных соединениях, связывающая димеры серы

ла продемонстрирована возможность их расщепления (на примере все того же EuS_2) до почти монокатомных слоев [28], что открывает перспективы их использования в качестве материала для создания квази-ионных гетероструктур.

Исследование почти монокатомных слоев представляет интерес также с точки зрения изучения эффектов электронной локализации (конфайнмента), которые приводят к существенному отличию электронных свойств объемных материалов по сравнению с их почти монокатомными слоями [1]. В частности, известно, что в то время как некоторые диалкогениды переходных металлов обладают непрямой запрещенной зоной, то у их почти монокатомных слоев щель, помимо того что она отличается по величине, является прямой [1], что важно для оптоэлектрических приложений. Поэтому варьирование толщины почти монокатомных слоев открывает широкие перспективы по манипулированию запрещенной зоной.

Вместе с тем для квази-ионных полупроводников первым не очевидным моментом является сама структура почти монокатомной пленки. В отличие от ван-дер-Ваальсовых монослоев, где расщепление происходит по очевидно самой слабой (ван-дер-Ваальсовой) связи, для квази-ионного монослоя выяснение структуры монослоя требует сравнительного анализа различных потенциально возможных структур. Также для диалкогенидов редкоземельных элементов важным фактором является учет спин-орбитального взаимодействия, который существенно

сказывается на величине запрещенной зоны, вплоть до его знака (полупроводник/металл).

В данной статье мы провели *ab initio* исследование ширины запрещенной зоны тонких пленок одного из представителей класса диалкогенидов редкоземельных элементов EuS_2 для двух различных толщин пленок (одинарной и двойной) и осуществили их сравнение с шириной запрещенной зоны в объемном материале. Хотя показано, что щель остается непрямой, но вместе с тем оказывается, что уширение запрещенной зоны в тонких пленках происходит неоднородно, и сильнее всего щель меняется в центре зоны Бриллюэна, в то время как на границах зоны щель практически не меняется. Это заставляет задуматься о поведении запрещенной зоны в других диалкогенидах редкоземельных элементов и возможности создания монослоев с прямой запрещенной зоной в них.

2. Методы. В наших *ab initio* расчетах был использован пакет QuantumESPRESSO [29]. Для вычислений методом функционала плотности был использован Perdew–Burke–Ernzerhof обменно-корреляционный функционал с “мягкими” релятивистскими PAW (*projected augmented waves*) псевдопотенциалами с энергией обрезания 40 Ридберг и энергией обрезания электронной плотности 280 Ридберг. Выбор псевдопотенциалов был в основном обусловлен наличием только такого типа потенциала для европиевых атомов. Для интегрирования по зоне Бриллюэна была использована

несмещенная $1 \times 8 \times 4$ решетка Монкхорста–Пэка (Monkhorst–Pack) для вычислений тонких пленок и $4 \times 8 \times 4$ для объемного материала. Первая координата соответствует разбиению вдоль наиболее длинной оси (нормальной к поверхности пленок оси a). В процессе вычислений выполнялась оптимизация положения ионов и размеров ячейки (при фиксированном значении длины элементарной ячейки вдоль оси a), пока остаточная сила на каждый атом не превышала 0.001 Ридберг/бор и дополнительное механическое напряжение не превышало 0.5 кбар. Для расчета отдельного слоя он помещался в периодическую структуру, разделенную вакуумным слоем толщиной больше 10 Å, чтобы пресечь учет сомнительного взаимодействия между слоями.

Для эмпирической оценки нелокальных поправок и поправок, связанных со спин-орбитальным взаимодействием, были проведены экспериментальные исследования, направленные на поиск спектральных особенностей в диэлектрической функции пленок EuS_2 . Мы использовали сравнительно толстые (объемные) пленки, так как для них доступны более простые методы оценки частотной зависимости показателя преломления. Кроме того, для толстых пленок существенно меньше роль поверхностной безызлучательной рекомбинации носителей. Процедуры получения пленок и их размещения на стандартных Si/SiO_2 описаны в работе [28]. Основной упор был сделан на измерениях спектров микроотражения и низкотемпературной фотолуминесценции. Описание используемого экспериментального стенда представлено в работе [30].

3. Объемный EuS_2 . Результаты расчетов зонной структуры вблизи запрещенной зоны объемного образца EuS_2 приведены на рис. 2. Как видно из рис. 2, объемным образцам свойственна непрямая запрещенная зона. Необычным свойством объемных образцов EuS_2 является то, что потолок валентной зоны находится на границе зоны Бриллюэна, в то время как дно зоны проводимости находится в центре зоны (Гамма точке). Заметим, что ранее подобная конфигурация максимумов и минимумов валентной зоны и зоны проводимости была получена для соединения PrS_2 методом *linear muffin-tin orbitals* [31]. По всей видимости, такая конфигурация зон затрудняет экспериментальное определение величины прямой щели, поскольку оптическое поглощение, свойственное материалам с непрямой щелью, предполагает наличие особенности возбуждений в какой-то определенной точке зоны Бриллюэна (например, как в полупроводниках с алмазной структурой). Если рассматривать эту особенность, как минимальное

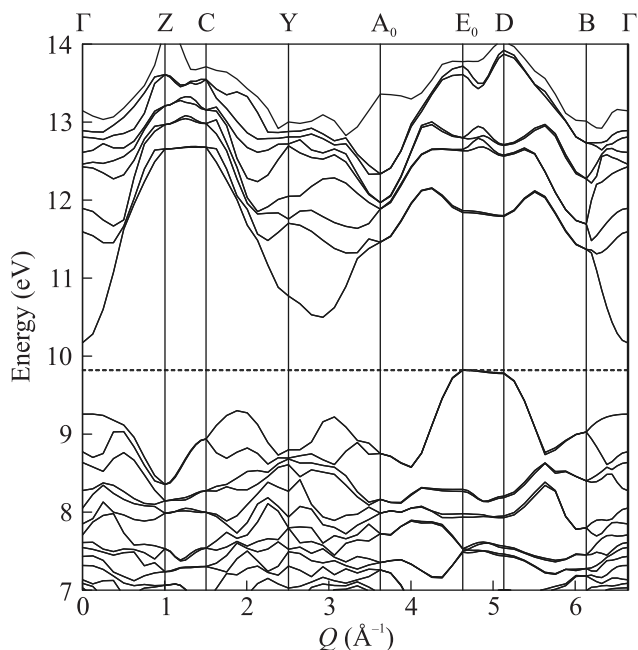


Рис. 2. Зонная структура вблизи запрещенной зоны объемного образца EuS_2 . Штриховые горизонтальные линии отмечают положение верхнего заполненного электронного уровня

(взятое по всей зоне Бриллюэна) значение прямого перехода, то он соответствует Гамма-точке, с расчетным значением примерно 1 эВ.

Известно, что первопринципные расчеты значительно занижают величину запрещенной зоны. Вместе с тем нелокальные поправки (возможные благодаря применению гибридных функционалов плотности, таких как HSE06), позволяют компенсировать этот недостаток и получить значения энергий возбуждения, близкие к экспериментальным. К сожалению, для EuS_2 такая процедура не представляется возможной, поскольку, помимо нелокальных поправок, следует учитывать также спин-орбитальное взаимодействие, одновременный учет которых в рамках одного пакета QuantumEspresso в настоящее время невозможен. Вместе с тем “пошаговый” учет этих двух вкладов позволяет примерно оценить величину запрещенной зоны.

Без всяких коррекций в результате расчета методом обобщенного градиента плотности (*generalized gradient approximation*, GGA) величина непрямой запрещенной зоны EuS_2 отрицательна и равна -0.1 эВ (материал является металлом). Без учета спин-орбитального взаимодействия (но с учетом нелокальных поправок методом HSE06) ширина непрямой запрещенной зоны становится равной 0.5 эВ [28]. Если считать, что этот вклад “суммируется” с вкладом от спин-орбитального взаимодействия, который при-

водит к уширению не прямой запрещенной зоны до 0.35 эВ (см. рис. 2), то последовательный учет этих двух вкладов приводит к расчетному значению ширины не прямой запрещенной зоны, равной 1.05 эВ. Это несколько выше, но тем не менее сравнимо с величиной щели, полученной из электротранспортных измерений и равной 0.9 эВ [28]. Таким образом, мы приходим к выводу, что для получения экспериментальных значений из величины запрещенной зоны полученной из расчета с учетом спин-орбитального взаимодействия (что проделано в настоящей работе), к рассчитанному значению следует добавить поправку 0.55–0.7 эВ. Это приводит нас к результату, что ширина прямой запрещенной зоны EuS_2 в Гамма точке 1.6–1.75 эВ. Данный вывод качественно согласуется с экспериментальными оценками (~ 1.8 эВ) ширины прямой запрещенной зоны EuS_2 , сделанными на основе анализа спектров горячей фотolumинесценции и микроотражения.

Рисунок 3а иллюстрирует типичные осцилляции коэффициента отражения для пленок EuS_2 толщиной 1.15 и 1.59 мкм. Чтобы исключить артефакты, связанные с подложкой и регистрирующей системой, на рис. 3а приведены зависимости отношения спектров отражения в области с пленкой EuS_2 и в области без пленки (только подложка). Из представленных кривых рис. 3а следует, что в диапазоне длин волн $\lambda \approx 550$ –950 нм наблюдаются интерференционные минимумы и максимумы, постепенно затухающие с уменьшением λ . Таким образом, коэффициент поглощения EuS_2 увеличивается с ростом длины волны, причем заметный рост регистрируется при $\lambda > 700$ нм. В свою очередь, анализ спектрального положения интерференционных минимумов и максимумов позволяет рассчитать оптическую толщину пленок в зависимости от длины волны и, затем, рассчитать показатель преломления. Результаты соответствующих расчетов представлены на рис. 3б. Из этих расчетов следует, что действительная часть показателя преломления слабо меняется в диапазоне 690–950 нм, затем регистрируется постепенный рост. Таким образом, можно утверждать, что в коротковолновой области по отношению к $\lambda = 690$ нм включается резонансная особенность (особенности), характерные для прямого края фундаментального поглощения.

Сделанная оценка подтверждается измерениями спектров горячей микрофотolumинесценции при температуре 5 К, см. рис. 3с. Так как используемая Si/SiO_2 подложка при температуре 5 К также люминесцирует, на рис. 3с приведено отношение спектров излучения для двух областей – с пленкой и

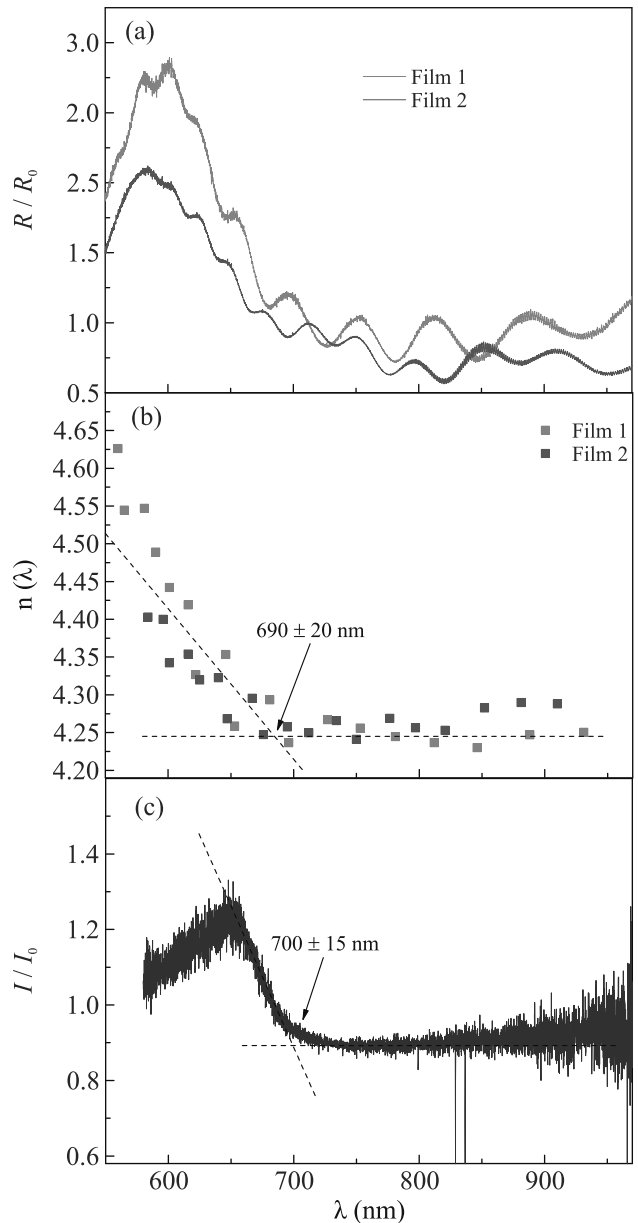


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Спектры микроотражения, записанные при комнатной температуре для пленки толщиной ≈ 1.15 мкм (зеленая кривая) и ≈ 1.59 мкм (красная кривая), нормированные на спектр микроотражения подложки. (б) – Зависимость показателя преломления пленок от длины волны. (с) – Отношение спектров микрофотolumинесценции в областях с пленкой EuS_2 и без нее записанные при температуре 5 К

без нее. Из представленных данных следует, что в области ≈ 700 –950 нм люминесценция определяется только Si/SiO_2 подложкой, в то время как в районе 550–700 нм регистрируется излучение пленки EuS_2 . Данное излучение следует отнести к горячей люминесценции, так как ширина запрещенной зоны EuS_2 расположена в районе 0.9 эВ. Из представленных на

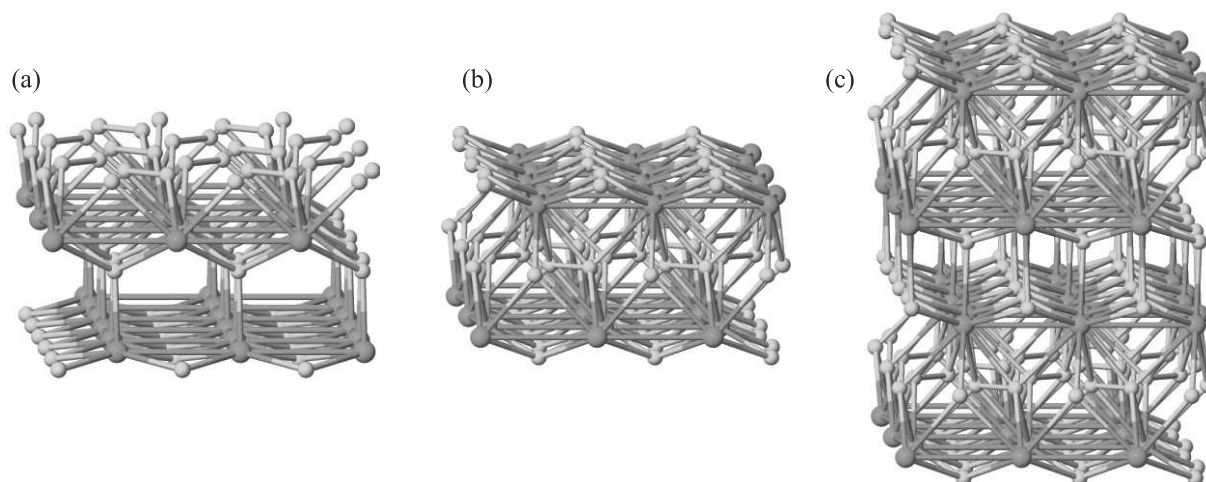


Рис. 4. (Цветной онлайн) Структура тонких пленок дисульфида европия. Панели (a) и (b) отвечают одинарным полярным и неполярным пленкам EuS_2 соответственно. На панели (c) показана двойная неполярная пленка. Изумрудные большие сферы отвечают атомам редкоземельного элемента, маленькие желтые – атомам серы

рис. 3 экспериментальных данных следует, что в случае объемных пленок EuS_2 комбинированная плотность состояний содержит особенность, ответственную за перегиб в частотной зависимости показателя преломления и пик горячей люминесценции, наблюдаемые в районе $\approx 690\text{--}700\text{ нм}$ (энергия кванта $1.77\text{--}1.8\text{ эВ}$). Данная особенность демонстрирует характерные черты сингулярности плотности состояний, типичной для прямого края фундаментального поглощения.

4. Ультратонкие пленки. Для вычисления относительных энергий одинарного слоя EuS_2 мы рассматривали две геометрии тонких пленок. Напомним, что структура объемного слоистого материала имеет моноклинную пространственную группу $P2_1/c$ с $Z = 4$ формульных единиц в элементарной ячейке. Заметим, что кристаллографическая ось a направлена перпендикулярно слоям, вдоль которых должно происходить расщепление на отдельные слои. Это обусловлено распределением заряда вдоль $[\text{Eu-S}]$ и $[\text{S}_2]$ плоскостей. Вместе с тем существуют два варианта расщепления на одинарные (т.е. толщиной в размер элементарной ячейки) слои – полярные и неполярные. В полярном случае двукратно заряженный анионный слой $[\text{S}_2]$ находится с одной стороны слоя, а два однократно заряженных катионных слоя $[\text{Eu-S}]$ с другой. В то же время возможен неполярный вариант расположения слоев – анионный слой $[\text{S}_2]$ зажат между двумя катионными слоями $[\text{Eu-S}]$. В обоих случаях электронейтральность слоя соблюдается. Два этих варианта показаны на рис. 4a, b.

Сразу заметим, что наиболее энергетически выгодным является неполярный вариант. При этом в

полярном варианте происходит существенное искажение атомных слоев (по сравнению с объемным вариантом), что, хоть и приводит к понижению энергии слоя, но не позволяет до конца компенсировать разницу с неполярным вариантом того же слоя. В итоге разница между полярным и неполярным вариантом одинарного слоя достигает разницы 240 мэВ в расчете на одну формульную единицу. Следовательно, можно сделать вывод, что при расщеплении на почти моноатомные слои образуются в основном неполярные пленки.

Помимо одинарного, нами также рассматривался двойной атомный слой (с двукратной толщиной атомарного слоя), который приведен на рис. 4c. Принимая во внимание вышесказанное, мы рассматривали только двукратные неполярные слои, считая, что их относительная энергетическая стабильность будет такой же, как и у одинарных слоев. Структура электронных уровней одинарного и двойного слоя EuS_2 приведена на рис. 5. Для вычисления электронных уровней отдельных слоев мы брали только путь в плоскости атомного слоя (отсюда меньшее количество узлов, по сравнению с объемным материалом, по которым вычислялась зонная структура). Отметим, что в результате широкого вакуумного зазора между отдельными слоями в периодической структуре, взятой для расчета, электронная дисперсия в направлении, перпендикулярном слоям, практически отсутствует, что позволяет нам проигнорировать направления зоны Бриллюэна, находящиеся вне слоя, поскольку они не несут дополнительной информации.

Как видно из рис. 2, уже в объемном материале наблюдается пологая дисперсия между E_0 и D точ-

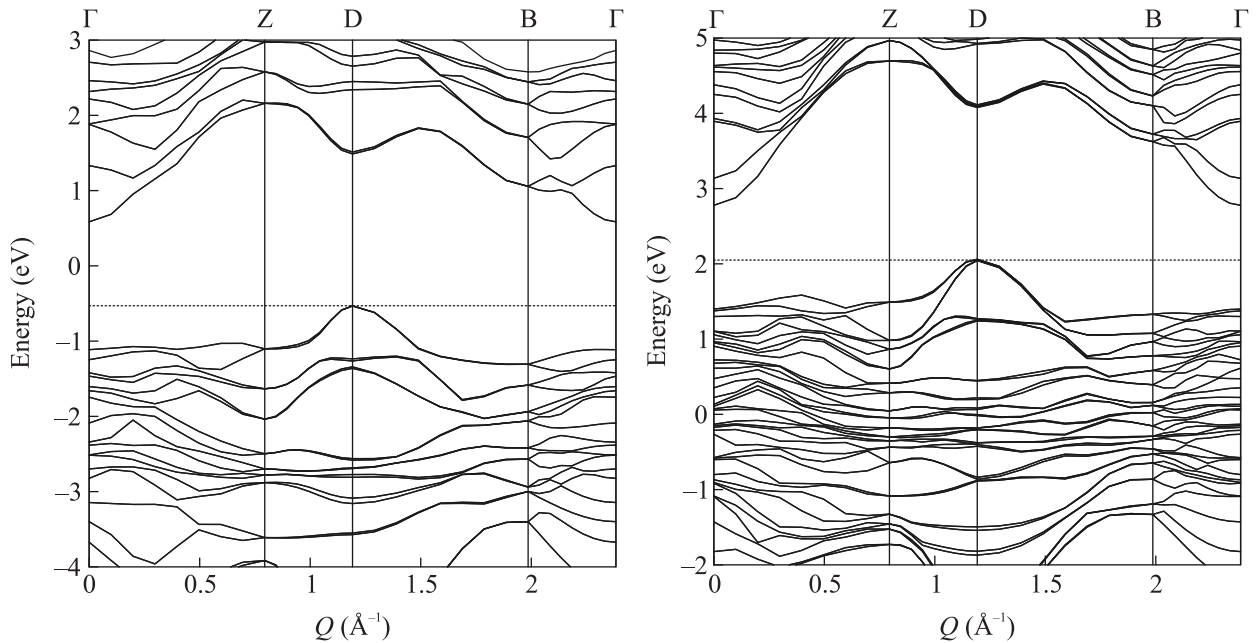


Рис. 5. Зонная структура вблизи запрещенной зоны в одинарном и двойном почти моно-атомных слоях EuS_2 . Штриховые горизонтальные линии отмечают положение верхнего заполненного электронного уровня

ками зоны Бриллюэна. В то же время, из рис. 4, 5 следует, что для монослоя и бислоя потолок валентной зоны расположен строго в D точке. Это означает, что в пленках с переходной толщиной (10 монослоев) будет неизбежно наблюдаться выравнивание энергии дырок с квазиимпульсом в окрестности E_0 и D точек. Таким образом, вблизи потока валентной зоны будет формироваться нестандартная сингулярность плотности состояний. Похожий эффект, вызванный уплотнением закона дисперсии валентной зоны вблизи Γ -точки, известен для пленок InSe толщиной несколько монослоев [30].

Вместе с тем, как следует из рис. 5, наиболее сильно эффект конфайнмента сказывается на поведении дна зоны проводимости в Гамма-точке и практически не приводит к изменению зонной структуры на границе зоны Бриллюэна. В качестве примера последнего факта удобно понаблюдать за величиной прямой щели в точке D (сравните рис. 2 и 5), где находится максимум валентной зоны тонких пленок. Как видно из этих рисунков, прямая щель в точке D равна 2 эВ (это расчетная величина, экспериментальная должна быть выше и равна 2.5–2.7 эВ). Такая же картина наблюдается для всех остальных точек на границе зоны Бриллюэна. Сильнее всего меняется дно зоны проводимости в центре зоны Бриллюэна, при этом относительное значение максимума валентной зоны в Гамма-точке по сравнению с значениями на границе зоны Бриллюэна практически не сдвигается. В результате можно сделать вывод, что

минимальная расчетная ширина прямой щели равна 1.38 эВ (непрямая – 0.7 эВ) для двойного слоя и 1.78 эВ (1.1 эВ) для одинарного слоя. Для экспериментальных значений следует (как было сказано ранее) ожидать большие значения. Как следует из приведенных данных, эффект конфайнмента (локализации электронной плотности внутри почти моноатомного слоя) приводит к уширению запрещенной зоны. При этом данный эффект наиболее сильно проявляется в сдвиге возбужденных одноэлектронных состояний в центре зоны Бриллюэна. Представляет интерес исследование поведения запрещенной зоны в других почти моноатомных слоях квазионных редкоземельных дихалькогенидов со сходной кристаллической структурой.

5. Выводы. Первопринципными расчетами было установлено, что почти моноатомные тонкие пленки моносulfида европия с пространственной группой $P2_1/c$, получаемые механическим расщеплением в эксперименте, представляют из себя неполярные пленки, расщепленные вдоль кристаллографической плоскости A. Эффект конфайнмента в одинарных и двойных (в качестве единицы размера использован параметр решетки вдоль оси a объемного материала) неполярных пленках приводит к неоднородному уширению запрещенной зоны по объему зоны Бриллюэна, причем непрямой характер зоны (как в объемном материале) сохраняется и в тонких пленках. Для пленок с толщиной 10 монослоев предсказана сингулярность плотности состояний

валентной зоны, вызванная выравниванием энергий в окрестности D и E₀ точек зоны Бриллюэна. При этом на границах зоны Бриллюэна величина запрещенной зоны меняется незначительно. Сильнее всего эффект конфайнмента сказывается на положении дна зоны проводимости в центре зоны Бриллюэна, которая приводит к уширению расчетной не прямой запрещенной зоны с 0.35 эВ в объемном материале до 1.1 эВ в одинарном слое. Полуэмпирические оценки экспериментальной величины запрещенной зоны приводят нас к значениям, которые выше расчетных значений на 0.55–0.7 эВ. Экспериментальные оценки прямого оптического перехода, полученные на толстых пленках EuS₂, показывают, что верхний предел неплохо описывает наблюдаемые значения. Поскольку кристаллическая структура дисульфида европия свойственна многим дихалькогенидам редкоземельных элементов, то наши расчеты ставят вопрос о существовании их тонких пленок с прямой запрещенной зоной.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант 3-22-00444, раздел 4) и программы стратегического академического лидерства “Приоритет-2030” (соглашение # 075-02-2021-1316 от 30.09.2021, экспериментальная часть в разделе 3).

1. A. Splendiani, L. Sun, Y. Zhang, T. Li, J. Kim, C.-Y. Chim, G. Galli, and F. Wang, *Nano Lett.* **10**, 1271 (2010).
2. B. Radisavljevic, A. Radenovic, J. Brivio, V. Giacometti, and A. Kis, *Nat. Nanotechnol.* **6**, 147 (2011).
3. O. Lopez-Sanchez, D. Lembke, M. Kayci, A. Radenovic, and A. Kis, *Nat. Nanotechnol.* **8**, 497 (2013).
4. Л. А. Чернозатонский, А. А. Артюх, *Успехи физических наук* **188**, 3 (2018).
5. М. М. Глазов, Е. Л. Ивченко, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 10 (2021).
6. М. М. Махмудиан, А. В. Чаплик, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 620 (2021).
7. V. S. Krivobok, E. A. Ekimov, M. V. Kondrin, S. N. Nikolaev, M. A. Chernopitssky, A. A. Deeva, D. A. Litvinov, and I. I. Minaev, *Phys. Rev. Materials* **6**, 094605 (2022).
8. K. S. Novoselov, A. Mishchenko, A. Carvalho, and A. H. C. Neto, *Science* **353**, aac9439 (2016).
9. G. V. Samsonov and S. V. Radzikovskaya, *Russ. Chem. Rev.* **30**, 28 (1961).
10. A. Eliseev, V. Tolstova, and G. Kuzmicheva, *Russ. J. Inorg. Chem.* **23**, 3171 (1978).
11. A. Eliseev and O. Sadovskaya, *Inorganic Materials* **13**, 1394 (1977).
12. G. Kuzmicheva, *Russ. J. Inorg. Chem.* **39**, 412 (1994).
13. C. J. Müller, U. Schwarz, and T. Doert, *Zeitschrift für anorganische und allgemeine Chemie* **638**, 2477 (2012).
14. C. Bartsch, E. Ahrens, and T. Doert, *Zeitschrift für anorganische und allgemeine Chemie* **638**, 2491 (2012).
15. C. J. Müller, T. Doert, and U. Schwarz, *Zeitschrift für Kristallographie* **226**, 646 (2011).
16. C. J. Müller, U. Schwarz, P. Schmidt, W. Schnelle, and T. Doert, *Zeitschrift für anorganische und allgemeine Chemie* **636**, 947 (2010).
17. P. Böttcher, T. Doert, H. Arnold, and R. Tamazyan, *Zeitschrift für Kristallographie – Crystalline Materials* **215**, 246 (2000).
18. R. Tamazyan, H. Arnold, V. Molchanov, G. Kuzmicheva, and I. Vasileva, *Zeitschrift für Kristallographie – Crystalline Materials* **215**, 346 (2000).
19. R. Tamazyan, H. Arnold, V. Molchanov, G. Kuzmicheva, and I. Vasileva, *Zeitschrift für Kristallographie – Crystalline Materials* **215**, 272 (2000).
20. Y. Yanagisawa and S. Kume, *Mater. Res. Bull.* **21**, 379 (1986).
21. S. Benazeth, M. Guittard, and J. Flahaut, *J. Solid State Chem.* **37**, 44 (1981).
22. Y. Yanagisawa, F. Kanamaru, and S. Kume, *Acta Crystallographica Section B* **35**, 137 (1979).
23. J. Dugué, D. Carré, and M. Guittard, *Acta Crystallographica Section B* **34**, 403 (1978).
24. S. Smoes, J. Drowart, and J. Welter, *Thermodynamic study of the vaporization of europium sulfide by the mass spectrometric knudsen cell method*, in *Advances in mass spectrometry. Proceedings of the 7th international mass spectrometry conference held at Florence 30 August to 3 September 1976*, Heyden for the Institute of Petroleum, London (1978), p. 622.
25. Y. Yanagisawa and S. Kume, *Mater. Res. Bull.* **8**, 1241 (1973).
26. A. W. Webb and H. T. Hall, *Inorg. Chem.* **9**, 1084 (1970).
27. B. Kolesov and I. Vasilyeva, *Mater. Res. Bull.* **27**, 775 (1992).
28. E. A. Ekimov, S. N. Nikolaev, A. G. Ivanova, V. A. Sidorov, A. A. Shiryaev, I. I. Usmanov, A. L. Vasiliev, V. V. Artemov, M. V. Kondrin, M. A. Chernopitsskiy, and V. S. Krivobok, *CrystEngComm* **25**, 2966 (2023).
29. P. Giannozzi, O. Andreussi, T. Brumme et al. (Collaboration), *J. Phys. Condens. Matter* **29**, 465901 (2017).
30. S. Nikolaev, M. Chernopitssky, V. Bagaev, V. Krivobok, E. Onishchenko, K. Savin, A. Y. Klovov, S. Chentsov, and V. Martovitskiy, *J. Lumin.* **231**, 117812 (2021).
31. В. П. Жуков, Н. И. Медведева, И. Г. Васильева, В. А. Губанов, *Физика твердого тела* **32**(12), 3676 (1990).

Генерация гармоник высокого порядка вблизи низкочастотного края плато при нелинейном распространении фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК диапазона с длиной волны 1.24 мкм в плотной струе аргона

Б. В. Румянцев¹⁾, А. В. Пушкин, Ф. В. Потёмкин

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

Поступила в редакцию 25 июня 2023 г.

После переработки 23 июля 2023 г.

Принята к публикации 24 июля 2023 г.

Реализована генерация гармоник высокого порядка (15–25) в вакуумной ультрафиолетовой области спектра (83–50 нм) при воздействии сфокусированного ($NA = 0.033$) фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК диапазона ($\lambda = 1.24$ мкм) на плотную газовую струю при вакуумной интенсивности $\sim 7.5 \cdot 10^{14}$ Вт/см². Экспериментально показано, что использование такой фокусировки с высокой числовой апертурой требует использования высоких (до 10 бар) давлений для оптимизации фазового согласования. При этом использование плотной газовой струи приводит к заметному проявлению нелинейных эффектов распространения генерирующего излучения, влияющих на процесс генерации путем изменения условий фазового согласования. Кроме того, показано, что пре-чирпирование генерирующего импульса позволяет скомпенсировать чирп, возникающий вследствие фазовой самомодуляции, и увеличить эффективность генерации гармоник вследствие нелинейной компрессии генерирующего импульса. Данный подход позволил сгенерировать излучение 17-й гармоники (73 нм) с энергией в импульсе на уровне 2 пДж и соответствующей эффективностью генерации $5.4 \cdot 10^{-9}$, что, согласно проведенным оценкам, позволяет использовать такое излучение для одноимпульсной безмасочной фотолитографии в экстремальном ультрафиолетовом диапазоне.

DOI: 10.31857/S1234567823160085, EDN: ivaosk

Введение. Генерация гармоник высокого порядка (ГГВП) в поле интенсивного ($10^{14}–10^{15}$ Вт/см²) фемтосекундного лазерного излучения в настоящее время является объектом активных научных исследований в области лазерной физики и нелинейной оптики. В основе процесса ГГВП лежат фундаментальные аспекты взаимодействия лазерного излучения с веществом в режиме плазмообразования, находящиеся на стыке лазерной физики, нелинейной оптики, квантовой теории и атомной физики, что обуславливает фундаментальную значимость данной области физики. Не менее важна и прикладная значимость явления ГГВП: на сегодняшний день источники на основе данного эффекта являются единственным настольным инструментом для получения когерентного излучения в области вакуумного ультрафиолетового [1] и мягкого рентгеновского диапазонов [2] и генерации аттосекундных (10^{-18} с) импульсов [3].

Основным способом управления временной формой, состоянием поляризации и эффективно-

стью ГГВП является изменение временной формы поля генерирующего импульса, что, в частности, осуществляется путем двухцветного лазерного воздействия. Так, добавление второй гармоники к основному импульсу позволяет нарушить симметрию воздействующего лазерного поля и приводит к генерации четных гармоник наравне с нечетными [4]. Кроме того, использование двухцветных полей с различными состояниями поляризации позволяет генерировать эллиптически поляризованное излучение гармоник [5]. Отдельный интерес представляет добавление к основному генерирующему излучению мощного ТГц-импульса в качестве сильного квазипостоянного поля [6]. Так, в рамках теоретических работ показано, что это позволяет расширить спектр генерируемых гармоник [7] с одновременной генерацией гармоник четного порядка за счет нарушения симметрии взаимодействия ТГц-полем [8], что также было продемонстрировано экспериментально [9].

Наиболее распространенными источниками генерирующего излучения на сегодняшний день являют-

¹⁾e-mail: rumjancev.bv15@physics.msu.ru

ся лазерные системы на кристалле Ti:Sapphire (длина волны ~ 0.8 мкм), а также на кристаллах, легированных ионами Yb (длина волны ~ 1 мкм) [10], что обусловлено широкой коммерческой доступностью таких систем и возможностью работы в режиме высокой (до уровня МГц [11]) частоты повторения, которая позволяет скомпенсировать малую пиковую мощность генерируемого излучения гармоник за счет повышения его средней мощности. Для перехода в более длинноволновый диапазон, что необходимо для расширения спектра гармоник [12], обычно применяют нелинейно-оптические схемы, основанные на параметрическом преобразовании частоты источника излучения в ближнем инфракрасном (ИК) диапазоне [13]. Такие схемы отличаются необходимостью тонкой юстировки для подбора нужной длины волны, а также дополнительным уменьшением результирующей эффективности генерации излучения гармоник за счет наличия дополнительного каскада нелинейно-оптического преобразования длины волны генерирующего излучения.

Альтернативным подходом к повышению длины волны генерирующего излучения является использование лазерных систем, напрямую генерирующих длинноволновое излучение ближнего и среднего ИК диапазонов. К числу таких источников можно отнести лазерные системы на кристалле Cr:Forsterite (длина волны 1.24 мкм) и Fe:ZnSe (длина волны 4.5 мкм) [14], которые к настоящему моменту уже использовались для генерации гармоник низкого порядка [15–18] и являются перспективными источниками для получения более коротковолнового излучения в рамках процесса ГГВП. В связи с этим в рамках данной работы впервые реализована генерация гармоник высокого порядка излучением лазерной системы на кристалле Cr:Forsterite.

ГГВП с использованием длинноволнового излучения приводит к необходимости тщательной оптимизации процесса генерации, поскольку отклик одиночного атома на приложенное лазерное поле в рамках процесса ГГВП падает с ростом длины волны как λ^{-x} , где $x = 5-6$ [12]. Одним из способов компенсации данного эффекта выступает увеличение плотности газовой среды, что позволяет повысить количество атомов среды, участвующих во взаимодействии. При этом повышение плотности газовой среды приводит к увеличению влияния нелинейных эффектов распространения генерирующего излучения. Поэтому экспериментальная реализация ГГВП с использованием длинноволнового излучения требует исследования влияния нелинейных эффектов распространения на процесс генерации.

Влияние нелинейных эффектов на процесс ГГВП рассматривалось в рамках как теоретических, так и экспериментальных работ. Так, в работе [19] приведена численная $3D + 1$ модель ГГВП с учетом распространения генерирующего излучения и гармоник в условиях влияния керровской нелинейности и генерации плазмы. Приведенная модель, микроскопический отклик в которой рассчитывается на основе QRS (*quantitative rescattering*) подхода, корректно описывает экспериментальные спектры гармоник, а также позволяет восстановить спектр, соответствующий микроскопическому отклику атомарной или молекулярной среды. Схожая модель представлена в работе [20], где для расчета микроскопического отклика используется подход на основе теории функционала плотности. В теоретико-экспериментальной работе [21] показано, что генерация гармоник в режиме самоканалирования и соответствующего ограничения интенсивности генерирующего лазерного излучения на длине волны 1.8 мкм, приводя к ограничению частоты отсечки, в то же время позволяет повысить эффективность генерации за счет увеличения длины эффективной области взаимодействия и сформировать коллимированный пучок излучения гармоник в диапазоне 50–550 эВ. В работе [22] зарегистрировано изменение спектра генерирующего излучения ближнего ИК диапазона в результате распространения на относительно длинной (30 см) трассе при генерации гармоник.

В отличие от перечисленных работ, в рамках данной статьи акцент сделан на экспериментальном исследовании влияния нелинейных эффектов распространения на процесс фазового согласования при генерации гармоник высокого порядка в плотной газовой струе, а также возможности использования данных эффектов для повышения эффективности генерации.

Экспериментальная установка. Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. В качестве генерирующего лазерного излучения использовалось излучение фемтосекундной лазерной системы на кристалле Cr:Forsterite (длина волны 1.24 мкм, длительность импульса 110 фс (FWHM), энергия до 3.5 мДж, частота следования импульсов 10 Гц). Для изменения энергии генерирующего излучения использовалась полуволновая пластинка в совокупности с поляризатором, которые были установлены до компрессора лазерной системы. Излучение, проходя через тонкое окно из SiO₂, попадало в камеру регистрации, где оно фокусировалось линзой с фокусным расстоянием 100 мм в режиме фокусировки с $NA = 0.033$ в импульсную струю аргона,

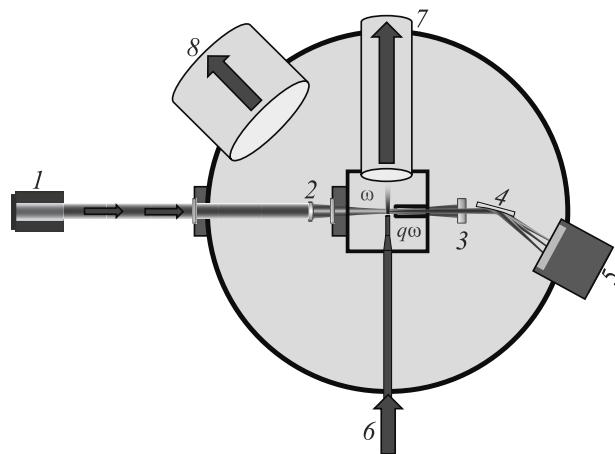


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема экспериментальной установки. Цифрами обозначены: 1 – Лазерная система на кристалле Cr:Forsterite (центральная длина волны 1.24 мкм, длительность импульса 110 фс (FWHM), энергия импульса до 3.5 мДж, частота следования импульсов 10 Гц). 2 – Линза с фокусным расстоянием 100 мм. 3 – Al-фильтр. 4 – Вогнутая дифракционная решетка 300 штрихов/мм. 5 – Камера для регистрации излучения гармоник. 6 – Подача аргона. 7 – Откачка подаваемого газа из камеры генерации. 8 – Откачка подаваемого газа из камеры регистрации

расположенную в камере генерации. Использование подобной фокусировки с относительно высокой числовой апертурой обеспечило примерное совпадение длины среды генерации ($L \approx 500$ мкм) с конфокальным параметром ($2z_R \approx 700$ мкм) генерирующего излучения, что позволило оптимизировать эффективность генерации [16], но, в то же время, обеспечило ненулевой вклад геометрической фазы в рамках фазового согласования. Достижимая вакуумная интенсивность в перетяжке составляла $\sim 7.5 \cdot 10^{14}$ Вт/см² при максимальной используемой энергии генерирующего импульса 400 мкДж. После камеры генерации был установлен Al-фильтр, блокирующий генерирующее излучение и пропускающий излучение гармоник в диапазоне энергий фотонов ~ 15 –70 эВ. Пршедшее излучение гармоник попадало на вогнутую дифракционную решетку. Для регистрации дифрагировавшего излучения гармоник использовалась камера Dhyana XF95. Разрешающая способность данной системы с учетом линейной дисперсии в фокусе решетки и размера пикселя камеры выше, чем $\lambda/\delta\lambda = 2000$. Калибровка длины волны генерируемого излучения гармоник осуществлялась по спектру пропускания Al-фильтра, калибровка энергии регистрируемого излучения проводилась в соответствии с квантовой эффективностью камеры и спектром пропускания фильтра.

Результаты и обсуждение. С использованием приведенной экспериментальной установки были сгенерированы и зарегистрированы 15-я (83 нм), 17-я (73 нм), 19-я (65 нм), 21-я (59 нм), 23-я (54 нм) и 25-я (50 нм) гармоники (рис. 2с). Зависимости спектра гармоник от давления, подаваемого на газовую струю, и энергии генерирующего импульса представлены на рис. 2а, b.

Как свидетельствует рис. 2а, b, спектр генерируемого излучения существенным образом зависит от давления, подаваемого на газовую струю, и энергии генерирующего импульса. Максимальный энергетический выход гармоник был достигнут при давлении 5.5 бар и энергии импульса 400 мкДж. Спектр зарегистрированного излучения при данных параметрах представлен на рис. 2с. Номер гармоник совпадает с энергией фотонов в единицах эВ, поскольку длина волны генерирующего излучения (1.24 мкм) соответствует энергии фотона 1 эВ.

Синяя кривая на рис. 2с демонстрирует спектр, зарегистрированный при таком расстоянии между решеткой и плоскостью регистрации, при котором в фокусе находится одна из крайних гармоник – 17-я. При этом в зарегистрированном спектре разрешены 15-я, 17-я, 19-я и 21-я гармоники. С увеличением номера гармоники спектральные компоненты сливаются вследствие уменьшения разрешающей способности системы регистрации и, как видно для 23-й и 25-й гармоник, могут полностью перекрываться, давая в спектре интерференционный паттерн. Уменьшение разрешающей способности системы регистрации при увеличении номера гармоники объясняется особенностями схемы регистрации, связанными с регистрацией плоской матрицей дифрагировавшего излучения гармоник, фокусирующегося на окружности Роуланда (см. вставку на рис. 2d), что является следствием уменьшения эффективной линейной дисперсии решетки вне фокальной плоскости.

При увеличении расстояния между решеткой и плоскостью регистрации (рис. 2е) фокус смещается в сторону гармоник более высокого порядка, что, как свидетельствует красная кривая на рис. 2с, позволяет повысить спектральное разрешение для 23-й и 25-й гармоник, однако при этом ухудшается разрешение для 15-й и 17-й гармоник. Дополнительно к этому, учет отличия формы плоскости регистрации от поверхности фокусировки решетки, координата вдоль которой приближенно может быть описана как $y(x) = y_0 + a \cdot x^2$, где x – координата вдоль плоскости регистрации, позволил линейаризовать шкалу энергий фотонов и получить эквидистантное распределение гармоник.

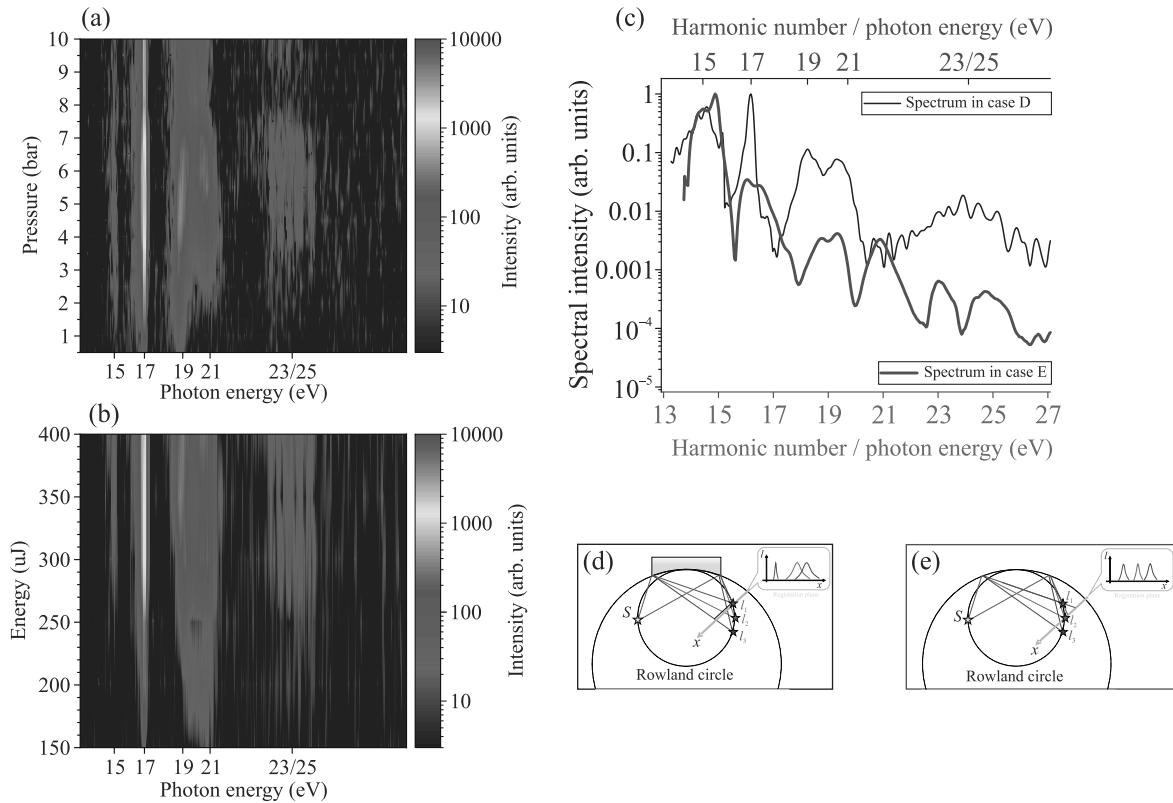


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость зарегистрированного спектра гармоник от давления аргона при энергии генерирующего импульса 400 мкДж. (б) – Зависимость зарегистрированного спектра гармоник от энергии генерирующего импульса при давлении 5.5 бар. (с) – Спектр гармоник, зарегистрированный при энергии генерирующего импульса 400 мкДж и давлении 5.5 бар при двух расстояниях между решеткой и плоскостью регистрации, соответствующие схемы изображены на вставках (d) и (e). Вставки (d) и (e) демонстрируют схему регистрации дифрагировавшего излучения гармоник при использовании вогнутой дифракционной решетки совместно с плоской регистрирующей матрицей камеры. S – точечный источник, в качестве которого в эксперименте выступает перетяжка генерирующего излучения на газовой мишени, $I_{1,2,3}$ – точка фокуса гармоник 1, 2, 3 соответственно. Регистрация плоской матрицей излучения, фокусирующегося на окружности Роуленда, при таком расстоянии между решеткой и плоскостью регистрации, когда в фокусе оказывается одна из крайних гармоник (вставка (d)), приводит к наложению спектральных компонент, фокус которых расположен не на плоскости регистрации. Увеличение расстояния между решеткой и плоскостью регистрации позволяет избежать наложения спектральных компонент за счет смещения фокуса в сторону больших энергий фотонов (вставка (e))

Отсутствие в спектре гармоник более высокого порядка (вплоть до ~ 350 эВ при достигаемой вакуумной интенсивности $\sim 7.5 \cdot 10^{14}$ Вт/см²) может объясняться двумя факторами. Первый фактор заключается в том, что гармоники более высоких порядков попадают на матрицу в условиях расходящегося волнового фронта после фокуса, вследствие чего интенсивность этих гармоник находится вне динамического диапазона регистрации. Второй фактор заключается в использовании сравнительно длинного импульса (110 фс, 27 циклов поля) для генерации, что может нарушать условия фазового согласования для гармоник более высокого порядка за счет формирования плазмы передним фронтом импульса.

Как свидетельствует рис. 2с, 17-я гармоника имеет наименьшую спектральную ширину среди зарегистрированных гармоник, из чего следует, что при регистрации ее фокус находился ближе остальных к плоскости регистрации, в связи с чем дальнейшие экспериментальные зависимости будут приведены для этой гармоники.

Одним из основных параметров, влияющих на макроскопический отклик среды при генерации гармоник, является плотность атомов газовой струи, которая определяется давлением газа, подаваемым на мишень. Влияние давления p на эффективность генерации q -й гармоники описывается следующим выражением [23]:

$$I_q \propto |p \cdot F_q(p)|^2, \quad (1)$$

где

$$F_q(p) = \int_{-L/2}^{L/2} \frac{e^{i(\Delta k(p)z' - (q-1) \cdot \text{atan}(z'/z_R))}}{(1 + (z'/z_R)^2)^{\frac{q-1}{2}}} dz' \quad (2)$$

– интеграл фазового согласования, L – длина среды, z_R – длина Рэлея (дифракционная длина), $\Delta k(p) = qk_1(p) - k_q(p)$ – скалярная расстройка волновых векторов q -й гармоники и поляризации q -го порядка. Как свидетельствует выражение (2), максимизация энергии q -й гармоники происходит при равенстве показателя комплексной экспоненты нулю, что достигается при условии:

$$\Delta k(p)z' - (q-1) \cdot \text{atan}(z'/z_R) = 0, \quad (3)$$

которое является условием фазового согласования при генерации гармоник сфокусированным гауссовым пучком. Первое слагаемое отвечает за фазовую расстройку между q -й гармоникой и волной поляризации q -го порядка, возникающую за счет материальной дисперсии среды и дисперсии плазмы, наводимой генерирующим импульсом, второе слагаемое в выражении (3) является геометрической фазой. Стоит отметить, что выполнение данного условия сразу для всех точек $z \in [-L/2; L/2]$ возможно только при условии $L \ll 2z_R$. В ином случае условие (3) неосуществимо сразу для всех точек среды, поэтому имеет смысл говорить о выполнении данного условия в среднем по длине среды L .

Подчеркнем, что описание процесса генерации гармоник на основе выражений (1)–(3) включает в себя только описание фазового согласования и не содержит описания отклика одиночного атома на воздействие сильного светового поля, а также описания нелинейных эффектов распространения. Более точное моделирование, включающее в себя описание указанных эффектов, проводилось в рамках работы [24], где проводились самосогласованные численные расчеты распространения импульса с центральной длиной волны ближнего ИК диапазона (810 нм) и длительностью 15–40 фс в аргоне и неоне с учетом отклика одиночного атома, полученного путем трехмерного моделирования нестационарного уравнения Шредингера (3D TDSE). При этом учитывалось изменение формы импульса в частично ионизированной газовой среде, влияние давления газа и вида атома.

Поскольку в диапазоне давления, на масштабах которого сохраняется агрегатное состояние среды, зависимости показателя преломления и концентрации атомов среды от давления линейны, то расстройка волновых векторов может быть записана как:

$$\Delta k(p) = p \cdot \Delta k_{1\text{bar}} = p \cdot (\Delta k_{1\text{bar}}^{\text{mat}} - \Delta k_{1\text{bar}}^{\text{plasma}}), \quad (4)$$

где $\Delta k_{1\text{bar}}$ – нормированная на давление расстройка волновых векторов при давлении 1 бар, $\Delta k_{1\text{bar}}^{\text{mat}}$ – соответствующий вклад материальной дисперсии, $\Delta k_{1\text{bar}}^{\text{plasma}}$ – вклад наводимой плазмы. Эффективная генерация гармоник происходит при выполнении условия (3), которое возможно только в том случае, если $\Delta k_{1\text{bar}} = \Delta k_{1\text{bar}}^{\text{mat}} - \Delta k_{1\text{bar}}^{\text{plasma}} > 0$. Выполнение данного условия возможно только в случае, когда частоты генерирующего излучения и его гармоники лежат по разные стороны от электронного резонанса среды генерации, что свойственно для гармоник высокого порядка, в отличие от гармоник низкого порядка. Как свидетельствует выражение (3), существует оптимальное значение давления p_{max} , при котором значение интеграла (2) и, как следствие, величина интенсивности q -й гармоники будут максимальными:

$$p_{\text{max}} = \frac{(q-1) \cdot \text{atan}(z'/z_R)}{\Delta k_{1\text{bar}} z'}. \quad (5)$$

Рост степени ионизации среды за счет повышения интенсивности генерирующего импульса будет приводить к сокращению разницы между $\Delta k_{1\text{bar}}^{\text{mat}}$ и $\Delta k_{1\text{bar}}^{\text{plasma}}$, уменьшению величины $\Delta k_{1\text{bar}}$ и соответствующему повышению оптимального давления p_{max} [24]. Важно отметить, что в случае генерации гармоник низкого порядка наблюдается ровно обратная ситуация [18], что связано с нахождением частот гармоники и основного излучения по одну сторону от электронного резонанса среды.

В области малых давлений, при которых влияние интеграла фазового синхронизма (2) мало, рост энергии гармоник с повышением давления происходит как $I_q \propto p^2$ (см. (1)). Дальнейшее увеличение давления приводит к увеличению влияния интеграла фазового синхронизма за счет увеличения вклада материальной дисперсии среды и дисперсии наводимой лазерным импульсом плазмы $\Delta k(p)$, что проявляется в отклонении от закона $I_q \propto p^2$. Последующее повышение давления приводит к компенсации геометрической фазы, соответствующему достижению условия фазового согласования (3) и максимизации энергетического выхода гармоники при оптимальном значении давления (5). Дальнейшее повышение давления приводит к нарушению условия фазового согласования (3), что приводит к уменьшению эффективности генерации гармоники. При этом в зависимости $I_q(p)$ наблюдаются осцилляции с периодом, соответствующим достижению фазы комплексной экспоненты в (2) значения $2\pi/L$. Описанное поведение наблюдалось в текущем эксперименте для

гармоник высокого порядка при относительно малых (150–250 мкДж) энергиях генерирующего импульса (рис. 3). При этом, как свидетельствуют графики на

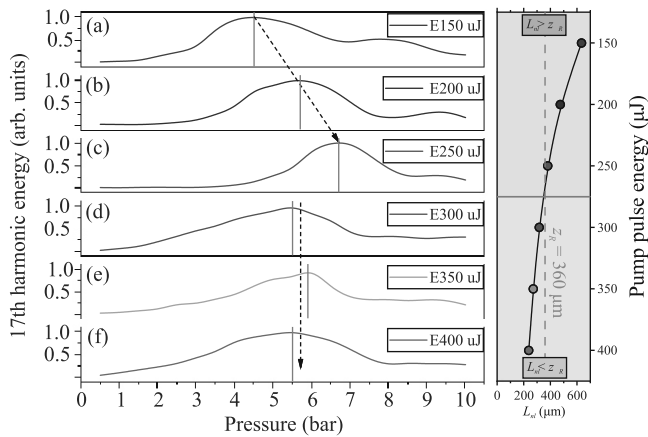


Рис. 3. (Цветной онлайн) Экспериментальная зависимость энергии 17-й гармоники от давления, подаваемого на газовую струю аргона, для энергий генерирующего импульса 150–400 мкДж (а)–(ф). Вставка справа – рассчитанная по экспериментальным данным зависимость величины нелинейной длины от энергии генерирующего импульса. Видно, что при уменьшении нелинейной длины до значений, меньших, чем длина дифракции z_R , сдвиг оптимального давления в область больших значений прекращается и фиксируется в районе 5.5–6 бар

рис. 3, повышение энергии генерирующего импульса выше 300 мкДж приводит к отклонению от закона $I_q \sim p^2$ в области малых давлений, наблюдаемого при меньших энергиях. Схожий эффект наблюдался и для гармоник низкого порядка [15], в связи с чем указанное отклонение может также объясняться возрастающей ролью нелинейных эффектов распространения при повышении энергии генерирующего импульса. Кроме того, как свидетельствует рис. 3, повышение энергии генерирующего импульса приводит в соответствии с (5) к смещению оптимального давления $p_{\max}$ в сторону больших значений лишь в области энергий вплоть до 300 мкДж. Дальнейшее повышение энергии не приводит к увеличению значения оптимального давления, оставляя его равным на уровне 5.5–6 бар, что может объясняться ограничением достигаемой интенсивности за счет, опять же, нелинейных эффектов распространения, таких как фазовая самомодуляция (ФСМ), самофокусировка и генерация плазмы, совместное действие которых может приводить к квазифиламентационному характеру распространения генерирующего импульса в области мишени и соответствующему огра-

ничению интенсивности [25] и уменьшению геометрической фазы в (3). Косвенным фактором, свидетельствующим о реализации подобного режима распространения, является тот факт, что при переходе от энергии 250 к 300 мкДж нелинейная длина (переход от $L_{nl} = 380$ мкм к $L_{nl} = 320$ мкм) становится меньше, чем дифракционная длина ($z_R = 360$ мкм) (рис. 3).

Кроме того, при использовании большей энергии лазерного излучения (300–400 мкДж) осцилляции экспериментальной зависимости $I_q(p)$ исчезают в заданном диапазоне давлений. Данное поведение может объясняться существенным увеличением периода осцилляций в области высоких (больше 5.5–6 бар) давлений, которое может происходить из-за уменьшения разницы между вкладом материальной $\Delta k_{1\text{bar}}^{\text{mat}}$ и плазменной $\Delta k_{1\text{bar}}^{\text{plasma}}$ дисперсий в (4) вследствие повышения степени ионизации на фоне роста эффективности лавинной ионизации.

Аппроксимация зависимостей энергии 17-й гармоники от давления (рис. 3) в соответствии с формулами (1)–(4) позволила определить среднюю по длине области генерации степень ионизации и соответствующую концентрацию электронов генерируемой плазмы (рис. 4). Как свидетельствует гра-

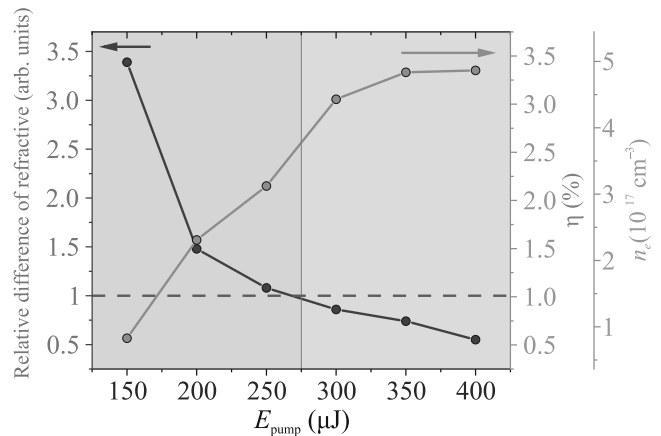


Рис. 4. (Цветной онлайн) Рассчитанная по экспериментальным данным зависимость относительной разницы эффективных добавок к показателю преломления вследствие керровской самофокусировки, плазменной дефокусировки и дифракции при давлении 6 бар от энергии генерирующего импульса (фиолетовая кривая). Рассчитанная по экспериментальным данным зависимость степени ионизации среды и концентрации электронов плазмы при давлении 6 бар от энергии генерирующего импульса (оранжевая кривая)

фик на рис. 4 увеличение энергии генерирующего импульса приводит к повышению степени иониза-

ции среды, причем в области больших энергий (300–400 мкДж) наблюдается насыщение роста степени ионизации, что может объясняться, опять же, насыщением интенсивности при квазифиламентационном распространении излучения в области мишени. Расчет баланса эффективных добавок к показателю преломления дополнительно подтверждает такую возможность. Так, в соответствии с работой [26], баланс между керровской самофокусировкой, плазменной дефокусировкой и дифракцией, являющийся необходимым условием филаментационного режима распространения, соблюдается при выполнении условия:

$$\Delta(\delta n) = n_2 I - \frac{n_e}{2n_{cr}} - \frac{(1.22\lambda)^2}{8n\pi w_0^2} = 0, \quad (6)$$

где каждое из слагаемых представляет собой эффективную добавку к показателю преломления, обусловленную керровской самофокусировкой, плазменной дефокусировкой и дифракцией соответственно, n_2 – нелинейный показатель преломления, I – интенсивность излучения, n_e – концентрация электронов плазмы, n_{cr} – критическая концентрация электронов плазмы, λ – длина волны излучения, n – линейный показатель преломления, w_0 – радиус пучка в перетяжке. Поскольку в эксперименте достичь точного выполнения условия (6) не представляется возможным, то для количественной характеристики условия баланса (6) на основе экспериментальных данных можно использовать относительную разницу между добавками, определяемую как:

$$\Delta(\delta n)_{rel} = \frac{\Delta(\delta n)}{\min(\delta n_{kerr}, \delta n_{plasma}, \delta n_{dif})}, \quad (7)$$

где $\min(\cdot)$ – операция взятия минимального значения. Значения данной относительной разницы добавок, меньшие единицы, свидетельствуют о фактическом выполнении условия баланса (6). На основе экспериментально полученного значения концентрации электронов плазмы была построена зависимость относительной разности добавок к показателю преломления от энергии генерирующего импульса (рис. 4). Как свидетельствует данная зависимость, при переходе от энергии 250 мкДж к энергии 300 мкДж значение относительной разницы добавок становится меньше единицы, что говорит о выполнении условия баланса вкладов (6) и возможности квазифиламентационного режима распространения. При этом стоит отметить, что насыщение степени ионизации среды так же начинается в окрестности энергии 300 мкДж (рис. 4), что может дополнительно свидетельствовать о насыщении интенсивности в рамках подобного режима распространения.

Таким образом, полученные из экспериментальных зависимостей энергии 17-й гармоники от давления (рис. 3) величины концентрации электронов плазмы в совокупности с экспериментальными параметрами излучения, среды и фокусировки подтверждают возможность осуществления квазифиламентационного режима распространения генерирующего излучения, реализация которого может объяснять отклонение экспериментальных зависимостей в области больших (300–400 мкДж) энергий от теоретических.

Существенное влияние нелинейных эффектов распространения на процесс генерации гармоник в рамках данной работы обусловлено использованием плотной газовой струи в качестве мишени. Подаваемое на струю высокое давление вплоть до десяти бар необходимо для компенсации вклада геометрической фазы в условии фазового согласования (3) при использовании фокусировки с относительно высокой ($NA = 0.033$) числовой апертурой [27]. Еще одним индикатором проявления нелинейных эффектов распространения служит зарегистрированный эффект увеличения спектральной ширины гармоник при повышении давления (рис. 5), что ранее

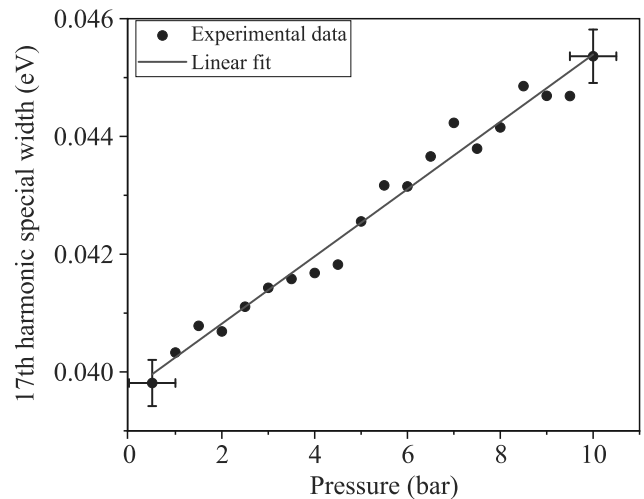


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимость спектральной ширины 17-й гармоники от давления, подаваемого на газовую струю, при энергии генерирующего импульса 400 мкДж

также наблюдалось в экспериментах по генерации гармоник низкого порядка [15]. Как свидетельствует график на рис. 5, увеличение давления приводит к линейному увеличению спектральной ширины 17-й гармоники, что может быть обусловлено процессом фазовой модуляции за счет эффекта Керра [23]. Важно отметить, что в общем случае уширение спектральной ширины гармоники может возникать

вследствие ФСМ генерирующего излучения, вследствие прямой ФСМ излучения гармоник, а также вследствие кросс-модуляции излучения гармоник за счет генерирующего импульса. Однако, ввиду сильной зависимости проявления эффекта ФСМ от длины волны и интенсивности излучения [28] наиболее вероятным механизмом наблюдаемого уширения гармоник является именно ФСМ генерирующего излучения.

Проявление эффекта ФСМ, помимо повышения спектральной ширины гармоник, также приводит к формированию положительного чирпа в их фазовых спектрах, а также в фазовом спектре генерирующего импульса [28]. Путем отрицательного чирпирования генерирующего импульса появляется возможность компенсировать возникающий за счет ФСМ положительный чирп, что позволяет повысить пиковую интенсивность генерирующего импульса за счет сокращения его длительности в процессе ФСМ и, таким образом, повысить эффективность генерации. Данный эффект наблюдался в рамках проведенного исследования (рис. 6). Как свидетельствует график на

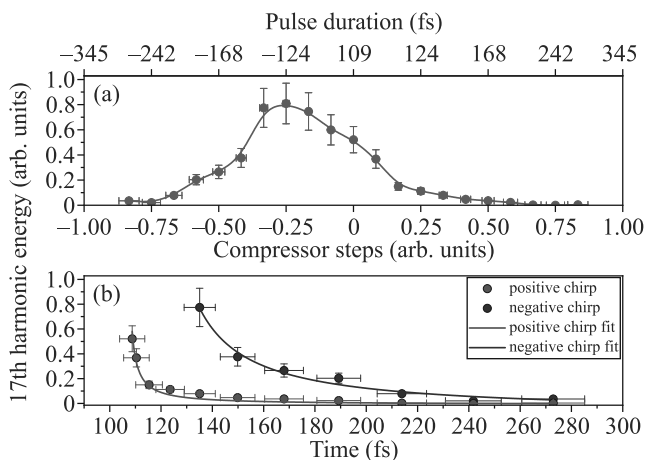


Рис. 6. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость энергии 17-й гармоники от длительности, изменяемой за счет чирпирования генерирующего лазерного импульса. Отрицательные значения длительности соответствуют отрицательному чирпу. (б) – Аппроксимация зависимости энергии 17-й гармоники от длительности лазерного импульса при положительном (красная линия) и отрицательном (синяя линия) чирпах. Параметры аппроксимации приведены в табл. 1

рис. 6а, максимальная эффективность генерации достигается при внесении отрицательного чирпа в генерирующий импульс. При этом, как свидетельствует график на рис. 6б и табл. 1, наблюдается асимметрия приведенной зависимости энергии гармоник от чирпа относительно оптимального значения (–124 фс).

Так, в области положительного чирпа наблюдается медленная гиперболическая зависимость. При этом в области отрицательного чирпа наблюдается более быстрая гиперболическая зависимость, что говорит о более быстром изменении длительности генерирующего импульса при изменении чирпа в этой области за счет дополнительного влияния нелинейной компрессии вследствие ФСМ.

Таблица 1. Параметры аппроксимации зависимостей на рис. 6б

Модель	$c + \frac{a}{x+b}$	
График	Положительный чирп	Отрицательный чирп
a	5.83 ± 1.22	61.25 ± 17.43
R^2	0.98	0.99

Максимальная достигнутая энергия и соответствующая эффективность преобразования для разрешенных в спектре гармоник составили 3.6 пДж и $9.7 \cdot 10^{-9}$ для 15-й гармоники, а также 2 пДж и $5.4 \cdot 10^{-9}$ для 17-й гармоники. Расчет энергии гармоник осуществлялся на основе формулы:

$$E = \sum_{i,j} \frac{I(x_i, y_j) - I_0}{QE(\lambda) \cdot C} \cdot \frac{\Delta t_{\text{int}}}{\Delta t_{\text{rep.rate}}}, \quad (8)$$

где $I(x_i, y_j)$ – интенсивность пикселя с координатой (x_i, y_j) , I_0 – среднее по пикселям значение темнового шума камеры, $QE(\lambda)$ – квантовая эффективность матрицы на длине волны λ , C – коэффициент пересчета интенсивности пикселя в количество фотоэлектронов, Δt_{int} – время экспозиции, $\Delta t_{\text{rep.rate}}$ – период следования лазерных импульсов, суммирование ведется по всем пикселям матрицы в окрестности сигнала гармоник. Фокусировка излучения 17-й гармоники с энергией 2 пДж в пятно дифракционно-ограниченного радиуса (73 нм) с помощью уже доступной в экстремальном ультрафиолетовом (ЭУФ) диапазоне оптики с $NA = 0.33$ [29] позволит добиться плотности энергии 24 мДж/см² за один импульс, что сравнимо с дозой (10–30 мДж/см²), используемой для облучения фоторезиста в современных ЭУФ-системах фотолитографии, использующих пространственно некогерентное излучение, генерируемое в результате абляции металлической мишени, которое проецируется через маску на облучаемый объект для формирования паттерна засветки на поверхности фоторезиста [30]. В связи с этим сгенерированное излучение 17-й гармоники открывает возможности для безмасочной фотолитографии в ЭУФ-диапазоне, в рамках которой паттерн засветки на фоторезисте проецируется поточечно, причем необходимая доза для засветки фоторезиста набирается

за один импульс. Такой подход позволяет отказаться от использования набора технологически сложных масок, которые также поглощают часть энергии используемого для экспонирования излучения, что понижает энергоэффективность работы фотолитографической установки. Кроме того, генерация излучения в газовой струе является более выгодным решением по сравнению с генерацией в результате абляции металлической мишени вследствие отсутствия загрязнения оптики продуктами абляции мишени [31].

Заключение. В рамках проведенного исследования осуществлена генерация гармоник высокого порядка (15–25, 83–50 нм) при воздействии фемтосекундного излучения на длине волны 1.24 мкм лазерной системы на кристалле Cr:Forsterite на плотную газовую струю аргона при фокусировке с относительно высокой числовой апертурой $NA = 0.033$. Показано, что использование такой фокусировки требует применения высокого (до 10 бар) давления, подаваемого на газовую струю, что диктуется необходимостью уравнивания геометрической фазы для оптимизации фазового согласования и соответствующей максимизации эффективности генерации. Показано, что соответствующая высокая плотность газовой струи приводит к заметному проявлению нелинейных эффектов распространения генерирующего излучения, таких как фазовая самомодуляция, самофокусировка и генерация плазмы с концентрацией на уровне $\sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$, которые в совокупности приводят к квазифиламентационному режиму распространения генерирующего излучения в области мишени и ограничению его интенсивности, что проявляется, в частности, в насыщении роста оптимального давления с ростом энергии генерирующего импульса, а также в увеличении спектральной ширины генерируемых гармоник. Установлено, что компенсация чирпа генерирующего импульса, возникающего вследствие фазовой самомодуляции, за счет отрицательного пре-чирпирования позволяет увеличить эффективность генерации гармоник за счет нелинейной компрессии генерирующего импульса в процессе фазовой самомодуляции. Использование данного подхода в рамках проведенного исследования позволило сгенерировать излучение 17-й гармоники (73 нм) с энергией в импульсе на уровне 2 пДж и соответствующей эффективностью генерации $5.4 \cdot 10^{-9}$, что, как показывают оценки, позволяет использовать такое излучение для одноимпульсной безмасочной фотолитографии в ЭУФ-диапазоне.

Работа в части исследования условий фазового согласования и влияния чирпа поддержана грантом

Российского фонда фундаментальных исследований # 19-29-12030. Исследования в части генерации излучения гармоник и оценки применимости к задачам фотолитографии поддержаны грантом Российского научного фонда # 20-19-00148. Работа выполнена с использованием оборудования, приобретенного за счет средств Программы развития Московского университета и Национального проекта “Наука и университеты”. Румянцев Б.В. является стипендиатом фонда развития теоретической физики и математики “БАЗИС”.

1. E. Appi, C.C. Papadopolou, J.L. Mapa et al. (Collaboration), *Sci. Rep.* **10**(1), 6867 (2020).
2. J. Pupeikis, P.-A. Chevreuil, N. Bigler, L. Gallmann, C.R. Phillips, and U. Keller, *Optica* **7**(2), 168 (2020).
3. M.Y. Ryabikin, M.Y. Emelin, and V.V. Strelkov, *Uspekhi Fizicheskikh Nauk* **193**(4), 382 (2023).
4. A. Andreev, S.Y. Stremoukhov, and O. Shoutova, *Laser Phys.* **30**(10), 105402 (2020).
5. B. Mahieu, S. Stremoukhov, D. Gauthier, C. Spezzani, C. Alves, B. Vodungbo, P. Zeitoun, V. Malka, G. De Ninno, and G. Lambert, *Phys. Rev. A* **97**(4), 043857 (2018).
6. Б.В. Румянцев, А.В. Пушкин, Д.З. Сулейманова, Н.А. Жидовцев, Ф.В. Потемкин, **117**(8), 571 (2023).
7. J. Zhang, X.-F. Pan, C.-L. Xia, H. Du, T.-T. Xu, and J. Guo, *Laser Phys. Lett.* **13**(7), 075302 (2016).
8. I. Babushkin, A. Demircan, U. Morgner, and A. Savel'ev, *Phys. Rev. A* **106**(1), 013115 (2022).
9. S. Li, Y. Tang, L. Ortmann, B.K. Talbert, C.I. Blaga, Y.H. Lai, Z. Wang, Y. Cheng, F. Yang, A.S. Landsman, P. Agostini, L.F. DiMauro, *Nat. Commun.* **14**(1), 2603 (2023).
10. C. Heyl, C. Arnold, A. Couairon, and A. L'Huillier, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **50**(1), 013001 (2016).
11. M. Gaponenko, F. Labaye, V.J. Wittwer, C. Paradis, N. Modsching, L. Merceron, A. Diebold, F. Emaury, I.J. Graumann, C.R. Phillips, C.J. Saraceno, C. Kränkel, U. Keller, and T. Südmeyer, *Nonlinear Optics*. Optica Publishing Group, Waikoloa, Hawaii (2017), NTh3A-1.
12. V.V. Strelkov, V.T. Platonenko, A.F. Sterzhantov, and M.Y. Ryabikin, *Phys.-Uspekhi* **59**(5), 425 (2016).
13. T. Popmintchev, M.-C. Chen, D. Popmintchev et al. (Collaboration), *Science* **336**(6086), 1287 (2012).
14. E. Migal, A. Pushkin, B. Bravy, V. Gordienko, N. Minaev, A. Sirotkin, and F. Potemkin, *Opt. Lett.* **44**(10), 2550 (2019).
15. Б.В. Румянцев, К.Е. Михеев, А.В. Пушкин, Е.А. Мигаль, С.Ю. Стремouxов, Ф.В. Потемкин, *Письма в ЖЭТФ* **115**(7), 431 (2022).

16. Б.В. Румянцев, А.В. Пушкин, К.Е. Михеев, Ф.В. Потемкин, Письма в ЖЭТФ **116**(10), 659 (2022).
17. E. Migal, S.Y. Stremoukhov, and F. Potemkin, Phys. Rev. A **101**(2), 021401 (2020).
18. E. Migal, F. Potemkin, and V. Gordienko, Laser Phys. Lett. **16**(4), 045401 (2019).
19. C. Jin, A.-T. Le, and C. Lin, Phys. Rev. A **83**(2), 023411 (2011).
20. P.-C. Li and S.-I. Chu, Phys. Rev. A **88**(5), 053415 (2013).
21. V. Cardin, B. Schmidt, N. Thiré, S. Beaulieu, V. Wanie, M. Negro, C. Vozzi, V. Tosa, and F. Légaré, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **51**(17), 174004 (2018).
22. B. Major, M. Kretschmar, O. Ghafur, A. Hoffmann, K. Kovacs, K. Varjú, B. Senfftleben, J. Tümmeler, I. Will, T. Nagy, D. Rupp, M.J.J. Vrakking, V. Tosa, and B. Schütte, Journal of Physics: Photonics **2**(3), 034002 (2020).
23. R.W. Boyd, *Nonlinear optics*, Academic press, N.Y. (2020).
24. R. Weissenbilder, S. Carlström, L. Rego, C. Guo, C. Heyl, P. Smorenburg, E. Constant, C. Arnold, and A. L’huillier, Nat. Rev. Phys. **4**(11), 713 (2022).
25. В.П. Кандидов, С.А. Шленов, О.Г. Косарева, Квантовая электроника **39**(3), 205 (2009).
26. A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou, Opt. Lett. **20**(1), 73 (1995).
27. J. Rothhardt, M. Krebs, S. Hädrich, S. Demmler, J. Limpert, and A. Tünnermann, New J. Phys. **16**(3), 033022 (2014).
28. R. R. Alfano, Sci. Am. **295**(6), 86 (2006).
29. H. J. Levinson, Jpn. J. Appl. Phys. **61**.SD, SD0803 (2022).
30. C. Wagner, N. Harned, P. Kuerz, M. Lowisch, H. Meiling, D. Ockwell, R. Peeters, K. van Ingen-Schenau, E. van Setten, J. Stoeldraijer, and B. Thuerling, Extreme Ultraviolet (EUV) Lithography **7636**, 512 (2010).
31. M. van de Kerkhof, T. van Empel, M. Lercel, C. Smeets, F. van de Wetering, A. Nikipelov, C. Cloin, A. Yakunin, and V. Banine, Extreme Ultraviolet (EUV) Lithography X **10957**, 191 (2019).

Analog Sommerfeld law in quantum vacuum

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 5 July 2023

Resubmitted 14 July 2023

Accepted 16 July 2023

DOI: 10.31857/S1234567823160097, EDN: ivtgek

The vacuum of the de Sitter (dS) spacetime is characterized by the local temperature $T = H/\pi$, where H is the Hubble parameter, see [1] and references therein. This temperature describes the thermal processes of decay of the composite particles and the other activation processes, which are energetically forbidden in the Minkowski spacetime, but are allowed in the dS background, see also Refs. [2–4]. In particular, this temperature determines the probability of the ionization of an atom in the dS environment, $\exp(-E/T)$, where E is the ionization potential. This activation temperature is twice the Gibbons–Hawking [5] temperature $T_{\text{GH}} = H/2\pi$ of the cosmological horizon, $T = 2T_{\text{GH}}$. As distinct from the T_{GH} , the activation temperature has no relation to the cosmological horizon. It describes the local processes, which take place far away from the horizon. If $T = H/\pi$ is the local temperature in dS spacetime, the natural question is: does it determine the local thermodynamics of the dS vacuum? In this paper we discuss this thermodynamics.

In the Painlevé–Gullstrand form the metric in the dS expansion is

$$ds^2 = -dt^2 + (dr - Hrdt)^2 + r^2 d\Omega^2, \quad (1)$$

where H is the Hubble parameter.

From Friedmann equations of general relativity it follows that the vacuum energy density (which is the cosmological constant Λ) expressed in terms of the activation temperature $T = H/\pi$ is:

$$\epsilon_{\text{vac}} = \Lambda = \frac{3}{8\pi G} H^2 = \frac{3\pi}{8G} T^2. \quad (2)$$

If $T = H/\pi$ is the local temperature of the dS vacuum, we can determine the free energy density, $F = \epsilon_{\text{vac}} - Td\epsilon_{\text{vac}}/dT$, and thus the entropy density s_{vac} :

$$s_{\text{vac}} = -\frac{\partial F}{\partial T} = \frac{3\pi}{4G} T = \frac{3}{4G} H. \quad (3)$$

The quadratic dependence of vacuum energy on temperature is also important for consideration of the thermodynamic Gibbs–Duhem relation for quantum vacuum. It leads to the reformulation of the vacuum pressure. The conventional vacuum pressure P_{vac} obeys the equation of state $w = -1$ and enters the energy momentum tensor of the vacuum medium in the form:

$$T^{\mu\nu} = \Lambda g^{\mu\nu} = \text{diag}(\epsilon_{\text{vac}}, P_{\text{vac}}, P_{\text{vac}}, P_{\text{vac}}), \quad P_{\text{vac}} = -\epsilon_{\text{vac}}. \quad (4)$$

In dS state the vacuum pressure is negative, $P_{\text{vac}} < 0$.

This pressure P_{vac} does not satisfy the thermodynamic Gibbs–Duhem relation, $Ts_{\text{vac}} = \epsilon_{\text{vac}} + P_{\text{vac}}$, because the right hand side of this equation is zero. The reason for that is that in this equation we did not take into account the gravitational degrees of freedom. Earlier it was shown, that gravity contributes to thermodynamics with the pair of the thermodynamically conjugate variables: the gravitational coupling $K = \frac{1}{16\pi G}$ and the Riemann curvature $\mathcal{R}$, see [6–8]. This is because the Einstein–Hilbert action contains the gravitational term $K\mathcal{R}$, and its contribution to thermodynamics is somewhat similar to the work density [9–12]. The gravitational thermodynamic variables allow us to write the modified Gibbs–Duhem relation:

$$Ts_{\text{vac}} = \epsilon_{\text{vac}} + P_{\text{vac}} - K\mathcal{R}. \quad (5)$$

This equation is obeyed, since $\epsilon_{\text{vac}} + P_{\text{vac}} = 0$ and $\mathcal{R} = -12H^2$. Equation (5) suggests that one may introduce the effective pressure, which is modified by gravitational degrees of freedom:

$$P = P_{\text{vac}} - K\mathcal{R}. \quad (6)$$

Then the conventional Gibbs–Duhem relation is satisfied:

$$Ts_{\text{vac}} = \epsilon_{\text{vac}} + P. \quad (7)$$

The effective dS pressure P is positive, $P = \epsilon_{\text{vac}} > 0$, and satisfies equation of state $w = 1$, which is similar

¹⁾e-mail: grigori.volovik@aalto.fi

to matter with the same equation of state. As a result, due to the gravitational degrees of freedom, the dS state has many common properties with the non-relativistic Fermi liquid, where the thermal energy is proportional to T^2 , and with the relativistic matter with $w = 1$. This means that in thermodynamics the dS vacuum behaves as the stiff matter introduced by Zel'dovich [13], where the speed of sound is equal to the speed of light, $s^2 = c^2 dP/d\epsilon_{\text{vac}} = c^2$.

In this vacuum thermodynamics, the total entropy in the volume V_H surrounded by the cosmological horizon with radius $R = 1/H$ is

$$s_{\text{vac}} V_H = \frac{4\pi R^3}{3} s_{\text{vac}} = \frac{\pi}{GH^2} = \frac{A}{4G}, \quad (8)$$

where A is the horizon area. This corresponds to the Gibbons–Hawking entropy of the cosmological horizon. However, it is the thermodynamic entropy coming from the local entropy of the dS quantum vacuum, rather than the entropy of the horizon degrees of freedom.

Since the thermodynamics of the dS state with the thermal energy $\epsilon_{\text{vac}} \propto T^2$ is similar to the thermodynamics of the Fermi liquid, there is the analog of the Sommerfeld law, which states that the entropy per one atom of Fermi liquid is $S \propto T/E_F$, where E_F is Fermi energy. We do not know what are the “atoms of the vacuum”, but from Eq. (3) it follows that the entropy density of the vacuum $s_{\text{vac}} \sim (T/E_P)/l_P^3$, where $l_P = \sqrt{G}$ is Planck length and E_P is Planck energy. This suggests that $n_P \sim 1/l_P^3$ is the density of “atoms of the vacuum”, and the entropy per “atom” is:

$$S = \frac{s_{\text{vac}}}{n_P} \sim s_{\text{vac}} l_P^3 \sim \frac{T}{E_P}. \quad (9)$$

Eq. (9) is the full analog of the Sommerfeld law for Fermi liquid. This analogy also suggests that the corresponding density of states in the quantum vacuum (the analog of density of states at the Fermi level $N_F \sim mp_F$ in Fermi liquids) is $N_P \sim E_P^2$. This huge density of states leads to a very large entropy of the dS vacuum even for very small temperature of the vacuum.

In conclusion, the quantum vacuum of de Sitter spacetime looks as specific form of the relativistic Fermi liquid with local temperature, local entropy and local Gibbs–Duhem relation. The entropy density in Eq. (3) is linear in the local temperature T . The local de Sitter temperature is determined by the action of the expanding Universe on the matter degrees of freedom: it de-

scribes the processes of activation, such as the thermal process of the ionization of atoms in the de Sitter environment. This activation temperature has no relation to the cosmological horizon, and is twice larger than the Hawking temperature related to the horizon. Nevertheless, the total entropy in the region inside the cosmological horizon is exactly the horizon entropy $A/4G$. This is a kind of the bulk-boundary correspondence.

In the quasi-equilibrium states with matter the system can be characterized by two temperatures: the temperature of the vacuum component and the temperature of matter degrees of freedom [14]. The present temperature of the vacuum component is much smaller than the temperature of matter degrees of freedom. For example, compared with the temperature of Cosmic Microwave Background (CMB) radiation it is $T_{\text{vac}} \sim 10^{-30} T_{\text{CMB}}$. But the entropy of the vacuum highly exceeds the entropy of matter due to large density of states in the quantum vacuum, $s_{\text{vac}} \sim 10^{30} s_{\text{CMB}}$.

I thank G. 't Hooft, S. Odintsov, and V. Faraoni for discussions.

This work has been supported by Academy of Finland (grant 332964).

This is an excerpt of the article “Analog Sommerfeld law in quantum vacuum”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364023602208

-
1. G. E. Volovik, JETP Lett. **118**, 5 (2023); arXiv:2304.09847.
 2. N. Arkani-Hamed and J. Maldacena, arXiv:1503.08043.
 3. M. Reece, L.-T. Wang, and Zh.-Zh. Xianyu, Phys. Rev. D **107**, L101304 (2023).
 4. H. Maxfield and Z. Zahraee, JHEP **11**, 093 (2022).
 5. G. W. Gibbons and S. W. Hawking, Phys. Rev. D **15**, 2738 (1977).
 6. F. R. Klinkhamer and G. E. Volovik, JETP Lett. **88**, 289 (2008).
 7. G. E. Volovik, JETP **135**, 388 (2022).
 8. G. E. Volovik, MDPI, Universe **6**, 133 (2020).
 9. S. A. Hayward, Class. Quantum Grav. **15**, 3147 (1998).
 10. S. A. Hayward, S. Mukohyama, and M. C. Ashworth, Phys. Lett. A **256**, 347 (1999).
 11. T. Jacobson, Phys. Rev. Lett. **75**, 1260 (1995).
 12. S. Nojiri, S. D. Odintsov, T. Paul, and S. SenGupta, arXiv:2307.05011.
 13. Ya. B. Zel'dovich, JETP **14**, 1143 (1962).
 14. S. N. Vergeles, arXiv:2301.01692.

Генерация второй гармоники как неинвазивный метод исследования молекулярных процессов на поверхности липидных мембран (Миниобзор)

М. Ю. Еремчев¹⁾

Троицкое Обособленное подразделение Физического института имени П. Н. Лебедева РАН,
108840 Троицк, Москва, Россия

Поступила в редакцию 18 июля 2023 г.

После переработки 19 июля 2023 г.

Принята к публикации 19 июля 2023 г.

Развитие и внедрение современных экспериментальных методов исследования в междисциплинарные проекты способствует решению фундаментальных задач в области молекулярной биологии и медицины. Одной из таких задач является понимание физики молекулярных взаимодействий, происходящих в узком слое (< 1 нм) на поверхности клеточных липидных мембран (гидратная оболочка мембраны), где происходит большинство важных электрохимических взаимодействий с ионами и протеинами, трансмембранный транспорт молекул, а также эндоцитоз. Решение данной задачи требует использования неинвазивных методов, чувствительных к изменениям молекулярной структуры поверхностного слоя мембран. Цель данного мини-обзора – осветить преимущества нелинейной оптической микроскопии и спектроскопии для изучения структурных и электростатических особенностей липидных мембран, описать разработанный метод визуализации гидратации липидных мембран, а также обсудить границы применимости данного метода.

DOI: 10.31857/S1234567823160103, EDN: iwctqz

Введение. Современные физические методы исследования, а также инструменты фотоники становятся основой для междисциплинарных исследований в биофизике [1–5]. Получение фундаментальных знаний о структурных и динамических свойствах сложных биологических систем начинается с отработки экспериментальных методов на модельных объектах [6–9]. В случае с клеточными мембранами такими модельными объектами являются везикулы, состав и окружение которых могут быть подобраны под конкретную задачу.

Липидные мембраны являются неотъемлемой частью всех живых клеток. Они выполняют широкие спектр критически важных функций, в частности, являются защитным барьером, контролируют трансмембранные концентрационные градиенты и передают электрические сигналы. Существование, а также правильное функционирование мембран неотъемлемо связано с их гидратным слоем и связанными с гидратацией поверхностными взаимодействиями.

Гидратный слой или гидратная оболочка – это тонкий слой (< 1 нм), состоящий из молекул воды, которые напрямую связаны с поверхностью мембраны посредством электростатического взаимодей-

ствия и водородных связей. В этом слое свойства и ориентация молекул воды принципиально отличаются в сравнении с молекулами вдали от поверхности. Из-за отсутствия достаточно чувствительных методов изучение данного вида молекулярных взаимодействий в гидратном слое без нарушения структуры самого слоя существенно затруднено.

Один из основных и исторически первых методов изучения электростатических свойств мембран основывается на емкостных измерениях. В этом методе плоская липидная мембрана в жидком растворе размещается между двумя электродами [10, 11]. Благодаря этому методу были получены значения электрической емкости и сопротивления мембран [12, 13]. К недостаткам данного метода необходимо отнести отсутствие пространственного разрешения и молекулярной чувствительности, что приводит к невозможности описать весь спектр процессов, происходящих в гидратном слое мембран. Большинство оптических методов исследований опирается на использование флуоресцентной микроскопии [14–16], комбинационного рассеяния света [17–20], атомно-силовую микроскопию [21], а также интерферометрию [22]. Данные методы позволили получить ценную информацию о составе и структуре мембран, формировании микро- и нанодоменов, взаимодействии с протеинами, а так-

¹⁾e-mail: maks.eremchev@gmail.com

же внутримолекулярных взаимодействиях в мембранах. Однако эти методы либо являются инвазивными, либо не обладают избирательной чувствительностью к интерфейсам, что не позволяет исследовать явления, происходящие в гидратном слое мембран.

Этот миниобзор призван осветить преимущества нелинейной оптической микроскопии и спектроскопии, в частности, генерации второй гармоники (ГВГ) и генерации суммарной гармоники (ГСГ) при изучении структурных и электростатических особенностей липидных мембран без нарушения ее целостности, а также представить последние достижения в области высокоэффективной широкопольной микроскопии ГВГ для визуализации гидратного слоя липидных мембран. Данный миниобзор начинается с обсуждения взаимодействий, происходящих в гидратной оболочке мембран, подчеркивая важность процессов, происходящих в слое толщиной < 1 нм у поверхности мембраны. Далее будет показано, как, смещая фокус на водный интерфейс и анализируя структуру гидратного слоя с помощью ГВГ микроскопии, можно получить важнейшие электрохимические параметры поверхности мембран, такие, как электростатический поверхностный потенциал, энергия и сила связи липид-ионного взаимодействия. В последней части обсуждается использование ГВГ микроскопии для исследования пассивного транспорта дивалентных ионов через липидные мембраны.

Гидратация мембран и поверхностные эффекты связанные с ионами. Роль гидратации мембраны, а также связанные с ней фундаментальные поверхностные электрохимические взаимодействия остаются без внимания в абсолютном большинстве научных исследований, так как эти поверхностные эффекты достаточно сложно изучать экспериментальными методами, не нарушая целостности молекулярной поверхности мембраны.

Рентгеновская спектроскопия и спектроскопия ядерного магнитного резонанса показали, что не менее 30-ти молекул воды в поверхностном гидратном слое мембраны непосредственно связаны с одним отрицательно заряженным липидом [23]. Это означает, что молекулы воды в количественном соотношении превосходят все другие виды молекул в поверхностном слое мембран и, следовательно, имеют большое влияние на поверхностные эффекты. Колебательная спектроскопия ГСГ показала упорядочение молекул воды вокруг липидных мембран [24]. При этом анионные липиды ориентируют диполи воды сильнее, чем цвиттер-ионные (нейтрально заряженные) липиды. В других работах было показано формирование слабых водородных связей глубоко внутри гид-

рофильной группы липидов [25, 26], которые нельзя объяснить простыми электростатическими соображениями.

Электростатические взаимодействия мембран с молекулами воды в гидратном слое становятся еще более сложными, если в системе появляются различные ионы. Такие взаимодействия могут влиять на упорядочивание липидов [27–30], вызывать частичную дегидратацию мембран [29, 31–33], способствовать слиянию и разделению мембран [34, 35], влиять на проницаемость мембран [36, 37], а также способствовать работе ионных каналов в процессах сигнализации [38–40]. Дивалентные ионы, такие как кальций или магний, взаимодействуют с анионными мембранами значительно сильнее, чем моновалентные ионы, за счет формирования ионных связей с головными группами липидов [41–43]. Такие взаимодействия приводят к нейтрализации, а в некоторых случаях даже к изменению заряда мембраны [44–46]. При этом дивалентные ионы имеют сильное воздействие не только на электростатику мембран, но и на их механические свойства. Присутствие ионов кальция на поверхности мембраны влияет на натяжение мембраны [47] и приводит к изменению формы мембраны, формированию областей с локальной отрицательной кривизной [48–50]. Некоторые работы постулировали, что отрицательно заряженные липиды могут служить в качестве хранилища ионов кальция в клеточных мембранах [15]. Взаимодействие ионов меди с анионными мембранами носит совершенно другой характер. Уже при пикомолярных концентрациях эти ионы начинают образовывать связи с головными группами липидов. Более того, при низких концентрациях взаимодействие ионов меди с мембраной не приводит к изменению заряда мембраны за счет ее депротонации [51]. Понимание эффектов, связанных с взаимодействием протонов с липидными мембранами, также является фундаментально важной задачей [52, 53].

В настоящее время не существует единой молекулярной картины, которая бы описывала эти поверхностные эффекты. Главная проблема заключается в поиске неинвазивных экспериментальных методов, способных извлекать информацию о поверхностных процессах с высоким пространственным и временным разрешением.

Поверхностная чувствительность нелинейных оптических методов. Избирательная чувствительность к интерфейсам (поверхностная “селективность”) может быть достигнута за счет использования нелинейных оптических процессов второго порядка, таких, как ГВГ и ГСГ. Правила отбора по

симметрии для таких процессов разрешают генерацию фотонов только на несимметричных структурах или молекулах в изотропной среде [54]. Более того, пространственное распределение таких молекул тоже должно быть нецентросимметричным для возникновения нелинейной поляризации (рис. 1а). Та-

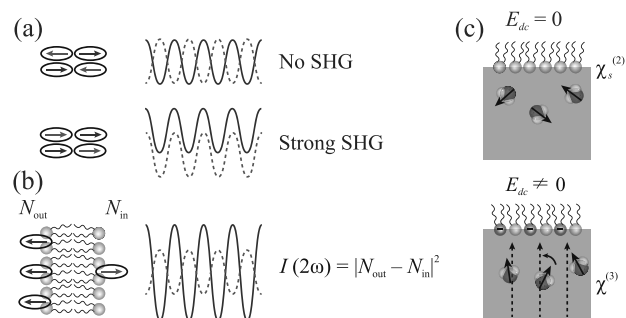


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематичное описание процесса ГВГ от поверхностных структур. (а) – Случайная ориентация нецентросимметричных молекул запрещает процесс генерации второй гармоники (верхняя иллюстрация). Ориентированное расположение нецентросимметричных молекул способствует появлению когерентного ГВГ сигнала (нижняя иллюстрация). (б) – ГВГ чувствительна к трансмембранной асимметрии. (с) – Поляризация молекул воды вблизи заряженной поверхности дополнительно вносит вклад в ГВГ сигнал. E_{dc} – напряженность электростатического поля, $\chi_s^{(2)}$ – поверхностная нелинейная восприимчивость второго порядка, характеризующая асимметрию поверхности, $\chi^{(3)}$ – нелинейная восприимчивость третьего порядка, характеризующая поляризацию молекул воды в присутствии электростатического поля, создаваемого поверхностью

ким образом, данные методы можно считать исключительно чувствительными к границам раздела изотропных сред или поверхностям материалов, где центросимметрия нарушена из-за несбалансированного состояния и ориентации молекул в направлении, перпендикулярном поверхности. Из этого также следует, что в случае формирования симметричной липидной мембраны (состоящей в простом случае из двух зеркально симметричных монослоев), нелинейная поляризация от каждого монослоя в мембране будет скомпенсирована такой же поляризацией, направленной противоположно. Таким образом, можно утверждать, что ГВГ и ГСГ чрезвычайно чувствительны к изменениям в симметрии липидной мембраны (рис. 1б).

Идеи использования эффекта ГВГ в качестве инструмента для изучения поверхностных электростатических феноменов мембран (мембранного потенциала, поверхностной плотности зарядов) существо-

вали уже давно [55, 56]. Однако из-за низкой эффективности нелинейного преобразования фотонов, большинство исследований по микроскопии ГВГ были сделаны с использованием резонансных усилителей, помещенных в мембрану [57–59]. В этих работах, измерение мембранного потенциала производилось с помощью так называемых потенциал-чувствительных красителей (*voltage sensitive probe*), которые демонстрируют пропорциональную зависимость сигнала ГВГ от величины поверхностного потенциала. Первые работы по микроскопии ГВГ, в котором не использовались никакие вспомогательные красители, были проведены в группе Джона Конбоя (John Conboy) [60, 61]. В этих работах изучались силы химической связи хиральных молекул и анестетика тетракаина и липидов в плоской мультикомпонентной мембране на подложке. Несмотря на то, что сами исследуемые молекулы обладали высокими молекулярными нелинейными поляризуемостями, время накопления одного изображения было крайне велико – составляло 20–30 мин из-за использования сканирующей конфокальной схемы. В других работах метод ГСГ использовался для химической визуализации дейтерированных фосфолипидных мембран и липидных монослоев [62, 63]. Однако и в этих экспериментах время накопления достигало 1 ч. Такие времена накопления не позволяют исследовать динамические процессы, происходящие на поверхности мембран. К примеру, процесс пассивного транспорта дивалентных ионов через липидную мембрану, обсуждаемый в следующей главе, занимает в среднем от 10 до 30 мин (для типичных везикул с диаметром 10 мкм) и остался бы незамеченным при использовании существующих методов ГВГ.

Контраст ГВГ/ГСГ может возникать не только за счет нарушения структурной симметрии липидных мембран, но и за счет асимметрии гидратного слоя, окружающего мембрану. Действительно, за счет электростатических взаимодействий и водородных связей, на каждую головную группу липидов приходится несколько десятков ориентированных молекул воды, непосредственно связанных с ней [23]. Поэтому интенсивность ГВГ напрямую показывает степень ориентации молекул воды на поверхности мембраны. Данное свойство справедливо для большого круга водных интерфейсов, что делает молекулы воды уникальными зондами для изучения поверхностных электрохимических свойств [64]. При этом необходимо отметить, что данный метод справедлив и для других растворителей, которые обладают молекулярной асимметрией, а значит и молекулярной поляризуемостью второго порядка.

Группа проф. Кеннета Эйзенталя (Kenneth Eisenthal) первой показала, что поляризация молекул воды поверхностным электростатическим полем вблизи границы раздела воды и кварцевого стекла вносит существенный вклад в интенсивность ГВГ от поверхности [65, 66]. Меняя pH раствора, они показали наличие постоянной составляющей в ГВГ сигнале (поверхностные молекулы кварца при pH=2), а также составляющей, зависящей от поверхностного заряда (поляризованные молекулы воды). В дальнейшем было показано, что ориентированные молекулы воды на поверхности липидных пленок также вносят существенный вклад в ГВГ, при этом интенсивность генерируемого излучения может быть представлена в следующем виде (рис. 1с) [67]:

$$I(2\omega) \propto |\chi_s^{(2)} E_1(\omega) E_2(\omega) + \chi^{(3)} E_1(\omega) E_2(\omega) \Phi_0|^2, \quad (1)$$

где $\chi_s^{(2)}$ – поверхностная нелинейная восприимчивость второго порядка, характеризующая асимметрию поверхности, $\chi^{(3)}$ – нелинейная восприимчивость третьего порядка, характеризующая поляризацию молекул воды в присутствии электростатического поля, Φ_0 – поверхностный потенциал. Из данного выражения видно, что интенсивность сигнала ГВГ пропорциональна квадрату поверхностного потенциала материала. Также было показано, что в случае положительно заряженных липидов, ориентация поверхностных молекул воды приводит к увеличению суммарной нелинейной поляризации интерфейса (а значит и сигнала ГВГ), а в случае отрицательно заряженных липидов происходит деструктивная интерференция нелинейных поляризаций, что приводит к исчезновению сигнала ГВГ (меняется знак Φ_0 в уравнении (1)).

Развитие методов ГВГ микроскопии за последние 10 лет привело к появлению отдельного направления безмаркерной высокоэффективной широкопольной микроскопии ГВГ, основной акцент в которой делается на изучение пространственно-временных электрохимических характеристик липидных мембран с размерами, соизмеримыми с клеточными (10–100 мкм) [68, 69]. В этом методе использование широкопольной засветки образца (~ 100 мкм в диаметре) фемтосекундными (< 200 фс) лазерными импульсами с частотой следования импульсов < 1 МГц, позволило увеличить эффективность ГВГ микроскопии (контраст, время накопления) на 2–3 порядка величины по сравнению со сканирующими схемами. Это позволило использовать данную методику для визуализации трансмембранной асимметрии гидратной оболочки липидной мембраны в виде сферических везикул [69, 70]. В указанных работах везикулы бы-

ли сформированы из смеси цвиттерионных DPhPC (1,2-diphytanoyl-sn-glycero-3-phosphocholine) и анионных DPhPA (1,2-diphytanoyl-sn-glycero-3-phosphate) липидов, осажденных на полимерной пленке из поливинилалкоголя и гидрированные раствором сахарозы. Рассмотрим этот пример подробнее. Интенсивность сигнала ГВГ в этом случае может быть представлена в следующем виде:

$$I(2\omega) \propto |\chi^{(3)} E_1(\omega) E_2(\omega) (\Phi_{0,1} - \Phi_{0,2})|^2, \quad (2)$$

где индексами “1” и “2” показаны поверхностные потенциалы каждой стороны мембраны.

На рисунке 2а показано изображение везикулы в микроскопе в белом свете. На рисунке 2б показаны ГВГ изображения экваториальных сечений той же самой везикулы в отсутствие и в присутствии CaCl_2 в растворе [70]. В данном случае асимметрия, приводящая к появлению сигнала ГВГ, возникает за счет электростатического связывания ионов кальция с отрицательно заряженными липидами на внешней оболочке мембраны, что нарушает ориентацию молекул воды у поверхности (рис. 2б, схематическая молекулярная картина). В экспериментах использовалось линейно поляризованное излучение (двойная стрелка YY на рис. 2б показывает направление поляризации лазера и сигнала ГВГ), из-за чего сигнал ГВГ имел явную зависимость от угла между направлением поляризации и нормалью к поверхности везикулы.

Попытки визуализировать липидные мембраны и измерить мембранный потенциал данным способом производились и на плоских липидных мембранах [71, 72]. В данном случае, сигнал ГВГ был значительно ниже, чем при использовании гигантских везикул. Однако преимуществом плоских мембран является возможность прикладывать напряжение сквозь липидную мембрану с помощью электродов. Исследование поведения сигнала ГВГ от мембраны в зависимости от приложенного напряжения позволило провести калибровку измеряемых на камере отсчетов от трансмембранного потенциала ($\Phi_{0,1} - \Phi_{0,2}$) [71]. Данная калибровка впоследствии использовалась для восстановления абсолютного значения трансмембранного потенциала на поверхности везикул (рис. 2б).

Как уже было отмечено, ГВГ является очень чувствительным методом получения молекулярной информации из поверхностного гидратного слоя мембран. Интенсивность сигнала напрямую характеризует степень воздействия различных ионов и молекул на структуру гидратной оболочки мембраны и позволяет проводить количественную характеристику

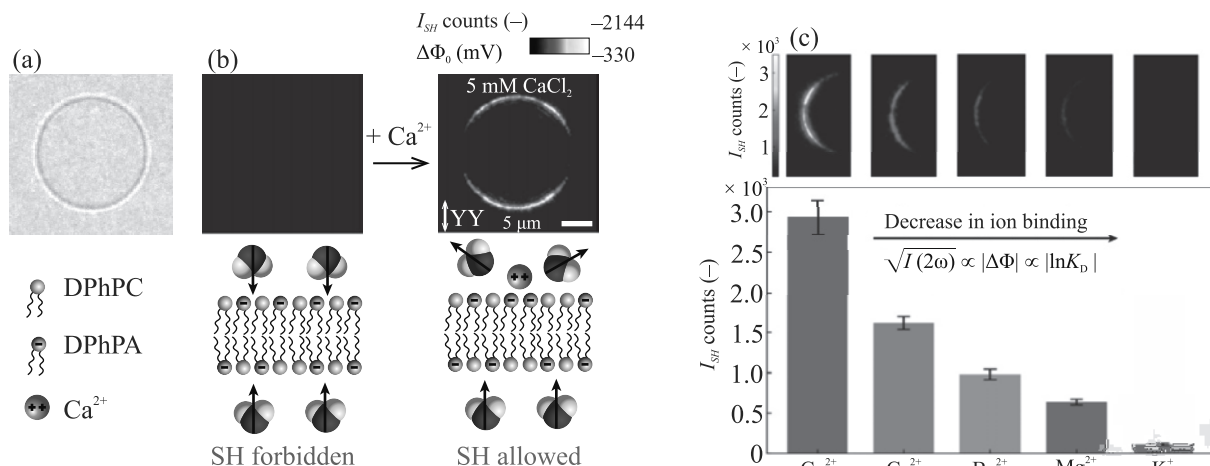


Рис. 2. (Цветной онлайн) Высокоэффективная ГВГ микроскопия для визуализации трансмембранной асимметрии гидратной оболочки. (a) – Изображение гигантской везикулы, сформированной из анионных (DPhPA) и цвиттерионных (DPhPC) в водном растворе сахарозы. (b) – Изображение данной везикулы в контрасте ГВГ до и после добавления 5 мМоль/л CaCl_2 во внешний раствор (верхняя панель). Схематическая иллюстрация молекулярной картины интерфейса (нижняя панель). (c) – Гистограмма усредненного сигнала от везикул одинакового состава (1:1 DPhPC:DPhPA), помещенных в контакт с различными солевыми растворами

силы электростатической связи между различными ионами и функциональными группами липидов. Рисунок 2с показывает гистограмму усредненного сигнала ГВГ от везикул одинакового состава в контакте с различными солями (Cu^{2+} , Ca^{2+} , Ba^{2+} , Mg^{2+} и K^{+}) одинаковой концентрации [73]. При этом сила связи для дивалентных ионов убывает как $\text{Cu}^{2+} > \text{Ca}^{2+} > \text{Ba}^{2+} > \text{Mg}^{2+}$. В работе [74] было показано, как из интенсивности сигнала ГВГ можно рассчитать абсолютные значения энергии связи, а также константы диссоциации K_D ионов с липидными мембранами. Полученные экспериментальные значения энергии связи для ионов кальция находятся в диапазоне от 19 до 26 кТ, для ионов бария от 10 до 16 кТ, и для ионов магния от 5 до 8 кТ. Еще один важный результат заключается в том, что воздействие моновалентных ионов K^{+} на структуру гидратного слоя существенно слабее, чем в случае дивалентных ионов. Дивалентные ионы образуют сильные электростатические связи с функциональными группами липидов и могут проникать глубоко в мембрану, тем самым в значительной мере нарушая упорядоченную структуру гидратного слоя. Напротив, моновалентные ионы оказывают лишь экранирующее действие, что не приводит к полному разупорядочиванию молекул воды в гидратном слое.

Применение ГВГ микроскопии для исследования трансмембранного молекулярного транспорта. В работе [75] было показано, что ГВГ может быть использована как чувствительный метод изучения транспорта молекул действующих веществ

лекарственных средств через модельные, а также клеточные липидные мембраны. В данном случае сигнал ГВГ может быть представлен в следующем виде:

$$I(2\omega) \propto |N_{\text{out}}(t) - N_{\text{in}}(t)|^2, \quad (3)$$

где N_{out} и N_{in} – концентрации исследуемых молекул на внешней и внутренней поверхности мембраны (см. рис. 1b). В момент добавления данных молекул во внешний раствор с одной стороны мембраны происходит адсорбция этих молекул на поверхность, что разрушает изначальную симметрию мембраны и приводит к возникновению ГВГ сигнала. Затем, по мере диффузии данных молекул с одной стороны мембраны на другую, происходит постепенное выравнивание симметрии мембраны, что приводит к уменьшению сигнала ГВГ. Анализ эволюции сигнала ГВГ во времени позволяет получить значения проницаемости мембраны для той или иной молекулы, а также исследовать возможности ускорения или замедления трансмембранного транспорта посредством изменения внешних условий или структуры мембраны.

Похожим образом, в работах [70, 73] был обнаружен медленный транспорт дивалентных ионов через липидные мембраны, состоящие из DOPC:DOPA (1, 2-dioleoyl-sn-glycero-3-phosphocholine, 1, 2-dioleoyl-sn-glycero-3-phosphate) липидов. Основное отличие заключается в том, что изменение сигнала ГВГ возникало не напрямую из-за наличия трансмембранного градиента ионов (ионы центросимметричные и

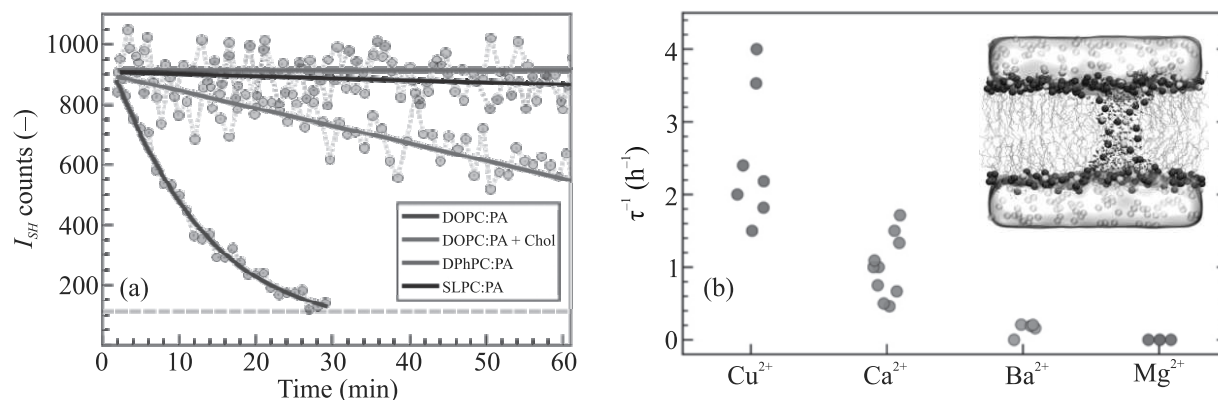


Рис. 3. (Цветной онлайн) Транспорт дивалентных ионов через липидные мембраны. (а) – Кинетика ГВГ сигнала от везикул с различной структурой гидрофобного ядра, помещенных в раствор CaCl_2 с концентрацией 5 мМоль/л. (б) – Время затухания ГВГ сигнала от везикул, сформированных из 1:1 DOPC:DOPA липидов и помещенных в раствор различных дивалентных солей (одинаковой концентрации 5 мМоль/л). Вставка: сформированная пора в липидной мембране

не могут являться источниками ГВГ), а из-за разупорядочивания молекул воды в гидратной оболочке мембраны прошедшими ионами. Для DOPC:DOPA липидных мембран (формирующих неплотную мембрану) данный транспорт приводил к полному исчезновению трансмембранного поверхностного потенциала (рис. 3а). При анализе кривой затухания сигнала было получено значение коэффициента проницаемости $\sim 10^{-8}$ см/с, что свидетельствует о чрезвычайно медленной скорости прохождения ионов, из-за чего данный вид транспорта не был замечен другими методами (которые в основном измеряют присутствие ионов в толще образца). Добавление молекул холестерина в такие мембраны приводило к существенному замедлению транспорта ионов. Это означает, что гидрофобное ядро мембраны (углеводородные хвосты) является основным барьером для транспорта. Было показано полное подавление данного вида транспорта через мембраны, состоящие из DPhPC:DPhPA, а также липидов с полиненасыщенными жирными кислотами наподобие Омега-3 (рис. 3а).

Для определения молекулярного механизма обнаруженного транспорта дивалентных ионов в работе [73] был проведен ряд экспериментов, в которых варьировался мембранный состав, а также ионный состав окружающего раствора. Было показано, что при одинаковых условиях (структура мембраны, состав окружающего раствора) различные дивалентные ионы (Cu^{2+} , Ca^{2+} , Mg^{2+} и Ba^{2+}) с разной скоростью проникают через мембраны, причем быстрее всего происходит транспорт ионов Cu^{2+} , в то время как ионы Mg^{2+} и вовсе не способны преодолеть гидрофобный барьер мембраны (рис. 3б). Полученные дан-

ные по транспорту ионов коррелируют с данными по электростатической силе связи соответствующих ионов с отрицательно заряженными мембранами. На основании этих данных, а также молекулярно-динамического моделирования была предложена модель транспорта дивалентных ионов через липидные мембраны. В данной модели присутствие дивалентных ионов на одной стороне мембраны приводило к возникновению трансмембранного потенциала, величина которого была достаточной для локального образования трансмембранного дефекта (поры), через которую ионы проникали на другую сторону (вставка на рис. 3б).

Закключение. Нелинейные оптические эффекты, такие как ГВГ и ГСГ, являются уникальными методами, позволяющими исследовать молекулярную структуру, гидратацию, а также электрохимическую активность липидных мембран в естественных условиях. Микроскопия ГВГ позволяет визуализировать процессы, происходящие в узком (< 1 нм) слое у поверхности мембран. Возможность оптически измерять данные электрохимические параметры позволит существенно расширить, а в некоторых случаях и перевернуть наше текущее представление о функциях мембран. В последние годы появляется все больше научных работ, в которых признается, что липидные мембраны играют значительно более сложную роль в клеточных взаимодействиях, чем предполагалось ранее. Представления о мембранах как о не изменяющемся во времени клеточном барьере не могут объяснить существующего разнообразия структурных и химических особенностей липидов в живых клетках. Даже незначительные отклонения в структуре или составе липидных мем-

бран приводят к серьезным последствиям, влияющим на важнейшие биологические функции. Более того, огромное число генетических заболеваний (в том числе болезнь Альцгеймера) связаны с нарушениями структуры клеточных мембран. Поэтому возникает необходимость разрабатывать междисциплинарные подходы для того, чтобы выявлять новые функции мембран, в частности, использования микроскопии сверхвысокого разрешения [76, 77]. Предложенный метод ГВГ микроскопии не ограничивается визуализацией процессов на поверхности модельных липидных мембран, но может применяться и для других систем, в том числе для визуализации водных поверхностей кварца [78], электродов [79], нейронов [80], а также тонких пленок, в которых присутствует нарушение симметрии [81, 82]. Дальнейшее развитие данных методов, а также применение их к новым системам позволит получить фундаментальную информацию, недоступную для других методов.

Работа поддержана грантом государственного задания Физического института им. П. Н. Лебедева РАН (AAAA-A19-119083090053-9). Автор работы входит в состав Ведущей научной школы РФ (Грант Президента НШ-776.2022.1.2).

1. Ю. С. Петронюк, Е. А. Храмцова, В. М. Левин, А. П. Бонарцев, В. В. Воинова, Г. А. Бонарцева, А. А. Мураев, Т. Ф. Асфаров, Н. А. Гусейнов, *Известия Российской академии наук, Серия Физическая* **84**(6), 799 (2020); <https://doi.org/10.31857/S0367676520060204>.
2. В. О. Компанец, С. И. Кудряшов, Э. Р. Толордава, С. Н. Шельгина, В. В. Соколова, И. Н. Сараева, М. С. Ковалев, А. А. Ионин, С. В. Чекалин, *Письма в ЖЭТФ* **113**(6), 365 (2021); <https://doi.org/10.31857/S1234567821060021>.
3. О. В. Градов, Ю. В. Жуланов, П. Ю. Макавеев, *Фотоника* **14**(6), 542 (2020); <https://doi.org/10.22184/1993-7296.FRos.2020.14.6.542.549>.
4. E. Zavyalova, O. Ambartsumyan, G. Zhdanov, D. Gribanov, V. Gushchin, A. Tkachuk, E. Rudakova, M. Nikiforova, N. Kuznetsova, L. Popova, B. Verdiev, A. Alatyrev, E. Burtseva, A. Ignatieva, A. Pliukhina, I. Dolzhikova, A. Arutyunyan, A. Gambaryan, V. Kukushkin, *Nanomaterials* **11**(6), 1394 (2021); <https://doi.org/10.3390/nano11061394>.
5. К. Лефорт, Р. П. О'Конор, В. Бланке, Л. Маньо, Х. Кано, В. Томбелейн, Ф. Левек, В. Кудерк, Ф. Лепру, *Фотоника* **14**(1), 88 (2020); <https://doi.org/10.22184/1993-7296.FRos.2020.14.1.88.94>.
6. Ю. А. Ермаков, В. Е. Асадчиков, Ю. О. Волков, А. Д. Нуждин, Б. С. Рошин, В. Хонкимаки, А. М. Тихонов, *Письма в ЖЭТФ* **109**(5), 340 (2019); <https://doi.org/10.1134/S0370274X19050126>.
7. А. А. Мельникова, Р. А. Камышинский, А. В. Комова, А. П. Руденко, З. Б. Намсараев, *Известия Российской академии наук, Серия Физическая* **85**(8), 1070 (2021); <https://doi.org/10.31857/S0367676521080196>.
8. Т. И. Шарипов, Р. Р. Гарафутдинов, Р. З. Бахтизин, *Известия Российской академии наук, Серия Физическая* **84**(5), 675 (2020); <https://doi.org/10.31857/S0367676520050336>.
9. Д. Ю. Мартиросян, А. А. Осыченко, А. Д. Залесский, О. Т. Калинина, У. А. Точило, Ю. А. Федотов, М. С. Сырчина, В. А. Надточенко, *Письма в ЖЭТФ* **117**(12), 876 (2023); <https://doi.org/10.31857/S1234567823110125>.
10. V. B. Arakelian, D. Walther, E. Donath, *Colloid Polym. Sci.* **271**(3), 268 (1993); <https://doi.org/10.1007/BF00652367>.
11. S. McLaughlin, *Annu. Rev. Biophys. Biophys. Chem.* **18**(1), 113 (1989); <https://doi.org/10.1146/annurev.bb.18.060189.000553>.
12. S. H. White and W. Chang, *Biophys. J.* **36**(2), 449 (1981).
13. V. K. Miyamoto and T. E. Thompson, *J. Colloid Interface Sci.* **25**(1), 16 (1967); [https://doi.org/10.1016/0021-9797\(67\)90005-7](https://doi.org/10.1016/0021-9797(67)90005-7).
14. T. Baumgart, G. Hunt, E. R. Farkas, W. W. Webb, and G. W. Feigenson, *Biochim. Biophys. Acta BBA – Biomembr.* **1768**(9), 2182 (2007); <https://doi.org/10.1016/j.bbamem.2007.05.012>.
15. A. Melcrova, S. Pokorna, S. Pullanchery, M. Kohagen, P. Jurkiewicz, M. Hof, P. Jungwirth, P. S. Cremer, and L. Cwiklik, *Sci. Rep.* **6**(1), 38035 (2016); <https://doi.org/10.1038/srep38035>.
16. Y. Li, R. Lipowsky, and R. Dimova, *Proc. Natl. Acad. Sci.* **108**(12), 4731 (2011); <https://doi.org/10.1073/pnas.1015892108>.
17. A. A. Dmitriev and N. V. Surovtsev, *J. Phys. Chem. B* **119**(51), 15613 (2015); <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.5b07502>.
18. N. V. Surovtsev, A. A. Dmitriev, and S. A. Dzuba, *Phys. Rev. E* **95**(3), 032412 (2017); <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.95.032412>.
19. J.-X. Cheng and X. S. Xie, *J. Phys. Chem. B* **108**(3), 827 (2004); <https://doi.org/10.1021/jp035693v>.
20. E. O. Potma and X. S. Xie, *ChemPhysChem* **6**(1), 77 (2005); <https://doi.org/10.1002/cphc.200400390>.
21. L. J. Johnston, *Langmuir* **23**(11), 5886 (2007); <https://doi.org/10.1021/la070108t>.
22. G. de Wit, J. S. H. Danial, P. Kukura, and M. I. Wallace, *Proc. Natl. Acad. Sci.* **112**(40), 12299 (2015); <https://doi.org/10.1073/pnas.1508483112>.
23. H. I. Petrache, S. Tristram-Nagle, K. Gawrisch, D. Harries, V. A. Parsegian, and J. F. Nagle, *Biophys. J.* **86**(3), 1574 (2004); [https://doi.org/10.1016/S0006-3495\(04\)74225-3](https://doi.org/10.1016/S0006-3495(04)74225-3).

24. X. Chen, W. Hua, Z. Huang, and H.C. Allen, *J. Am. Chem. Soc.* **132**(32), 11336 (2010); <https://doi.org/10.1021/ja1048237>.
25. M. Sovago, E. Vartiainen, and M. Bonn, *J. Chem. Phys.* **131**(16), 161107 (2009); <https://doi.org/10.1063/1.3257600>.
26. Y. Nojima, Y. Suzuki, and S. Yamaguchi, *J. Phys. Chem. C* **121**(4), 2173 (2017); <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.6b09229>.
27. J. J. G. Casares, L. Camacho, M. T. Martin-Romero, and J. J. L. Cascales, *ChemPhysChem* **9**(17), 2538 (2008); <https://doi.org/10.1002/cphc.200800321>.
28. P. Garidel and A. Blume, *Langmuir* **15**(17), 5526 91999; <https://doi.org/10.1021/la990217a>.
29. H. Binder and O. Zschörnig, *Chem. Phys. Lipids* **115**(1), 39 (2002); [https://doi.org/10.1016/S0009-3084\(02\)00005-1](https://doi.org/10.1016/S0009-3084(02)00005-1).
30. U. R. Pedersen, C. Leidy, P. Westh, and G. H. Peters, *Biochim. Biophys. Acta BBA – Biomembr* **1758**(5), 573 (2006); <https://doi.org/10.1016/j.bbamem.2006.03.035>.
31. M. Mirza, Y. Guo, K. Arnold, C. J. van Oss, and S. Ohki, *J. Dispers. Sci. Technol.* **19**(6-7), 951 (1998); <https://doi.org/10.1080/01932699808913225>.
32. R. D. Porasso and J. J. Lopez Cascales, *Colloids Surf. B Biointerfaces* **73**(1), 42 (2009); <https://doi.org/10.1016/j.colsurfb.2009.04.028>.
33. M. L. Valentine, A. E. Cardenas, R. Elber, and C. R. Baiz, *Biophys. J.* **115**(8), 1541 (2018); <https://doi.org/10.1016/j.bpj.2018.08.044>.
34. Y. Kozlovsky, L. V. Chernomordik, and M. M. Kozlov, *Biophys. J.* **83**(5), 2634 (2022); [https://doi.org/10.1016/S0006-3495\(02\)75274-0](https://doi.org/10.1016/S0006-3495(02)75274-0).
35. W.-D. Zhao, E. Hamid, W. Shin, P. J. Wen, E. S. Krystofiak, S. A. Villarreal, H.-C. Chiang, B. Kachar, and L.-G. Wu, *Nature* **534**(7608), 548 (2016); <https://doi.org/10.1038/nature18598>.
36. F. Bordi, C. Cametti, and A. Motta, *J. Phys. Chem. B* **104**(22), 5318 (2000); <https://doi.org/10.1021/jp000005i>.
37. E. Deplazes, B. D. Tafalla, C. G. Cranfield, and A. Garcia, *J. Phys. Chem. Lett.* **11**(15), 6353 (2020); <https://doi.org/10.1021/acs.jpcclett.0c01479>.
38. D. S. Peterka, H. Takahashi, and R. Yuste, *Neuron* **69**(1), 9 (2011); <https://doi.org/10.1016/j.neuron.2010.12.010>.
39. E. Bourinet, C. Altier, M. E. Hildebrand, T. Trang, M. W. Salter, and G. W. Zamponi, *Physiol. Rev.* **94**(1), 81 (2014); <https://doi.org/10.1152/physrev.00023.2013>.
40. D. Smetters, A. Majewska, and R. Yuste, *Methods* **18**(2), 215 (1999); <https://doi.org/10.1006/meth.1999.0774>.
41. K. Shirane, S. Kuriyama, and T. Tokimoto, *Biochim. Biophys. Acta BBA – Biomembr* **769**(3), 596 (1984); [https://doi.org/10.1016/0005-2736\(84\)90058-0](https://doi.org/10.1016/0005-2736(84)90058-0).
42. A. Martin-Molina, C. Rodriguez-Beas, and J. Faraudo, *Biophys. J.* **102**(9), 2095 (2012); <https://doi.org/10.1016/j.bpj.2012.03.009>.
43. M. Roux and M. Bloom, *Biochemistry* **29**(30), 7077 (1990); <https://doi.org/10.1021/bi00482a019>.
44. H. Hauser and M. C. Phillips, *Interactions of the Polar Groups of Phospholipid Bilayer Membranes*, in *Progress in Surface and Membrane Science*, ed. by D. A. Cadenhead and J. F. Danielli, Elsevier, Göttingen, F.R.G. (1979), v. 13, p. 297.
45. C. Newton, W. Pangborn, S. Nir, and D. Papahadjopoulos, *Biochim. Biophys. Acta BBA – Biomembr* **506**(2), 281 (1978); [https://doi.org/10.1016/0005-2736\(78\)90398-X](https://doi.org/10.1016/0005-2736(78)90398-X).
46. S. McLaughlin, N. Mulrine, T. Gresalfi, G. Vaio, and A. McLaughlin, *J. Gen. Physiol.* **77**(4), 445 (1981); <https://doi.org/10.1085/jgp.77.4.445>.
47. Z. T. Graber, Z. Shi, and T. Baumgart, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **19**(23), 15285 (2017); <https://doi.org/10.1039/C7CP00718C>.
48. M. Simunovic, K. Y. C. Lee, and P. Bassereau, *Soft Matter* **11**(25), 5030 (2015); <https://doi.org/10.1039/C5SM00104H>.
49. B. Rozycki and R. Lipowsky, *J. Chem. Phys.* **142**(5), 054101 (2015); <https://doi.org/10.1063/1.4906149>.
50. Y.-F. Chen, K.-Y. Tsang, W.-F. Chang, and Z.-A. Fan, *Soft Matter* **11**(20), 4041 (2015); <https://doi.org/10.1039/C5SM00577A>.
51. X. Cong, M. F. Poyton, A. J. Baxter, S. Pullanchery, and P. S. Cremer, *J. Am. Chem. Soc.* **137**(24), 7785 (2015); <https://doi.org/10.1021/jacs.5b03313>.
52. E. Weichselbaum, M. Osterbauer, D. G. Knyazev, O. V. Batishchev, S. A. Akimov, T. Hai Nguyen, C. Zhang, G. Knor, N. Agmon, P. Carloni, and P. Pohl, *Sci. Rep.* **7**(1), 4553 (2017); <https://doi.org/10.1038/s41598-017-04675-9>.
53. E. Weichselbaum, T. Galimzyanov, O. V. Batishchev, S. A. Akimov, and P. Pohl, *Biomolecules* **13**(2), 352 (2023).
54. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, 3rd ed., Academic Press, N.Y. (2008).
55. O. Bouevitch, A. Lewis, I. Pinevsky, J. P. Wuskell, and L. M. Loew, *Biophys. J.* **65**(2), 672 (1993); [https://doi.org/10.1016/S0006-3495\(93\)81126-3](https://doi.org/10.1016/S0006-3495(93)81126-3).
56. M. N. Shneider, A. A. Voronin, and A. M. Zheltikov, *Phys. Rev. E* **81**(3), 031926 (2010); <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.81.031926>.
57. T. Pons, L. Moreaux, O. Mongin, M. Blanchard-Desce, and J. Mertz, *J. Biomed. Opt.* **8**(3), 428 (2023); <https://doi.org/10.1117/1.1581871>.
58. L. Moreaux, O. Sandre, and J. Mertz, *JOSA B* **17**(10), 1685 (2000); <https://doi.org/10.1364/JOSAB.17.001685>.

59. J. Jiang, K.B. Eienthal, and R. Yuste, *Biophys. J.* **93**(5), L26 (2007); <https://doi.org/10.1529/biophysj.107.111021>.
60. M.A. Kriech and J.C. Conboy, *J. Am. Chem. Soc.* **127**(9), 2834 (2005); <https://doi.org/10.1021/ja0430649>.
61. T.T. Nguyen and J.C. Conboy, *Anal. Chem.* **83**(15), 5979 (2011); <https://doi.org/10.1021/ac2009614>.
62. M. Flörsheimer, C. Brillert, and H. Fuchs, *Langmuir* **15**(17), 5437 (1999); <https://doi.org/10.1021/la9815603>.
63. K.A. Smith and J.C. Conboy, *Anal. Chem.* **84**(19), 8122 (2012); <https://doi.org/10.1021/ac301290e>.
64. D. Roesel, M. Eremchev, T. Schönfeldova, S. Lee, and S. Roke, *Appl. Phys. Lett.* **120**(16), 160501 (2022); <https://doi.org/10.1063/5.0085807>.
65. S. Ong, X. Zhao, and K.B. Eienthal, *Chem. Phys. Lett.* **191**(3), 327 (1992); [https://doi.org/10.1016/0009-2614\(92\)85309-X](https://doi.org/10.1016/0009-2614(92)85309-X).
66. K.B. Eienthal, *Chem. Rev.* **96**(4), 1343 (1996); <https://doi.org/10.1021/cr9502211>.
67. L.B. Dreier, C. Bernhard, G. Gonella, E.H.G. Backus, and M. Bonn, *J. Phys. Chem. Lett.* **9**(19), 5685 (2018); <https://doi.org/10.1021/acs.jpcllett.8b02093>.
68. C. Macias-Romero, M.E.P. Didier, P. Jourdain, P. Marquet, P. Magistretti, O.B. Tarun, V. Zubkovs, A. Radenovic, and S. Roke, *Opt. Express* **22**(25), 31102 (2014); <https://doi.org/10.1364/OE.22.031102>.
69. M. Eremchev, D. Roesel, P.-M. Dansette, A. Michailovas, and S. Roke, *Biointerphases* **18**(3), 031202 (2023); <https://doi.org/10.1116/6.0002640>.
70. M. Eremchev, D. Roesel, C.S. Poojari, A. Roux, J.S. Hub, and S. Roke, *Biophys. J.* **S0006-3495**(23), 00034 (2023); <https://doi.org/10.1016/j.bpj.2023.01.018>.
71. O.B. Tarun, C. Hanneschläger, P. Pohl, and S. Roke, *Proc. Natl. Acad. Sci.* **115**(16), 4081 (2018); <https://doi.org/10.1073/pnas.1719347115>.
72. O.B. Tarun, M.Yu. Eremchev, A. Radenovic, and S. Roke, *Nano Lett.* **19**(11), 7608 (2019); <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.9b02024>.
73. D. Roesel, M. Eremchev, C.S. Poojari, J.S. Hub, and S. Roke, *J. Am. Chem. Soc.* **144**(51), 23352 (2022); <https://doi.org/10.1021/jacs.2c08543>.
74. O.B. Tarun, H.I. Okur, P. Rangamani, and S. Roke, *Commun. Chem.* **3**(1), 17 (2020); <https://doi.org/10.1038/s42004-020-0263-8>.
75. Gh.M. Sharifian, *Mol. Pharm.* **18**(6), 2122 (2021); <https://doi.org/10.1021/acs.molpharmaceut.1c00009>.
76. И. Ю. Еремчев, Д. В. Прокопова, Н. Н. Лосевский, И. Т. Мынжасаров, С. П. Котова, А. В. Наумов, *Успехи физических наук* **192**(6), 663 (2022).
77. И. Ю. Еремчев, М. Ю. Еремчев, А. В. Наумов, *Успехи физических наук* **189**(3), 312 (2019); <https://doi.org/10.3367/UFNr.2018.06.038461>.
78. C. Macias-Romero, I. Nahalka, H.I. Okur, and S. Roke, *Science* **357**(6353), 784 (2017); <https://doi.org/10.1126/science.aal4346>.
79. G. Zwaschka, I. Nahalka, A. Marchioro, Y. Tong, S. Roke, and R.K. Campen, *ACS Catal.* **10**(11), 6084 (2020); <https://doi.org/10.1021/acscatal.0c01177>.
80. M.E.P. Didier, O.B. Tarun, P. Jourdain, P. Magistretti, and S. Roke, *Nat. Commun.* **9**(1), 5287 (2018); <https://doi.org/10.1038/s41467-018-07713-w>.
81. О. В. Седельникова, Л. Г. Булушева, А. В. Окотруб, Ю. В. Першин, *Письма в ЖЭТФ* **103**(4), 269 (2016).
82. O.B. Tarun, M.Y. Eremchev, and S. Roke, *Langmuir* **34**(38), 11305 (2018); <https://doi.org/10.1021/acs.langmuir.8b01790>.

К вопросу об электрической площади электромагнитного импульса

А. В. Богацкая, А. М. Попов¹⁾

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

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 6 июля 2023 г.

После переработки 17 июля 2023 г.

Принята к публикации 20 июля 2023 г.

Анализируется распространение ультракоротких электромагнитных импульсов с ненулевой электрической площадью в плазменных средах. В рамках приближения однонаправленного распространения электромагнитного импульса в одномерной геометрии получено уравнение для его площади. Показано, что эта площадь не является инвариантом движения и может как уменьшаться, так и увеличиваться в процессе распространения импульса в зависимости от свойств плазменной среды.

DOI: 10.31857/S1234567823160115, EDN: iwkcfl

Введение. Прогресс техники генерации ультракоротких импульсов в различных частотных диапазонах [1–6] сделал вновь актуальным вопрос о возможности получения (квази)униполярных импульсов, или импульсов с ненулевой электрической площадью. Электрическая площадь импульса, как интеграл от электрического поля по времени

$$S_T(\mathbf{r}) = \int E(\mathbf{r}, t) dt \quad (1)$$

была впервые введена в [7]. Ненулевое значение электрической площади импульса означает наличие у импульса статической компоненты электрического поля, что приводит к однонаправленному воздействию таких импульсов на заряженные частицы и может быть использовано в ряде практических приложений, в частности спектроскопии ударного-импульсного воздействия на микрообъекты [8–10]. Действительно, для достаточно короткого импульса интеграл (1) определяет импульс, переданный системе (например, электрону в атоме, молекуле, или квантовой точке), величина которого определяет ее последующую динамику [8, 11, 12]. С другой стороны, (квази)униполярные импульсы обладают большой спектральной шириной, что может быть использовано в задачах широкополосной спектроскопии [13].

Различные способы генерации (квази)униполярных импульсов анализировались в [14–23].

Особый интерес в задаче распространения (квази)униполярных импульсов в различных (в том числе диссипативных) средах вызывает также

возможность использования площади импульса (1), как интеграла движения, сформулированная в [24]. Такую возможность, очевидно, можно обсуждать только в приближении одномерной геометрии. Действительно, в трехмерной, 3D, геометрии дифракционное расплывание пучка быстро “вымывает” из него низкочастотные компоненты, что достаточно быстро превращает униполярный импульс в биполярный даже при распространении в вакууме. В качестве примера на рис. 1 приведены результаты

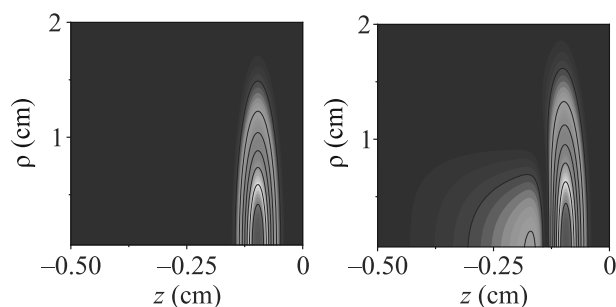


Рис. 1. (Цветной онлайн) 3D пространственные распределения абсолютного значения электрического поля в импульсе: начальное распределение (а), после распространения на длине 3 см (б). Линии уровня нормированы на максимальное значение электрического поля в импульсе

расчета движения униполярного импульса в вакууме и превращения его в биполярный с образованием длинного “хвоста” противоположной полярности по отношению к лидирующему пику. Начальный импульс в (ρ, z) -геометрии характеризуется гауссовым распределением

¹⁾e-mail: alexander.m.popov@gmail.com

$$E(z, \rho, 0) = E_0 \times \exp(-(\rho/\rho_0)^2) \times \exp\left(-\frac{1}{2}(z/z_0)^2\right), \quad (2)$$

где параметры ρ_0 и z_0 выбраны как $\rho_0 = 1.0$ см, $z_0 = 0.025$ см. Пространственный размер z_0 фактически определяет длительность импульса $\tau_p = 2z_0/c \approx 1.67$ пс, что, в свою очередь, определяет его спектральную ширину $\Delta\Omega \sim 2\pi/\tau_p \sim 4 \cdot 10^{12}$ с⁻¹. При этом расчеты показали, что площадь импульса быстро убывает в процессе распространения и на удалении $L = 3$ см от начальной точки падает примерно вдвое.

Другая ситуация реализуется в одномерном случае: любая функция от запаздывающего (опережающего) аргумента $\zeta = z \mp ct$ (здесь c – скорость распространения волны) является решением волнового уравнения второго порядка. Очевидно, в такой ситуации площадь импульса (1), которую мы в дальнейшем будем называть временной площадью с точностью до постоянной величины, равной скорости распространения волны, совпадает с пространственной площадью импульса

$$S_z(t) = \int E(z, t) dz, \quad (3)$$

введенной в [21, 22], и не меняется в процессе распространения импульса. Отметим, что похожий режим распространения импульса с сохраняющейся площадью может быть также реализован в волноводе, обладающим неодносвязной внутренней областью (например, цилиндрический коаксиал с идеально проводящими стенками) [25]. Действительно, в таком волноводе помимо обычных ТЕ и ТМ волн, характеризующихся определенными законами дисперсии и низкочастотной отсечкой по частоте, оказывается возможным еще распространение так называемой главной волны, частота которой не ограничена никакими условиями, а частотная дисперсия отсутствует [26]. Это позволяет обеспечить распространение в таком волноводе импульсов с произвольным частотным спектром, в том числе имеющим статическую компоненту.

Вопрос о сохранении площади импульса при его движении в произвольной среде является более сложным. Как пространственная, так и временная площади импульса легко могут быть рассчитаны по известному решению волнового уравнения. Однако в ряде случаев оказывается возможным получить уравнения непосредственно для площади импульса, что существенно упрощает анализ процесса распространения (квази)униполярных импульсов в пространстве.

В данной работе мы ограничимся анализом эволюции временной и пространственной площадей импульса при распространении униполярного импульса в плазменных средах в одномерной геометрии. В рамках приближения однонаправленного распространения импульса получено общее уравнение для его площади (как пространственной, так и временной). Полученные решения этого уравнения могут быть использованы для анализа импульсного возбуждения различных систем. Также показано, что электрическая площадь импульса, вообще говоря, не является интегралом движения.

Приближение однонаправленного распространения импульсов. Мы будем исходить из волнового уравнения для линейно поляризованного электрического поля волны, распространяющейся в среде:

$$\frac{\partial^2 E(z, t)}{\partial z^2} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E(z, t)}{\partial t^2} + \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial j}{\partial t}. \quad (4)$$

Здесь $j = j(E)$ – токи (поляризации или проводимости), индуцированные в среде распространяющимся импульсом. Мы полагаем задачу нерелятивистской, а среду немагнитной, поэтому вкладом магнитного поля в наведенные токи пренебрегаем. Перепишем уравнение в виде

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t}\right) \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t}\right) E(z, t) = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial j}{\partial t}. \quad (5)$$

В отсутствие токов (вакуум) имеем решение, например, в виде импульса, распространяющегося в положительном направлении оси z :

$$E(z, t) = f(z - ct), \quad (6)$$

где f – произвольная функция. Тогда в приближении малых токов, индуцируемых в среде, правая часть в уравнении (5) почти равна нулю. Поэтому $\left(\frac{\partial E}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial E}{\partial t}\right) \cong 0$, а, следовательно, $\left(\frac{\partial E}{\partial z} - \frac{1}{c} \frac{\partial E}{\partial t}\right) \cong -2\frac{1}{c} \frac{\partial E}{\partial t}$. В результате имеем приближенное уравнение

$$\frac{2}{c} \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t}\right) E \approx -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial j}{\partial t}, \quad (7)$$

откуда, выполняя интегрирование по времени и полагая константу интегрирования равной нулю, имеем:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t}\right) E(z, t) = -\frac{2\pi}{c} j(z, t). \quad (8)$$

Уравнение (8) и есть уравнение однонаправленного распространения электромагнитного импульса, полученное ранее в [27–29]. Умножая уравнение (8) на

величину напряженности поля $E(z, t)$, получим соотношение

$$c \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) \frac{E^2(z, t)}{4\pi} = -j(z, t)E(z, t). \quad (9)$$

Уравнение (9) фактически дает закон сохранения энергии: в левой части стоит изменение плотности энергии поля волны, а в правой – джоулево энерговыделение.

Общее выражение для тока, индуцированного в пространственно однородной среде, может быть записано в виде

$$j(z, t) = \int_0^\infty \tilde{\sigma}(\tau) E(z, t - \tau) d\tau, \quad (10)$$

где $\tilde{\sigma}$ – функция отклика. Для простейшей модели плазмы, как электронного газа с плотностью n_e , испытывающего упругие столкновения с частотой ν_{tr} , эта функция отклика записывается в виде [30]

$$\tilde{\sigma}(\tau) = \frac{e^2 n_e}{m} \exp(-\nu_{tr} \tau), \quad (11)$$

здесь m , e – масса и заряд электрона. Функция отклика (11) связана с высокочастотной проводимостью плазмы

$$\sigma = \frac{e^2 n_e}{m(\nu_{tr} - i\omega)} \quad (12)$$

через фурье-преобразование.

Как было отмечено ранее, условием применимости полученного уравнения (8) является малость наведенных токов по сравнению со скоростью изменения поля, например,

$$j \ll \frac{1}{2\pi} \left| \frac{\partial E}{\partial t} \right|. \quad (13)$$

Оценим наведенный ток j как $j = \sigma E$, σ – проводимость плазмы. Тогда, полагая, что $\partial E / \partial t \sim \omega E$, из (13) получим

$$\frac{2\pi\sigma}{\omega} \ll 1. \quad (14)$$

Вспоминая общую связь между диэлектрической проницаемостью и проводимостью, $\varepsilon = 1 + i4\pi\sigma/\omega$, получаем, что условие (14) означает $|\varepsilon - 1| \ll 1$. Заметим, однако, что условие (14) не может быть использовано для анализа применимости приближения для униполярных импульсов, имеющих ненулевую статическую компоненту. В этом случае оценим $\partial E / \partial t \sim E/\tau_p$, τ_p – длительность импульса. Тогда приближение однонаправленного распространения справедливо, если

$$\alpha = 2\pi\sigma\tau_p \ll 1. \quad (15)$$

Уравнения для временной и пространственной площадей импульса и их решения.

Общее уравнение (8) позволяет легко получить уравнения для пространственной и временной площадей импульса. Так, интегрируя (8) по пространственной координате и учитывая, что на конечных временах импульс локализован в ограниченной области пространства, т.е. $E(+\infty, t) = E(-\infty, t) = 0$, получим интегральное уравнение для эволюции во времени пространственной площади импульса, распространяющегося в пространственно однородной плазме:

$$\frac{dS_Z(t)}{dt} + 2\pi \int_0^{+\infty} \tilde{\sigma}(\tau) S_Z(t - \tau) d\tau = 0. \quad (16)$$

Для временной площади импульса получается несколько иначе. Интегрируя уравнение (8) по времени, получаем

$$\frac{dS_T(z)}{dz} = -\frac{2\pi}{c} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} \tilde{\sigma}(\tau) E(z, t - \tau) d\tau, \quad (17)$$

откуда, меняя местами очередность интегрирования, находим

$$\begin{aligned} \frac{dS_T(z)}{dz} &= -\frac{2\pi}{c} \int_0^{+\infty} d\tau \tilde{\sigma}(\tau) \int_{-\infty}^{+\infty} E(z, t - \tau) dt = \\ &= S_T(z) \frac{2\pi}{c} \int_0^{+\infty} \tilde{\sigma}(\tau) d\tau. \end{aligned} \quad (18)$$

Уравнение (18) имеет общее решение для произвольной функции отклика:

$$S_T(z) = S_T(z=0) \exp \left(-\frac{2\pi}{c} z \int_0^{+\infty} \tilde{\sigma}(\tau) d\tau \right). \quad (19)$$

Например, для модели плазмы, описываемой в рамках (11), решение (19) дает

$$S_T(z) = S_T(z=0) \exp \left(-\frac{2\pi\sigma_0}{c} z \right). \quad (20)$$

Здесь $\sigma_0 = \frac{e^2 n_e}{m\nu_{tr}}$ – статическая проводимость плазмы. Как видно, в результате диссипации энергии площадь импульса убывает во времени. При этом, с учетом (15), выражение (20) справедливо, если площадь импульса мало меняется на длине распространения, равной пространственной длительности импульса $l = c\tau_p$. Действительно, длина релаксации площади импульса есть $L = \frac{c}{2\pi\sigma_0} = l/\alpha \gg l$.

Отметим также, что в рассматриваемом случае временная площадь импульса может быть вычислена

и для пространственно неоднородной плазмы, например, с изменяющейся по z электронной плотностью. В этом случае

$$S_T(z) = S_T(z=0) \exp\left(-\frac{2\pi}{c} \int_0^z \sigma_0(z) dz\right). \quad (21)$$

Остановимся теперь на анализе площади импульса, распространяющегося в неравновесной плазме, созданной в газе фемтосекундным лазерным импульсом УФ диапазона частот. Такую плазму в [31] было предложено использовать как среду для усиления электромагнитных импульсов терагерцового диапазона частот, а также для получения униполярных импульсов пикосекундной длительности [21, 22]. При этом режим усиления оказывается возможен, если для атомов (молекул) газовой среды существует интервал энергий, в котором транспортное сечение рассеяния растет с увеличением энергии, причем положение пика электронов, возникающих при многофотонной ионизации, находится внутри этого интервала. Наличие минимума Рамзауэра в транспортном сечении рассеяния легко обеспечивает такую ситуацию при ионизации тяжелых инертных газов излучением эксимерных лазеров: например, при трехфотонной ионизации атомов ксенона излучением эксимерного KrF лазера положение фотоэлектронного пика соответствует энергии $E_0 \cong 2.87$ эВ, т.е. как раз примерно в середине интервала энергий с возрастающим сечением. Функция отклика $\tilde{\sigma}(\tau)$ в такой плазме была получена в [30] в рамках кинетической теории, основанной на уравнении Больцмана:

$$\tilde{\sigma}(\tau) = \frac{4\pi e^2 n_e}{3m} \int \nu^3 \left(-\frac{\partial f_0}{\partial \nu}\right) \exp(-\nu_{tr}(\nu)\tau) d\nu, \quad (22)$$

где функция распределения электронов по абсолютному значению скорости (ФРЭС) $f_0(\nu)$ нормирована согласно условию

$$4\pi \int f_0(\nu) \nu^2 d\nu = 1. \quad (23)$$

Выражение (21) справедливо для стационарной по времени ФРЭС. Это условие хорошо выполнено для атомов инертных газов, поскольку релаксация ФРЭС происходит на временах $\sim (M/2m)\nu_{tr}^{-1}$ (M – масса атома), в то время как время памяти отклика в (9), (10) составляет несколько ν_{tr}^{-1} . В молекулярных газах, например, в азоте, или воздухе, ситуация оказывается более сложной: быстрая релаксация ФРЭС на колебательных возбуждениях молекул азота приводит к необходимости учитывать ее нестационарность в (22) (более подробно см. [30]).

Отметим, что именно интервал скоростей с положительной производной по скорости от ФРЭС может обеспечить отрицательное значение функции отклика и реализацию режима усиления. В предположении δ -образного пика в спектре фотоэлектронов $f_0(v) \sim \delta(v - v^*)$ выражение (22) легко преобразуется к виду:

$$\tilde{\sigma}(\tau) = \frac{e^2 n_e}{m} \exp(-\nu_0 \tau) \left(1 - \frac{1}{3} v^* \tau \frac{d\nu_{tr}}{dv} \Big|_{v=v^*}\right). \quad (24)$$

Здесь $v^* = \sqrt{2E_0/m}$ – скорость электронов, соответствующая энергии пика E_0 , а $\nu_0 = \nu_{tr}(v^*)$ – значение транспортной частоты при скорости электрона равной v^* . Для ксенона в области растущего сечения [30] $\sigma_{tr}(v) \sim v^4$. Поэтому $\nu_{tr}(v) = \nu_0(v/v^*)^\alpha$, $\alpha = 5$. Для аргона [32] $\alpha = 3$ (линейный с энергией рост сечения). Для рассматриваемых степенных зависимостей из (23) имеем:

$$\tilde{\sigma}(\tau) = \frac{e^2 n_e}{m} \exp(-\nu_0 \tau) \left(1 - \frac{\alpha}{3} \nu_0 \tau\right). \quad (25)$$

Эти зависимости для плазмы ксенона и аргона приведены на рис. 2.

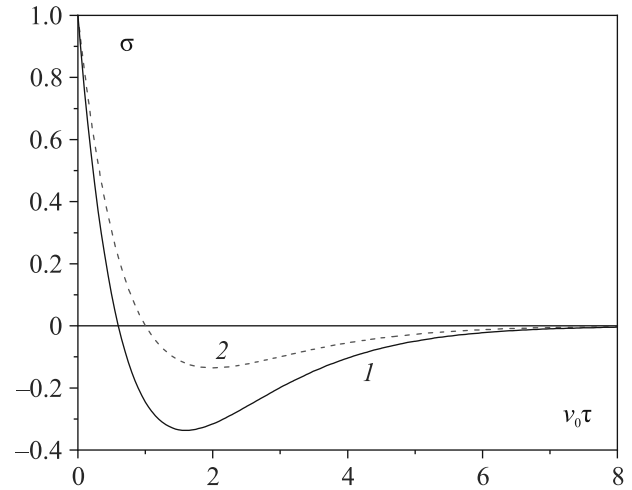


Рис. 2. (Цветной онлайн) Функции отклика для плазмы ксенона, $\alpha = 5$ (1) и аргона, $\alpha = 3$ (2)

Использование уравнения (18) дает возможность определить значение временной площади импульса в рассматриваемом режиме. Поскольку

$$\int_0^\infty \tilde{\sigma}(\tau) d\tau = \frac{e^2 n_e}{m \nu_0} \left(1 - \frac{\alpha}{3}\right), \quad (26)$$

находим

$$\tilde{S}(z) = \tilde{S}_0 \exp\left(-\frac{2\pi\sigma_0}{c} z(1 - \alpha/3)\right). \quad (27)$$

Как видно, площадь импульса не является постоянной величиной: она может как убывать, так и возрасти по мере движения импульса. Так, увеличение площади импульса возможно при достаточно быстром возрастании транспортной частоты ν_{tr} со скоростью ($\alpha > 3$), в то время как в противоположном случае ($\alpha < 3$) площадь импульса будет убывать. Особая ситуация возникает при $\alpha = 3$ (такой случай может быть реализован как раз в аргоне): импульс распространяется в среде с заданной (неизменной) электрической площадью.

Полученные нами условия возрастания электрической площади импульса оказываются тождественными условиям усиления терагерцового (ТГц) сигнала в неравновесном фотоионизационном плазменном канале в инертных газах, сформулированным в [32].

В отличие от временной, пространственная площадь импульса $S_Z(t)$ может быть получена как решение интегрального уравнения (16) только для случая пространственно однородной плазмы. При выполнении условия (15) решение интегрального уравнения (16) записывается в виде

$$S_Z(t) = S_Z(t=0) \exp(-\gamma t), \quad (28)$$

где с точностью до малых членов порядка σ_0/ν_0 коэффициент γ есть $\gamma \approx 2\pi\sigma_0$ для отклика, заданного с помощью (11), и $\gamma \approx 2\pi\sigma_0(1 - \alpha/3)$ для отклика, заданного с помощью (25). Такое совпадение пространственной и временной площадей импульса не является случайным. Действительно, условие применимости приближения однонаправленного распространения фактически означает, что показатель преломления среды лишь немного отличается от единицы (см. (14) и (15)). Это означает, что импульс в плазменной среде распространяется почти со скоростью света в вакууме, что и приводит к одинаковому закону изменения площадей.

Заметим, что уравнения (16) и (18) всегда имеют также нулевые решения. В рамках предложенной модели, если начальный импульс характеризовался нулевой (пространственной или временной) площадью, такой же она и останется в процессе его распространения. Это означает, что сам процесс генерации (квази)униполярных не может быть рассмотрен в рамках рассматриваемой модели. Действительно, импульс, имеющий нулевую электрическую площадь, в процессе распространения может превратиться в (квази)униполярный в результате некоторого нелинейного процесса, когда начальный биполярный импульс, имеющий короткий и интенсивный всплеск поля одной направленности поля и длинный “хвост” с противоположной направленностью, проходит через среду,

в которой усиление определяется мгновенным значением напряженности поля в волне. Также может оказаться, что достаточно интенсивный биполярный импульс в процессе распространения изменяет свойства среды, так что усиливается лишь его передняя часть, в то время как задний фронт поглощается [22]. Свойства среды могут изменяться и безотносительно распространяющегося импульса, что также может приводить к формированию импульса с ненулевой площадью. Такая ситуация, например, возможна при распространении ТГц импульса в неравновесной фотоионизационной плазме азота, когда пичковый характер ФРЭС быстро деградирует в процессе возбуждения колебательных состояний молекулы азота, что приводит к потере усиления на длине распространяющегося ТГц импульса [21, 33].

Заключение. Таким образом, в работе в рамках одномерной модели однонаправленного распространения электромагнитных импульсов в стационарных плазменных средах получены уравнения для электрической площади (пространственной или временной) таких импульсов. Показано, что электрическая площадь таких импульсов не является постоянной величиной. Она может как уменьшаться, так и увеличиваться в процессе распространения и определяется функцией отклика плазменной среды. Полученные зависимости, описывающие убывание (возрастание) электрической площади импульса, тесно связаны с изменением энергии импульса при его движении в среде, которое может быть проанализировано с помощью уравнения (9).

Отметим также, что рассмотренный подход может быть использован и для анализа площади импульса, распространяющегося в неионизованных газовых средах. В этом случае функция отклика должна описывать возникающие в среде токи связанных электронов (токи поляризации).

Авторы выражают благодарность О. Г. Косаревой за полезные обсуждения результатов работы. Работа выполнена при поддержке гранта Российского научного фонда # 22-22-00225.

1. T. Seifert, S. Jaiswal, M. Sajadi, G. Jakob, S. Winner, M. Wolf, M. Kläui, and T. Kampfrath, Appl. Phys. Lett. **110**, 252402 (2017).
2. T. Balčiūnas, D. Lorenc, M. Ivanov, O. Smirnova, A. M. Zheltikov, D. Dietze, K. Unterrainer, T. Rathje, G. G. Paulus, A. Baltuška, and S. Haessler, Opt. Express **23**, 15278 (2015).
3. D. Zhang, Y. Bai, Y. Zeng, Y. Ding, Zh. Li, Ch. Zhou, Y. Leng, L. Song, Y. Tian, and R. Li, IEEE Photon. J. **14**(1), 5910605 (2022).

4. Y. Shou, R. Hu, Z. Gong, J. Yu, J. Chen, G. Mourou, X. Yan, and W. Ma, *New J. Phys.* **23**, 053003 (2021).
5. J. Xu, B. Shen, X. Zhang, Y. Shi, L. Ji, L. Zhang, T. Xu, W. Wang, X. Zhao, and Z. Xu, *Sci. Rep.* **8**, 2669 (2018).
6. A. E. Lita, A. J. Miller, and S. W. Nam, *Opt. Express* **16**, 3032 (2008).
7. Е. Г. Бессонов, *ЖЭТФ* **80**, 852 (1981).
8. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, А. В. Пахомов, Н. Н. Розанов, *Письма в ЖЭТФ* **114**(3), 156 (2021).
9. R. Arkhipov, A. Pakhomov, M. Arkhipov, I. Babushkin, A. Demircan, U. Morgner, and N. N. Rosanov, *Opt. Lett.* **44**, 1202 (2019).
10. A. Pakhomov, M. Arkhipov, N. Rosanov, and R. Arkhipov, *Phys. Rev. A* **105**, 043103 (2022).
11. N. Rosanov, D. Tumakov, M. Arkhipov, and R. Arkhipov, *Phys. Rev. A* **104**, 063101 (2021).
12. A. Pakhomov, M. Arkhipov, N. Rosanov, and R. Arkhipov, *Phys. Rev. A* **105**, 043103 (2022).
13. M. Th. Hassan, T. T. Luu, A. Moulet, F. Scheiba, M. A. Silva-Toledo, Sh.-H. Chia, Ph. D. Keathley, Sh. Fang, O. D. Mucke, C. Manzoni, G. Cerullo, G. Cirmi, and F. X. Kärtner, *Nature Photon.* **14**, 629 (2020).
14. M. V. Arkhipov, R. M. Arkhipov, A. V. Pakhomov, I. V. Babushkin, A. Demircan, U. Morgner, and N. N. Rosanov, *Opt. Lett.* **42**, 2189 (2017).
15. A. V. Pakhomov, R. M. Arkhipov, M. V. Arkhipov, A. Demircan, U. Morgner, N. N. Rosanov, and I. Babushkin, *Sci. Rep.* **9**, 7444 (2019).
16. M. I. Bakunov, A. V. Maslov, and M. V. Tsarev, *Phys. Rev. A* **95**, 063817 (2017).
17. M. V. Tsarev and M. I. Bakunov, *Opt. Express* **27**, 5154 (2019).
18. V. V. Kozlov, N. N. Rosanov, C. D. Angelis, and S. Wabnitz, *Phys. Rev. A* **84**, 023818 (2011).
19. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, Н. Н. Розанов, *Квантовая электроника* **50**, 801 (2020).
20. М. В. Архипов, Р. М. Архипов, Н. Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **129**, 1173 (2021).
21. A. V. Bogatskaya, E. A. Volkova, and A. M. Popov, *Phys. Rev. E* **104**, 025202 (2021).
22. A. V. Bogatskaya, E. A. Volkova, and A. M. Popov, *Plasma Sources Sci. Technol.* **30**, 085001 (2021).
23. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, А. В. Пахомов, П. А. Образцов, Н. Н. Розанов, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 10 (2023).
24. Н. Н. Розанов, Р. М. Архипов, М. В. Архипов, *УФН* **188**, 1347 (2018).
25. Н. Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **127**, 960 (2019).
26. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, М. (1982), с. 436.
27. M. Kolesik and J. V. Moloney, *Phys. Rev. E* **70**, 036604 (2004).
28. A. Couairon, O. G. Kosareva, N. A. Panov, D. E. Shipilo, V. A. Andreeva, V. Jukna, and F. Nesa, *Opt. Express* **23**, 31240 (2015).
29. S. V. Sazonov, *Laser Phys. Lett.* **18**, 105401 (2021).
30. A. V. Bogatskaya and A. M. Popov, *Laser Phys. Lett.* **16**, 066008 (2019).
31. А. В. Богацкая, А. М. Попов, *Письма в ЖЭТФ* **97**(7), 453 (2013) [*JETP Lett.* **97**(7), 388 (2013)].
32. A. V. Bogatskaya, A. M. Popov, and I. V. Smetanin, *J. Rus. Las. Research* **35**(5), 437 (2014).
33. A. V. Bogatskaya, E. A. Volkova, and A. M. Popov, *Photonics* **10**(2), 113 (2023).

Квазиклассическое квантование движения частицы в присутствии силы сопротивления, пропорциональной квадрату скорости

С. В. Сазонов¹⁾

Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Московский авиационный институт (Национальный исследовательский университет), 125993 Москва, Россия

Поступила в редакцию 16 июня 2023 г.

После переработки 19 июля 2023 г.

Принята к публикации 19 июля 2023 г.

С использованием подхода типа Калдиरोлы–Канаи рассмотрена квазиклассическая версия одномерного движения частицы в среде, где сила сопротивления пропорциональна квадрату скорости частицы. Исследовано когерентное состояние частицы в случае, когда, помимо силы сопротивления, присутствует постоянная консервативная сила. Показано, что волновой пакет плотности вероятности испытывает квантовое распыление до определенного предела, образуя стационарный распространяющийся профиль. Таким образом, сила сопротивления подавляет квантовые свойства частицы, все больше выделяя с течением времени классические черты в ее движении. Данное обстоятельство позволяет рассматривать такую среду как классический прибор, непрерывно измеряющий состояние частицы. В этой связи ограничение пространственного распыления волновой функции можно интерпретировать как одно из проявлений квантового эффекта Зенона.

DOI: 10.31857/S1234567823160127, EDN: iwmsgm

1. Введение. Процедуры квантования консервативных систем хорошо разработаны и к настоящему времени являются общепринятыми, приводя к согласиям с различными экспериментальными данными. Что же касается квантового описания открытых диссипативных систем, то здесь не все так однозначно. На сегодняшний день существует множество подходов к квантованию движения диссипативных объектов, приводящих к физически разумным результатам [1–14]. Данный вопрос представляется весьма важным. Следует отметить, что корректный учет диссипативных процессов должен согласовываться со вторым началом термодинамики [15, 16]. Кроме того, встречаются ситуации, когда диссипативные процессы играют принципиальную роль в реализации когерентных явлений [17, 18].

Подход, предложенный в [1, 2], обладает тем преимуществом, что при нем оператор эволюции является унитарным. Следовательно, сохраняется квадрат нормы вектора состояния. Как результат, физическая интерпретация волновой функции остается той же, что и в консервативном случае.

С помощью подхода Калдиरोлы–Канаи совершенно квантовое описание движения частицы в вязкой среде, в которой при классическом рассмотрении на частицу действует сила вязкого трения, пропорци-

ональная скорости. В то же время хорошо известно, что данный закон справедлив при относительно малых скоростях. При больших же скоростях становится существенной сила сопротивления среды, пропорциональная квадрату скорости. Настоящая работа посвящена исследованию движения квантовой частицы на основе обобщения метода квантования Калдиролы–Канаи при учете данной силы.

2. Модифицированная модель Калдиролы–Канаи. Вначале рассмотрим одномерное движение классической частицы массы m , описываемое лагранжианом вида

$$L = \frac{m\dot{x}^2}{2} e^{\gamma t + 2\beta x \operatorname{sgn}(\dot{x})}, \quad (1)$$

где x – координата частицы, γ и β – положительные постоянные, соответствующие классической силе вязкого сопротивления, $\operatorname{sgn}(\dot{x})$ – функция сигнатуры скорости, точкой над координатой, как обычно, обозначена производная по времени.

Записав для (1) уравнение Лагранжа $\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{x}} - \frac{\partial L}{\partial x} = 0$ с учетом равенств $d \operatorname{sgn}(\dot{x}) / d\dot{x} = 2\delta(\dot{x})$, $\dot{x}\delta(\dot{x}) = \dot{x}^2\delta(\dot{x}) = 0$, $\dot{x} \operatorname{sgn}(\dot{x}) = |\dot{x}|$, где $\delta(\dot{x})$ – дельта-функция Дирака, получим

$$\ddot{x} + \gamma\dot{x} + \beta|\dot{x}|\dot{x} = 0. \quad (2)$$

Таким образом, лагранжиан (1) порождает классическое уравнение движения (2) частицы при дей-

¹⁾e-mail: sazonov.sergey@gmail.com

ствии сил вязкого трения и сопротивления, описываемых соответственно вторым и третьим слагаемыми в левой части (2).

Пусть теперь в положительном направлении оси x к классической частице приложена также постоянная сила F . При этом выполняется условие неотрицательности скорости частицы: $\dot{x} \geq 0$.

Тогда из лагранжиана

$$L = \frac{m\dot{x}^2}{2} e^{\gamma t + 2\beta x} + F e^{\gamma t} \frac{e^{2\beta x} - 1}{2\beta} \quad (3)$$

будем иметь

$$\ddot{x} + \gamma \dot{x} + \beta \dot{x}^2 = F/m. \quad (4)$$

Данное уравнение справедливо для классической частицы, скорость $v_c = \dot{x}$ которой остается положительной на протяжении всего ее движения. Из (4) легко видеть, что это условие выполняется, если положительна начальная скорость v_0 частицы.

Перейдем к построению гамильтониана $H = p\dot{x} - L$, где канонический импульс

$$p = \partial L / \partial \dot{x} = m\dot{x} e^{\gamma t + 2\beta x}. \quad (5)$$

Тогда отсюда и из (3) найдем

$$H = e^{-\gamma t} \frac{p^2}{2m} e^{-2\beta x} - F e^{\gamma t} \frac{e^{2\beta x} - 1}{2\beta}. \quad (6)$$

Следуя процедуре канонического квантования и работе [2], заменим канонический импульс p и координату x соответствующими эрмитовыми операторами $\hat{p}$ и $\hat{x}$ со стандартным коммутационным соотношением $[\hat{x}, \hat{p}] = i\hbar$, где $\hbar$ – постоянная Планка. Тогда в координатном представлении имеем, как обычно, $\hat{p} = -i\hbar \partial / \partial x$ и $\hat{x} = x$.

Так как импульс, а вместе с ним и скорость теперь стали операторами, то из-за квантовых флуктуаций классическое условие положительности скорости частицы может нарушаться. Однако, если сразу пользоваться квазиклассическим приближением Вентцеля–Крамерса–Бриллюэна (ВКБ) [19], то условие $v_c > 0$ следует дополнить неравенством

$$v_c \gg \Delta v_c, \quad (7)$$

где Δv_c – квантовая неопределенность скорости.

Ниже мы еще вернемся к данному неравенству.

При построении с помощью (6) оператора Гамильтона $\hat{H}$ необходимо учесть, что оператор $\hat{p}$ не коммутирует с функцией $e^{-2\beta x}$. Следовательно, возникает проблема упорядочения операторов в (6). Здесь необходимо удовлетворить двум условиям: эрмитовости оператора $\hat{H}$ и унитарности оператора

эволюции. Условию эрмитовости удовлетворяет замена $p^2 e^{-2\beta x} \rightarrow \hat{p} e^{-2\beta x} \hat{p}$. Отсюда и из (6) приходим к оператору Гамильтона

$$\hat{H} = \frac{e^{-\gamma t}}{2m} \hat{p} e^{-2\beta x} \hat{p} - F e^{\gamma t} \frac{e^{2\beta x} - 1}{2\beta}. \quad (8)$$

Соответствующее уравнение Шредингера для волновой функции $\psi(x, t)$ в координатном представлении имеет вид

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2m} e^{-\gamma t} \frac{\partial}{\partial x} \left(e^{-2\beta x} \frac{\partial \psi}{\partial x} \right) - F e^{\gamma t} \frac{e^{2\beta x} - 1}{2\beta} \psi. \quad (9)$$

Уравнение (9) соответствует квантовому описанию движения частицы, классическая динамика которой описывается уравнением (4). Если заранее считать выполненным условие (7), то можно сказать, что уравнение (9) в квазиклассическом смысле соответствует движению классической частицы в положительном направлении оси x . При этом уравнение движения классической частицы совпадает с уравнением (2).

Легко видеть, что из (9) следует уравнение непрерывности

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial j}{\partial x} = 0, \quad (10)$$

где

$$\rho = |\psi|^2, \quad j = \frac{\hbar}{2mi} e^{-\gamma t - 2\beta x} \left(\psi^* \frac{\partial \psi}{\partial x} - \psi \frac{\partial \psi^*}{\partial x} \right). \quad (11)$$

В результате имеем условие унитарности, усиленное нормировкой, характерной для квантовой механики консервативных систем: $\int_{-\infty}^{+\infty} |\psi|^2 dx = 1$. Таким образом, модифицированный подход Калдираны–Канаи позволяет сохранить интерпретацию функции $\rho(x, t) = |\psi(x, t)|^2$ как плотности вероятности обнаружения частицы в точке с координатой x .

Полагая в (9) $\beta = 0$, приходим к уравнению Шредингера при наличии только силы вязкого трения [11, 20].

3. Квазиклассический волновой пакет. Пусть в начальный момент времени, при $t = 0$, частица, попавшая в среду с сопротивлением, обладает начальной скоростью v_0 , совпадающей по направлению с внешней постоянной силой F . Исследуем динамику квантового волнового пакета $\psi(x, t)$ данной частицы с течением времени. В целях простоты будем считать, что скорость частицы в течение всего процесса настолько велика, что силой вязкого трения можно пренебречь по сравнению с силой сопротивления. Тогда в (9) можно положить $\gamma = 0$.

В силу условия (7) будем искать приближенное решение уравнения (9) с помощью метода ВКБ. Для этого представим волновую функцию в виде [19]

$$\psi = e^{iS/\hbar}, \quad (12)$$

где $S(x, t)$ – комплексное действие, которое в соответствии с методом ВКБ представимо в виде разложения в ряд по степеням постоянной Планка

$$S = S_0 + \sum_{k=1}^{\infty} \hbar^k S_k. \quad (13)$$

Подставляя (12) и (13) в (9) и приравнявая в левой и правой частях коэффициенты при равных степенях $\hbar$, приходим к бесконечной цепочке уравнений

$$\frac{\partial S_0}{\partial t} + \frac{1}{2m} \left(\frac{\partial S_0}{\partial x} \right)^2 e^{-2\beta x} - F \frac{e^{2\beta x} - 1}{2\beta} = 0, \quad (14)$$

$$\begin{aligned} & \frac{\partial S_k}{\partial t} + \frac{1}{m} \frac{\partial S_0}{\partial x} e^{-2\beta x} \frac{\partial S_k}{\partial x} = \\ & = \frac{1}{2m} \left[i \left(\frac{\partial^2 S_{k-1}}{\partial x^2} - 2\beta \frac{\partial S_{k-1}}{\partial x} \right) - Q_k \right] e^{-2\beta x}, \end{aligned} \quad (15)$$

где $k = 1, 2, \dots$, для нечетных и четных значений k функции Q_k имеют соответственно вид

$$Q_k = 2 \sum_{l=0}^{(k-3)/2} \frac{\partial S_{(k+1)/2+l}}{\partial x} \frac{\partial S_{(k-1)/2-l}}{\partial x}, \quad (16)$$

$$Q_k = \left(\frac{\partial S_{k/2}}{\partial x} \right)^2 + 2 \sum_{l=0}^{(k-4)/2} \frac{\partial S_{(k+2)/2+l}}{\partial x} \frac{\partial S_{(k-2)/2-l}}{\partial x}, \quad (17)$$

$$Q_1 = 0, \quad Q_2 = (\partial S_1 / \partial x)^2.$$

Полагая в (14) $S_0(x, t) = \Phi_0(t)e^{2\beta x} + f_0(t)$, будем иметь

$$\left(\dot{\Phi}_0 + 2\beta^2 \Phi_0^2 / m - F / 2\beta \right) e^{2\beta x} + \left(\dot{f}_0 + F / 2\beta \right) = 0.$$

Приравнявая по отдельности к нулю выражения в скобках, после интегрирования получим

$$S_0 = m \frac{v_c e^{2\beta x} - v_0}{2\beta} - \frac{Ft}{2\beta}. \quad (18)$$

Здесь классическая скорость v_c определяется выражением

$$v_c = v_{\infty} \frac{v_0 + v_{\infty} \tanh \beta v_{\infty} t}{v_{\infty} + v_0 \tanh \beta v_{\infty} t}, \quad (19)$$

величина

$$v_{\infty} = \sqrt{\frac{F}{m\beta}} \quad (20)$$

имеет смысл скорости установившегося движения.

После подстановки (18) в (15) для $k = 1$ приходим к уравнению $\partial S_1 / \partial t + v_c \partial S_1 / \partial x = 0$, которое имеет общее решение в виде произвольной функции переменной $x - x_c$, где классическая координата частицы

$$x_c = \frac{1}{\beta} \ln \left(\cosh \beta v_{\infty} t + \frac{v_0}{v_{\infty}} \sinh \beta v_{\infty} t \right). \quad (21)$$

Пусть при $t = 0$ волновой пакет плотности вероятности частицы имеет вид гауссовой функции. Тогда в соответствии с (12) и (13) положим

$$S_1 = i \frac{(x - x_c)^2}{2l_0^2} + b_{10}, \quad (22)$$

где l_0 имеет смысл начальной ширины волнового пакета, а b_{10} – некоторая постоянная.

Теперь сделаем естественное для приближения ВКБ предположение о сильной локализации волнового пакета [21, 22] в окрестности классической траектории частицы. В данном случае это условие запишем в виде

$$\beta l \ll 1, \quad (23)$$

где l – характерная ширина волнового пакета в произвольный момент времени $t \geq 0$.

Смысл условия сильной локализации состоит в том, что плотность вероятности обнаружения частицы отлична от нуля в малой окрестности: $|x - x_c| \sim l$. Очевидно, что в силу квантового распыливания волнового пакета справедливо неравенство $l > l_0$.

Приведенные выше рассуждения позволяют нам пренебречь вторыми слагаемыми в круглых скобках (15). Кроме того, благодаря условию (23), в правых частях (15) совершим приближенную замену

$$\begin{aligned} e^{-2\beta x} & \approx Z_c = e^{-2\beta x_c} = \\ & = [\cosh \beta v_{\infty} t + (v_0 / v_{\infty}) \sinh \beta v_{\infty} t]^{-2}. \end{aligned} \quad (24)$$

Здесь мы также использовали выражение (21).

Резюмируя, перепишем (15) для $k \geq 2$ следующим образом

$$\frac{\partial S_k}{\partial t} + v_c \frac{\partial S_k}{\partial x} = \frac{Z_c}{2m} \left(i \frac{\partial^2 S_{k-1}}{\partial x^2} - Q_k \right). \quad (25)$$

Будем искать решение уравнений (25) в виде

$$S_k = a_k(t)(x - x_c)^2 + b_k(t). \quad (26)$$

Подставляя (26) в (25) с учетом (16), (17) и равенства $\dot{x}_c = v_c$, приходим к уравнениям

$$\dot{a}_k = -\frac{4}{m} Z_c \sum_{l=0}^{(k-3)/2} a_{(k+1)/2+l} a_{(k-1)/2-l} \quad (27)$$

для нечетных k ,

$$\dot{a}_k = -\frac{4}{m} Z_c \left(\frac{a_{k/2}^2}{2} + \sum_{l=0}^{(k-4)/2} a_{(k+2)/2+l} a_{(k-2)/2-l} \right) \quad (28)$$

для четных k ,

$$\dot{k} = \frac{i}{m} Z_c a_{k-1} \quad (29)$$

для всех $k \geq 2$.

Интегрируя последовательно правые части (27)–(29), будем иметь для всех $k \geq 2$

$$\begin{aligned} a_k &= \frac{i}{2l_0^2 \hbar^{k-1}} (-ig)^{k-1}, \\ b_k &= \frac{i}{2(k-1)\hbar^{k-1}} (-ig)^{k-1} + b_{k0}, \end{aligned} \quad (30)$$

где b_{k0} – постоянные интегрирования, а безразмерный параметр

$$g = \frac{\hbar}{ml_0^2 \beta} \frac{\tanh \beta v_\infty t}{v_\infty + v_0 \tanh \beta v_\infty t}. \quad (31)$$

Из (13), (22), (26) и (30), после суммирования рядов, получим

$$i \frac{S}{\hbar} = i \frac{S_0}{\hbar} - \frac{(x - x_c)^2}{2l_0^2(1+ig)} - \frac{1}{2} \ln(1+ig) + \ln A, \quad (32)$$

где постоянная A определяется из условия нормировки.

Подставляя (32) в (12), после использования условия нормировки будем иметь выражение для волновой функции

$$\psi = \frac{1}{\pi^{1/4}} \sqrt{\frac{l_0}{l_0^2 + iq}} e^{i(S_0 - Ft/2)\hbar} \exp \left[-\frac{(x - x_c)^2}{2(l_0^2 + iq)} \right], \quad (33)$$

где

$$q = gl_0^2 = \frac{\hbar}{m\beta} \frac{\tanh \beta v_\infty t}{v_\infty + v_0 \tanh \beta v_\infty t}. \quad (34)$$

Таким образом, в приближении сильной локализации (23) волновая функция частицы сохраняет автомодельный гауссовский вид во все моменты времени.

С помощью (33) стандартным способом [20] легко вычислить неопределенности координаты Δx и канонического импульса Δp частицы в рассматриваемом состоянии: $\Delta x = l/\sqrt{2}$ и $\Delta p = \hbar/\sqrt{2}l$. Тогда для соотношения неопределенностей “координата – канонический импульс” имеем

$$\Delta x \cdot \Delta p = \hbar/2. \quad (35)$$

Итак, в квазиклассическом состоянии (33) данное соотношение неопределенностей принимает минимально возможное значение. Следовательно, можно сказать, что частица находится в когерентном состоянии.

В частном случае, когда сопротивление среды отсутствует ($\beta = 0$), из (34) следует, что $q = \hbar t/m$. Это в точности совпадает с хорошо известным выражением для свободной частицы, распространяющейся в пустоте [19, 23], волновая функция которой неограниченно расплывается в пространстве с течением времени. Данное обстоятельство является важным аргументом в пользу использованного здесь подхода.

Здесь уместно сделать еще одно замечание, касающееся выражения (33). При его выводе суммировались ряды по степеням безразмерного параметра g . Радиус сходимости данных рядов определяется неравенством $g < 1$. Однако рассмотренный выше частный случай $\beta = 0$ показывает, что выражение (33) справедливо для любых положительных значений g . Ситуации, когда сделанные приближения хорошо работают за первоначально очерченными рамками их применимости, не так редки. Например, такое встречается в квантовой теории многочастичных систем, когда суммируются ряды теории возмущений, описываемые фейнмановскими диаграммами различных порядков [24].

Из (33) для плотности вероятности находим

$$\rho = \frac{1}{\sqrt{\pi}l} \exp \left[-\frac{(x - x_c)^2}{l^2} \right], \quad (36)$$

где ширина волнового пакета

$$l = \sqrt{l_0^2 + q^2/l_0^2}. \quad (37)$$

Рассмотрим асимптотический случай больших времен $\beta v_\infty t \gg 1$. В этом пределе для ширины волнового пакета имеем

$$l_\infty = \sqrt{l_0^2 + \left(\frac{\tilde{\lambda}}{\beta l_0} \right)^2}, \quad (38)$$

где приведенная дебройлевская длина волны $\tilde{\lambda}$ частицы определяется через ее начальную $\lambda_0 = \hbar/mv_0$ и конечную λ_∞/mv_∞ дебройлевские длины соотношением

$$\tilde{\lambda} = \frac{\lambda_0 \lambda_\infty}{\lambda_0 + \lambda_\infty}. \quad (39)$$

При наличии внешней силы F , как видно из (19) и (21) при $\beta v_\infty t \gg 1$, имеем $v_c = v_\infty$ и $x = v_\infty t$.

Таким образом, при больших временах волновой пакет плотности вероятности представляет собой стационарный (нерасплывающийся) солитоноподобный домен, который распространяется с постоянной скоростью v_∞ в направлении внешней консервативной силы.

В случае равенства нулю начальной скорости частицы имеем $\lambda_0 = \infty$. Тогда, как видно из (39), в (38) справедлива замена $\tilde{\lambda} \rightarrow \lambda_\infty$.

Нетрудно показать, что при $\beta = 0$, т.е. в присутствии только силы вязкого трения, уравнение (9) обладает точным решением, из которого следуют уже точные, а не приближенные выражения вида (36) и (37). Только теперь в этих выражениях $x_c = (F/m\gamma)(t - \tau)$ и $q = \hbar\tau/m$, где $\tau = (1 - e^{-\gamma t})/\gamma$. При больших временах $\gamma t \gg 1$ имеем приближенно $x_c = Ft/m\gamma$ и $q = \hbar/m\gamma$. Следовательно, здесь, как и в случае силы сопротивления, пропорциональной квадрату скорости частицы, при больших временах для плотности вероятности имеем солитоноподобный домен. При этом его установившаяся ширина $l_\infty = \sqrt{l_0^2 + (\hbar/m\gamma)^2/l_0^2}$.

Как результат, можно констатировать, что силы вязкого трения и сопротивления по отдельности препятствуют квантовому расплыванию волновой функции микрочастицы. В настоящей работе основное внимание уделено именно силе сопротивления, так как процедура канонического квантования типа Калдиролы–Канаи для этого случая, в отличие от случая присутствия силы вязкого сопротивления, насколько известно автору, ранее не проводилась.

Прекращение расплывания волнового пакета при больших временах говорит о том, что сила сопротивления подавляет квантовые свойства частицы, которая с течением времени все больше начинает вести себя, как классический объект. Вязкость и вязкое сопротивление являются понятиями, присущими классической физике. С микроскопической точки зрения сила сопротивления появляется в результате столкновений рассматриваемой частицы с большим количеством других частиц среды. Каждое зафиксированное столкновение можно рассматривать как своеобразный акт измерения, сопровождаемый коллапсом волновой функции. Затем, до следующего столкновения, следует квантовое расплывание волнового пакета и т.д. Регистрация столкновений неявно обеспечивается введением макроскопических (усредненных по большому числу столкновений) понятий вязкости и силы сопротивления. Таким образом, столкновения, порождающие силу сопротивления, препятствуют квантовому расплыванию волновой функции. На макроскопических временных мас-

штабах процесс препятствия квантовому расплыванию волнового пакета является непрерывным и описывается выражениями (34), (36) и (37).

Суммируя сказанное в предыдущем абзаце, распространение микрочастицы в вязкой среде следует рассматривать как непрерывный процесс измерения ее параметров. В частности, речь можно вести об измерении координаты. В результате непрерывное измерение, проводимое над частицей вязкой средой, препятствует неограниченному пространственному расплыванию волновой функции. Это приводит к “замораживанию” квантовой неопределенности координаты частицы. Такое поведение может быть интерпретировано как одно из проявлений квантового эффекта Зенона [25–28].

Пользуясь терминологией, принятой в [29], окружающую вязкую среду можно рассматривать как квазиклассический прибор, измеряющий параметры распространяющейся в ней микрочастицы.

Полагая в (38) $l_\infty \gg l_0$, придем к выражению

$$l_\infty = \frac{\hbar}{m\beta l_0(v_0 + v_\infty)}. \quad (40)$$

Уменьшение установившейся неопределенности l_∞ координаты частицы с увеличением коэффициента сопротивления β (см. (40)) подтверждает вывод о том, что сила сопротивления подавляет квантовые свойства частицы. С увеличением массы и скорости нерелятивистской частицы отчетливее должны проявляться ее классические свойства, что также отражено в выражении (40). Уменьшение начальной неопределенности l_0 координаты частицы приводит, вследствие соотношения Гейзенберга, к увеличению начальной неопределенности импульса, что способствует росту скорости расплывания волнового пакета. Этим качественно объясняется обратно пропорциональная зависимость в (40) установившейся неопределенности l_∞ координаты от ее начальной неопределенности l_0 .

Таким образом, согласно (40), в установившейся ширине l_∞ волнового пакета плотности вероятности содержится память о начальных условиях.

Условие (23) сильной локализации волновой функции использовалось на каждой стадии разложения при суммировании рядов по степеням постоянной Планка. Данный прием позволил аналитически просуммировать ряды и привел в результате к выражению (33) для волновой функции. При этом неучтенными оказались слагаемые, на каждой стадии разложения, удовлетворяющие (23), но которые могли оказаться значимыми на более высоких стадиях. В квантовой теории поля аналогичный

метод суммирования фейнмановских диаграмм называется “лестничным приближением” [24, 30]. В нашем случае данный подход можно оправдать тем, что учет отброшенных слагаемых не может изменить принципиального вывода о формировании стационарных локализованных доменов плотности вероятности. Действительно, переписывая (37) в виде $\beta l_\infty = \sqrt{(\beta l_0)^2 + (\tilde{\lambda}/l_0)^2}$, заметим, что условие (23) аналогично неравенству

$$\tilde{\lambda} \ll l_0. \quad (41)$$

Здесь полезно вернуться к неравенству (7), которое должно выполняться в каждый момент времени. Полагая $v_c = v_0$ и $\Delta v_c = \Delta v_0 \sim \hbar/ml_0$ при $t = 0$, снова приходим к условию (41). Пусть теперь $t \rightarrow \infty$ и $v_0 \ll v_\infty$. Тогда $v_c = v_\infty$ и $\Delta v_c = \Delta v_\infty \sim \hbar/ml_\infty$. Отсюда, а также из (40) будем иметь $\beta l_0 \ll 1$, что представляет собой частный случай условия (23), эквивалентного неравенству (41).

Таким образом, условия (7), (23) и (41) хорошо согласуются между собой и с квазиклассическим приближением.

Согласно (41), можно утверждать, что в квазиклассическом когерентном состоянии (33) длина волны де Бройля рассматриваемой частицы значительно меньше неопределенности ее положения в пространстве в начальный момент времени. Это утверждение совпадает с аналогичным выводом, приведенным в [23] для свободной частицы, распространяющейся в вакууме, а также для частиц, рассеивающихся на внешнем потенциале [31], и для частиц в магнитном поле [32].

Таким образом, условие (23) равносильно определению (41) квазиклассического когерентного состояния и является для такого состояния вполне естественным. Данное обстоятельство является еще одним важным аргументом в пользу физической обоснованности вида волновой функции (33), а значит, и в пользу сделанного выше вывода о том, что сила сопротивления препятствует квантовому распылению волновой функции частицы.

Заметим, что условие квазиклассичности (7) с учетом (20) можно переписать в виде $F \gg \hbar^2 \beta / m l^2$. Из простых физических соображений для β имеем оценку $\beta \sim \sigma n$, σ – эффективное сечение столкновений рассматриваемой молекулы с молекулами среды, n – концентрация молекул среды. Естественно считать, что $\sigma \sim l^2$. Тогда последнее условие запишем в виде

$$F \gg F_{\text{quant}}, \quad (42)$$

где

$$F_{\text{quant}} = \hbar^2 \frac{n}{m}. \quad (43)$$

Неравенство (43) можно рассматривать как еще одно условие применимости к рассмотренной задаче квазиклассического приближения.

Квантовая сила (43) пропорциональна концентрации молекул среды, поэтому она имеет коллективную природу. Это и понятно, так как эта сила связана с сопротивлением движению пробной частицы коллективом молекул среды.

Попадающие в пузырьковые камеры заряженные частицы в отсутствие внешних сил оставляют за собой треки в виде прямолинейных отрезков [33]. Поэтому проведенное выше исследование может рассматриваться как эмпирическая модель, описывающая работу таких классических приборов.

Взяв для концентрации молекул в пузырьковой камере $n \sim 10^{19} \text{ см}^{-3}$, а для массы влетающей в нее α -частицы $m \sim 10^{-23} \text{ г}$, найдем из (43) $F_{\text{quant}} \sim 10^{-11} \text{ мкН}$. С такой силой на α -частицу действует электрическое поле напряженностью $E \sim 10^2 \text{ В/м}$. Это поле порядка электрического поля Земли на ее поверхности. Таким образом для корректности квазиклассического описания напряженность электрического поля, разгоняющего α -частицу в пузырьковой камере, должна значительно превышать напряженность электрического поля Земли.

Неопределенность координаты влетающей в среду α -частицы после первых столкновений становится порядка атомных размеров. Поэтому положим $l_0 \sim 10^{-8} \text{ см}$. Пусть скорость α -частицы перед ее попаданием в среду $v_0 \sim 10^7 \text{ см/с}$, а длина ее трека $x_c \sim 1 \text{ мм}$ [33]. Тогда дебройлевская длина волны на входе $\lambda_0 \sim 10^{-11} \text{ см}$. Взяв $x_c \sim 1/\beta$, для неопределенности координаты у окончания трека из (40) будем иметь оценку $l_\infty \sim x_c \lambda_0 / l_0 \sim 10^{-4} \text{ см}$. При этом условие (23) и равносильное ему в рассмотренном случае условие (41) выполняются с хорошей точностью.

Помимо классических сил сопротивления, порождаемых большим количеством атомов среды, существуют силы трения, имеющие сугубо квантовое происхождение. Это касается, например, силы трения Казимира–Лифшица, возникающей между проводящими пластинами при динамическом эффекте Казимира [34]. Не исключена возможность описания движения пластин с помощью рассмотренной здесь процедуры.

4. Заключение. В настоящей работе предложена каноническая процедура квазиклассического описания одномерного движения частицы в среде, обладающей силами вязкого трения и сопротивле-

ния. При этом сила вязкого трения пропорциональна скорости частицы, а сила сопротивления – квадрату скорости. Данная квазиклассическая процедура обобщает подход Калдиरोлы–Канаи на случай присутствия силы сопротивления и оставляет неизбылемым постулат унитарности оператора эволюции, справедливый в квантовой механике консервативных систем. Соответствующее уравнение Шредингера в координатном представлении при учете постоянной консервативной силы имеет вид (9). С использованием квазиклассического приближения рассмотрено движение частицы при учете только силы сопротивления, пропорциональной квадрату скорости, и внешней консервативной силы. В результате найдена приближенная квазиклассическая волновая функция (33) и показано, что она соответствует когерентному состоянию частицы.

Сила сопротивления препятствует квантовому расплыванию волновой функции. На асимптотической стадии это приводит к конечным установившимся значениям квантовой неопределенности координаты частицы. В результате волновой пакет плотности вероятности преобразуется в движущийся локализованный домен, сохраняющий в своих параметрах (ширине и амплитуде) память о начальных условиях.

“Замораживание” процесса расплывания волновой функции с течением времени позволяет интерпретировать среду с сопротивлением как классический прибор, производящий непрерывное наблюдение за частицей. Здесь же уместной является аналогия с квантовым эффектом Зенона, который проявляет себя в процессе непрерывного измерения стационарного состояния микрообъекта.

В приближении (23) (см. также (41)) волновая функция (33) является автомодельной в сопутствующей системе отсчета. В более общем случае свойство автомодельности нарушится, но при этом область локализации волновой функции должна, благодаря силе сопротивления, остаться конечной. Более точный (количественный) ответ на данный вопрос может дать численный эксперимент с уравнением (9).

В дальнейшем было бы весьма желательно распространить описанный здесь подход на двумерный и трехмерный случаи. При силе сопротивления, пропорциональной квадрату скорости, это является весьма нетривиальной задачей. Ее решение позволило бы, например, эмпирически описать среды с сопротивлением в виде классических приборов в наиболее общем случае.

1. P. Caldirola, *Nuovo Cimento* **18**, 393 (1941).

2. E. Kanai, *Prog. Theor. Phys.* **3**, 440 (1948).
3. V. V. Dodonov and V. I. Man'ko, *Phys. Rev. A* **20**, 550 (1979).
4. K. H. Yeon and C. I. Um, *Phys. Rev. A* **36**, 5287 (1987).
5. B. E. Тарасов, *ТМФ* **100**, 402 (1994) [V. E. Tarasov, *Theor. Math. Phys.* **100**, 1100 (1994)].
6. Б. А. Арбузов, *ТМФ* **106**, 300 (1996) [B. A. Arbuzov, *Theor. Math. Phys.* **106**, 249 (1996)].
7. V. E. Tarasov, *Phys. Lett. A* **288**, 173 (2001).
8. V. E. Tarasov, *Phys. Rev. E* **66**, 056116 (2002).
9. V. G. Kupriyanov, S. L. Lyakhovich, and A. A. Sharapov, *J. Phys. A: Math. Gen.* **38**, 8039 (2005).
10. D. M. Gitman and V. G. Kupriyanov, *J. Math. Sciences* **141**, 1399 (2007).
11. J. Guerrero, F. F. Lopez-Ruiz, V. Aldaya, and F. Cossio, *J. Phys.: Conf. Ser.* **284**, 012062 (2011).
12. S. Madjber, S. Menouar, and J. R. Choi, *Entropy* **23**, 837 (2021).
13. V. E. Tarasov, *Ann. Physics* **434**, 056116 (2021).
14. M. C. Parker and C. Jeaynes, *Entropy* **25**, 629 (2023).
15. А. М. Башаров, *Оптика и спектроскопия* **128**, 186 (2020) [A. M. Basharov, *Optics and Spectroscopy* **128**, 182 (2020)].
16. А. М. Башаров, *ЖЭТФ* **158**, 978 (2020) [A. M. Basharov, *JETP* **131**, 853 (2020)].
17. С. В. Сазонов, *Письма в ЖЭТФ* **117**, 543 (2023) [S. V. Sazonov, *JETP Lett.* **117**, 540 (2023)].
18. S. V. Sazonov, *Laser Phys. Lett.* **20**, 056001 (2023).
19. В. В. Балашов, В. К. Долинов, *Курс квантовой механики*, НИЦ “Регулярная и хаотическая динамика”, Ижевск (2001).
20. В. В. Додонов, В. И. Манько, О. В. Манько, *Труды ФИАН им. П. Н. Лебедева* **200**, 155 (1991).
21. В. М. Бабич, Ю. П. Данилов, *Зап. научн. сем. ЛОМИ* **15**, 47 (1969).
22. В. Г. Багров, В. В. Белов, И. М. Тернов, *ТМФ* **50**, 390 (1982) [V. G. Bagrov, V. V. Belov, and I. M. Ternov, *Theor. Math. Phys.* **50**, 256 (1982)].
23. В. Г. Багров, Д. М. Гитман, А. С. Перейра, *УФН* **184**, 961 (2014) [V. G. Bagrov, D. M. Gitman, and A. S. Pereira, *Phys.-Uspekhi* **57**, 891 (2014)].
24. Р. Маттук, *Фейнмановские диаграммы в проблеме многих тел*, Мир, М. (1969) [R. D. Mattuk, *A Guide to Feynman Diagrams in the Many-Body Problem*, McGraw-Hill Publishing Company Limited, London (1967)].
25. B. Misra and E. C. G. Sundarshan, *J. Math. Phys.* **18**, 756 (1977).
26. R. J. Cook, *Phys. Scr.* **21**, 49 (1988).
27. K. Molhave and M. Drewen, *Phys. Lett. A* **268**, 45 (2000).
28. O. Hosten, M. T. Rakher, J. T. Barreiro, N. A. Peters, and P. G. Kwiat, *Nature* **439**, 04523 (2006).

29. М. Б. Менский, УФН **173**, 1199 (2003) [M. B. Menskii, Phys.-Uspekhi **46**, 1163 (2003)].
30. H. Bethe and E. Salpeter, Phys. Rev. **84**, 1232 (1951).
31. V. De Alfaro and T. Regge, *Potential Scattering*, North-Holland Publ., Amsterdam (1965).
32. V. G. Bagrov, S. P. Gavrilov, D. M. Gitman, and D. P. Meira Filho, J. Phys. A: Math. Theor. **44**, 055301 (2011).
33. D. Bugg, Progr. Nucl. Phys. **7**, 1 (1959).
34. Г. В. Дедков, Письма в ЖЭТФ **117**, 950 (2023).

Содержание

Том 118, выпуск 3

Поля, частицы, ядра

Родкин Д.М., Чувильский Ю.М. Размеры нейтрон-протонного галло нуклонно-стабильных состояний ядра ${}^6\text{Li}$	147
--	-----

Дербин А.В., Драчнев И.С., Муратова В.Н., Семенов Д.А., Трушин М.В., Унжаков Е.В. Поиск солнечных аксионов с энергией 8.4 кэВ, излучаемых в M1-переходе ядер ${}^{169}\text{Tm}$	154
--	-----

Алексеев И.Г., Белов В.В., Данилов М.В., Житников И.В., Зинатулина Д.Р., Казарцев С.В., Кобякин А.С., Кузнецов А.С., Мачихильян И.В., Медведев Д.В., Нестеров В.М., Пономарев Д.В., Розова И.Е., Румянцева Н.С., Русинов В.Ю., Самигуллин Э.И., Свирида Д.Н., Скробова Н.А., Тарковский Е.И., Философов Д.В., Фомина М.В., Шевчик Е.А., Ширченко М.В., Шитов Ю.А., Яковлева А.Е., Якушев Е.А. Исследование влияния метеорологических параметров на поток космических мюонов с использованием метода эффективного уровня генерации на основе данных детектора DANSS	159
--	-----

Оптика, лазерная физика

Бузулуцков А.Ф., Фролов Е.А. Пересмотр электролюминесценции в благородных жидкостях за счет тормозного излучения электронов на нейтральных атомах	166
---	-----

Плазма, гидро- и газодинамика

Агеев А.И., Осипцов А.Н. Стеканье ручейка неньютоновской жидкости по наклонной супергидрофобной поверхности	171
---	-----

Конденсированное состояние

Макаров А.С. Общетермодинамический подход для описания кинетики тепловых эффектов в высокоэнтропийных аморфных сплавах	177
--	-----

Галахов В.Р., Удинцева М.С., Смирнов Д.А., Макарова А.А., Кюппер К. Спиновые состояния ионов кобальта в объеме и на поверхности LaCoO_3 по рентгеновским абсорбционным, эмиссионным и фотоэлектронным спектрам	185
---	-----

Мартовицкий В.П., Клоков А.Ю., Покровский В.Я. Уникальные структурные особенности ленточных вискероов NbS_3	191
--	-----

Минин О.В., Джоу С., Минин И.В. Генерация гигантских магнитных полей в полой мезоразмерной сфере	197
--	-----

Славов Б., Половников К. Пространственные расстояния внутри скомканного полимера со случайными петлями	204
--	-----

Методы теоретической физики

Abbasov T., Zibrov S., Sherstov I. Surface-electrode ion trap development	212
---	-----

Квантовая информатика

Хисматуллин Г.С., Кленов Н.В., Соловьев И.И. Оптимизация ячеек адиабатических сверхпроводниковых логических устройств за счет использования джозефсоновских π -контактов 214

Содержание

Том 118, выпуск 4

Поля, частицы, ядра

Осипов А.А. Распады $\pi^0, \eta, \eta' \rightarrow \gamma\gamma$ и явное нарушение киральной симметрии	227
---	-----

Оптика, лазерная физика

Колоколов И.В., Лебедев В.В. Вероятность высоких интенсивностей световой волны, распространяющейся в турбулентной атмосфере	234
---	-----

Якимов А.И., Кириенко В.В., Двуреченский А.В., Уткин Д.Е. Обнаружение “медленного” света в спектрах фототока в слоях квантовых точек Ge/Si, сопряженных с фотонным кристаллом	240
---	-----

Ковалец Н.П., Разумовская И.В., Бедин С.А., Наумов А.В. Гигантское комбинационное рассеяние света на поверхностях из плазмонных металлов как метод контроля их функциональных и надмолекулярных структурных характеристик	245
---	-----

Плазма, гидро- и газодинамика

Днестровский Ю.Н., Мельников А.В., Андреев В.Ф., Лысенко С.Е., Нургалиев М.Р., Шалашов А.Г. Поглощение СВЧ-волн при нагреве плазмы на второй гармонике электронно-циклотронного резонанса в токамаках и стеллараторах: линейная теория и эксперимент	252
--	-----

Конденсированное состояние

Подклетнова А.А., Колюшенков М.А., Мясников Н.В., Николаева Е.П., Каминский А.С., Николаев А.В., Пятаков А.П. Эффект “преломления” магнитных доменных границ на электрических неоднородностях	259
---	-----

Екимов Е.А., Николаев С.Н., Кондрин М.В., Кривобок В.С. Влияние эффектов электронного конфайнмента на ширину запрещенной зоны почти монокристаллических слоев EuS_2	263
--	-----

Румянцев Б.В., Пушкин А.В., Потёмкин Ф.В. Генерация гармоник высокого порядка вблизи низкочастотного края плато при нелинейном распространении фемтосекундного лазерного излучения ближнего ИК диапазона с длиной волны 1.24 мкм в плотной струе аргона	270
---	-----

Методы теоретической физики

Volovik G.E. Analog Sommerfeld law in quantum vacuum	280
--	-----

Биофизика

Еремчев М.Ю. Генерация второй гармоники как неинвазивный метод исследования молекулярных процессов на поверхности липидных мембран (Миниобзор)	282
--	-----

Разное

Богацкая А.В., Попов А.М. К вопросу об электрической площади электромагнитного импульса	291
---	-----

Сазонов С.В. Квазиклассическое квантование движения частицы в присутствии силы сопротивления, пропорциональной квадрату скорости	297
---	-----