



Письма
в
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
и
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ
ФИЗИКИ

www.sciencejournals.ru

2023 г. Том 117 вып. 1, стр. 1 – 90

2023 г. Том 117 вып. 2, стр. 91 – 180



РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 117

Выпуск 1

10 января 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>

© Российская академия наук, 2023

© Редколлегия журнала “Письма в ЖЭТФ” (составитель), 2023

Динамические корреляции в основном состоянии: переходы между однофононными состояниями ядра

М. И. Шитов, С. П. Камерджи́ев¹⁾, С. В. Толоконников

Национальный исследовательский центр “Курчатовский Институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 23 октября 2022 г.

После переработки 18 ноября 2022 г.

Принята к публикации 18 ноября 2022 г.

В рамках самосогласованной ядерной теории многих тел и метода функций Грина рассмотрена задача вычисления вероятностей $E1$ -перехода между первыми 2^+ и 3^- возбужденными уровнями в ядрах со спариванием. Впервые расчеты выполнены для длинной цепочки четно-четных изотопов олова. Для расчетов характеристик как фононов, так и $E1$ -переходов между возбужденными состояниями использовался известный энергетический функционал плотности Фаянса. Получено хорошее описание имеющихся экспериментальных данных для приведенных вероятностей $E1$ -переходов между первыми однофононными состояниями для изотопов $^{116-124}\text{Sn}$, но не для изотопов ^{112}Sn и ^{114}Sn . Обсуждаются возможные причины этого несовпадения, наиболее вероятной из которых является появление деформации в основном или возбужденном состояниях. Показано, что учет новых, т.е. динамических трех-квазичастичных корреляций в основном состоянии необходим для объяснения эксперимента в $^{116-124}\text{Sn}$.

DOI: 10.31857/S1234567823010019, EDN: ntopfk

1. Введение. Корреляции в основном состоянии (КОС), или “графики, идущие назад”, давно обсуждаются в литературе по теории ядра. Хорошо известны КОС в рамках стандартного метода хаотических фаз (МХФ) и квазичастичного МХФ (КМХФ). КОС в подходах МХФ и КМХФ содержатся в ядре соответствующего интегрального уравнения, при решении которого возникают много-частичные КОС благодаря двухчастичному взаимодействию между нуклонами ядра. Они автоматически учитываются в решении интегрального уравнения. Обычно их количественный вклад невелик [1, 2] в сферических и деформированных ядрах.

Этот вопрос заметно актуализировался в связи с появлением КОС, в которые включены фононы ядра (КОС-фон), т.е. при учете квазичастично-фононного взаимодействия [3–8]²⁾. Здесь КОС-фон появляются через решение соответствующих интегральных уравнений, включающих фононы и содержащих существенно новые и сложные дополнительные слагаемые по сравнению с уравнениями МХФ или КМХФ. Количественная роль этих КОС заметна и требует специального анализа [3, 5, 6].

Относительно недавно были рассмотрены на самосогласованном уровне так называемые трех- [6] и

четырёх-квазичастичные [9] КОС3 и КОС4, которые появляются от интегрирования трех и четырех одно-частичных функций Грина (ФГ) G и не содержат фононов (без самосогласования и для магических ядер КОС3 рассматривались в работе [10]). В отличие от КОС МХФ и КОС-фон они не входят в ядро интегрального уравнения и, что весьма интересно, зависят от энергии перехода ω . Эти “чистые” (без фононов и вне интегрального уравнения) КОС3 появились при рассмотрении задачи о статических ($\omega = 0$) квадрупольных моментах в первых однофононных 2^+ - [6] и 3^- -состояниях [11] изотопов олова. Было показано, что наблюдаемый эффект есть сумма двух эффектов – “чистых” КОС3 и ядерной поляризуемости, каждый из которых вносит приблизительно одинаковый вклад.

Для физически близкой задачи $E1$ -переходов между указанными первыми однофононными 2^+ и 3^- -состояниями в магических ядрах ^{208}Pb , ^{132}Sn [12] и некоторых изотопов олова [13] были получены похожие результаты, однако наблюдаемый эффект определялся разностью вышеупомянутых двух эффектов. Такие КОС мы называем динамическими КОС3 (передаваемая энергия $\omega \neq 0$ в отличие от “статического” случая $\omega = 0$). Следует подчеркнуть специфику и важность этого класса задач: ответ пропорционален g^2 , где g – амплитуда рождения фонона. Отметим, что во всех указанных случаях получено разумное согласие с имеющимися экспериментальными данными.

¹⁾e-mail: kamerdzhiiev_sp@nrcki.ru

²⁾Под фононами мы понимаем связанные частицу и дырку, т.е. решения МХФ- или КМХФ-уравнений. Они хорошо известны и наблюдаются экспериментально.

Насколько нам известно, только в рамках Квазичастично-Фононной Модели (КМФ) рассматривался $E1$ -переход ($3_1^- \rightarrow 2_1^+$) в одном ядре ^{120}Sn [14] и в $^{120,122,124}\text{Sn}$ в работе [15] и было получено хорошее согласие с экспериментом. Авторы учитывали поляризуемость ядра путем подключения связи с гигантским дипольным резонансом. Этот прием уменьшил величину $B(E1)$ в два раза. При этом, характеристики КМФ-фононов подгонялись под эксперимент путем изменения силовых параметров сепарабельного взаимодействия. Как мы увидим, в [14, 15] динамические КОСЗ не учитывались.

В настоящей работе впервые рассмотрены $E1$ -переходы между первыми однофононными 2^+ и 3^- -состояниями в длинной цепочке изотопов олова, включая динамические КОСЗ. В отличие от [14, 15], использовался единый самосогласованный подход как для фононов, так и для вероятностей $E1$ -перехода между однофононными состояниями. Оказалось, что нам не удалось объяснить имеющиеся экспериментальные данные в нейтронно-дефицитных изотопах ^{112}Sn и ^{114}Sn .

2. КОС в методе функций Грина. По-видимому, наиболее наглядно и полно КОС проявляются в рамках метода ФГ и, следовательно, диаграмм Фейнмана, которые уже исходно содержат два слагаемых. В одночастичном и однофононном приближении одночастичные и однофононная ФГ G , F и D имеют вид:

$$G_\lambda(\varepsilon) = \frac{u_\lambda^2}{\varepsilon - E_\lambda + i\gamma} + \frac{v_\lambda^2}{\varepsilon + E_\lambda - i\gamma} = G^+ + G^-, \quad (1)$$

$$F_1^{(1,2)}(\varepsilon) = -\frac{\Delta_1}{2E_1} \left[\frac{1}{\varepsilon - E_1 + i\delta} + \frac{1}{\varepsilon + E_1 - i\delta} \right] = F^+ + F^-, \quad (2)$$

$$D_s(\omega) = \frac{1}{\omega - \omega_s + i\gamma} - \frac{1}{\omega + \omega_s - i\gamma} = D^+ + D^-, \quad (3)$$

где

$$E_\lambda = \sqrt{(\varepsilon_\lambda - \mu)^2 + \Delta_\lambda^2}, \quad (4)$$

$$u_\lambda^2 = 1 - v_\lambda^2 = (E_\lambda + \varepsilon_\lambda - \mu)/2E_\lambda,$$

μ – химический потенциал и нижние индексы представляют собой наборы квантовых чисел $\lambda \equiv (n_1, l_1, j_1, m_1)$.

Второе слагаемое G^- в ФГ G (1) в случае $\Delta = 0$ описывает дырочную часть G^h и соответствует “графикам, идущим назад” во временном представлении. Вклад вторых слагаемых в (1), (2), (3) обеспечивает появление КОС.

С этой точки зрения, 3 вида КОСов, упомянутых во Введении, можно проиллюстрировать диаграммами Фейнмана для магических ядер, показанными для пропагаторов (5) на рис. 1. Указанные КОС-МХФ и КОС-фон входят в соответствующие интегральные уравнения, в ядре которых, кроме пропагаторов, как правило, содержится двух-частичное взаимодействие между нуклонами. Благодаря этому при итерировании МХФ-уравнения появляются много-частичные КОСы. Как известно, если в уравнениях МХФ или КМХФ не учитывать второе слагаемое на рис. 1 для МХФ, получается метод Тамма-Данкова, который не содержит КОС. При итерировании интегрального уравнения, содержащего фононы, появляются КОС-фон. Как говорится во Введении, КОСЗ не содержатся в интегральном уравнении и не содержат фононов. Отсутствие малого g^2 - параметра обеспечивает большой количественный вклад наших динамических КОСЗ, см. следующий раздел и рис. 2.

$$A_{12}(\omega) = \int (G_1^+ G_2^- + G_1^- G_2^+) \frac{d\varepsilon}{2\pi i},$$

$$A_{12s34}(\omega) = \int G_1 G_2 D_s(\omega) G_3 G_4 \frac{d\varepsilon d\omega_1}{(2\pi i)^2},$$

$$A_{123}(\omega) = \int (G_1 G_2 G_3) \frac{d\varepsilon}{2\pi i}. \quad (5)$$

3. Расчетные формулы. Сравнение с другими подходами. Подробный вывод выражения для амплитуды перехода $M_{ss'}$ между однофононными состояниями s и s' в ядрах со спариванием описан в статье [13] (фононы описываются в рамках МХФ или КМХФ). Амплитуда $M_{ss'}$ содержит 8 слагаемых, показанных в диаграммном представлении на рис. 2 в [13]. После отделения угловых переменных и суммирования по магнитным квантовым числам, получаем следующую формулу для приведенной вероятности перехода $I_s \rightarrow I_{s'}$ с энергией $\omega = \omega_{s'} - \omega_s$:

$$B(E_L) = \frac{1}{2I_s + 1} |\langle I_s || M_L || I_{s'} \rangle|^2, \quad (6)$$

где приведенный матричный элемент $\langle I_s || M_L || I_{s'} \rangle$ определяется выражением

$$\langle I_s || M_L || I_{s'} \rangle = \sum_{123} \left\{ \begin{array}{ccc} I_s & I_{s'} & L \\ j_2 & j_1 & j_3 \end{array} \right\} V_{12} g_{31}^s g_{23}^{s'}$$

$$\left[A_{123}^{(12)} + A_{123}^{(34)} + (-1)^{L+I_s} A_{123}^{(76)} + (-1)^{L+I_{s'}} A_{123}^{(58)} \right]. \quad (7)$$

Здесь для приведенных матричных элементов вершины и фононов использованы обозначения $\langle 1 || V || 2 \rangle = V_{12}$, $\langle 3 || g^s || 1 \rangle = g_{31}^s$ и $\langle 2 || g^{s'} || 3 \rangle = g_{23}^{s'}$.

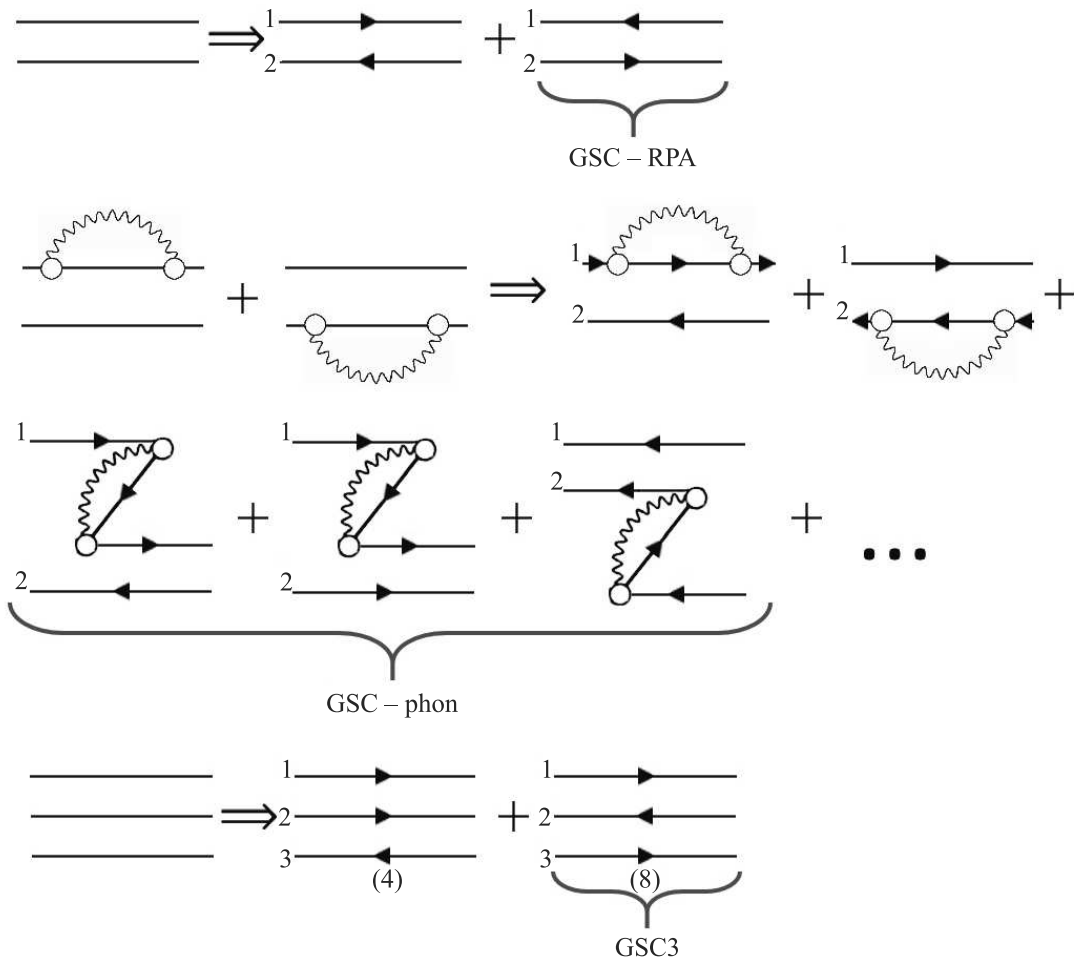


Рис. 1. (Цветной онлайн) Иллюстрация появления КОСов (GSC), упомянутых во Введении. Слева от двойной стрелки символически показаны подынтегральные выражения для трех пропагаторов A_{12} , A_{12s34} [7] и A_{123} [11], входящих в формулы (5). Двойная стрелка показывает что происходит при подстановке в пропагаторы (5) формулы (1) ($G = G^+ + G^-$) для магических ядер, в том числе, при учете графиков, “идущих назад”, т.е. КОС. 1-ая линия содержит КОС-МХФ, 2-ая и 3-я линии содержат КОС-фон в g^2 -приближении (показаны только графики со вставками, включая КОС-фон, 4-я линия содержит 4 обычных слагаемых и 8 слагаемых КОС3 (подробнее см. [11])

Величины $A^{(ik)} = A^{(i)} + A^{(k)}$ представляют собой суммы двух пропагаторов – интегралов от трех $\Phi\Gamma$, соответствующих одному из восьми графиков на рис. 2 в [13]. Сумму пропагаторов в (7) можно записать в виде:

$$\left[A_{123}^{(12)} + A_{123}^{(34)} + (-1)^{L+I_s} A_{123}^{(76)} + (-1)^{L+I_{s'}} A_{123}^{(58)} \right] = \left[\frac{1}{(E_{13} - \omega_s)(E_{23} - \omega_{s'})} + \frac{1}{(E_{13} + \omega_s)(E_{23} + \omega_{s'})} \right] * \left(u_1^2 u_2^2 v_3^2 - v_1^2 v_2^2 u_3^2 + C_{12}(u_3^2 - v_3^2) + (-1)^{L+I_s} C_{13}(u_2^2 - v_2^2) + (-1)^{L+I_{s'}} C_{23}(u_1^2 - v_1^2) \right) + \frac{1}{(E_{12}^2 - \omega^2)} *$$

$$\left[\frac{2(E_{32}E_{12} + \omega\omega_{s'})}{(E_{32}^2 - \omega_{s'}^2)} * (u_1^2 v_2^2 u_3^2 - v_1^2 u_2^2 v_3^2 + C_{12}(u_3^2 - v_3^2)) + \frac{2(E_{32}E_{12} - \omega\omega_{s'})}{(E_{32}^2 - \omega_{s'}^2)} * ((-1)^{L+I_s} C_{13}(u_2^2 - v_2^2) + (-1)^{L+I_{s'}} C_{23}(u_1^2 - v_1^2)) + \frac{2(E_{31}E_{21} - \omega\omega_s)}{(E_{31}^2 - \omega_s^2)} * (v_1^2 u_2^2 u_3^2 - u_1^2 v_2^2 v_3^2 + C_{12}(u_3^2 - v_3^2)) + \frac{2(E_{31}E_{21} + \omega\omega_s)}{(E_{31}^2 - \omega_s^2)} * ((-1)^{L+I_s} C_{13}(u_2^2 - v_2^2) + (-1)^{L+I_{s'}} C_{23}(u_1^2 - v_1^2)) \right]. \quad (8)$$

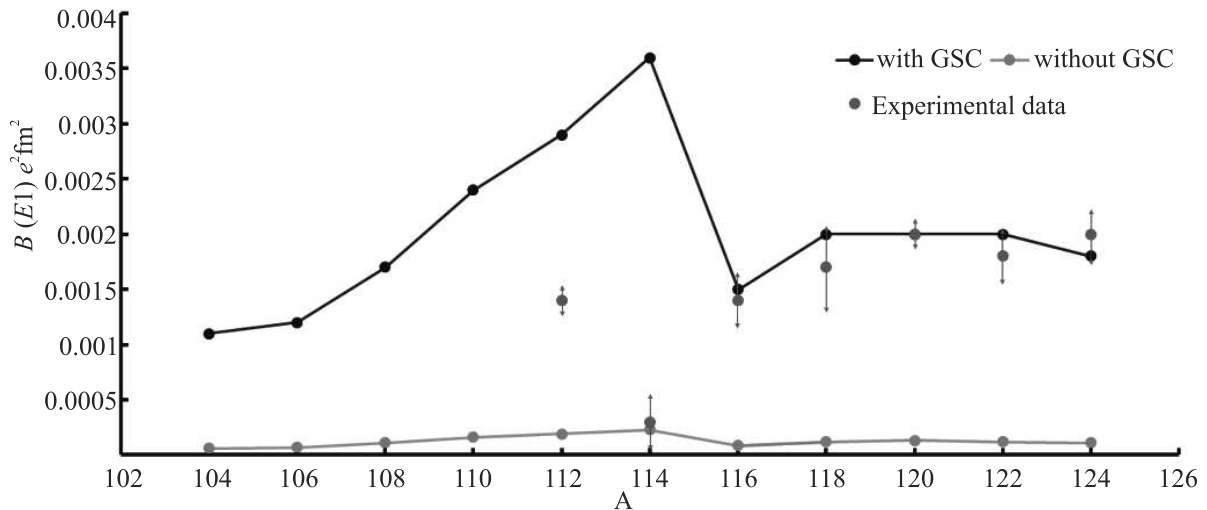


Рис. 2. (Цветной онлайн) Приведенные вероятности перехода между однофононными состояниями $B(E1)(3_1^- \rightarrow 2_1^+)$, $e^2\text{fm}^2$. Приведены результаты расчета без КОСЗ и с КОСЗ. Экспериментальные данные [18, 19]

Первая часть формулы (8) (перед скобкой с множителем $(E_{21}^2 - \omega^2)^{-1}$) соответствует (за исключением фазы) результату, полученному в рамках КФМ [14], формула (9), для переходов между первыми однофононными состояниями. Именно, нетрудно видеть, что в обозначениях КФМ величина $v_{12}^- u_{23}^+ u_{31}^+$ имеет вид:

$$v_{12}^- u_{23}^+ u_{31}^+ = u_1^2 u_2^2 v_3^2 - v_1^2 v_2^2 u_3^2 + C_{12}(u_3^2 - v_3^2) + C_{13}(u_2^2 - v_2^2) + C_{23}(u_1^2 - v_1^2), \quad (9)$$

где

$$C_{12} = \frac{\Delta_1 \Delta_2}{4E_1 E_2}. \quad (10)$$

Скобка с двумя дробями рядом с множителями $v_{12}^- u_{23}^+ u_{31}^+$ соответствует в обозначениях КФМ величине $\psi_{j_2 j_3}^{\lambda_1 i_1} \psi_{j_3 j_1}^{\lambda_2 i_2} - \phi_{j_2 j_3}^{\lambda_1 i_1} \phi_{j_3 j_1}^{\lambda_2 i_2}$, [14], формула (9), так как $\psi_{j_2 j_1}^{\lambda_1 i_1} \sim \frac{u_{j_2 j_3}^+}{\varepsilon_{j_2 j_3} - \omega_{\lambda_1 i_1}}$ и $\phi_{j_2 j_1}^{\lambda_1 i_1} \sim \frac{u_{j_2 j_3}^+}{\varepsilon_{j_2 j_3} + \omega_{\lambda_1 i_1}}$ и коэффициенты в этих величинах соответствуют нашим $V_{12} g_{31}^s g_{23}^s$. Как видно из структуры формулы (8), в эту первую часть частично входят слагаемые, соответствующие всем шести графикам, содержащих аномальные (“спаривательные”) ФГ $F^{(1)}$ и $F^{(2)}$ (2).

Вторая часть формулы (8), которая содержит множитель $(E_{21}^2 - \omega^2)^{-1}$ и зависит от ω , – это новый, по сравнению с КФМ, эффект, который мы называем динамическими КОСЗ. Как мы увидим, он дает весьма значительный вклад в величину $B(E1)$.

В пределах $\Delta = 0$ и $\omega = 0$ формулы (6), (7) и (8) содержат частные случаи, которые обсуждались в работах, соответственно, [12] и [6, 11].

4. Результаты расчетов для изотопов олова. Во всех расчетах, как для эффективного поля,

так и для эффективного взаимодействия и амплитуд рождения фононов использовались хорошо известные параметры энергетического функционала плотности Фаянса DF3-а [16, 17].

Уравнения для эффективного поля V и амплитуды рождения фонона g решались в координатном представлении с использованием самосогласованного базиса функционала Фаянса DF3-а. Поскольку сумма в выражении (7) некогерентна, то выполнялась процедура определения максимальной энергии, до которой следует суммировать в (7) для достижения сходимости. Как было показано в работах [6, 11], достаточная точность достигается при суммировании до 100 МэВ. Такой предел суммирования фактически обеспечивает учет непрерывного одночастичного спектра, что является хорошим аналогом координатного представления. Тот же базис использован в расчетах [12, 13].

В рамках той же расчетной схемы и с теми же параметрами функционала Фаянса DF3-а рассчитывались характеристики первых 2^+ - и 3^- -уровней. Эти результаты приведены в табл. 1 и 2. С учетом погрешностей эксперимента в целом согласие с экспериментом для вероятностей неплохое. Это более существенно для окончательного результата, чем расхождение для энергий, так как, как видно из формулы (7), эффект определяется произведением $g_{31}^s g_{23}^s$. Полученные нами расхождения не удивительны с учетом универсальности нашего самосогласованного подхода, когда и среднее поле, и эффективное взаимодействие определяются одним набором параметров функционала Фаянса, которые объясняют много других характеристик ядер (см. обзор [17]).

Таблица 1. Характеристики низколежащих 2_1^+ -фононов для изотопов олова, ω_2 , MeV, и $B(E2) \uparrow$, $e^2\text{фм}^4$

Ядро	ω_2^{th}	ω_2^{exp}	$B(E2) \uparrow^{th}$	$B(E2) \uparrow^{exp}$
^{124}Sn	1.350	1.132	0.147	0.166 (4)
^{122}Sn	1.290	1.141	0.158	0.192 (4)
^{120}Sn	1.240	1.171	0.152	0.202 (4)
^{118}Sn	1.217	1.230	0.172	0.209 (8)
^{116}Sn	1.186	1.294	0.182	0.209 (6)
^{114}Sn	1.156	1.300	0.193	0.240 (50)
^{112}Sn	1.130	1.257	0.197	0.240 (14)
^{110}Sn	1.162	1.212	0.188	0.220 (22)
^{108}Sn	1.231	1.206	0.155	0.222 (19)
^{106}Sn	1.316	1.207	0.142	0.195 (39)
^{104}Sn	1.388	1.260	0.107	–

Таблица 2. Характеристики низколежащих 3_1^- -фононов для изотопов олова, ω_3 , MeV, и $B(E3) \uparrow$, $e^2\text{фм}^6$

Ядро	ω_3^{th}	ω_3^{exp}	$B(E3) \uparrow^{th}$	$B(E3) \uparrow^{exp}$
^{124}Sn	3.208	2.614	0.103	0.073 (10)
^{122}Sn	3.112	2.493	0.107	0.092 (10)
^{120}Sn	3.069	2.401	0.112	0.115 (15)
^{118}Sn	3.072	2.325	0.106	0.115 (10)
^{116}Sn	3.100	2.266	0.106	0.127 (17)
^{114}Sn	3.157	2.275	0.106	0.100 (12)
^{112}Sn	3.221	2.355	0.102	0.087 (12)
^{110}Sn	3.282	2.459	0.010	–
^{108}Sn	3.350	–	0.096	–
^{106}Sn	3.457	–	0.090	–
^{104}Sn	3.643	–	0.076	–

Отметим, что в табл. 1 и 2 не видно заметной специфики ^{112}Sn и ^{114}Sn .

Окончательные результаты наших расчетов приведены в табл. 3 и на рис. 1. Как видно из них, получено хорошее согласие для величин $B(E1)(3_1^- \rightarrow 2_1^+)$ для всех изотопов, за исключением ^{112}Sn и ^{114}Sn . Для оценки влияния отдельных эффектов на рассчитываемую величину в табл. 3 так же, приведены результаты расчетов без учета эффектов поляризуемости ядра и без учета КОС. Как видно из таблицы, также как и в работе [12] для магических ядер, учет поляризуемости уменьшает $B(E1)$ (колонки 2 и 3), но это уменьшение (примерно в 3 раза) не такое большое, как в [12] для магических ядер (там – на порядок величины). Учет эффектов КОС увеличивает величину $B(E1)$ больше чем на порядок (колонки 2 и 4), в то время как учет эффектов поляризуемости уменьшает ее почти на порядок (колонки 4 и 5) и приводит к хорошему согласию с экспериментом. Таким образом, хорошее согласие с экспериментом получено за счет разности двух больших

эффектов, что подчеркивает важность используемой самосогласованной схемы. Этот факт проиллюстрирован на рис. 1, из которого хорошо видно, что учет вклада КОС является совершенно обязательным для объяснения эксперимента в ядрах $^{116-124}\text{Sn}$.

5. Обсуждение возможных причин несовпадения с экспериментом для ^{112}Sn и ^{114}Sn .

Здесь необходимо отметить следующее:

1. Экспериментальные методы, с которыми мы сравниваем, являются совершенно разными. В ядрах $^{116-124}\text{Sn}$ данные были получены из анализа γ -излучения от неупругого рассеяния быстрых нейтронов реактора на олове [18]. А в ядрах ^{112}Sn и ^{114}Sn использовались совершенно другие, и весьма надежные экспериментальные методы, именно, реакция $^{112}\text{Cd}(\alpha, 2n)^{114}\text{Sn}$ [19, 20]. Как видно из табл. 6 работы [20], авторы получили, что переход из 3_1^- уровня на 2_1^+ совершается из деформированной полосы в сферическую полосу. Это и является причиной несовпадения с экспериментом наших расчетов, поскольку никакой деформации в них не учитывалось. Низколежащие возбужденные состояния и в других ядрах также могут иметь разные деформации, как получено, например, в работе [21]. Более того, некоторые самосогласованные МХФ-расчеты с сепарабельными силами предсказывают, что ядра ^{112}Sn и ^{114}Sn деформированы в основном состоянии [22].

2. В работе [23], в которой использовался метод совместного анализа данных реакций срыва и подхвата [24], обращалось внимание на специфику ^{114}Sn по сравнению с соседними ядрами, которая, по мнению автора, состояла в появлении локального магического числа $N = 64$ в этом ядре. Эти результаты были основаны, в основном, на анализе соответствующих данных для нечетных ядер из реакций срыва и подхвата, из которых извлекались данные о наблюдаемых одночастичных энергиях и спектроскопических факторах в соответствующих четно-четных ядрах. Чтобы объяснить полученные в [23] наблюдаемые экспериментальные результаты в четно-четных ядрах в рамках последовательного микроскопического подхода, необходимо выполнить расчет эффектов связи с фононами в спаривательной щели и в спектроскопических факторах, исходя из одночастичной схемы, полученной с энергетическим функционалом плотности. Для ядер со спариванием такие расчеты выполнялись ранее в [25, 26]. Мы смогли сравнить только для ^{120}Sn наблюдаемые результаты [23] с имеющимися самосогласованными расчетами в [25]. С учетом ошибок эксперимента получено хорошее согласие для одночастичных энергий и заселенностей для пяти уровней $2d3/2$, $1g7/2$, $3s1/2$, $2d3/2$,

Таблица 3. Приведенные вероятности перехода между первыми 3^- - и 2^+ -фононами $B(E1)$, $e^2\text{фм}^2$ для изотопов олова (в колонке 2 приведены результаты расчетов без учета поляризуемости и без КОС; в колонке 3 – с поляризуемостью, но без КОС; в колонке 4 – без поляризуемости, но с КОС; в колонке 5 – окончательные результаты с поляризуемостью и КОС; в колонке 6 – эксперимент)

1	2	3	4	5	6
Ядро	$V = e_q V^{(0)}$ КОС = 0	$V = V_{\text{pol.}}$ КОС = 0	$V = e_q V^{(0)}$ КОС \neq 0	$V = V_{\text{pol.}}$ КОС \neq 0	Эксперимент [18, 19]
^{124}Sn	0.0004	0.0001	0.0078	0.0018	0.0020 ± 0.0002
^{122}Sn	0.0005	0.0001	0.0090	0.0020	0.0018 ± 0.0002
^{120}Sn	0.0004	0.0001	0.0094	0.0020	0.0020 ± 0.0001
^{118}Sn	0.0004	0.0001	0.0093	0.0020	0.0017 ± 0.0004
^{116}Sn	0.0003	0.0001	0.0065	0.0015	0.0014 ± 0.0002
^{114}Sn	0.0009	0.0002	0.0186	0.0036	0.0003 ± 0.0002
^{112}Sn	0.0006	0.0002	0.0142	0.0028	0.0014 ± 0.0001
^{110}Sn	0.0004	0.0002	0.0097	0.0023	–
^{108}Sn	0.0003	0.0001	0.0054	0.0013	–
^{106}Sn	0.0002	0.0001	0.0022	0.0006	–
^{104}Sn	0.0001	0.0001	0.0015	0.0003	–

$1\hbar 11/2$. Однако это не объясняет наши результаты в $^{112}, ^{114}\text{Sn}$ для $B(E1)$ в табл. 3. Необходимы более детальные и самосогласованные расчеты для объяснения одночастичных характеристик в ядрах со спариванием и с учетом квазичастично-фононного взаимодействия. Эта задача вне рамок настоящей работы. Актуальность такой задачи подтверждается в недавнем обзоре [27], где используется метод функций Грина.

6. Заключение. В работе рассмотрена самосогласованная задача о $E1$ переходах между первыми 2^+ и 3^- коллективными однофононными состояниями в большой цепочке четно-четных изотопов олова. При этом такой же самосогласованный подход с теми же параметрами функционала Фаянса использовался для расчетов характеристик самих указанных однофононных уровней. Такое единообразное самосогласованное описание подчеркивает важность самосогласования и позволяет надеяться на возможное получение указаний на новую физическую природу описываемых характеристик. Впервые показано, что учет новых корреляций в основном состоянии (динамических КОСЗ) необходим для объяснения эксперимента в $^{116}-^{124}\text{Sn}$. Поэтому самосогласованный теоретический анализ переходов между возбужденными состояниями является весьма перспективным для физики низких энергий.

Для всех рассмотренных нами характеристик получено, в целом, разумное согласие с имеющимися экспериментальными данными, кроме величины $B(E1)$ для нейтронно-дефицитных ядер ^{112}Sn и ^{114}Sn . Возможная причиной такого несоответствия яв-

ляется скорее всего появление деформации в одном из рассмотренных однофононных состояний. С другой стороны, необходим также современный самосогласованный теоретический анализ данных об одночастичных энергиях и спектроскопических факторов в ядрах со спариванием.

Авторы благодарят Л. И. Говора за информацию о его результатах и интерес к нашей работе, В. Ю. Пономарева – за полезные обсуждения и И. Н. Бобошина – за представление результатов его работ.

Работа поддержана внутренним грантом Национального исследовательского центра “Курчатовский институт” (приказ # 2767 от 28.10.21).

1. В. Г. Соловьев, *Теория атомного ядра: квазичастицы и фононы*, Энергоатомиздат, М. (1989).
2. H. Lenske and J. Wambach, Phys. Lett. B **249**, 377 (1990).
3. S. Kamerdzhiev, J. Speth and G. Tertychny, Phys. Rep. **393**, 1 (2004).
4. С. П. Камерджи́ев, О. И. Ачаковский, С. В. Толоконников, М. И. Шитов, ЯФ **82**, 320 (2019) [Phys. At. Nucl. **82**, 366 (2019)].
5. V. Tselyaev, Phys. Rev. C, **75**, 024306 (2007).
6. D. Voitenkov, S. Kamerdzhiev, S. Krewald, E. E. Saperstein, and S. V. Tolokonnikov, Phys. Rev. C **85**, 054319 (2012).
7. S. P. Kamerdzhiev and M. I. Shitov, EPJA **56**, 265 (2020).
8. V. V. Voronov, D. Karadjov, F. Catara, A. P. Severyukhin, ЭЧАЯ **31**, 905 (2000) [Phys. Part. Nucl. **31**, 452 (2000)].

9. С. П. Камерджиев, М. И. Шитов, Письма в ЖЭТФ, **109**, 65 (2019) [JETP Lett. **109**, 69 (2019)].
10. P. Ring and J. Speth, Nucl. Phys. A **235**, 315 (1974).
11. С. П. Камерджиев, Д. А. Войтенков, Э. Е. Саперштейн, С. В. Толоконников, Письма в ЖЭТФ, **108**, 155 (2018) [JETP Lett. **108**, 155 (2018)].
12. С. П. Камерджиев, Д. А. Войтенков, Э. Е. Саперштейн, С. В. Толоконников, М. И. Шитов, Письма в ЖЭТФ **106**, 132 (2017) [JETP Lett. **106**, 139 (2017)].
13. М. И. Шитов, Д. А. Войтенков, С. П. Камерджиев, С. В. Толоконников, ЯФ **85**, 45 (2022) [Phys. At. Nucl. **85**, 42 (2022)].
14. V. Yu. Ponomarev, Ch. Stoyanov, N. Tsoneva, and M. Grinberg, Nucl. Phys. A **635**, 470 (1998).
15. N. Tsoneva, H. Lenske, and Ch. Stoyanov, Phys. Lett. B **586**, 213 (2004).
16. S. A. Fayans, S. V. Tolokonnikov, E. L. Trykov, and D. Zawischa, Nucl. Phys. A **676**, 49 (2000).
17. Э. Е. Саперштейн, С. В. Толоконников, ЯФ **79**, 703 (2016) [Phys. At. Nucl. **79**, 1030 (2016)].
18. Л. И. Говор, А. М. Демидов, О. К. Журавлев, И. В. Михайлов, Е. Ю. Шкурагова, ЯФ **54**, 330 (1991) [Sov. J. Nucl. Phys. **54**, 196 (1991)].
19. National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, <https://www.nndc.bnl.gov/ensdf>.
20. R. Wirovski, M. Shimmer, L. Eser, S. Alberos, K. O. Zell, and P. von Brentano, Nucl. Phys. A **586**, 427 (1995).
21. Л. И. Говор, В. А. Куркин, И. В. Михайлов, ЯФ **80**, 583 (2017) [Phys. At. Nucl. **80**, 1 (2017)].
22. J. Kvasil, V. O. Nesterenko, W. Kleinig, D. Božík, and P.-G. Reinhard, Int. J. Mod. Phys. E **20**, 281 (2011).
23. И. Н. Бобошин, Препринт НИИЯФ МГУ #2018-1/892 (2018).
24. I. N. Boboshin, V. V. Varlamov, B. S. Ishkhanov, and I. M. Kapitonov, Nucl. Phys. A **496**, 93 (1989).
25. A. V. Avdeenkov and S. P. Kamerdzhiiev, Phys. Lett. B, **459**, 423 (1999).
26. A. Avdeenkov and S. P. Kamerdzhiiev, *50 Years of Nuclear BCS*, ed. by R. Broglia and V. Zelevinsky, World Scientific Singapore (2012), ch. 20, p. 274.
27. T. Aumann, C. Barbieri, D. Bazin, C. A. Bertulani, A. Bonaccorso, W. H. Dickhoff, A. Gade, M. Gómez-Ramos, B. P. Kay, A. M. Moro, T. Nakamura, A. Obertelli, K. Ogata, S. Paschalis, and T. Uesaka, Progr. Part. Nucl. Phys. **118** 103847 (2021).

Униполярные и субцикловые предельно короткие импульсы: последние результаты и перспективы (Миниобзор)

Р. М. Архипов^{+*1)}, М. В. Архипов⁺¹⁾, А. В. Пахомов⁺¹⁾, П. А. Образцов⁺¹⁾, Н. Н. Розанов^{+*1)}

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

^{*} Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе, 194021 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 5 ноября 2022 г.

После переработки 5 ноября 2022 г.

Принята к публикации 7 ноября 2022 г.

В последние годы достигнут прогресс в получении предельно коротких электромагнитных импульсов вплоть до одноцикловых и униполярных полупериодных импульсов. Для импульсов с такой зависимостью поля от времени поведение и свойства такого излучения, его взаимодействие с веществом приобретает ряд новых особенностей. Для предельно коротких униполярных импульсов важную роль во взаимодействии с веществом играет электрическая площадь импульса (интеграл от напряженности электрического поля по времени в заданной точке пространства). В обзоре представлены последние теоретические и экспериментальные результаты в области получения и воздействия предельно коротких импульсов на протяженные резонансные среды и отдельные микрообъекты (атомы, молекулы, наноструктуры). Обсуждаются результаты новых публикаций, в которых предсказаны явления, возникающие при когерентном распространении предельно коротких импульсов в резонансных средах – самокомпрессия и самоостановка импульса в однородной среде. Особое внимание уделяется рассмотрению воздействия сверхкоротких импульсов на микрообъекты с точки зрения введенной недавно концепции “интерференции” площадей импульсов (электрической площади, площади огибающей). Приведенные в обзоре результаты исследований относятся к возникшему в последнее время новому направлению в современной оптике – “Оптика униполярного и субциклового света”, которое становится активно развивающейся областью современной физики.

DOI: 10.31857/S1234567823010020, EDN: nujolv

1. Введение. С момента изобретения первых лазеров большое число исследований в оптике нацелены на поиск путей сокращения длительности лазерных импульсов [1–8]. В последние годы достигнут огромный прогресс в получении сверхкоротких световых импульсов фемто- и аттосекундной длительности [9–11]. Они активно используются для изучения динамики волновых пакетов и свойств вещества на атомных масштабах времен, растет количество работ и обзорных статей, посвященных вопросу получения аттосекундных импульсов и изучению их воздействия на различные среды [12–24].

Получаемые на практике сверхкороткие импульсы в лазерах с пассивной синхронизацией мод, а также аттосекундные импульсы, формируемые с помощью метода генерации гармоник высокого порядка, содержат несколько циклов колебаний электрическо-

го поля за время длительности импульса. Поэтому их электрическая площадь в заданной точке пространства, определяемая как (см. обзор [25])

$$S_E = \int_{t=-\infty}^{+\infty} E(t)dt \quad (1)$$

(где E – напряженность электрического поля и t – время), всегда близка к 0.

Немного в стороне от этих исследований до сих пор остаются работы, посвященные решению задачи сокращения длительности световых импульсов до предельной длительности в соответствующем диапазоне – получению уже предельно коротких (ПКИ) одноцикловых (одноцикловых) импульсов, содержащих две полуволны поля одной полярности (период электромагнитного поля зависит от диапазона, в котором решается задача получения ПКИ) и униполярных полубцикловых (или полупериодных) импульсов, содержащих полуволну поля одной по-

¹⁾e-mail: arkhipovrostislav@gmail.com; m.arkhipov@spbu.ru; antpakhom@gmail.com; p.obraztsov@gmail.com; nnrosanov@mail.ru

лярности [15, 25–32]. Электрическая площадь униполярных полупериодных импульсов отлична от нуля. Униполярные импульсы в виду однонаправленного воздействия на заряженные частицы являются перспективным инструментом для сверхбыстрого и более эффективного управления свойствами вещества, по сравнению с биполярными импульсами, см. обзоры [25–31] и цитируемую литературу. Кроме того, электрическая площадь ПКИ является важной их характеристикой – она удовлетворяет фундаментальному правилу сохранения в диссипативных средах и в одномерном случае выражение (1) постоянно [25].

Наконец, длительность униполярных и одноцикловых ПКИ в оптическом и ультрафиолетовом (УФ) диапазонах может достигать десятков аттосекунд и быть короче орбитального периода электрона в атоме (сотни аттосекунд) или характерного времени, связанного с энергией основного состояния $T_g = 2\pi\hbar/E_1$ (где E_1 – энергия частицы в основном состоянии). При такой малой длительности импульсов становятся не применимы результаты теории взаимодействия многоциклового лазерного излучения с веществом. Например, становится не применима теория фотоионизации Келдыша [33]. Для униполярных импульсов в привычном понимании отсутствует интерференция световых пучков [34, 35] и основанные на ней идеи традиционной голографии [36–38]. Однако, голографическая запись возможна, но уже на других принципах, которые будут рассмотрены далее в обзоре.

По иному выглядят нелинейные явления при воздействии ПКИ на резонансные среды, например, явление самоиндуцированной прозрачности (СИП), когда световой импульс проходит резонансную среду без потерь своей энергии в условиях когерентного взаимодействия света и вещества, т.е. длительность импульса короче времени релаксации поляризации T_2 среды [39]. Это условие в случае ПКИ из-за их крайне малой длительности выполняется практически для всех сред с выраженными резонансами. Предыдущие результаты по взаимодействию ПКИ с резонансными средами резюмированы в обзорах [25–32, 40] и цитируемой в них литературе.

В данном миниобзоре будут рассмотрены последние результаты в изучении особенностей когерентного распространения униполярных ПКИ в резонансных средах, возможности генерации ПКИ за счет явления СИП в двухсекционном ультракоротком лазере, вопросы трансформации и самовоздействия ПКИ при их когерентном распространении в режиме СИП в резонансной среде.

Обсуждается предсказанное недавно явление самоостановки ПКИ в резонансных средах. Приводятся результаты в области преобразования формы ПКИ – интегрирование и дифференцирование их временной формы в тонких металлических пленках. Приводятся результаты последних экспериментов по генерации и управлению формой субцикловых терагерцовых (ТГц) импульсов в слоистых материалах с двумерной проводимостью. Обсуждаются особенности взаимодействия малоцикловых импульсов с квантовыми объектами и проводится сравнение воздействия униполярных импульсов с биполярными на резонансные переходы в квантовых системах.

В недавних работах был введен ряд новых понятий. В терминологию физики взаимодействия ПКИ с веществом уже вошел термин “электрическая площадь импульса”. За последние годы появились два новых понятия. Это “атомная мера” электрической площади (“*atomic scale of electric area*”) и “интерференция” площадей импульсов. Будут даны ссылки на эти работы и рассмотрен физический смысл этих новых терминов. Обсуждается проявление данной “интерференции” в экспериментах по возбуждению атомных систем и возможности голографической записи информации при помощи ПКИ в отсутствии когерентности между опорным и предметными пучками.

Таким образом, работы, упоминаемые в данном обзоре, принадлежат к новому направлению в современной физике и нелинейной оптике, которое можно назвать “Оптика униполярного и субциклового света”, посвященному решению актуальной проблемы получения предельно коротких одноцикловых, субцикловых и униполярных импульсов света и изучению их взаимодействия с веществом.

В первом разделе приведем последние результаты по получению субцикловых униполярных ПКИ, что на данном этапе является крайне непростой задачей.

2. Получение одноцикловых и субцикловых униполярных ПКИ. При всех преимуществах, которые сулит использование предельно коротких униполярных импульсов для эффективного управления сверхбыстрыми процессами в различных средах, получение таких импульсов остается очень сложной задачей. В большинстве случаев для генерации субцикловых униполярных импульсов, особенно в оптическом диапазоне частот, требуются сложные и громоздкие экспериментальные установки. Вместе с тем, данная область оптики в настоящее время активно развивается, в связи с чем появляются все новые работы по получению униполярных импульсов в самых разных системах.

В частности, в недавних работах [41, 42] было теоретически продемонстрировано, что изначально биполярный одноцикловый ТГц импульс может быть преобразован в униполярный по мере его распространения в неравновесной плазме. Основная идея данного подхода заключалась в том, что если процессы релаксации в неравновесной плазме протекают на протяжении промежутка времени порядка длительности распространяющегося импульса, то передний фронт исходного импульса усиливается, в то время как задний фронт другой полярности, наоборот, затухает. В результате таких преобразований форма импульса сильно изменяется и наблюдается постепенная трансформация биполярного импульса в униполярный.

Другой подход, также основанный на взаимодействии предельно коротких импульсов с неравновесной плазмой, описан в теоретической статье [43]. Здесь были получены изолированные аттосекундные униполярные полуцикловые импульсы длительности до 7.3 ас посредством каскадных процессов, протекающих в плазме. При этом сначала аттосекундный импульс излучается в обратном направлении при возбуждении плотной плазмы одноцикловым фемтосекундным импульсом. После этого формируется электронный слой толщиной в несколько нанометров, который ускоряется электростатическим полем. Затем этот электронный слой проходит через униполярные возмущения, вызванные хвостом излученного аттосекундного импульса вместо исходного лазерного импульса. В результате в пропускании за счет каскадных эффектов формируется изолированный полуцикловый импульс длительностью менее 10 ас.

В работе [44] описан способ получения униполярных полуцикловых ТГц импульсов при взаимодействии мощного ультракороткого лазерного импульса с пленкой металлической фольги. При этом лазерный импульс создает в металле пучок релятивистских электронов, которые пересекают границу слоя фольги, излучая при этом полуцикловый ТГц импульс.

Генерация интенсивного униполярного импульса уже в оптическом диапазоне была показана теоретически в работе [45] при взаимодействии мощного предельно короткого лазерного импульса длительностью в несколько циклов с двойной пленкой металлической фольги. При фокусировке возбуждающего импульса на ультратонком слое фольги все электроны из нее вырываются, образуя таким образом однородный слой релятивистских электронов. Второй слой фольги, расположенный на некотором расстоянии позади, отражает падающий импульс, но про-

пускает электроны сквозь него. При наклонном падении отражение луча создает поперечный ток, излучающий интенсивные полуцикловые импульсы. В результате авторами были получены одиночные полуцикловые импульсы длительностью 50 ас при облучении такой двойной мишени из фольги интенсивными лазерными импульсами.

В работе [46] теоретически демонстрируется генерация интенсивного изолированного аттосекундного униполярного импульса при взаимодействии многоциклового лазерного импульса с металлической фольгой, помещенной в газовую среду. При ионизации газовой среды низкой плотности многоцикловым лазерным импульсом создается плотный слой релятивистских электронов толщиной в несколько сотен нанометров. Когда этот плотный электронный слой проходит через наклонную металлическую фольгу, он излучает одиночный сверхинтенсивный полуцикловый аттосекундный импульс в видимой и УФ областях спектра. При этом длительность излучаемого импульса составляет 200 ас. Важно также, что в описанном методе для получения изолированного аттосекундного импульса исходный возбуждающий импульс не должен быть обязательно одноцикловым, как в большинстве других работ.

Рядом авторов в последние годы также теоретически исследовались униполярные оптические солитоны в различных нелинейных резонансных средах. Так, в работе [47] была показана принципиальная возможность существования в неравновесных средах солитоноподобных униполярных объектов электромагнитной природы в рамках модели двухуровневой среды. Длительность полученных солитоноподобных объектов превышает время фазовой релаксации двухуровневых переходов, но короче времени энергетической релаксации. В последующей работе [48] было найдено решение в виде одномерного униполярного солитона, распространяющегося в многоуровневой неравновесной среде с быстрой необратимой релаксацией индуцированного дипольного момента и медленной релаксацией населенностей уровней. В другой статье [49] было аналитически получено решение в виде ТГц униполярного солитона в квадратично-нелинейной среде.

Также показано существование униполярных солитоноподобных объектов в комбинационно-активной среде (КАС), когда имеется инверсная населенность рамановских подуровней, а на электронно-оптических переходах при этом инверсия отсутствует [50]. Взаимная компенсация потерь за счет релаксации и энергии рамановского усиления. Обратный случай, когда электронно-оптические

переходы имеют инверсную населенность, а на рамановских подуровнях она отсутствует, рассматривался в работе [51]. В этом случае показано возникновение униполярных солитоноподобных структур, которые могут распространяться быстрее скорости света. Интересно упомянуть об исследованиях возможности получения униполярных структур другой природы. Так в работе [52] показана возможность существования униполярных импульсов акустической природы в парамагнитном кристалле во внешнем магнитном поле.

Помимо множества теоретических работ, посвященных методам получения униполярных субцикловых импульсов, в последние годы были проведены также несколько экспериментальных исследований, позволивших зарегистрировать генерацию униполярных импульсов. Например, в недавней работе [53] была экспериментально продемонстрирована униполярность ТГц излучения от нескольких источников импульсного ТГц излучения, используя несколько разных методик измерений. Также были впервые сделаны экспериментальные оценки для электрической площади и степени униполярности для импульсов ТГц излучения. В другой работе [54] авторами была экспериментально зарегистрирована генерация униполярного электромагнитного предвестника в электрооптическом кристалле GaP, возбуждаемом фемтосекундным импульсом титан-сапфирового лазера. При этом источником излучения униполярного предвестника служит ток свободных носителей, которые образуются в кристалле за счет многофотонной ионизации под действием мощного возбуждающего лазерного импульса.

В недавней работе [55] теоретически продемонстрирован необычный характер сверхизлучения импульса остановленной поляризации, возникающего при распространении пары полцикловых импульсов в протяженной пространственно однородной резонансной среде. Показано, что данный импульс поляризации может порождать пару полцикловых униполярных импульсов, имеющих противоположную поляриность, задержка между которыми прямо пропорциональна толщине слоя среды. Данное явление было использовано в недавней работе для получения уже униполярных импульсов с управляемой формой в пространственно неоднородной КАС [56]. В этой работе показана возможность получения униполярных импульсов прямоугольной и треугольной формы, когда концентрация частиц КАС зависит от координаты.

В работе [57] показана теоретически возможность получения рентгеновских аттосекундных импульсов

вплоть до одноцикловых и квазиоднополярных импульсов при отражении лазерного импульса от релятивистского электронного зеркала, которое находится в поле ускоряющего лазерного импульса. Длительность генерируемых импульсов может достигать 50–60 ас. Интересно отметить работу [58], в которой предложен и изучен новый способ получения однополярных инфракрасных (ИК) и ТГц импульсов при взаимодействии мощного лазерного импульса с наноразмерной мишенью. Показана возможность управления длительностью генерируемого импульса при изменении толщины мишени. Амплитуда генерируемых импульсов может достигать релятивистских значений (в несколько теравольт на метр).

3. Получение оптически индуцированных субцикловых импульсов изменяемой формы в ТГц диапазоне в метаматериалах. Создание новых источников ТГц электромагнитного излучения на основе различных схем спектрального преобразования фемтосекундных лазерных импульсов активно способствовало развитию в последнее десятилетие новых методов и направлений фундаментальных и прикладных исследований в физике, химии и биологии и дало уникальные возможности при изучении свойств и строения веществ и материалов в практически недоступном ранее спектрально-временном диапазоне [59]. Кроме фундаментальных исследований, ТГц импульсы находят практическое применение и в различных прикладных областях. Так, в последние годы был предложен ряд технических решений по использованию ТГц излучения для микроволновой локации и позиционированию движущихся объектов, для регистрации микроволновых изображений “скрытых” малоразмерных структур и т.д.

Достаточно широкий и информативный спектральный диапазон для большого количества объектов (твердые тела, жидкости, биологические объекты) является основным преимуществом ТГц диапазона. Кроме этого, получение сверхкоротких одноцикловых или униполярных ТГц импульсов, а также импульсов ТГц излучения со сложным временным профилем представляет значительный интерес для разработки ТГц ускорителей электронов и смежных задач. Использование таких импульсов было продемонстрировано как теоретически, так и экспериментально [60–63].

В последние годы появился значительный интерес к исследованию различных “новых” материалов в качестве потенциальной основы для создания ТГц оптоэлектроники. Среди таких материалов так называемые метаматериалы, различные наноструктуры,

тонкие пленки/кристаллы, а также двумерные слоистые кристаллы. Продемонстрировано оптическое возбуждение сверхбыстрых фототоков, приводящих к генерации излучения ТГц диапазона, в таких наноматериалах, как графен [64, 65], углеродные нанотрубки [66, 67], гибридные перовскиты [68, 69].

В этих материалах возникновение фототока обусловлено фотогальваническими эффектами, которые могут наблюдаться благодаря одновременному наличию сильного электрон-фононного взаимодействия и достаточно долгого времени релаксации импульса. Отсутствие запрещенной зоны в таких материалах (графене) и линейный закон дисперсии, в отличие от обычных полупроводников, позволяет наблюдать фотогальванические эффекты даже при возбуждении межзонных переходов с помощью излучения оптического диапазона.

В теоретической работе [70] было продемонстрировано, что наряду с графеном существует другой класс материалов, топологические изоляторы (ТИ), в котором также могут наблюдаться фотогальванические эффекты. ТИ представляют собой класс материалов, сочетающих в себе свойства металла и полупроводника. Поверхность ТИ обладает металлической проводимостью, а электронная структура поверхности может быть описана уравнением Дирака для безмассовых электронов, что роднит этот класс материалов с графеном. Однако, в отличие от двумерного графена, ТИ обладают объемом (т.е. являются трехмерными кристаллами). Объемные свойства ТИ совпадают со свойствами узкозонного полупроводника и определяются наличием запрещенной зоны.

В таких условиях, комбинируя ориентацию образца и изменение поляризации оптической накачки (как линейно поляризованной, так и эллиптически поляризованной), можно индуцировать сверхбыстрые спиральные фототоки, приводящие к генерации различных спин-поляризованных ТГц пучков с различной хиральностью и временной формой. Примеры субцикловых импульсов, полученных в объемном кристалле Bi_2Te_3 даны на рис. 1.

На рисунке 1 представлены характерные временные формы E_x и E_y компонент поля, индуцированных ТГц импульсов, зарегистрированных при возбуждении кристалла Bi_2Te_3 при различных экспериментальных условиях. Как видно, фаза и амплитуда E_x и E_y генерируемых импульсов определяются поляризацией оптического излучения и ориентацией кристалла. Причем соотношение этих параметров может быть изменено полностью оптическими методами (т.е. исключительно за счет управления

состоянием поляризации излучения оптической накачки), что, в свою очередь, позволяет генерировать ТГц импульсы с заданной формой импульса и поляризацией.

4. О возможности получения одноцикловых импульсов в лазере в режиме когерентной синхронизации мод. В рассмотренных выше работах получение ПКИ происходило за счет трансформации мощных фемтосекундных импульсов в различных средах, расположенных вне резонатора лазера. При этом источником таких импульсов, как правило, являются лазерные системы, которые включают в себя обычно титан-сапфировый лазер, действующий в режиме синхронизации мод, и последующие каскады преобразования излучения. В титан-сапфировом лазере режим синхронизации мод возникает из-за практически безынерционной Керровской нелинейности усиливающей среды, которая обладает очень широкой полосой усиления. При применении компрессоров импульсов внутри резонатора удается получить импульсы длительностью вплоть до двух циклов колебаний [72].

Однако даже такая система достаточно сложна. Возможность получения одноцикловых и субцикловых импульсов в режиме синхронизации мод обычно не рассматривается в силу следующих причин. Принято считать, что это невозможно, так как спектр одноциклового излучения крайне широк, а усиливающие среды с такой широкой полосой усиления отсутствуют. Однако режим когерентного усиления света снимает это ограничение с усиливающей среды лазера [73], когерентное распространение в нелинейном поглотителе в режиме СИП позволяет получить режим так называемой когерентной синхронизации мод (КСМ). Подробное обсуждение особенностей указанного режима и его отличия от известных режимов пассивной синхронизации мод с насыщением поглощения и усиления даны в первой части обзора [40] и цитированной в нем литературе.

Оказалось, что для реализации одноциклового генерации в режиме КСМ необходимо сокращать длину резонатора. Расчеты показали возможность генерации ПКИ вплоть до одноциклового длительности в режиме КСМ в двухсекционном лазере с линейным резонатором с длинами порядка десятка микрон [74]. В этой работе обсуждаются также возможности экспериментальной реализации данного режима. Создание крайне компактного источника одноцикловых импульсов с ТГц частотой повторения является актуальной задачей и требует дальнейшей проработки. Также были выявлены и некоторые ограничения. Оказалось, что фактором, влияющим на

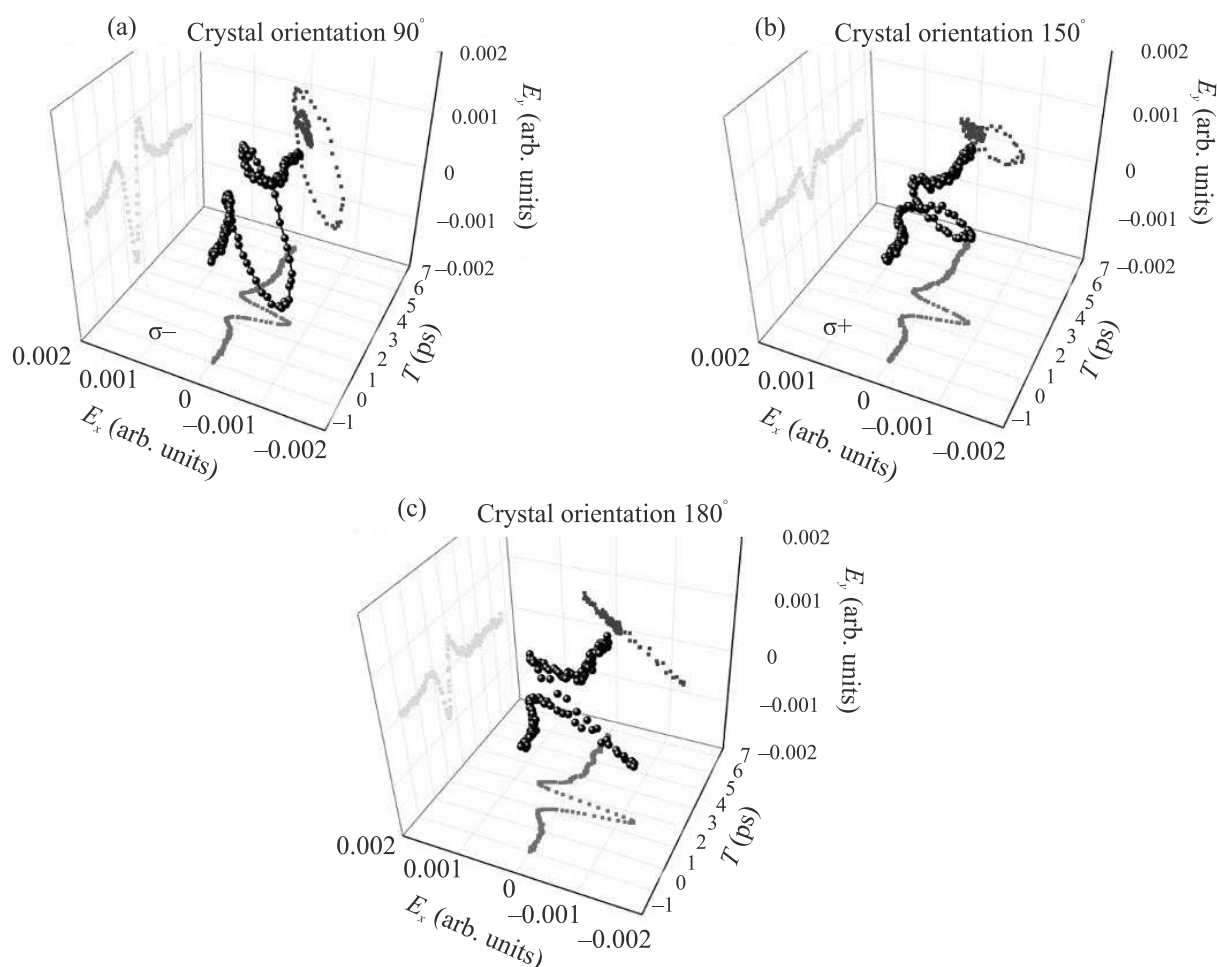


Рис. 1. (Цветной онлайн) Примеры ТГц сигналов, излучаемых кристаллом Bi_2Te_3 при его различной ориентации: при возбуждении циркулярно поляризованным оптическим излучением (а), (б), линейно поляризованным пучком (с). Измерения проведены стандартными методами регистрации ТГц излучения [71]

стабильность режима генерации одноцикловых импульсов, является время T_2 релаксации поляризации сред. С одной стороны, этот параметр обеспечивает когерентный режим взаимодействия, а с другой, длительная память сред начинает ухудшать стабильность режима. Малая длина резонатора требует большой концентрации активных усиливающих и поглощающих частиц порядка $10^{21} - 10^{22} \text{ см}^{-3}$. При таких концентрациях может возникать ряд интересных эффектов. В следующем разделе остановимся подробнее на вопросе самовоздействия ПКИ в резонансных средах большой оптической плотности.

5. Самокомпрессия и самоостановка одноцикловых импульсов при когерентном распространении в резонансных средах. В работе [75] на основе численного решения системы уравнений Максвелла–Блоха были изучены особенности коге-

рентного распространения униполярных аттосекундных импульсов в двухуровневой среде (усиливающей и поглощающей). Динамика импульса существенно зависит от электрической площади входного импульса. Если его параметры таковы, что его входная электрическая площадь меньше или сравнима с π , то по мере распространения в поглощающей среде импульс становился биполярным.

Если его площадь кратна целому числу π , то происходит расщепление исходного импульса на отдельные импульсы. Например, если входной импульс действует как 4π - или 6π -импульс, тогда происходит расщепление на пару или три импульса соответственно. При этом каждый из импульсов сжимается и ведет себя подобно 2π -импульсу СИП. Данная ситуация сходна с поведением длинных многоцикловых импульсов в двухуровневой среде [2, 39, 73].

В работе [76] предложена и теоретически изучена схема компрессии одноциклового импульса при распространении в режиме СИП в двухуровневой среде. В этом случае каждая из составляющих одноциклового импульса униполярных полуволин распространяется в режиме СИП с разной скоростью. При этом они могут либо сближаться, что приводит к компрессии исходного импульса и сдвигу его частоты в высокочастотную область, или, наоборот, полуволны могут расходиться в зависимости от концентрации атомов среды – в этом случае возможно появление двух отдельных импульсов с противоположным направлением полярности на выходе из среды [77].

Возможна и более интересная ситуация, когда одноциклового импульса входит в среду и останавливается в ней, как бы застревающая на некотором расстоянии от ее края. Данное необычное и новое явление было теоретически обнаружено совсем недавно и получило название “самоостановки света” [78] (*self-stopping of light*). Пример такой “самоостановки” приведен на рис. 2.

На этом рисунке представлена динамика поля (а) и разности населенностей (б) в зависимости от координаты в разные моменты времени. Видно, что импульс постепенно замедляется вплоть до полной остановки в центре рис. 2. При этом возникает связанная структура поля и разности населенностей, которая дрожит в пространстве и осциллирует во времени. Такая структура в работе [78] была названа “пространственно-временным осциллоном” (*light-matter oscillon*). Частоту осцилляций, оказывающаяся, можно вычислить аналитически, она зависит от концентрации частиц и дипольного момента перехода.

Данный эффект отличается от хорошо известных эффектов замедления и остановки длинных многоциклового импульсов при электромагнитно-индуцированной прозрачности [79–81] и СИП [39]. Самоостановка в таком случае возникает из-за самодействия ПКИ в среде, в результате которой из-за осциллирующей инверсии среды образуется локальный неподвижный динамический квазирезонатор, из которого свет не может выйти и самозапирается в нем [78].

Данный эффект самоостановки наблюдается в плотной среде при достаточно высоких концентрациях. Численные расчеты показывают, что учет локального поля за счет введения поправки Лоренца [82] не приводит к исчезновению самоостановки импульса. Пример результата расчетов на рис. 3 показывает существование самоостановки при учете локального поля.

Еще раз отметим, что эффект самоостановки одноциклового импульса наблюдался в однородной среде. “Остановка” части излучения может наблюдаться в дефектах однородного вещества с периодической модуляцией параметров [83, 84] и при столкновении солитонов [85]. Остановка светового импульса также может возникать и без столкновения [86] со встречным импульсом, если среда состоит из тонких слоев резонансных частиц (резонансный фотонный кристалл). При остановке импульса возможна конверсия его частоты, как показано в работе [87]. Вопросы, связанные с пленением – остановкой Брэгговских солитонов в подобных системах, разбираются в монографии [88].

6. Временное интегрирование и дифференцирование напряженности электрического поля предельно коротких импульсов. Актуальной проблемой оптики предельно коротких импульсов является нахождение способов для управления их формой, в частности, осуществления различных пространственных и временных преобразований профиля импульсов. В данном разделе будут рассмотрены несколько таких временных преобразований, а именно, временное интегрирование и дифференцирование предельно коротких импульсов. На сегодняшний день подобные операции временного интегрирования и дифференцирования хорошо известны в радиотехнике, их можно проводить в RC-цепочках. В оптике подобные операции являются менее известными.

Прежде всего стоит отметить, что операции временного интегрирования и дифференцирования достаточно хорошо изучены для длинных многоциклового импульсов и были продемонстрированы в различных резонансных оптических структурах [89–98]. В таком случае эти преобразования осуществляются для медленно меняющейся огибающей таких длинных импульсов. Вместе с тем для предельно коротких импульсов само понятие огибающей теряет смысл и приходится иметь дело уже непосредственно с самой временной зависимостью напряженности электрического поля. При этом ранее такие операции временного интегрирования и дифференцирования для временной зависимости электрического поля не были реализованы.

В работе [99] впервые была показана возможность осуществления преобразований временного интегрирования и дифференцирования для поля предельно коротких импульсов, а именно для зависимости напряженности электрического поля от времени в таких импульсах. Данные операции реализуются при прохождении линейно поляризованных импуль-

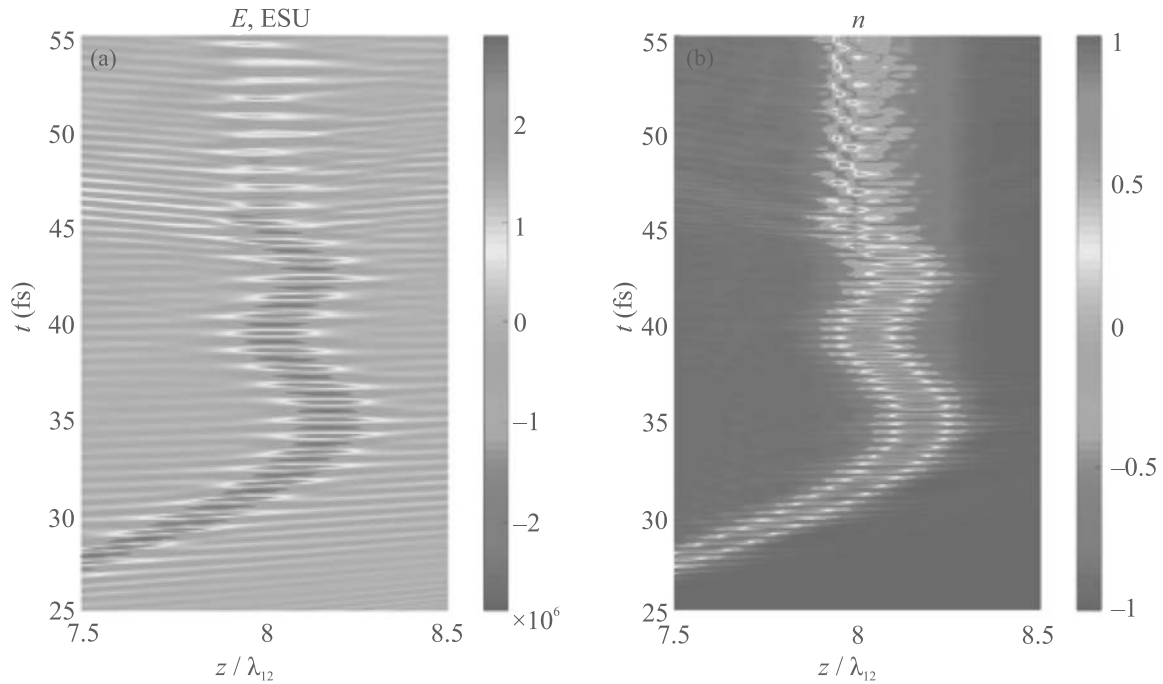


Рис. 2. (Цветной онлайн) Динамика электрического поля E (a) и разности населенности n (b). Концентрация двухуровневых атомов $N_0 = 6.3 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$

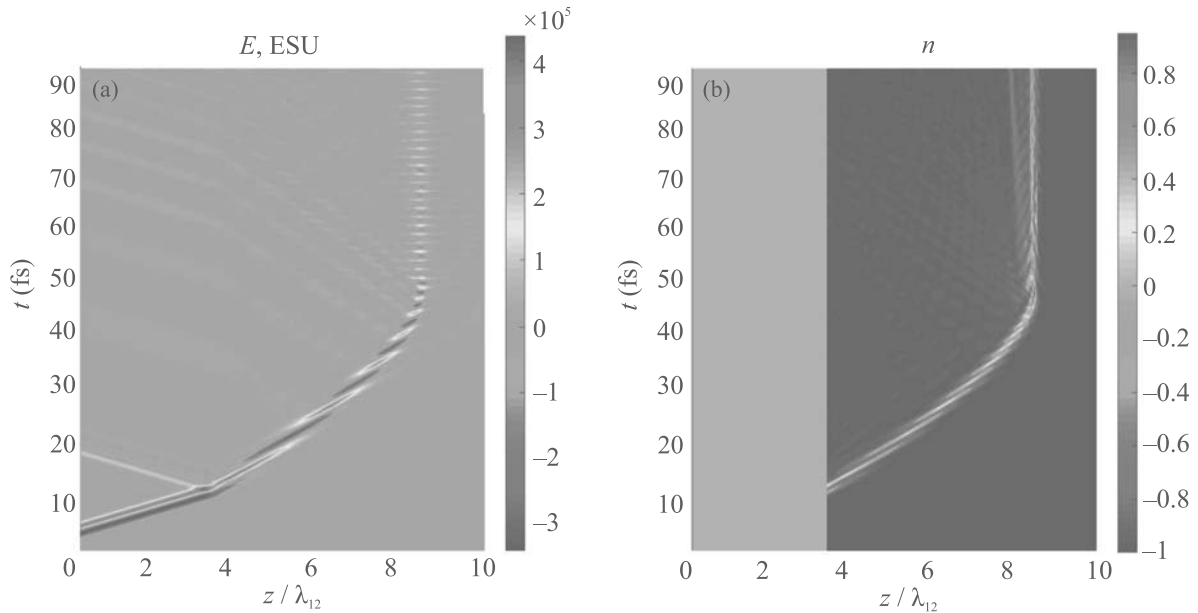


Рис. 3. (Цветной онлайн) Динамика электрического поля E (a) и разности населенности n (b). Концентрация двухуровневых атомов $N_0 = 8 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$. Частота импульса в два раза ниже резонансного перехода среды

сов через тонкие проводящие пленки в одномерной геометрии задачи. В таком случае при достаточно малой толщине пленки в отражении можно получить сигнал, который будет представлять собой точный интеграл по времени от напряженности электрического поля в исходном импульсе, а в пропускании

при достаточно большой толщине пленки можно получить точную временную производную падающего импульса.

Осуществление обоих преобразований требует разных значений толщины пленки, так что не представляется возможным получить одновременно

и временной интеграл, и временную производную падающего предельно короткого импульса в отражении и прохождении соответственно. Так, для временного интегрирования в отражении требуется, чтобы толщина проводящей пленки была много меньше, чем длина волны, соответствующая плазменной частоте проводящей среды пленки. Для временного дифференцирования в пропускании, наоборот, толщина пленки должна быть порядка или же больше, чем длина волны, соответствующая плазменной частоте проводящей среды. В обоих случаях данные условия означают, что точность выполнения данных временных преобразований тем выше, чем ниже амплитуда полученного на выходе сигнала. Действительно, амплитуда отраженной от пленки волны уменьшается с уменьшением толщины пленки, тогда как амплитуда прошедшей волны, наоборот, уменьшается с увеличением толщины проводящей пленки. Следовательно, для практического осуществления данных временных преобразований требуется находить определенный баланс между точностью интегрирования/дифференцирования и амплитудой полученного полезного сигнала.

Наконец, как было показано в работе [100], продемонстрированные операции временного интегрирования/дифференцирования выполняются не только для импульсов длительностью в несколько циклов, но и для субцикловых импульсов, в частности, униполярных. Данные результаты позволяют рассчитывать на применение продемонстрированных временных преобразований для контролируемого управления формой предельно коротких импульсов.

Интересно также рассмотреть применение закона сохранения электрической площади импульсов (1) к рассматриваемой системе. Данный закон сохранения утверждает, что электрическая площадь должна быть постоянна в пространстве, когда произвольный предельно короткий импульс распространяется в диссипативной среде в одномерной геометрии [25]. Применительно к рассматриваемой системе, этот закон требует, чтобы электрическая площадь прошедшего импульса была равна сумме электрических площадей падающего и отраженного импульсов. Это равенство означает, что электрические площади падающего и отраженного/прошедшего импульсов могут сильно различаться. Например, падающий импульс с нулевой электрической площадью может быть преобразован в два униполярных импульса при условии, что электрические площади отраженного и прошедшего импульсов равны. Наоборот, падающий униполярный импульс может произвести биполярный импульс с нулевой электрической площадью в от-

ражении или пропускании, если остальной прошедший/отраженный импульс имеет такую же электрическую площадь, что и падающий. Эти рассуждения показывают, что взаимные преобразования биполярных и униполярных импульсов, возникающие при реализации операций временного интегрирования и дифференцирования, не нарушают фундаментальный закон сохранения электрической площади импульса.

Интересно отметить возможность временного дифференцирования униполярных импульсов при их фокусировке. В работе [101] на основе численного моделирования была изучена структура поля однополярного импульса с плоским фронтом при фокусировке цилиндрическим параболическим зеркалом. Показано превращение униполярного импульса в биполярный, причем сфокусированный импульс представляет собой первую производную падающего униполярного импульса.

В заключении данных разделов уместно отметить, что во многих задачах получения и преобразования формы униполярных импульсов, рассмотренных выше, использовалось одномерное приближение. Оно может быть использовано в коаксиальных волноводах, в которых могут распространяться униполярные импульсы из-за отсутствия в таких волноводах модовой дисперсии и частота отсечки [102].

7. Особенности воздействия предельно коротких импульсов на микрообъекты, когда длительность импульса короче характерного времени, связанного с основным состоянием системы. В последующих разделах остановимся на особенностях взаимодействия ПКИ с квантовыми объектами. Сравним воздействия полуцикловых униполярных и многоцикловых импульсов на квантовые объекты. Многоцикловые импульсы до настоящего времени были единственным источником возбуждения квантовых систем, особенно в ситуациях резонансного и около резонансного воздействия [2, 73]. Униполярные импульсы, несмотря на нерезонансный характер их воздействия из-за отсутствия периодичности в зависимости поля от времени, обладают однонаправленным воздействием на заряды в квантовых системах, тем не менее могут быть использованы для эффективного и более быстрого возбуждения квантовых систем [28, 31].

Если длительность ПКИ короче характерного времени, связанного с энергией основного состояния $T_g = 2\pi\hbar/E_1$ (где E_1 – энергия частицы в основном состоянии), то его воздействие на микрообъекты определяется электрической площадью импульса, а не его энергией [103–109]. Данный вывод следует

непосредственно из приближенного решения уравнения Шредингера с членами, зависящими от времени, в приближении внезапных возмущений Мигдала [110].

Рассмотрим подробнее приближение Мигдала для взаимодействия заряда в квантовой системе с ПКИ. Уравнение Шредингера для волновой функции ψ имеет вид [111]:

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = [\hat{H}_0 + V(t)]\psi. \quad (2)$$

Здесь \hat{H}_0 – собственный гамильтониан системы и $V(t) = -dE(t)$ – потенциал ее взаимодействия с импульсом излучения, d – дипольный момент системы.

В случае короткого импульса, $\tau < T_g$, на основании приближения внезапных возмущений Мигдала волновая функция электрона после окончания импульса может быть записана в следующем виде [103–109]:

$$\Psi_+(x) = \psi_0(x)e^{i\frac{q}{\hbar}S_E x}, \quad (3)$$

где $\Psi_0(x)$ – волновая функция до прихода импульса, $S_E = \int E(t)dt$ – электрическая площадь импульса (1). В этом приближении можно получить наглядные аналитические выражения для населенностей связанных состояний частицы в случае простейших квантовых систем – атома водорода, квантового осциллятора, частицы в яме и т.д. после импульса, см. ниже.

Для описания взаимодействия униполярных и субцикловых ПКИ с квантовыми объектами, когда их длительность короче T_g , целесообразно ввести новую физическую величину – “атомная мера площади” квантовой системы. Она введена для оценки эффективности возбуждения квантовых систем такими импульсами [105, 106] и имеет размерность импульса. “Атомная мера площади” S_0 системы равна отношению постоянной Планка к произведению характерного размера квантовой системы на электрический заряд квантовой частицы. Она универсальна и может быть использована для оценки степени эффективности действия униполярных и квазиуниполярных импульсов на различные квантовые системы – атомы [106], молекулы [107], ионы [108] и наноструктуры [109, 112].

Например, для водородоподобного атома населенность основного состояния после окончания действия импульса определяется выражением [103, 105, 106]

$$w_0 = \frac{1}{\left[1 + \left(\frac{S_E}{S_0}\right)^2\right]^4}. \quad (4)$$

В выражение (4) входит атомная мера площади $S_0 = \frac{2\hbar}{aq} = 7.94 \cdot 10^{-10}$ эрг·с/см·ед СГСЭ. Здесь m – масса электрона, q – заряд электрона, \hbar – приведенная постоянная Планка, a_0 – радиус первой борховской орбиты, т.е. размер атома. Заселенность основного состояния квантового гармонического осциллятора имеет вид [104, 105]:

$$w_{0\text{HO}} = e^{-\frac{S_E^2}{S_{0\text{HO}}^2}}, \quad (5)$$

где выражение для атомной меры имеет вид $S_{0\text{HO}} = \frac{\sqrt{2\hbar}}{qx_0}$. Мера площади также обратно пропорциональна размеру осциллятора в основном состоянии $x_0 = \sqrt{\frac{\hbar}{m\omega_0}}$. Как показывают результаты расчетов, вероятность ионизации водорода также определяется отношением электрической площади импульса к ее атомной мере, а не энергией импульса или его пиковой амплитудой [106].

Различия в воздействии длинных многоцикловых и униполярных субцикловых импульсов на квантовые объекты проиллюстрированы в табл. 1 ниже.

В случае, когда длительность светового импульса сравнима с T_g , приближение внезапных возмущений становится неприменимо. Наиболее простые соотношения, допускающие наглядную физическую картину действия таких импульсов, можно получить с помощью теории возмущений, когда амплитуда внешнего поля считается малой. В этом случае воздействие ПКИ на квантовую систему определяется суммой квадратов электрической площади импульса и площади его огибающей [113, 114].

Приведем результат сравнения изменения заселенности связанного состояния в квантовой системе под действием многоциклового импульса с площадью огибающей Θ и униполярного с электрической площадью S_E [115]. Изменение населенности будет одинаковым, если выполнено условие:

$$\frac{d_{1n}^2}{\hbar^2} \pi S_E^2 = 0.5\Theta^2. \quad (6)$$

Из этих соотношений следует, что униполярный импульс действует так же, как биполярный, если квадрат электрической площади первого равен половине квадрата площади огибающей второго. Формула (6) имеет наглядную физическую интерпретацию, если биполярный импульс представить в виде последовательности однополярных составляющих, идущих с периодом резонансного перехода среды. Эти соотношения показывают, что одна полуволна поля действует так же на квантовый переход среды, как и биполярный импульс, если электрическая площадь

Таблица 1. Сравнение воздействия униполярных и биполярных многоцикловых импульсов на микрообъекты

Биполярные многоцикловые импульсы	Униполярные, субцикловые импульсы (УИ)
Воздействие на резонансные переходы двухуровневой среды определяется площадью огибающей импульса.	Воздействие на резонансные переходы в любой многоуровневой квантовой системе, а также вероятность ее ионизации определяется отношением электрической площади импульса к ее атомной мере, а не его энергией или пиковой амплитудой, если длительность импульса короче орбитального периода электрона в атоме (или времени T_g , связанного с энергией основного состояния)
Для описания процессов фотоионизации используется теория Келдыша.	В этом случае теория туннельной ионизации Келдыша не применима.
Используются для резонансного возбуждения квантовых переходов в атомах и молекулах. Полный механический импульс, переданный заряженной частице за период поля, равен 0.	Не имеют несущей частоты и обладают малой длительностью. Могут быть использованы для эффективного и более быстрого возбуждения квантовых переходов в атомных системах. Ввиду однонаправленного воздействия на частицу передают ненулевой импульс заряженной частице.
Электрическая площадь всегда близка к 0.	Обладают ненулевой электрической площадью
Важной характеристикой является площадь огибающей, определяемая как временной интеграл по времени от медленно меняющейся амплитуды поля.	Важной характеристикой является электрическая площадь импульса.
В задачах резонансного взаимодействия света с веществом площадь огибающей удовлетворяет теореме площадей Мак Кола и Хана.	В задачах распространения и взаимодействия излучения с веществом электрическая площадь импульса удовлетворяет правилу сохранения в диссипативных системах

первого равна суммарной площади последовательности униполярных составляющих многоциклового импульса, которая представляет собой площадь его огибающей [115].

Обратим внимание, что второй униполярный импульс должен следовать с определенной задержкой относительно первого, поскольку результат воздействия нескольких биполярных импульсов приводит к эффекту “интерференции” электрических площадей, который будет рассмотрен в следующем разделе.

8. Интерференция площадей предельно коротких световых импульсов при их воздействии на квантовые объекты. Действие нескольких коротких импульсов на среду может быть рассмотрено с точки зрения введенного в работах [113, 114] представления об интерференции электрических площадей импульсов. Рассмотрим эти новые представления более подробно.

Под интерференцией света в оптике понимается увеличение или уменьшение интенсивности двух или более когерентных монохроматических световых волн при их пересечении в пространстве [34, 35]. При интерференции двух монохроматических пучков света зависимость освещенности экрана в заданной точке пространства в области их перекрытия определяется разностью хода между пучками и дается выражением [34, 35]

$$I(x) = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \cos\left(\frac{2\pi}{\Delta k} + \Delta\varphi\right), \quad (7)$$

где I_1 – интенсивность волны от первого источника, I_2 – интенсивность второго источника, Δk и $\Delta\varphi$ – разность волновых векторов и фаз интерферирующих волн соответственно.

Также в случае ПКИ говорить об интерференции импульсов в традиционном понимании не имеет смысла, так как создание интерференционной картины невозможно ввиду малой области перекрытия импульсов и отсутствия несущей частоты у импульсов излучения. Тем не менее при когерентном взаимодействии коротких импульсов со средой, когда их длительность короче времени релаксации разности населенностей T_1 и поляризации среды T_2 , импульсы могут взаимодействовать со средой без одномоментного перекрытия в среде посредством наведенных ими волн поляризации (когерентности) среды [116–129]. В этом случае можно говорить об интерференции волн поляризации среды с полем падающих импульсов.

Подобные ситуации изучались еще в первых экспериментах по фотонному эху в случае взаимодействия со средой длинных многоцикловых лазерных импульсов экспериментально [116, 117] и теоретически [118, 119]. Впоследствии динамика когерентности среды при фотонном эхе в среде, возбуждаемой пре-

дельно короткими импульсами, исследовалась теоретически в работах [130–135]. А динамика решеток разности населенностей, их создание и сверхбыстрое управление с помощью ПКИ изучались теоретически только в последние годы [120–129].

Рассмотрим ситуацию, когда на среду из квантовых систем (атомы, молекулы, квантовые точки и т.п.) воздействует последовательность импульсов, длительность которых крайне мала. Тогда импульсы можно приближенно считать дельтаобразными

$$E(t) = \sum_n S_{E,n} \delta(t - t_n), \quad (8)$$

где t_n – задержки между импульсами, $S_{E,n}$ – электрическая площадь импульса с номером n . Взаимодействие считаем когерентным, т.е. интервал времени между импульсами короче времени релаксации поляризации среды T_2 .

В рамках теории возмущений амплитуды состояний даются выражением $a_k = \frac{d_{0k}}{\hbar} \int E(t) e^{i\omega_{0k}t} dt$ [111]. Таким образом, при воздействии на систему последовательности импульсов результирующая амплитуда состояний с номером n дается просто суммой амплитуд состояний, которая получалась бы при воздействии каждого импульса по отдельности, и зависит от задержек между импульсами. Для расчета населенности состояний нужно вычислить квадрат модуля получившейся амплитуды. Данная процедура аналогична вычислению интенсивности света (7) при интерференции двух монохроматических пучков света. В этом смысле результат воздействия последовательности ПКИ на квантовые системы может быть интерпретирован с точки зрения интерференции амплитуд связанных состояний системы [113, 114].

При воздействии на системы пары дельтаобразных импульсов $E(t) = S_{E,1}\delta(t) + S_{E,1}\delta(t - \Delta)$ выражение для населенности имеет вид [123, 124]

$$w_{0n} = \frac{d_{0n}^2 S_{E,1}^2}{\hbar^2} + \frac{d_{0n}^2 S_{E,2}^2}{\hbar^2} + 2S_{E,1}S_{E,2} \cos \omega_{0n}\Delta. \quad (9)$$

Видно, что населенность связанных состояний определяется суммой квадратов электрических площадей импульсов $S_{E,1}$, $S_{E,2}$ и периодически зависит от задержки между импульсами Δ . Аналогичные выражения можно получить для импульсов произвольной формы. Данное выражение очень похоже на выражение (7) для интенсивности света при интерференции двух монохроматических пучков света. В случае же ПКИ можно говорить об “интерференции” их электрических площадей – они могут как усилить друг друга, так и компенсировать в зависимости от задержки между импульсами [113, 114].

Если же на систему воздействует униполярный полуцикловый импульс, содержащий длинный осциллирующий хвост с меняющейся полярностью, то такой импульс можно представить в виде двух подимпульсов – униполярного и длинного биполярного. В этом случае воздействие такого импульса на квантовую систему будет зависеть от положения униполярной полуволны относительно биполярного хвоста, т.е. от задержки между униполярной и биполярной частью исходного импульса, а также от суммы квадратов электрической площади униполярной части и площади огибающей длинного хвоста. В такой ситуации можно говорить об интерференции электрической площади и площади огибающей импульсов [113, 114]. Эта интерференция может проявляться при воздействии подобных импульсов на атомные системы в экспериментах, аналогичных тем, которые были рассмотрены в работе [15].

Еще раз обсудим физический смысл “интерференции” площадей коротких световых импульсов. Он выражается в неявном сложении механических импульсов, передаваемых электромагнитным полем заряженной частице.

Квантовая система находится в суперпозиционном состоянии, которое возникает под действием электромагнитного импульса и имеет классический аналог, она ведет себя, как осциллятор. Так, первый световой импульс воздействует на систему, передает ей механический импульс и выводит систему из положения равновесия. В процессе последующих колебаний осциллятора механический импульс частицы меняет величину и направление во времени. Поэтому приход второго светового импульса, который также передает механический импульс квантовой частице, может либо суммироваться, либо вычитаться с приобретенным от действия первого импульса. Поэтому и появляется множитель с задержкой по времени, умноженной на частоту перехода, в “интерференционном члене” в выражении (9). Таким образом, интерференция площадей есть не что иное, как проявление сложения механических импульсов, переданных системе от светового поля, где один из механических импульсов периодически меняется во времени.

На этот эффект можно посмотреть иначе. Одинокороткий короткий электромагнитный импульс оставляет после себя в среде волну, которая распространяется вслед направлению движения импульса и существует в течение времени когерентности T_2 среды. Если через среду проходит второй импульс, то в отсутствие первого, он также сформирует свою волну поляризации. При действии двух

импульсов результирующая волна поляризации будет результатом их интерференции. Если импульсы двигались навстречу друг другу, то возникнет стоячая волна поляризации. Так сформируется решетка разности населенностей. Чем больше амплитуда суммарной волны, тем больше разность населенностей. В этих местах будет максимум разности населенностей. Рассуждение, конечно, справедливо для излучения, удовлетворяющего приближению теории возмущений.

Если выйти за рамки теории возмущений и рассмотреть случай интенсивных импульсов, значительно меняющих населенности уровней, то возникают более сложные структуры волн поляризации и разности населенностей, имеющих негармоническую форму [30, 129, 136–138]. Когда импульсы перекрываются в центре среды, в ней возможно формирование коротких и чередующихся участков, в которых существуют волны поляризации среды, бегущие в противоположных направлениях, см. [30, 129, 136–138]. В таких ситуациях направление распространения волны поляризации может не совпадать с направлением движения последнего импульса.

В работе [128] на основании численного решения временного уравнения Шредингера проводилось исследование динамики населенностей связанных состояний в среде из глубоких квантовых ям, возбуждаемых парой аттосекундных импульсов, в зависимости от задержки между ними. Численные расчеты также показали возможность наведения решетки населенностей со сложной мелкомасштабной структурой. Проявления “интерференции” площадей в сильных полях становятся не столь наглядными из-за нелинейного характера проявления.

Интересной оказалась ситуация с воздействием униполярных импульсов с выраженной негармонической формой, например, прямоугольной [138]. В этом случае при столкновении в среде последовательности униполярных импульсов негармонической прямоугольной формы в ней возможно появление каналов, которые можно рассматривать как динамические микрорезонаторы и световоды. Это участки среды порядка длины волны и более, вдоль которых разность населенностей имеет постоянное значение, а на границе области имеется скачок разности населенностей. Пример возникновения такого “канала” при столкновении в среде четырех прямоугольных импульсов представлен на рис. 4 (выделен пунктиром на рис. 4а). Приведенные результаты позволяют поставить вопрос о возможности наведения решеток выраженной негармонической формы с помощью негармонических униполярных импульсов [138].

9. Проявление интерференции площадей импульсов в голографии в отсутствие когерентности опорного и предметного пучков.

Другой интересный пример применения интерференции площадей униполярных импульсов – это голография. Схема голографической записи с использованием униполярных импульсов в отсутствие когерентности обсуждается в работе [126]. В традиционной голографии используется интерференция двух монохроматических (опорного и предметного) пучков, и пучки должны быть взаимно когерентными [36–38]. При использовании же униполярных импульсов данное требование снимается. Более того, для униполярных импульсов понятие взаимной когерентности в том понимании, в котором оно используется для длинных квазимонохроматических импульсов, лишено смысла. Схема голографической записи с помощью униполярных импульсов представлена на рис. 5 [126].

Униполярный импульс, проходя сквозь среду, наводит в ней волну поляризации. Затем, отражаясь от объекта, он возвращается в среду и, согласно вышеизложенному, создает в среде решетку разности населенностей. В этом случае необходима высокая когерентность среды, т.е. использование сред с большим временем фазовой памяти T_2 . Согласно (9), в среде регистрируется картина интерференции отраженного от объекта импульса, который воздействует на волну поляризации, наведенную исходным прошедшим импульсом. В этом случае возникают решетки разности населенностей, и поэтому возможно осуществление голографической записи со сверхвысоким временным разрешением в отсутствие взаимной когерентности между опорным и предметным пучком.

Отметим отличие рассмотренной ситуации от предложенной ранее эхо-голографии, в которой также используется наведение решеток при когерентном взаимодействии длинных многоциклового импульсов со средой, однако требовалась когерентность между опорной и предметной волной [119].

10. Заключение. Таким образом, в данном обзоре были рассмотрены последние работы по получению предельно коротких импульсов как одноциклового, так и субциклового в оптическом и ТГц диапазоне. Пока большинство работ в данной области имеет теоретический характер. В них рассматриваются различные ситуации экстремального воздействия интенсивных фемтосекундных импульсов на различные мишени с последующим образованием плазмы и взаимодействием с зарядами, в которых происходит возникновение предельно коротких

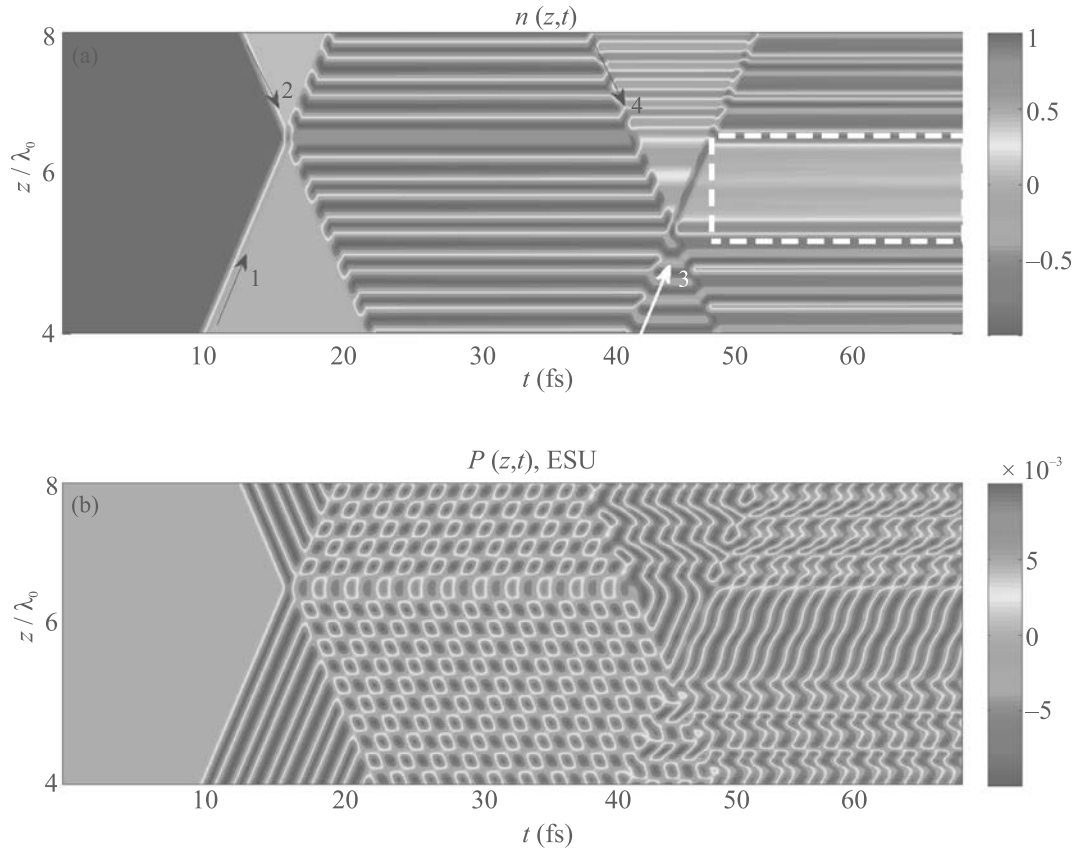


Рис. 4. (Цветной онлайн) На среду действуют четыре импульса. Показаны на рис. (а). (а) – Динамика разности населенностей $n(z, t)$. (б) – Динамика поляризации $P(z, t)$: пара $\pi/2$ -подобных униполярных импульсов прямоугольной формы сталкивается вблизи правого края среды в районе точки $z = 6.6\lambda_0$; $E_{02} = 0.9E_{01}$

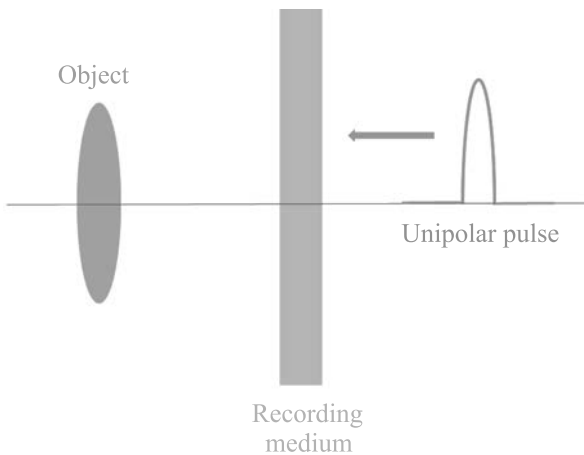


Рис. 5. (Цветной онлайн) Схема записи голограммы с помощью униполярного импульса

импульсов. Также изучается преобразование фемтосекундного излучения в различных нелинейных средах, приводящее к формированию предельно коротких импульсов. Анализируются возможности управ-

ления формой предельно коротких импульсов. Предложены схемы для осуществления интегрирования и дифференцирования по времени напряженности. Есть работы, в которых теоретически показана возможность генерации субцикловых импульсов за счет КСМ в лазерах с ультракоротким резонатором.

Экспериментальных исследований пока мало. В основном они нацелены на получение субцикловых и униполярных импульсов в ТГц диапазоне частот. Здесь можно выделить работы, в которых поставлена задача получения субцикловых ТГц импульсов управляемой формы в метаматериалах.

Интересные результаты получены в работах по анализу особенностей когерентного распространения предельно коротких импульсов в резонансных средах. В результате подобных исследований было предсказано и изучено новое явление самоостановки света в однородной резонансной среде. В такой ситуации в среде формируется связанная структура поля и вещества, названная световым осциллоном, осциллирующая во времени, но не перемещающаяся в пространстве.

Существует ряд работ, в которых целенаправленно изучаются особенности взаимодействия униполярных субцикловых предельно коротких импульсов с квантовыми системами, когда длительность импульса короче характерного времени, связанного с энергией основного состояния системы. Обобщая их результаты, для количественной характеристики их воздействия на различные среды введена новая физическая величина – атомная мера площади. Показано, что воздействие предельно коротких импульсов с такой длительностью на любые квантовые системы значительно изменит ее состояние, когда электрическая площадь импульса сравнима с атомной мерой площади системы.

Отметим, что электрическая площадь импульса электромагнитного излучения является физически значимой величиной, поскольку для нее существует закон сохранения площади в электродинамике диссипативных сред. Поэтому при интерпретации результатов воздействия двух и более униполярных импульсов на квантовые объекты можно говорить об “интерференции” электрических площадей действующих импульсов.

Приведенные в обзоре работы, вышедшие за последнюю пару лет, их результаты позволяют говорить о возникновении в последнее время нового направления в современной физике, которое можно назвать “Оптика униполярного и субциклового света”. Данная область является в последнее время бурно развивающейся областью современной физики и нелинейной оптики.

При этом не следует считать, что вопросы, связанные с таким излучением, не рассматривались ранее. Здесь можно отослать к обзору [32], охватывающему ранние работы. Читатели, интересующиеся применением униполярных импульсов для управления состояниями сверхпроводниковых кубитов и реализации квантовых алгоритмов с помощью униполярных импульсов, которые позволяют осуществлять это управление быстрее, чем импульсы с несущей частотой [139], могут ознакомиться с последними работами в этой области в обзоре [140] и цитируемой литературе.

Сейчас же, по мнению авторов, пришло время, когда теоретические предсказания, содержащиеся в работах по униполярному и субцикловому свету, близки к практической реализации. Здесь можно попытаться угадать наиболее важную область применения таких импульсов.

Несомненно, что униполярные и субцикловые ПКИ станут мощным инструментом исследования сверхбыстрых процессов в веществах. Затем появятся

работы, где с их помощью будут очень быстро управлять процессами в различных веществах. А затем наступит время, когда проводная радиоэлектроника, в которой электрические импульсы распространяются в металлических проводах, полупроводниках, будет вытесняться сверхбыстрыми аналогами радиоэлектронных схем, где негармонические и униполярные электрические импульсы заменят ПКИ оптического и смежных диапазонов. Пока эта задача кажется труднореализуемой, но только таким образом можно повысить скорости обработки и передачи информации в сотни и тысячи раз.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 21-72-10028 (получение ПКИ и их взаимодействие с резонансными средами) и фонда развития теоретической физики Базис (возможность наведения электромагнитно индуцированных решеток негармонической формы и их когерентное управление в резонансных средах).

Авторы выражают благодарность И. В. Бабушкину, С. В. Сазонову, А. И. Маймистову, А. В. Богацкой, А. М. Попову, А. Н. Цыпкину, М. О. Жуковой, А. М. Бастраковой, А. Демиркану, У. Моргнеру за полезные обсуждения вопросов, рассмотренных в данном обзоре.

1. A. J. D. Maria, D. A. Stetser, and H. Heynau, *Appl. Phys. Lett.* **8**, 174 (1966).
2. П. Г. Крюков, В. С. Летохов, *УФН* **99**, 169 (1969) [P. G. Kryukov and V. S. Letokhov, *Sov. Phys.-Uspekhi* **12**, 641 (1970)].
3. O. Svelto and D. C. Hanna, *Principles of lasers*, Plenum Press, N.Y. (1998) [О. Звелто, *Принципы лазеров*, Издательство “Лань”, СПб. (2008)].
4. U. Keller, *Appl. Phys. B* **100**, 15 (2010).
5. П. Г. Крюков, *УФН* **183**, 897 (2013) [P. G. Kryukov, *Phys.-Uspekhi* **56**, 849 (2013)].
6. J. Levesque and P. V. Corkum, *Can. J. Phys.* **84**, 1 (2006).
7. G. Mourou, *Rev. Mod. Phys.* **91**, 030501 (2019).
8. Е. А. Хазанов, *Квантовая электроника* **52**, 208 (2022) [E. A. Khazanov, *Quantum Electron.* **52**, 208 (2022)].
9. F. Krausz and M. Ivanov, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 163 (2009).
10. F. Calegari, G. Sansone, S. Stagira, C. Vozzi, and M. Nisoli, *J. Phys. B* **49**, 062001 (2016).
11. M. F. Ciappina, J. A. Perez-Hernandez, A. S. Landsman et al. (Collaboration), *Rep. Prog. Phys.* **80**, 054401 (2017).
12. J. Biegert, F. Calegari, N. Dudovich, F. Quéré, and M. Vrakking, *J. Phys. B* **54**, 070201 (2021).

13. L. Seiffert, S. Zherebtsov, M. F. Kling, and T. Fennel, *Adv. Phys. X* **7**, 2010595 (2022).
14. K. Midorikawa, *Nature Photon.* **16**, 267 (2022).
15. M. T. Hassan, T. T. Luu, A. Moulet, O. Raskazovskaya, P. Zhokhov, M. Garg, N. Karpowicz, A. M. Zheltikov, V. Pervak, F. Krausz, and E. Goulielmakis, *Nature* **530**, 66 (2016).
16. А. М. Желтиков, *УФН* **187**, 1169 (2017) [A. M. Zheltikov, *Phys.-Uspekhi* **60**, 1087 (2017)].
17. А. М. Желтиков, *УФН* **188**, 1119 (2018) [A. M. Zheltikov, *Phys.-Uspekhi* **61**, 1016 (2018)].
18. А. М. Желтиков, *УФН* **191**, 386 (2021) [A. M. Zheltikov, *Phys.-Uspekhi* **64**, 370 (2021)].
19. J. Biegert, F. Calegari, N. Dudovich, F. Quéré, and M. Vrakking, *J. Phys. B* **54**, 070201 (2021).
20. М. К. Есеев, В. И. Матвеев, Д. Н. Макаров, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 444 (2021) [M. K. Eseev, V. I. Matveev, and D. N. Makarov, *JETP Lett.* **114**(7), 387 (2021)].
21. B. Xue, K. Midorikawa, and E. J. Takahashi, *Optica* **9**, 360 (2022).
22. D. Hui, H. Alqattan, S. Yamada, V. Pervak, K. Yabana, and M. Th. Hassan, *Nature Photon.* **16**, 33 (2022).
23. P. Peng, Y. Mi, M. Lytova, M. Britton, X. Ding, A. Yu. Naumov, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve, *Nature Photon.* **16**, 45 (2022).
24. M. Kretschmar, A. Hadjipittas, B. Major, J. Tümmler, I. Will, T. Nagy, M. J. J. Vrakking, A. Emmanouilidou, and B. Schutte, *Optica* **9**, 639 (2022).
25. Н. Н. Розанов, Р. М. Архипов, М. В. Архипов, *УФН* **188**, 1347 (2018) [N. N. Rosanov, R. M. Arkhipov, and M. V. Arkhipov, *Phys.-Uspekhi* **61**, 1227 (2018)].
26. Р. М. Архипов, А. В. Пахомов, М. В. Архипов, И. Бабушкин, Ю. А. Толмачев, Н. Н. Розанов, *Письма в ЖЭТФ* **105**, 388 (2017) [R. M. Arkhipov, A. V. Pakhomov, M. V. Arkhipov, I. Babushkin, Yu. A. Tolmachev, and N. N. Rosanov, *JETP Lett.* **105**(7), 408 (2017)].
27. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, А. А. Шимко, А. В. Пахомов, Н. Н. Розанов, *Письма в ЖЭТФ* **110**(1), 9 (2019) [R. M. Arkhipov, M. V. Arkhipov, A. A. Shimko, A. V. Pakhomov, and N. N. Rosanov, *JETP Lett.* **110**(1), 15 (2019)].
28. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, Н. Н. Розанов, *Квантовая электроника* **50**, 801 (2020) [R. M. Arkhipov, M. V. Arkhipov, and N. N. Rosanov, *Quantum Electron.* **50**, 801 (2020)].
29. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, А. В. Пахомов, М. О. Жукова, А. Н. Цыпкин, Н. Н. Розанов, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 237 (2021) [A. V. Pakhomov, M. O. Zhukova, A. N. Tsypkin, and N. N. Rosanov, *JETP Lett.* **113**(4), 242 (2021)].
30. Р. М. Архипов, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 636 (2021) [R. M. Arkhipov, *JETP Lett.* **113**, 611 (2021)].
31. R. M. Arkhipov, M. V. Arkhipov, A. V. Pakhomov, I. V. Babushkin, and N. N. Rosanov, *Laser Phys. Lett.* **19**, 043001 (2022).
32. С. В. Сазонов, *Оптика и спектроскопия* **130**(12), 1846 (2022).
33. Л. В. Келдыш, *ЖЭТФ* **47**, 1945 (1964) [L. V. Keldysh, *Sov. Phys. JETP* **20**(5), 1307 (1965)].
34. С. А. Ахманов, С. Ю. Никитин, *Физическая оптика*, Наука, М. (2004) [S. A. Akhmanov and S. Y. Nikitin, *Physical optics*, Clarendon Press, Oxford (1997)].
35. М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики*, Наука, М. (1973) [M. Born and E. Wolf, *Principles of optics: electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light*, Pergamon Press, Oxford (1980)].
36. Ю. И. Островский, *Голография*, Наука, Л. (1970).
37. Ю. И. Островский, М. М. Бутусов, Г. В. Островская, *Голографическая интерферометрия*, Наука, М. (1977).
38. R. Collier, C. Burckhardt, and L. Lin, *Optical holography*, Academic Press, N.Y. (1971).
39. S. L. McCall and E. L. Hahn, *Phys. Rev.* **183**, 457 (1969).
40. Н. Н. Розанов, И. А. Александров, М. В. Архипов, Р. М. Архипов, И. Бабушкин, Н. А. Веретенков, А. В. Дадеко, Д. А. Тумаков, С. В. Федоров, *Квантовая электроника* **51**, 959 (2021) [N. N. Rosanov, I. A. Aleksandrov, M. V. Arkhipov, R. M. Arkhipov, I. Babushkin, N. A. Veretenov, A. V. Dadeko, D. A. Tumakov, and S. V. Fedorov, *Quantum Electron.* **51**, 959 (2021)].
41. А. В. Богатская, Е. А. Волкова, А. М. Попов, *Phys. Rev. E* **104**, 025202 (2021).
42. А. В. Богатская, Е. А. Волкова, and А. М. Попов, *Phys. Rev. E* **105**, 055203 (2022).
43. Y. Shou, R. Hu, Z. Gong, J. Yu, J.-e. Chen, G. Mourou, X. Yan, and W. Ma, *New J. Phys.* **23**, 053003 (2021).
44. A. S. Kuratov, A. V. Brantov, V. F. Kovalev, and V. Yu. Bychenkov, *Phys. Rev. E* **106**, 035201 (2022).
45. H.-C. Wu and J. Meyer-ter Vehn, *Nature Photon.* **6**, 304 (2012).
46. 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).
47. С. В. Сазонов, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 160 (2021) [S. V. Sazonov, *JETP Lett.* **114**(3), 132 (2021)].
48. S. V. Sazonov, *Laser Phys. Lett.* **18**, 105401 (2021).
49. С. В. Сазонов, Н. В. Устинов, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 437 (2021) [S. V. Sazonov and N. V. Ustinov, *JETP Lett.* **114**(7), 380 (2021)].
50. С. В. Сазонов, *Письма в ЖЭТФ* **116**(1), 25 (2022) [S. V. Sazonov, *JETP Lett.* **116**(1), 22 (2022)].
51. S. V. Sazonov, *Las. Phys. Lett.* **19**, 115402 (2022).

52. С. В. Сазонов, Письма в ЖЭТФ **116**(8), 563 (2022) [S. V. Sazonov, JETP Lett. **116**(8), (2022)].
53. М. В. Архипов, А. Н. Цыпкин, М. О. Жукова, А. О. Исмагилов, А. В. Пахомов, Н. Н. Розанов, Р. М. Архипов, Письма в ЖЭТФ **115**(1), 3 (2022) [M. V. Arkhipov, A. N. Tsyupkin, M. O. Zhukova, A. O. Ismagilov, A. V. Pakhomov, N. N. Rosanov, and R. M. Arkhipov, JETP Lett. **115**, 1 (2022)].
54. Е. Пыakov, В. В. Shishkin, Е. S. Efimenko, S. B. Vodrov, and M. I. Vakunov, Opt. Express **30**, 14978 (2022).
55. А. В. Пахомов, М. В. Архипов, Н. Н. Розанов, Р. М. Архипов, Письма в ЖЭТФ **116**(3), 151 (2022) [A. V. Pakhomov, M. V. Arkhipov, N. N. Rosanov, and R. M. Arkhipov, JETP Lett. **116**, 149 (2022)].
56. А. Pakhomov, M. Arkhipov, N. Rosanov, and R. Arkhipov, Phys. Rev. A **106**(5), 053506 (2022).
57. В. В. Кулагин, В. Н. Корниенко, В. А. Черепенин, Квантовая электроника **46**(4), 315 (2016) [V. V. Kulagin, V. N. Kornienko, and V. A. Cherepenin, Quantum Electron. **46**(4), 315 (2016)].
58. В. В. Кулагин, В. Н. Корниенко, В. А. Черепенин, Д. Н. Гупта, Х. Сак, Квантовая электроника **49**(8), 788 (2019) [V. V. Kulagin, V. N. Kornienko, V. A. Cherepenin, D. N. Gupta, and H. Suk, Quantum Electron. **49**(8), 788 (2019)].
59. J. A. Fülöp, S. Tzortzakis, and T. Kampfrath, Adv. Opt. Mater. **8**(3), 1900681 (2020).
60. P. Li, S. Liu, X. Chen, C. Geng, and X. Wu, Front. Optoelectron. **15**, 12 (2022).
61. М. Ю. Романовский, Квантовая электроника **47**(3), 212 (2017). [M. Y. Romanovsky, Quantum Electron. **47**(3), 212 (2017)].
62. W. R. Huang, A. Fallahi, X. Wu, H. Cankaya, A. Calendron, K. Ravi, D. Zhang, E. A. Nanni, K. Hong, and F. X. Kärtner, Optica **3**, 1209 (2016).
63. M. T. Hibberd, A. L. Healy, D. S. Lake, V. Georgiadis, E. J. H. Smith, O. J. Finlay, Th. H. Pacey, J. K. Jones, Y. Saveliev, D. A. Walsh, E. W. Snedden, R. B. Appleby, G. Burt, D. M. Graham, and S. P. Jamison, Nature Photon. **14**, 755 (2020).
64. P. A. Obraztsov, T. Kaplas, S. V. Garnov, M. Kuwata-Gonokami, A. N. Obraztsov, and Y. P. Svirko, Sci. Rep. **4**, 4007 (2014).
65. P. A. Obraztsov, N. Kanda, K. Konishi, M. Kuwata-Gonokami, S. V. Garnov, A. N. Obraztsov, and Y. P. Svirko, Phys. Rev. B **90**, 241416(R) (2014).
66. P. A. Obraztsov, P. A. Chizhov, T. Kaplas, V. V. Bukin, M. Silvennoinen, C. Hsieh, K. Konishi, N. Nemoto, and M. Kuwata-Gonokami, ACS Photonics **6**(7), 1780 (2019).
67. A. N. Obraztsov, D. A. Lyashenko, S. Fang, R. H. Baughman, P. A. Obraztsov, S. V. Garnov, and Y. P. Svirko, Appl. Phys. Lett. **94**, 231112 (2009).
68. P. A. Obraztsov, D. Lyashenko, P. A. Chizhov, K. Konishi, N. Nemoto, M. Kuwata-Gonokami, E. Welch, A. N. Obraztsov, and A. Zakhidov, Commun. Phys. **1**, 14 (2018).
69. V. I. Korolev, A. P. Pushkarev, P. A. Obraztsov, A. N. Tsyupkin, A. A. Zakhidov, and S. V. Makarov, Nanophotonics **9**(1), 187 (2020).
70. L. Fu, C. L. Kane, and E. J. Mele, Phys. Rev. Lett. **98**(10), 106803 (2007).
71. N. Nemoto, T. Higuchi, N. Kanda, K. Konishi, and M. Kuwata-Gonokami, Opt. Express **22**, 17915 (2014).
72. U. Morgner, F. X. Kartner, S. H. Cho, Y. Chen, H. A. Haus, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, and T. Tschudi, Opt. Lett. **24**, 411 (1999).
73. Л. Аллен, Дж. Эберли, *Оптический резонанс и двухуровневые атомы*, Мир, М. (1978) [L. Allen and J. H. Eberly, *Optical resonance and two-level atoms*, Wiley, N.Y. (1975)].
74. R. Arkhipov, M. Arkhipov, A. Pakhomov, I. Babushkin, and N. Rosanov, Phys. Rev. A **105**, 013526 (2022).
75. R. Arkhipov, M. Arkhipov, I. Babushkin, A. Pakhomov, and N. Rosanov, J. Opt. Soc. Am. B **38**, 2004 (2021).
76. R. Arkhipov, M. Arkhipov, A. Demircan, U. Morgner, I. Babushkin, and N. Rosanov, Opt. Express **29**, 10134 (2021).
77. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, С. В. Федоров, Н. Н. Розанов, Оптика и спектроскопия **129**(10), 1286 (2021).
78. M. Arkhipov, R. Arkhipov, I. Babushkin, and N. Rosanov, Phys. Rev. Lett. **128**, 203901 (2022).
79. M. M. Kash, V. A. Sautenkov, A. S. Zibrov, L. Hollberg, G. R. Welch, M. D. Lukin, Yu. Rostovtsev, E. S. Fry, and M. O. Scully, Phys. Rev. Lett. **82**, 5229 (1999).
80. L. V. Hau, S. E. Harris, Z. Dutton, and C. H. Behroozi, Nature **397**, 594 (1999).
81. D. F. Phillips, A. Fleischhauer, A. Mair, R. L. Walsworth, and M. D. Lukin, Phys. Rev. Lett. **86**, 783 (2001).
82. D. V. Novitsky, Phys. Rev. A **82**(1), 015802 (2010).
83. R. H. Goodman, R. E. Slusher, and M. I. Weinstein, JOSA B **19**(7), 163 (2002).
84. P. Chen, B. A. Malomed, and P. L. Chu, Phys. Rev. E **71**(6), 066601 (2005).
85. W. Mak, B. A. Malomed, and P. L. Chu, Phys. Rev. E **68**, 026609 (2003).
86. J. Zhou, H. Shao, J. Zhao, X. Yu, and K. S. Wong, Opt. Lett. **30**(12), 1560 (2005).
87. J. T. Li and J. Y. Zhou, Opt. Express **14**(7), 2811 (2006).
88. Б. И. Манцызов, *Когерентная и нелинейная оптика фотонных кристаллов*, Физматлит, М. (2009), гл. 3.

89. Ch. Liu, Z. Dutton, C.H. Behroozi, and L.V. Hau, *Nature* **409**, 490 (2001).
90. N.S. Ginsberg, S.N. Garner, and L.V. Hau, *Nature* **445**, 623 (2007).
91. D.A. Bykov, L.L. Doskolovich, and V.A. Soifer, *Opt. Lett.* **36**, 3509 (2011).
92. D.A. Bykov, L.L. Doskolovich, and V.A. Soifer, *J. Opt. Soc. Am. A* **29**, 1734 (2012).
93. D. Bykov, L. Doskolovich, N. Golovastikov, and V. Soifer, *J. Opt.* **15**, 105703 (2013).
94. N.Q. Ngo, *Opt. Lett.* **32**, 3402 (2007).
95. N.K. Berger, B. Levit, B. Fischer, M. Kulishov, D.V. Plant, and J. Azana, *Opt. Express* **15**, 371 (2007).
96. R. Slavik, Y. Park, N. Ayotte, S. Doucet, T.-J. Ahn, S. LaRochelle, and J. Azana, *Opt. Express* **16**, 18202 (2008).
97. N.L. Kazanskiy and P.G. Serafimovich, *Opt. Express* **22**, 14004 (2014).
98. W. Liu, M. Li, R. Guzzon, E. Norberg, J. Parker, M. Lu, L. Coldren, and J. Yao, *Nature Photon.* **10**, 190 (2016).
99. A.V. Pakhomov, R.M. Arkhipov, M.V. Arkhipov, and N.N. Rosanov, *Opt. Lett.* **46**, 2868 (2021).
100. A.V. Пахомов, Р.М. Архипов, М.В. Архипов, Н.Н. Розанов, *Квантовая электроника* **51**, 1000 (2021) [A.V. Pakhomov, R.M. Arkhipov, M.V. Arkhipov, and N.N. Rosanov, *Quantum Electron.* **51**(11), 1000 (2021)].
101. В.Н. Корниенко, В.В. Кулагин, *Сборник трудов XXXIII Всероссийской школы-семинара "Волновые явления: физика и применения" имени А.П. Сухорукова, "Волны-2022"*, Секция 3, с. 17, ISBN 978-5-6045125-2-4; <http://waves.phys.msu.ru/arch.html>.
102. Н.Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **127**, 960 (2019) [N.N. Rosanov, *Optics and Spectroscopy* **127**, 1050 (2019)].
103. Н.Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **124**(1), 75 (2018) [N.N. Rosanov, *Optics and Spectroscopy* **124**(1), 72 (2018)].
104. R.M. Arkhipov, M.V. Arkhipov, I. Babushkin, A. Demircan, U. Morgner, and N.N. Rosanov, *Opt. Lett.* **44**, 1202 (2019).
105. Р.М. Архипов, М.В. Архипов, А.В. Пахомов, Н.Н. Розанов, *Письма в ЖЭТФ* **114**(3), 156 (2021) [R.M. Arkhipov, M.V. Arkhipov, A.V. Pakhomov, and N.N. Rosanov, *JETP Lett.* **114**(3), 129 (2021)].
106. N. Rosanov, D. Tumakov, M. Arkhipov, and R. Arkhipov, *Phys. Rev. A* **104**(6), 063101 (2021).
107. A. Pakhomov, M. Arkhipov, N. Rosanov, and R. Arkhipov, *Phys. Rev. A* **43103**(4), 043103 (2022).
108. Р.М. Архипов, М.В. Архипов, А.В. Пахомов, Н.Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **130**(3), 414 (2022) [R.M. Arkhipov, M.V. Arkhipov, A.V. Pakhomov, N.N. Rosanov, *Optics and Spectroscopy* **130**(3), 351 (2022)].
109. Р.М. Архипов, П.А. Белов, М.В. Архипов, А.В. Пахомов, Н.Н. Розанов, *Квантовая электроника* **52**(7), 610 (2022).
110. А.Б. Мигдал, *ЖЭТФ* **9**, 1163 (1939) [A.V. Migdal, *Sov. Phys. JETP* **9**, 1163 (1939)].
111. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Квантовая механика. Нерелятивистская теория*, Наука, М. (1989), 768 с. [L.D. Landau and E.M. Lifshitz, *Quantum mechanics*, Pergamon, Oxford (1974)].
112. Р.М. Архипов, М.В. Архипов, П.А. Белов, А.В. Пахомов, Н.Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **131**(1), (2023), в печати.
113. Р.М. Архипов, М.В. Архипов, И. Бабушкин, А.В. Пахомов, Н.Н. Розанов, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 298 (2021) [R.M. Arkhipov, M.V. Arkhipov, A.V. Pakhomov, I. Babushkin, and N.N. Rosanov, *JETP Lett.* **114**, 250 (2021)].
114. R. Arkhipov, M. Arkhipov, A. Pakhomov, and N. Rosanov, *Laser Phys.* **32**(6), 066002 (2022).
115. Р.М. Архипов, М.В. Архипов, Н.Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **130**(7), 1098 (2022).
116. I.D. Abella, N.A. Kurnit, and S.R. Hartmann, *Phys. Rev.* **141**, 391 (1966).
117. Е.И. Штырков, В.С. Лобков, Н.Г. Ярмухаметов, *Письма в ЖЭТФ* **27**, 685 (1978) [E.I. Shtyrkov, V.S. Lobkov, and N.G. Yarmukhametov, *JETP Lett.* **27**, 648 (1978)].
118. С.А. Моисеев, Е.И. Штырков, *Квантовая электроника* **18**, 447 (1991) [S.A. Moiseev and E.I. Shtyrkov, *Sov. J. Quantum Electron.* **21**, 403 (1991)].
119. Е.И. Штырков, *Оптика и спектроскопия* **114**, 105 (2013) [E.I. Shtyrkov, *Optics and Spectroscopy* **114**, 96 (2013)].
120. R.M. Arkhipov, M.V. Arkhipov, I. Babushkin, A. Demircan, U. Morgner, and N.N. Rosanov, *Opt. Lett.* **41**, 4983 (2016).
121. R.M. Arkhipov, M.V. Arkhipov, I. Babushkin, A. Demircan, U. Morgner, and N.N. Rosanov, *Sci. Rep.* **7**, 12467 (2017).
122. R.M. Arkhipov, M.V. Arkhipov, A.V. Pakhomov, I. Babushkin, and N.N. Rosanov, *Laser Phys. Lett.* **14**, 1 (2017).
123. Р.М. Архипов, М.В. Архипов, А.В. Пахомов, Н.Н. Розанов, *Квантовая электроника* **49**, 958 (2019) [R.M. Arkhipov, M.V. Arkhipov, A.V. Pakhomov, and N.N. Rosanov, *Quantum Electron.* **49**, 958 (2019)].
124. R. Arkhipov, A. Pakhomov, M. Arkhipov, I. Babushkin, A. Demircan, U. Morgner, and N.N. Rosanov, *Sci. Rep.* **11**, 1961 (2021).

125. R. Arkhipov, A. Pakhomov, M. Arkhipov, A. Demircan, U. Morgner, and N. Rosanov, *Opt. Express* **28**, 17020 (2020).
126. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, Н. Н. Розанов, *Письма в ЖЭТФ* **111**, 586 (2020) [R. M. Arkhipov, M. V. Arkhipov, and N. N. Rosanov, *JETP Lett.* **111**, 484 (2020)].
127. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, А. В. Пахомов, Ю. М. Артемьев, Н. Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **129**, 627 (2021) [R. M. Arkhipov, M. V. Arkhipov, A. V. Pakhomov, Yu. M. Artem'ev, and N. N. Rosanov, *Optics and Spectroscopy* **129**, 605 (2021)].
128. Р. М. Архипов, П. А. Белов, М. В. Архипов, А. В. Пахомов, Н. Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **130**(6), 969 (2022).
129. М. В. Архипов, Р. М. Архипов, Н. Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **130**(9), 1397 (2022).
130. А. Ю. Пархоменко, С. В. Сазонов, *Письма в ЖЭТФ* **67**, 887 (1998) [A. Yu. Parkhomenko and S. V. Sazonov, *JETP Lett.* **67**, 934 (1998)].
131. А. Ю. Пархоменко, С. В. Сазонов, *Оптика и спектроскопия* **90**, 788 (2001) [A. Yu. Parkhomenko and S. V. Sazonov, *Optics and Spectroscopy* **90**, 707 (2001)].
132. С. В. Сазонов, *Оптика и спектроскопия* **94**, 453 (2003) [S. V. Sazonov, *Optics and Spectroscopy* **94**, 400 (2003)].
133. С. В. Сазонов, А. Ф. Соболевский, *ЖЭТФ* **123**, 919 (2003) [S. V. Sazonov and A. F. Sobolevskii, *JETP* **96**, 807 (2003)].
134. Н. В. Знаменский, С. В. Сазонов, *Письма в ЖЭТФ* **85**, 440 (2007) [N. V. Znamenskii and S. V. Sazonov, *JETP Lett.* **85**, 358 (2007)].
135. Н. В. Знаменский, С. В. Сазонов, *Оптика и спектроскопия* **104**, 415 (2008) [N. V. Znamenskii and S. V. Sazonov, *Optics and Spectroscopy* **104**, 378 (2008)].
136. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, А. В. Пахомов, И. Бабушкин, Н. Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **123**, 600 (2017) [R. M. Arkhipov, M. V. Arkhipov, A. V. Pakhomov, I. Babushkin, and N. N. Rosanov, *Optics and Spectroscopy* **123**, 610 (2017)].
137. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, А. В. Пахомов, Д. О. Жигулева, Н. Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **124**, 510 (2018) [R. M. Arkhipov, A. V. Pakhomov, M. V. Arkhipov, D. O. Zhiguleva, and N. N. Rosanov, *Optics and Spectroscopy* **124**, 541 (2018)].
138. Р. М. Архипов, М. В. Архипов, А. В. Пахомов, О. О. Дьячкова, Н. Н. Розанов, *Оптика и спектроскопия* **130**(11), 1707 (2022).
139. М. В. Бастракова, Н. В. Кленов, А. М. Сатанин, *ЖЭТФ* **158**(4), 579 (2020) [M. V. Bastrakova, N. V. Klenov, and A. M. Satanin, *JETP* **131**, 507 (2020)].
140. В. А. Вожаков, М. В. Бастракова, Н. В. Кленов, И. И. Соловьев, В. В. Погосов, Д. В. Бабухин, А. А. Жуков, А. М. Сатанин, *УФН* **192**, 457 (2022) [V. A. Vozhakov, M. V. Bastrakova, N. V. Klenov, I. I. Soloviev, W. V. Pogosov, D. V. Babukhin, A. A. Zhukov, and A. M. Satanin, *Phys.-Uspekhi* **65**, 421 (2022)].

Теоретические основы квантовой спектральной оптической когерентной томографии с частотным сканированием

Н. А. Ушаков¹⁾, Т. А. Маковецкая, А. А. Маркварт, Л. Б. Лиокумович

⁺ Санкт-Петербургский Политехнический Университет Петра Великого, 195251 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 4 октября 2022 г.

После переработки 8 ноября 2022 г.

Принята к публикации 17 ноября 2022 г.

Целью данной работы является разработка подхода квантовой спектральной оптической когерентной томографии (ОКТ), основанного на управлении совместной спектральной амплитудой (ССА) бифотона. Получено аналитическое выражение, описывающее сигнал квантовой спектральной ОКТ в случае гауссовой формы ССА. Было проанализировано влияние формы ССА бифотона на конечный интерференционный сигнал и рассмотрена возможность улучшения качества интерференционного сигнала путем управления свойствами ССА. Теоретически показано, что предложенный подход превосходит другие методы ОКТ с точки зрения продольной пространственной разрешающей способности.

DOI: 10.31857/S1234567823010032, EDN: nurgsk

1. Введение. Оптическая когерентная томография (ОКТ) [1] активно используется в различных областях медицинской диагностики благодаря способности неинвазивного исследования свойств оптически прозрачных объектов. Будучи основанной на низкокогерентной (или спектральной) интерферометрии [2, 3], типовая система ОКТ имеет структуру интерферометра Майкельсона, в котором одно плечо является опорным, а второе формируется за счет отражения и рассеяния света внутри объекта исследований.

ОКТ изображения формируются из так называемых А-сканов, получаемых либо путем сканирования разности длин плеч при малой длине когерентности источника (временная ОКТ), либо путем измерения зависимости интенсивности интерференционного сигнала (ИС) от длины волны света и последующего применения преобразования Фурье к полученной зависимости (спектральная ОКТ). В работах [4, 5] было показано преимущество спектральной ОКТ над временной с точки зрения устойчивости к шумам и чувствительности.

Поскольку измерения в ОКТ системах производятся за счет интерференции опорной волны и волны, прошедшей через исследуемый образец, при большой ширине спектра волн хроматическая дисперсия образца приводит к неравномерности разности оптических путей от частоты, что ухудшает продольную пространственную разрешающую способность [6].

Квантово-оптическая версия ОКТ была предложена и впервые реализована в работах [7, 8] и получила широкое внимание большого количества исследовательских групп благодаря улучшенной разрешающей способности, компенсации влияния хроматической дисперсии исследуемого образца и низкой интенсивности зондирующего излучения. В основе квантовой ОКТ лежит интерференция бифотонов [9–12], часто называемая эффектом Хонга–Оу–Мандела, позволяющая находить разность оптических путей между двумя плечами интерферометра.

По схеме экспериментальной установки, квантовый ОКТ подход эквивалентен классической временной ОКТ, поскольку в обоих подходах локализация позиции отражателя внутри образца достигается за счет механического сканирования опорного зеркала. За счет малой длины когерентности бифотона, интерференция происходит только при совпадении оптических путей плеч, что проявляется как пик или провал в измеренной зависимости вероятности совместного детектирования фотонов (ВСДФ) от разности длин плеч. Основным недостатком данного подхода, как и временной ОКТ, является необходимость введения в установку механически сканируемых элементов, что снижает точность и быстродействие измерений.

Данная работа посвящена теоретическому обоснованию и анализу нового подхода квантовой ОКТ, который может быть реализован без каких-либо движущихся частей и включает спектральную перестройку источника бифотонов. Для этого получим

¹⁾e-mail: n.ushakoff@spbstu.ru

выражение для ВСДФ в зависимости от спектральных свойств бифотона, при условии, что один из фотонов проходит через исследуемый образец, расположенный в сигнальном плече интерферометра, как показано на рис. 1.

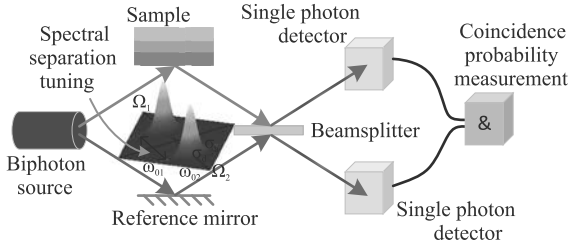


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематическое изображение экспериментальной установки квантовой спектральной оптической когерентной томографии

2. Сигнал бифотонной интерференции. Теоретический анализ в данном разделе будет проведен по аналогии с работами [14, 13]. Согласно использованной в этих работах модели, совместная спектральная амплитуда (ССА) частотно-вырожденного бифотона в случае гауссовой формы спектра может быть описана выражением

$$\exp \left[- \left(\frac{(\Omega_1 - \omega_{01}) - (\Omega_2 - \omega_{02})}{\sqrt{2}\sigma_a} \right)^2 - \left(\frac{(\Omega_1 - \omega_{01}) + (\Omega_2 - \omega_{02})}{\sqrt{2}\sigma_d} \right)^2 \right], \quad (1)$$

где ω_{01} и ω_{02} — центральные частоты спектральных распределений спутанных фотонов, σ_d и σ_a — диагональная и антидиагональная ширины ССА, Ω_1 и Ω_2 — переменные, ответственные за флуктуацию частот фотонов от пары к паре. Гауссова форма ССА хорошо соответствует экспериментальным результатам спектров бифотонов [13–15].

Однако, в случае значительной разницы центральных частот фотонов $|\omega_{01} - \omega_{02}| = \delta \gg \sigma_a$, в состоянии, описываемом выражением (1) отсутствует какая-либо неопределенность (фотоны с большей и меньшей частотами находятся в определенных оптических модах), что делает интерференцию такого состояния невозможной. После симметризации ССА относительно прямой $\Omega_1 = \Omega_2$ интерференция становится возможной, при этом один из вариантов такого состояния описывается формулой

$$g(\Omega_1, \Omega_2) = f(\Omega_1, \Omega_2)/\sqrt{2} + f(\Omega_2, \Omega_1)/\sqrt{2}. \quad (2)$$

Подобные состояния были реализованы экспериментально в работах [15, 14] при помощи спонтанного параметрического рассеяния и специальных поляризационных схем.

В приложениях ОКТ, отражающие свойства образца оказывают важное влияние на вид ИС. Для исследуемого образца, имеющего две отражающих границы слоев, комплексный коэффициент отражения может быть записан как

$$H(\omega, T) = r_1 + r_2 \cdot \exp(2i\omega T), \quad (3)$$

где r_1 и r_2 — коэффициенты отражения первого и второго слоев образца для электрического поля, а $T = nL/c$ — временная задержка, приобретаемая светом при распространении между границами (n и L — показатель преломления и геометрическая толщина среды между отражающими границами, c — скорость света в вакууме).

ВСДФ в экспериментальной конфигурации, показанной на рис. 1 обуславливается интерференцией бифотона и по аналогии с частотно-вырожденным случаем [13] может быть записана в виде

$$C(\tau, T) = \frac{1}{4} \int \int |g(\Omega_1, \Omega_2)H(\Omega_2, T) \exp(i\Omega_1\tau) - g(\Omega_2, \Omega_1)H(\Omega_1, T) \exp(i\Omega_2\tau)|^2 d\Omega_1 d\Omega_2, \quad (4)$$

где τ — разница между временными задержками света в плечах в отсутствие исследуемого образца в сигнальном плече интерферометра.

Подставляя выражения (1), (2) и (3) в (4), беря интегралы, получаем следующее выражение для ВСДФ

$$\begin{aligned} C(\tau, T) = & (r_1^2 + r_2^2)(1 + \exp(-\delta^2/\sigma_a^2))/2 - \\ & r_1^2 \exp \left[-\frac{\sigma_a^2 \tau^2}{4} \right] \cos(\delta\tau) / 2 - \\ & r_2^2 \exp \left[-\frac{(2T - \tau)^2 \sigma_a^2}{4} \right] \cos(\delta(2T - \tau)) / 2 + \\ & r_1 r_2 \exp \left[-\frac{T^2 (\sigma_a^2 + \sigma_d^2)}{4} \right] \cos(2\omega_0 T) \cdot \\ & \left[\cos(2\delta T) + \exp \left(-\frac{\delta^2}{\sigma_a^2} \right) \right] - \\ & r_1 r_2 \exp \left[-\frac{(T - \tau)^2 \sigma_a^2}{4} - \frac{T^2 \sigma_d^2}{4} \right] \cos(2\omega_0 T) \cdot \\ & \left[\cos[\delta(T - \tau)] + \exp \left(-\frac{\delta^2}{\sigma_a^2} \right) \right], \quad (5) \end{aligned}$$

где $\omega_0 = (\omega_{01} + \omega_{02})/2$ — среднее между центральными частотами фотонов.

В том случае, если исследуемый образец обладает хроматической дисперсией, выражение (3) можно записать в следующем виде

$$H(\omega, T) = r_1 + r_2 \cdot \exp(2i\omega T + i\omega^2 t/2), \quad (6)$$

где $t = \beta'' \cdot 2L$ – дисперсия групповых задержек, связанная с толщиной рассматриваемого слоя L и дисперсией групповых скоростей β'' в этом слое. При подстановке выражения (6) в (4), можно видеть, что интерференционные компоненты (ИК) содержат произведения $H(\Omega_{1,2}, T) \cdot H^*(\Omega_{1,2}, T)$, которые, с учетом антикоррелированности частот спутанных фотонов (обусловленной выполнением закона сохранения энергии при их генерации), можно переписать как $H(\omega + \Omega_a, T) \cdot H^*(\omega - \Omega_a, T)$, где $\Omega_a = (\Omega_1 - \Omega_2)/\sqrt{2}$. Аналогично выводам в работе [7], выполняя соответствующие преобразования с выражением (6), можно увидеть, что слагаемое в подынтегральном выражении формулы (4), соответствующее интерференции бифотона имеет вид

$$S = r_1^2 \cos(\Omega_a \tau) + r_2^2 \cos[\Omega_a(2T - \tau) + \Omega_a(\omega_0 + \Omega_d)t/2], \quad (7)$$

где $\Omega_d = (\Omega_1 + \Omega_2)/\sqrt{2}$. Интеграл от произведения S и ССА g , задаваемой выражением (2), имеет вид

$$S = r_1^2 A_1 \cos(\delta\tau) + r_2^2 A_2 \cos\left[\frac{4\delta(2T - \tau + \omega_0 t/2)}{\sigma_a^2 \sigma_d^2 t^2 + 4}\right], \quad (8)$$

где A_1 и A_2 – множители, определяющие контраст ИС, зависящие от спектральных свойств бифотона. Благодаря тому, что в ИК отсутствуют гармонические функции, аргументы которых содержат δ^2 , не происходит паразитной частотной модуляции и ухудшения пространственной разрешающей способности. С другой стороны, паразитная амплитудная модуляция ИК также может привести к уширению компонент А-скана и следовательно, к ухудшению пространственной разрешающей способности. Рассмотрим выражение для множителя A_2

$$A_2 = \frac{\exp[-\sigma_a^2(2T - \tau + \omega_0 t/2)^2]}{\sqrt{\sigma_a^2 \sigma_d^2 t^2 + 4}} \exp\left[\frac{-\delta^2 \sigma_d^2 t^2 / 2}{\sigma_a^2 \sigma_d^2 t^2 + 4}\right]. \quad (9)$$

Как видно из формулы (9), наличие хроматической дисперсии может ухудшить пространственную разрешающую способность квантовой спектральной ОКТ из-за амплитудной модуляции ИК, особенно при больших значениях Δ и σ_d . Снижение эффективности компенсации дисперсии в традиционной квантовой ОКТ при большой ширине спектра бифотона рассматривалось в статье [16]. Ниже будут рассмотрены условия, при которых компенсация дисперсии в предложенном подходе квантовой спектральной ОКТ имеет место.

3. Анализ целевых и паразитных компонент сигнала бифотонной интерференции. Как можно видеть из формулы (5), ИС квантовой спектральной ОКТ содержит несколько компонент, име-

ющих различный физический смысл. Первое слагаемое соответствует постоянной составляющей сигнала и не несет никакой информации о структуре образца. Второе и третье слагаемые являются интерференционными и соответствуют отражению сигнального фотона от первой и второй границ образца, соответственно. Из их структуры видно, что, если рассматривать их как функцию разности центральных частот фотонов δ , они по существу представляют собой гармонические колебания, частоты которых непосредственно связаны с разницей оптических путей интерферометра. Следовательно, эти два слагаемых несут информацию о внутренней структуре исследуемого образца.

Последние два составных слагаемых также связаны со структурой образца, хотя они появляются из-за возможности отражения одного фотона от разных границ, о чем свидетельствует наличие произведения коэффициентов отражения слоев $r_1 r_2$ в амплитудах этих компонент. Таким образом, эти компоненты возникают из-за интерференции сигнального фотона в интерферометре, образованном слоями исследуемого образца. Следует отметить, что та же ситуация с паразитными ИК имеет место в стандартной квантовой ОКТ [9, 13]. Следовательно, для оптимального функционирования предложенного подхода квантовой спектральной ОКТ необходимо исследовать условия, при которых максимизируются амплитуды второго и третьего слагаемых, и минимизируются амплитуды четвертого и пятого слагаемых.

Амплитуды целевых (второго и третьего) слагаемых содержат коэффициенты отражения соответствующих слоев, а также экспоненциальные множители вида $\exp(-\tau^2 \sigma_a^2 / 4)$. Таким образом, для корректной регистрации сигнала бифотонной интерференции, модули показателей экспонент должны быть малы. На основе этого требования ограничение на максимальную оптическую толщину исследуемого образца может быть сформулировано следующим образом

$$T_{\max} < 2/\sigma_a. \quad (10)$$

Как следует из формулы (10), антидиагональная ширина ССА определяет максимальную глубину получаемого ОКТ изображения. Таким образом, длина когерентности второго порядка для бифотона определяется антидиагональной шириной его ССА.

Анализируя паразитные (четвертое и пятое) слагаемые формулы (5), помимо основного множителя $r_1 r_2$, оба слагаемых содержат экспоненциальные множители вида $\exp(-T^2 \sigma_d^2 / 4)$. Таким образом,

достаточным условием для подавления паразитных компонент является относительно большое отрицательное значение показателя экспоненты. В результате, минимальное расстояние между слоями исследуемого образца, не приводящее к появлению паразитных ИК, ограничивается снизу величиной диагональной ширины ССА и описывается выражением

$$T_{\min} > 2/\sigma_d. \quad (11)$$

С другой стороны, как видно из формулы (9), большая диагональная ширина ССА будет приводить к снижению эффективности компенсации хроматической дисперсии. Появление слагаемого $\omega_0 t/2$ в аргументе гармонической функции формулы (8) и первого экспоненциального множителя вызывает только сдвиг соответствующих компонент А-скана, аналогично классической интерферометрии [17] и не меняет ограничения (10) или (11). Для сохранения эффекта компенсации дисперсии, необходимо чтобы было мало слагаемое под корнем в знаменателе дроби $\sigma_a^2 \sigma_d^2 t^2$, а также был мал числитель дроби в аргументе второго экспоненциального множителя $\delta^2 \sigma_d^2 t^2/2$. Из предложенного принципа работы подхода квантовой спектральной ОКТ следует, что ситуация $\delta \gg \sigma_a$ может иметь место, а значит, второе условие является более сильным. Кроме того, именно оно отвечает за отсутствие уширения компоненты А-скана из-за паразитной амплитудной модуляции. Упрощая аргумент второго экспоненциального множителя к виду $-\delta^2 \sigma_d^2 t^2/8$ и принимая модуль его максимально допустимого значения равным 1, ограничение на значение групповой задержки запишется как

$$|t| < \frac{2\sqrt{2}}{\sigma_d \Delta_M}, \quad (12)$$

где Δ_M – наибольшее значение разности центральных частот фотонов.

4. Дополнительные требования по сканированию разности частот фотонов. Другим важным аспектом, влияющим на свойства измеренного сигнала бифотонной интерференции, являются параметры частотного сканирования ССА. Для реализации предложенного подхода ОКТ измерений разности центральных частот фотонов δ должна контролироваться меняться в некоторых пределах $[\delta_0, \delta_0 + \Delta]$. С точки зрения минимизации наибольшей разности центральных частот фотонов, режим сканирования $[-\Delta_M, \Delta_M]$ представляется наиболее выгодным. Согласно общей теории ОКТ, следующей из теории спектральных оценок, минимальная разрешаемая временная задержка связана с шириной спектра используемого источника [6], и будучи определенной

как ширина по уровню половины высоты компоненты А-скана, для предложенного подхода запишется в виде

$$T_{\min} > 2\pi \cdot 1.2/\Delta = 1.2\pi/\Delta_M, \quad (13)$$

Таким образом, исходя из того, что слои, разделенные минимально разрешимым расстоянием, не должны порождать паразитных ИК, из формул (11) и (13) получаем связь между диагональной шириной ССА и шириной диапазона сканирования разности частот фотонов $\Delta_M \lesssim \sigma_d$.

С другой стороны, поскольку информация об оптических толщинах слоев образца содержится в частотах осциллирующих компонент сигнала (5), условия измерения ВСДФ должны позволять регистрировать частоты осцилляций этих компонент. Для этого должны быть выполнены условия Котельникова, связывающие максимальную частоту осцилляций с интервалом дискретизации

$$\delta_S < \pi/T_{\max}. \quad (14)$$

Также необходимо обратить внимание, что при выборе конкретного значения δ_S , все ИК, не удовлетворяющие условию (14), не должны регистрироваться установкой, поскольку для них будет проявляться эффект алиасинга. Соответственно, для этих компонент не должно выполняться и условие (10), откуда, получаем связь между антидиагональной шириной ССА и интервалом дискретизации разности центральных частот фотонов $\sigma_a \gg \delta_S$.

5. Пределы пространственной разрешающей способности. Выражения (11), (12) и (13) формируют систему требований, связывающих достижимую пространственную разрешающую способность, диагональную ширину ССА и диапазон перестройки центральных частот. Из формул (11) и (12) следует взаимосвязь минимальных значений последних величин $\sigma_d = \Delta_M \cdot 2/\pi$, в результате получаем связь $\Delta_M < \sqrt{2\pi}/|t|$, откуда можно получить зависимость предельно достижимой пространственной разрешающей способности от дисперсии групповой задержки

$$\Delta L = cT_{\min} = c\sqrt{(1.2\pi/\sqrt{2}) \cdot |t|}. \quad (15)$$

Сравним данное соотношение с ограничениями разрешающей способности традиционной квантовой ОКТ и классической ОКТ. В работах [18, 13] приводятся следующие выражения, связывающие пространственную разрешающую способность с параметрами образца и бифотона

$$\Delta L = cT_{\min} > 2c/\sigma_d, \quad (16)$$

$$\Delta L > 2\sqrt{2\ln(2)}c/\sigma_d \cdot \sqrt{1 + t^2\sigma_d^2/6}, \quad (17)$$

где в выражении (17) мы полагаем, что ССА осесимметрична, а ее ширина равна половине ширины спектра накачки, также был добавлен множитель $2\sqrt{2\ln(2)}$ перед корнем, чтобы получить полную ширину по половинному уровню вместо среднеквадратической ширины. Из формул (16) и (17) получаем следующее ограничение предельно достижимой пространственной разрешающей способности

$$\Delta L = cT_{\min} = c\sqrt{16\ln(2)/\sqrt{6} \cdot |t|}. \quad (18)$$

Для классической ОКТ пространственная разрешающая способность для образца с дисперсией описывается выражением [6]

$$\Delta L = \sqrt{\left(\frac{2\ln(2)\lambda_0^2}{\pi\Delta\lambda}\right)^2 + (2\pi c^2|t|\Delta\lambda/\lambda_0^2)^2}. \quad (19)$$

для оптимальной ширины спектра [6]

$$\Delta\lambda = \lambda_0^2/(\pi c)\sqrt{\ln(2)/|t|}, \quad (20)$$

формула (19) принимает вид

$$\Delta L = c\sqrt{8\ln(2) \cdot |t|}. \quad (21)$$

Следует отметить, что аналитическое выражение для пространственной разрешающей способности имеет одинаковый общий вид $\Delta L = kc\sqrt{|t|}$ для всех рассмотренных подходов, с различием только в числовом множителе k . Для классической ОКТ $k \approx 2.35$, для квантовой временной ОКТ $k \approx 2.13$, для предложенного подхода квантовой спектральной ОКТ $k \approx 1.63$. Преимущество предложенного подхода квантовой спектральной ОКТ обусловлено удвоением эффективной ширины спектра, по которой происходит оценка разностей оптических путей за счет возможности сканирования разности центральных частот фотонов в обоих направлениях относительно частотно вырожденного состояния.

6. Примеры сигналов бифотонной интерференции. Рассмотрим влияние выполнения условий (10) и (11) на итоговый ИС. Были выбраны следующие значения параметров: коэффициенты отражения слоев $r_1 = 0.4$ и $r_2 = 0.4$, задержки света $T = 7$ пс, $\tau = -10$ пс (соответствует случаю, когда опорное плечо короче сигнального), $\omega_0 = 2\pi \cdot 2.3 \cdot 10^{14}$ рад/с (соответствует длине волны 1.3 мкм, часто используемой в ОКТ), $\Delta = 2\pi \cdot 5 \cdot 10^{11}$ рад/с, $\delta_S = 2\pi \cdot 5 \cdot 10^9$ рад/с.

На рисунке 2 представлен вид ИС (а), соответствующего А-скана (b) и ССА (c) в случае, когда

нарушаются соотношения (10) и (11). Представленный случай соответствует равным диагональной и антидиагональной ширинам ССА $\sigma_a = \sigma_d = 2\pi \cdot 2 \times 10^{10}$ рад/с. Подставляя эти значения в формулы (10) и (11) вместе с задержками $2T$ и $2T - \tau$, видно, что оба условия не выполняются, что проявляется как в возникновении паразитных компонент, соответствующих задержкам 14 пс и 17 пс, так и заметном снижении амплитуды второй целевой компоненты.

На рисунке 3 представлен вид ИС (а), А-скана (b) и ССА (c) в случае, когда все приведенные выше условия выполняются, в этом примере $\sigma_a = 2\pi \cdot 5 \times 10^9$ рад/с и $\sigma_d = 2\pi \cdot 2 \cdot 10^{11}$ рад/с. Видно, что полученный А-скан однозначно соответствует заложенной в модель структуре образца.

Сигналы бифотонной интерференции и соответствующие им А-сканы были рассчитаны и для случая наличия хроматической дисперсии оптической задержки. Расчеты проводились по формуле (8), а также при помощи численного взятия интеграла в формуле (4) со следующими параметрами: $\omega_0 = 2\pi \cdot 2.3 \cdot 10^{14}$ рад/с, $\Delta_M = 2\pi \cdot 10 \cdot 10^{12}$ рад/с, $\delta_S = 2\pi \cdot 5 \cdot 10^{10}$ рад/с, шаг сеток частот фотонов $\delta\omega = 2\pi \cdot 2 \cdot 10^9$ рад/с. В расчетах использовались следующие параметры ССА: $\sigma_a = 2\pi \cdot 2 \cdot 10^{10}$ рад/с, $\sigma_d = 2\pi \cdot 6 \cdot 10^{12}$ рад/с.

Первый слой анализируемого образца моделировался слоем воды толщиной 25 мм, что приблизительно соответствует глубине человеческого глаза, два следующих слоя имели толщину 26 мкм с показателем преломления $n_{2,3} = 1.46$, коэффициенты отражения границ слоев $r_1 = r_2 = r_3 = 0.3$, длина опорного плеча интерферометра (среда – воздух) равнялась 46.2 мм. Дисперсия групповой скорости в рассматриваемом спектральном диапазоне для воды имеет величину около 100 фс²/мм, дисперсия групповой задержки образца составляет $t = 2500$ фс².

Для наглядной демонстрации влияния дисперсии ИС моделировались для двух случаев: при подстановке в расчеты реальной зависимости показателя преломления воды от частоты света $n(\omega)$ и подстановке значения $n(\omega_0)$. ИС для случая классической интерференции при тех же параметрах образца были рассчитаны по формуле $S = |\exp(i\omega\tau) + H(\omega, T)|^2$. Поскольку спектр источника предполагался равномерным, а не гауссовым, как в [6], ω изменялась в диапазоне $[\omega_0 - \Delta_M/2, \omega_0 + \Delta_M/2]$, что по эффективной ширине было близко к оптимальной ширине гауссова спектра, рассчитанной по формуле (20).

Для случая бифотонной интерференции вычисления по формуле (8) и численное интегрирование выражения (4) дало идентичные результаты. При

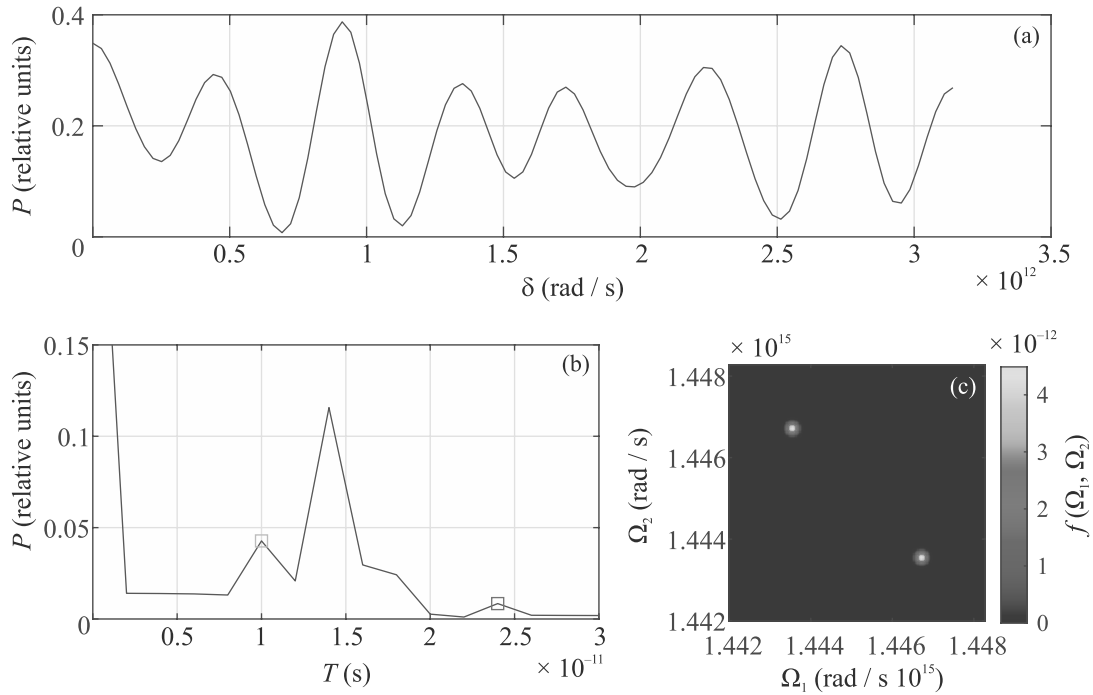


Рис. 2. (Цветной онлайн) Сигнал бифотонной интерференции; (а) – А-скан (квадратными маркерами показаны целевые компоненты); (б) – и соответствующая ССА для случая невыполнения условий (10) и (11)

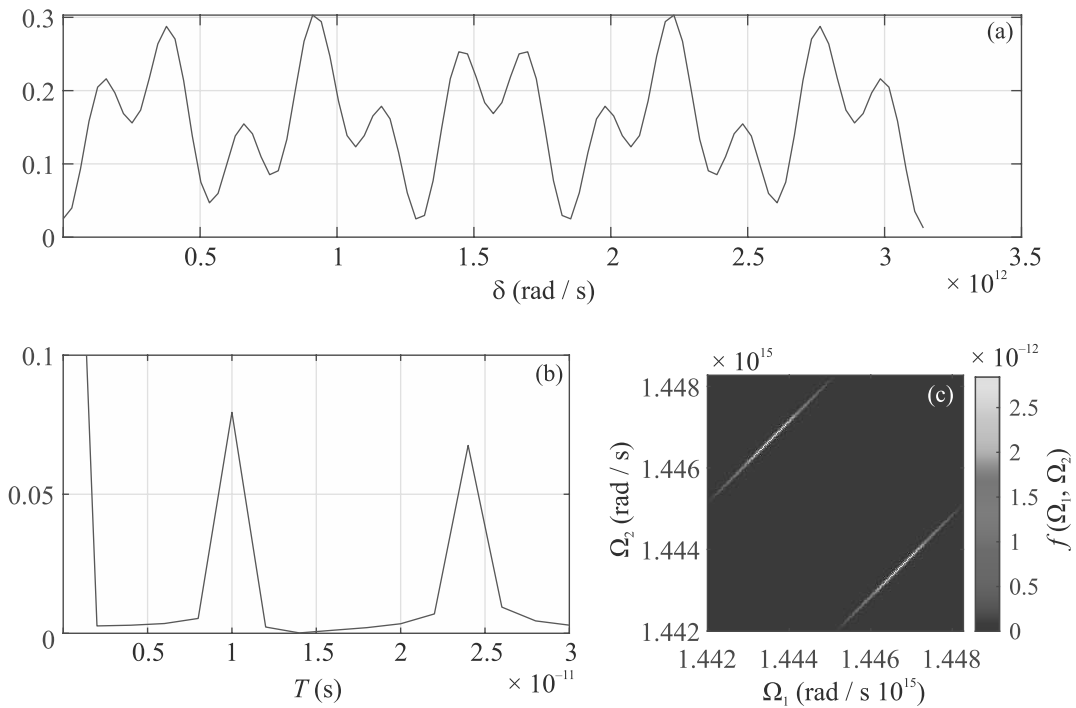


Рис. 3. (Цветной онлайн) Сигнал бифотонной интерференции (а), А-скан (б) и соответствующая ССА для случая удовлетворения условий (10) и (11), (с)

вычисления А-сканов использовалось 10-кратное дополнение ИС нулями для более наглядной оценки ширины компонент А-сканов.

Согласно формуле (15), наилучшая продольная пространственная разрешающая способность для выбранного образца составляет 24 мкм, с соответ-

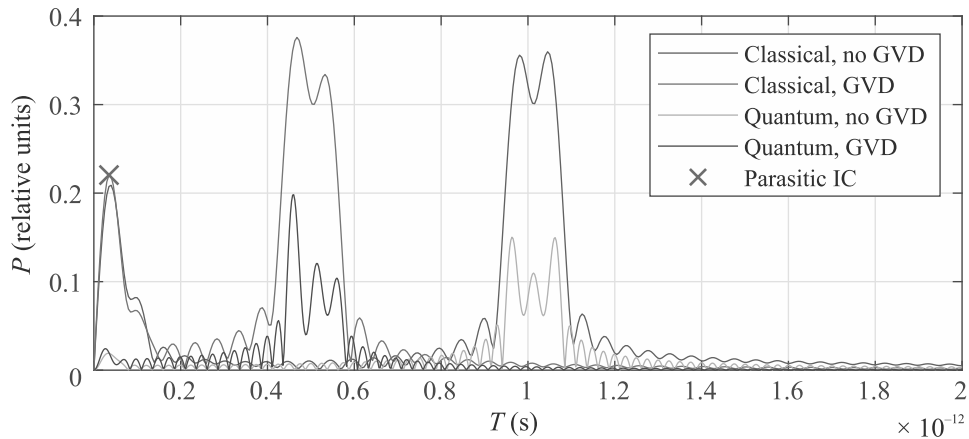


Рис. 4. (Цветной онлайн) Влияние хроматической дисперсии на А-сканы в случае классической и квантовой ОКТ

ствующими ей оптимальными параметрами Δ_M и σ_d . Как видно из рис. 4, разрешение отражателей образца возможно при помощи предложенного подхода квантовой спектральной ОКТ и невозможно при помощи классической ОКТ, для которой наилучшая продольная пространственная разрешающая способность составляет около 39 мкм.

Как видно из рис. 4, при выполнении сформулированных ограничений на параметры исследуемого образца и ССА, предложенный подход квантовой спектральной ОКТ позволяет улучшить пространственную разрешающую способность по сравнению с классической ОКТ. Смещение А-сканов для случая с дисперсией вызвано слагаемым $\omega_0 t/2$ в аргументе ИК. Также из приведенных А-сканов видно, что применение бифотонной интерферометрии позволяет подавить паразитные ИК, вызванные интерференцией фотонов, отраженных слоями исследуемого образца (компоненты помечены крестиком).

7. Обсуждение и заключение. Следует отметить, что предлагаемый подход квантовой спектральной ОКТ эквивалентен альтернативным подходам бифотонной интерферометрии и ОКТ, в которых измерение зависимости ВСДФ от их разности частот достигался путем измерения частот фотонов [19–22]. О зависимости ВСДФ от разности их центральных частот также сообщалось в работе [23], но соответствующее обсуждение имело сугубо теоретический характер. Максимальная разница между частотами отдельных фотонов при неизменной форме ССА (которая обычно считается осесимметричной, в отличие от текущего исследования) определяется ее шириной σ_ω , минимальную разницу частот можно считать равной нулю, частоты обоих фотонов измеряются с некоторой неопределенностью $\delta\omega$. Таким образом, можно проследить явное соответствие меж-

ду предложенной схемой с частотным сканированием и существующими схемами с измерением частот фотонов. Теоретические результаты, представленные в данной работе для подхода с частотным сканированием, могут быть применены и к подходу с измерением частот, с заменой Δ на σ_ω , подстановкой $\delta_0 = 0$ и заменой σ_a и σ_d на $\delta\omega$.

Тем не менее, эквивалент ССА с разными диагональной и антидиагональной ширинами в случае измерения частот фотонов невозможно реализовать на практике, что ограничивает применимость подхода [20] для ОКТ. В то же время, для достижения требуемых в предложенном нами подходе спектральных корреляций между спутанными фотонами необходимо использование фемтосекундных импульсов накачки и выполнение условий фазового синхронизма между накачкой и сигнальным и холостым фотонами в узком спектральном интервале. Возможность экспериментальной реализации этих условий и генерации бифотонов с существенно неосесимметричной ССА продемонстрирована в работах [25, 24].

За счет возможности независимого управления когерентностью первого и второго порядка у бифотона, предлагаемый подход квантовой спектральной оптической когерентной томографии с частотным сканированием может быть эффективной заменой существующих в настоящее время подходов оптической когерентной томографии в приложениях, требующих наилучшей пространственной разрешающей способности, максимального подавления паразитных ИК, компенсации дисперсии и низкой интенсивности зондирующих световых волн. Теоретически показано, что в ситуации, когда компенсация дисперсии за счет дополнительных элементов в опорном плече не производится, предложенный подход способен обеспечивать наилучшую продольную простран-

ственную разрешающую способность из известных ОКТ методов.

Работа поддержана Министерством Науки и Высшего Образования Российской Федерации в рамках программы стратегического академического лидерства “Приоритет 2030” (Соглашение 075-15-2021-1333 от 30 Сентября 2021).

1. D. Huang, E. A. Swanson, C. P. Lin, J. S. Schuman, W. G. Stinson, W. Chang, M. R. Hee, T. Flotte, G. Kenton, C. Puliafito, and J. G. Fujimoto, *Science* **254**, 1178 (1991).
2. A. F. Fercher, K. Mengedoht, and W. Werner, *Opt. Lett.* **13**, 186 (1988).
3. A. G. Podoleanu, *J. Light. Technol.* **28**, 624 (2010).
4. J. F. de Boer, B. Cense, B. H. Park, M. C. Pierce, G. J. Tearney, and B. E. Bouma, *Opt. Lett.* **28**, 2067 (2003).
5. M. Choma, M. Sarunic, C. Yang, and J. Izatt, *Opt. Express* **11**, 2183 (2003).
6. C. K. Hitzenberger, A. Baumgartner, W. Drexler, and A. F. Fercher, *J. Biomed. Opt.* **4**, 144 (1999).
7. A. F. Abouraddy, M. B. Nasr, B. E. A. Saleh, A. V. Sergienko, and M. C. Teich, *Phys. Rev. A* **65**, 053817 (2002).
8. M. B. Nasr, B. E. Saleh, A. V. Sergienko, and M. C. Teich, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 8 (2003).
9. C. K. Hong, Z. Y. Ou, and L. Mandel, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 8 (1987).
10. Y. H. Shih and C. O. Alley, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2921 (1988).
11. A. V. Burlakov, M. V. Chekhova, Yu. B. Mamaeva, O. A. Karabutova, D. Yu. Korystov, and S. P. Kulik, *Laser Phys.* **12**, 825 (2002).
12. A. V. Belinskii and D. Klyshko, *Uspekhi Fizicheskikh Nauk* **163**, 1 (1993).
13. P. Y. Graciano, A. M. A. Martínez, D. Lopez-Mago, G. Castro-Olvera, M. Rosete-Aguilar, J. Garduno-Mejia, R. R. Alarcon, H. C. Ramirez, and A. B. U'Ren, *Sci. Rep.* **9**, 1 (2019).
14. Y. Chen, M. Fink, F. Steinlechner, J. P. Torres, and R. Ursin, *npj Quantum Inf.* **5**, 43 (2019).
15. S. Ramelow, L. Ratschbacher, A. Fedrizzi, N. K. Langford, and A. Zeilinger, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 253601 (2009).
16. M. Okano, R. Okamoto, A. Tanaka, S. Ishida, N. Nishizawa, and S. Takeuchi, *Phys. Rev. A* **88**, 043845 (2013).
17. S. Diddams and J.-C. Diels, *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 1120 (1996).
18. K. J. Resch, R. Kaltenbaek, J. Lavoie, and D. N. Biggerstaff, *Proc. SPIE* **7465**, 74650N (2009).
19. R.-B. Jin, T. Gerrits, M. Fujiwara, R. Wakabayashi, T. Yamashita, S. Miki, H. Terai, R. Shimizu, M. Takeoka, and M. Sasaki, *Opt. Express* **23**, 28836 (2015).
20. P. Yepiz-Graciano, A. M. A. Martínez, D. Lopez-Mago, H. Cruz-Ramirez, and A. B. U'Ren, *Photonics Res.* **8**, 1023 (2020).
21. V. V. Orre, E. A. Goldschmidt, A. Deshpande, A. V. Gorshkov, V. Tamma, M. Hafezi, and S. Mittal, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 123603 (2019).
22. S. M. Kolenderska, F. Vanholsbeeck, and P. Kolenderski, *Opt. Express* **28**, 29576 (2020).
23. A. Fedrizzi, T. Herbst, M. Aspelmeyer, M. Barbieri, T. Jennewein, and A. Zeilinger, *New J. Phys.* **11**, 103052 (2009).
24. D. De la Torre-Robles, F. Dominguez-Serna, G. L. Osorio, A. B. U'Ren, D. Bermudez, and K. Garay-Palmett, *Sci. Reports* **11**, 1 (2021).
25. L. Cui, J. Wang, J. Li, M. Ma, Z. Y. Ou, and X. Li, *APL Photonics* **7**, 016101 (2022).

Двухфотонная лазерная печать функциональных микроструктур интегральной фотоники: волноводов, микрорезонаторов и призмных адаптеров ввода/вывода оптического излучения

А. И. Майдыковский⁺¹⁾, Д. А. Апостолов⁺, Е. А. Мамонов^{+*}, Д. А. Копылов⁺, С. А. Дагесян⁺,
Т. В. Мурзина^{+*}

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

^{*}Факультет физики, Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 109028 Москва, Россия

Поступила в редакцию 20 октября 2022 г.

После переработки 10 ноября 2022 г.

Принята к публикации 11 ноября 2022 г.

Разработка и оптимизация методов создания функциональных элементов микронных и субмикронных размеров для фотонных интегральных схем является одной из основных задач нанофотоники. В настоящее время активно развивается метод двухфотонной лазерной литографии (ДФЛЛ), позволяющий формировать трехмерные структуры с субволновым разрешением. В данной работе продемонстрированы результаты по развитию этого метода и показано, что использование оптимизированных схем печати, пространственной фильтрации используемого лазерного излучения, введение в полимер лазерных красителей приводит как к формированию оптически однородных и качественных объемных микроструктур с характерными особенностями вплоть до 300 нм, так и приданию им функциональных свойств. Возможности данного оптимизированного метода ДФЛЛ продемонстрированы на примере кольцевых микрорезонаторов и расположенных над подложкой оптических волноводов с призмными адаптерами ввода/вывода излучения. Оптические потери при заведении излучения в волновод на длине волны 405 нм с помощью напечатанного призмного адаптера составили не более 1.25 дБ.

DOI: 10.31857/S1234567823010044, EDN: nverov

1. Введение. Развитие методов создания качественных элементов фотоники для использования в фотонных интегральных схемах (ФИС) является актуальной научно-исследовательской задачей. В настоящее время активные и пассивные фотонные микроструктуры изготавливают преимущественно методами планарной литографии. Перспективным является переход к трехмерным фотонным структурам, которые при интегрировании в ФИС могут выполнять функции межчиповых соединений, осуществлять эффективный ввод и вывод излучения в элементы ФИС, позволят упростить топологию схем и оптических логических элементов. Аддитивные методы производства, такие как стереолитография, позволяют не только создавать принципиально новые 3D оптические элементы, но и превосходить возможности планарной литографии: в последнем случае для изготовления трехмерных структур выполняется их послойный рост, что увеличивает время изготовления фотонных чипов. Одним из наиболее перспективных видов стереофотографии является метод

двухфотонной фотополимеризации, являющейся модификацией метода прямой лазерной записи (*Direct Laser Writing* – DLW-фотолитография) с существенным увеличением разрешения за счет использования эффекта двухфотонного поглощения в области перетяжки сфокусированного пучка фемтосекундного лазерного излучения [1, 2]. Возможности данного метода были продемонстрированы при изготовлении трехмерного фотонного кристалла яблоновит [3] с линейными размерами элементарных структурных элементов не более 300 нм, реализации эффективного соединения фотонных чипов и устройств ввода/вывода излучения [4, 5], изготовления широкополосного поляризационного делителя пучка и ротатора поляризации излучения [6]. Важными элементами интегральных фотонных схем являются микрорезонаторы мод шепчущей галереи (МШГ) – прозрачные диэлектрические структуры, имеющие осевую или центральную симметрию (торы, кольца, сферы, квадраты, пятиугольники и т.д.) [7]. Наличие добротных резонаторных мод позволяет использовать такие микроструктуры в качестве фильтров [8, 9], микролазеров с оптической [10, 11] или электриче-

¹⁾e-mail: anton@shg.ru

ской накачкой [12, 13], сенсоров [14–16], модуляторов [17], а также позволяет усиливать нелинейно-оптические эффекты за счет пространственной локализации электромагнитного поля вблизи их поверхности. Интерес также представляет изготовление металл-диэлектрических наноструктур, где за счет большей локализации поля возможно эффективное управление светом. Такой подход был развит в работе [18] где было показано, что объединение методики двухфотонной лазерной литографии и электронно лучевой литографии позволяет изготавливать трехмерные металл-диэлектрические гибридные метаматериалы.

Таким образом, перспективным является развитие метода двухфотонной лазерной литографии (ДФЛЛ) для изготовления 3D микрорезонаторов МШГ, в том числе активированных люминесцирующими частицами или веществами. Необходимым направлением развития данной области является изготовление модулей фотонных устройств, сочетающих микроволноводы и активные микрорезонаторы, при минимизации оптических потерь связанных с утечкой излучения в подложку.

В данной работе приведены результаты по оптимизации метода ДФЛЛ для повышения качества изготовления оптических микроструктур, волноводов и связанных с ними микрорезонаторов. Выполнены сравнительные исследования структур, изготовленных в рамках стандартного и оптимизированного подходов ДФЛЛ. Показано, что предложенная методика ДФЛЛ позволяет изготавливать в том числе волноводы, приподнятые над подложкой на специально сконструированных оптических призменных адаптерах, а также представлена методика формирования комбинированных активных и пассивных фотонных микроструктур.

2. Экспериментальные результаты.

2.1. Методика эксперимента. Изготовление микроструктур методом ДФЛЛ проводилось на экспериментальной установке, описание которой приведено в работе [7]. Источником излучения накачки являлся лазер на титанате сапфира Tif-DP фирмы ООО “Авеста” с прямой диодной накачкой [19], длиной волны излучения 780 нм, длительностью импульса 76 фс и частотой повторения импульсов 80 МГц. Лазерное излучение проходило через акустооптический модулятор, телескоп 5х, совмещенный с пространственным фильтром основной поперечной гауссовой моды лазерного пучка, затем попадало на гальваносканер D1105 Sino-Galvo, который был использован для позиционирования перетяжки лазерного пучка в латеральной плоскости рабочего объема.

Гальваносканер находился в фокусе входной линзы телескопа 2х, а входная апертура иммерсионного объектива (Nikon Plan APO VC 60x/1.4NA) – в фокусе выходной линзы телескопа 2х. Позиционирование перетяжки лазерного излучения в полимере вдоль оптической оси осуществлялось перемещением объектива пьезотранслятором в диапазоне 40 мкм. “Трубное” позиционирование подложки с полимером по 3-м осям осуществлялось с помощью шаговых двигателей. Принципиальная схема установки представлена на рис. 1.

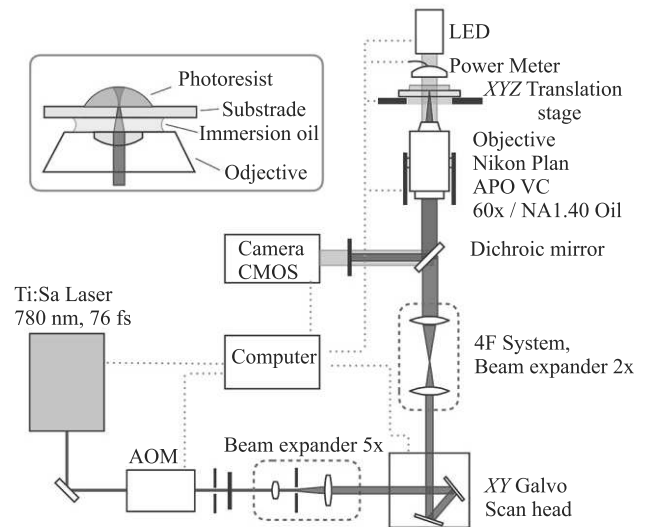


Рис. 1. (Цветной онлайн) Принципиальная схема экспериментальной установки для ДФЛЛ. Красным цветом отображен ход пучка накачки, желтым – канал подсветки. В качестве накачки использовано излучение титан-сапфирового лазера Tif-DP ООО “Авеста”, АОМ – акустооптический модулятор

В качестве основного материала для изготовления микроструктур был использован гибридный фотополимер OrmoComp[®] с показателем преломления 1.520 производства Micro Resist Technology, в состав которого входит фотоинициатор Дифенил (2, 4, 6-триметилбензоил) фосфин оксид. Для формирования микроструктур методом ДФЛЛ фотополимер в количестве 5 мкл наносился на покровное стекло толщиной 170 мкм, согласованной с иммерсионным объективом. С целью получения активных [20] микроструктур мы добавляли в OrmoComp[®] краситель кумарин-1 (7-диэтиламино-4-метилкумарин) в концентрации 0.36 моль/л, который также выступал в роли фотоинициатора полимеризации [21], что снижало порог полимеризации по мощности на порядок. Краситель кумарин-1 растворяли в прояви-

теле OrmoDev[®], состоящем из метилизобутилкетона и изопропанола. Полученный раствор смешивался с фотополимером OrmoComp[®] в соотношении 1:1 по объему для лучшего растворения красителя. При использовании композиции с красителем, после нанесения на покровное стекло она выдерживалась при температуре 60 °С в течении 60 минут для выпаривания проявителя OrmoDev[®]. Скорость печати составляла 500 мкм/с, при мощности лазерного излучения 31 мВт для чистого полимера OrmoComp[®], и 3 мВт для смеси полимера с красителем кумарин-1, что, в соответствии с проведенными калибровочными экспериментами, позволяло получать фотополимеризованные структуры с максимальным разрешением. Приведенные значения мощности измерены на входе гальваносканера. Оптические потери в установке от гальваносканера до покровного стекла составляли 50%. Цифровая 3D-модель для печати формировалась в программе трехмерного проектирования Solidworks, затем готовилась для вывода на печать с помощью программы Simplify3D, модель разбивалась на слои, параллельные подложке с однонаправленной штриховкой лазерной перетяжкой в каждом слое. В процессе тестовых измерений были определены параметры шага между слоями 100 нм, и шаг штриховки 70 нм, что соответствует примерно 1/3 от линейных размеров вокселя. При таких параметрах печати, удавалось получить приемлемую геометрическую стабильность изготовленных оптических микроструктур. После процесса печати структуры проявлялись в проявителе OrmoDev[®].

2.2. Тестирование методики ДФЛЛ – подвешенные полимерные нити. Для определения максимального разрешения созданной экспериментальной установки были изготовлены тестовые структуры в виде полимерных нитей на пьедесталах, их СЭМ изображения приведены на рис. 1. Использовался полимер OrmoComp[®] с красителем кумарин-1 с концентрацией 0.36 моль/л. Данные структуры состояли из двух пьедесталов с основанием $4 \times 10 \text{ мкм}^2$ и высотой 10 мкм. Между пьедесталами за один проход лазерного пучка в полимере формировалась перемычка при различной скорости движения перетяжки и мощности излучения. В напечатанной серии определялись параметры печати для достижения минимального размера вокселя в нашей установке, оптимальная скорость движения перетяжки составила 500 мкм/с, мощность – 1.5 мВт на выходе из объектива.

Размеры определялись по данным СЭМ изображений. На панелях а и б рис. 2 приведены изображения структур, изготовленных в отсутствие и при

наличии пространственного фильтра основной поперечной гауссовой моды лазерного пучка. В первом случае минимально достижимые поперечные размеры нити (ширина и высота) составляют $660 \times 690 \text{ нм}$, тогда как использование пространственного фильтра позволяет их уменьшить до $250 \times 325 \text{ нм}$. Таким образом показано, что оптимизация размера и пространственной формы пучка накачки позволяют значительно уменьшить размер полимеризуемой области. В свою очередь это позволяет улучшить качество формируемых полимерных структур различной формы.

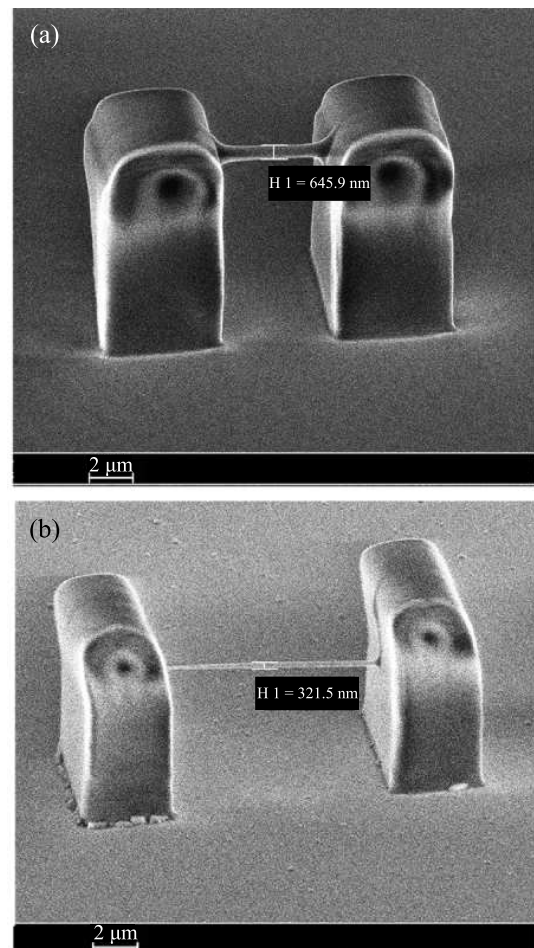


Рис. 2. СЭМ изображение калибровочной структуры, состоящей из двух пьедесталов и перемычки (нити) между ними длиной 10 мкм, напечатанной в один проход движения перетяжки лазерного излучения: (а) – в отсутствие пространственного фильтра в пучке накачки, поперечные размеры нити (ширина и высота) составили $660 \times 690 \text{ нм}$; (б) – в присутствии пространственного фильтра, поперечные размеры нити $250 \times 325 \text{ нм}$

2.3. Оптические волноводы и микрорезонаторы. Одной из основных задач при создании ФИС явля-

ется минимизация оптических потерь, возникающих за счет утечки излучения в подложку, имеющих место из-за близости показателя преломления полимера $n_p = 1.520$ и стеклянной подложки $n_s = 1.523$. Если для микрорезонаторов это ограничение можно обойти использованием достаточно большой высоты микроструктуры [22], то для волноводов данный эффект существенно снижает их эффективность. Одним из способов решения данной проблемы является расположение элементов ФИС над подложкой [23, 24] с опорой на вспомогательные элементы.

Была создана структура, представленная на рис. 3, реализующая систему волновод с призмными

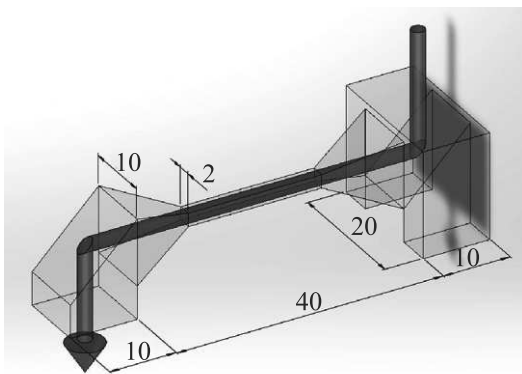


Рис. 3. (Цветной онлайн) Трехмерная модель волновода с призмными адаптерами заведения/выведения излучения, размеры структуры приведены в микрометрах, синим цветом показан ход лазерного излучения. Высота структуры 16 мкм

ми адаптерами, в которой входящий и выходящий световые пучки сонаправлены; размеры структуры в микрометрах приведены на рисунке. Для заведения и вывода излучения из волновода в структуре коннектора использованы дополнительные элементы в форме тетраэдров. Было определено, что оптимальной траекторией движения лазерной перетяжки является параллельная “штриховка” поперек волновода в каждом слое при печати волновода, это позволяет избежать сильных искажений и деформации полимеризованного волновода. Определение потерь в напечатанной структуре проводилось на экспериментальной установке по микроскопии, фокусировка излучения на входной торец призмы осуществлялась объективом Mitutoyo M Plan Apo 100x/0.7NA, сбор излучения с выходной призмы осуществлялся таким же объективом с противоположной стороны. Оптические потери такой структуры на длине волны 405 нм при использовании волновода с диаметром 2 мкм составили 1.25 дБ на

один призмный адаптер, что является сравнимым значением для адаптеров на основе дифракционных решеток, значение потерь в которых, как правило [25], лежит в диапазоне 1.2 дБ [26]-5.1 дБ [27] для телекоммуникационного диапазона длин волн. При этом эффективность реализованных призмных коннекторов слабо зависит от конкретной длины волны, и угла падения излучения, чего невозможно достичь для адаптеров на базе дифракционных решеток.

Также отметим, что данная схема призмных адаптеров заведения/выведения оптического излучения совместима со структурами из различных материалов, в том числе с оптическим волокном.

В соответствии с данной схемой методом ДФЛЛ были изготовлены активные волноводы, оптически несвязанные с подложкой, из полимера OrmoComp[®] с красителем кумарин-1. На Рисунке 4 приведено

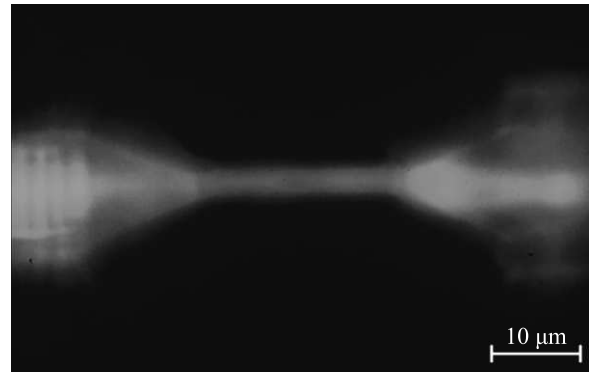


Рис. 4. (Цветной онлайн) Оптическое изображение в спектральном диапазоне 450–600 нм волновода при распространении лазерного излучения с длиной волны 405 нм, фокусируемого в призму, расположенную на рисунке справа. Материал структуры – OrmoComp[®] с красителем кумарин-1 в концентрации 0.36 моль/л

оптическое изображение фотолюминесценции (ФЛ) такого волновода с диаметром 2 мкм, регистрация изображения проводилась в спектральном диапазоне 450–600 нм. Излучение накачки с длиной волны 405 нм фокусировалось на призмный оптический коннектор (на рис. 3 справа), которое возбуждало ФЛ красителя. Спектр фотолюминесценции красителя кумарин-1 имеет максимум на длине волны 439 нм в полимере OrmoComp[®]. Наличие красителя в структуре позволяет визуализировать распространение излучения накачки – в данном случае оно успешно проходит через коннектор, заводится в волновод и переходит в принимающую призму, причем сравнимая яркость ФЛ в заводящей и выводящей призмах указывает на хорошую прозрач-

ность структуры. Пространственная модуляция излучения флуоресценции на торце выводной призмы связана с неоднородностью ДФЛЛ печати и соответствующей неоднородностью распределения красителя в материале призмы.

Описанный выше метод ДФЛЛ изготовления призмных коннекторов и волноводов, отделенных от подложки, был затем использован для формирования тестовых структур на основе связанного кольцевого резонатора и волновода. На рисунке 5 при-

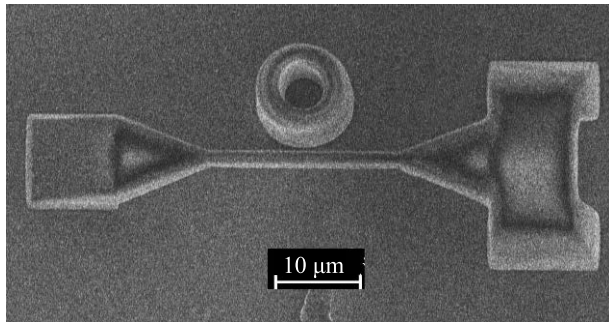


Рис. 5. СЭМ изображение волновода, расположенного на высоте 10 мкм над подложкой, с призмной системой заведения/выведения излучения, и полоого цилиндра с диаметром 10 мкм, внешняя боковая поверхность которого отстоит от волновода на 1 мкм. Скорость печати 500 мкм/с

ведено СЭМ изображение волновода с диаметром около 2 мкм, расположенного на высоте 10 мкм над поверхностью подложки, с описанной выше призмной системой заведения/выведения излучения, и полоого цилиндра с внешним диаметром 10 мкм, боковая поверхность которого отстоит от волновода на расстояние приблизительно 1 мкм; длина волновода составляет 20 мкм. Волновод изготовлен из материала OrgmoComp[®], тогда как резонатор активирован красителем кумарин-1. ДФЛЛ печать такой структуры проводилась в два этапа: вначале наносился слой чистого полимера OrgmoComp[®] и печаталась структура подвешенного волновода, затем незасвеченная часть полимера удалялась с помощью проявителя OrgmoDev[®]. На следующем этапе на подложку с волноводом наносился OrgmoComp[®] с красителем, высушивался в течении 60 мин и печатался микрорезонатор таким образом, чтобы обеспечить требуемый зазор между ним и волноводом.

На рисунке 6а показано оптическое изображение структуры волновод и активный микрорезонатор; в данном эксперименте структура одновременно освещается белым светом и светом ультрафиолетового диода на длине волны 365 нм, который вызывает

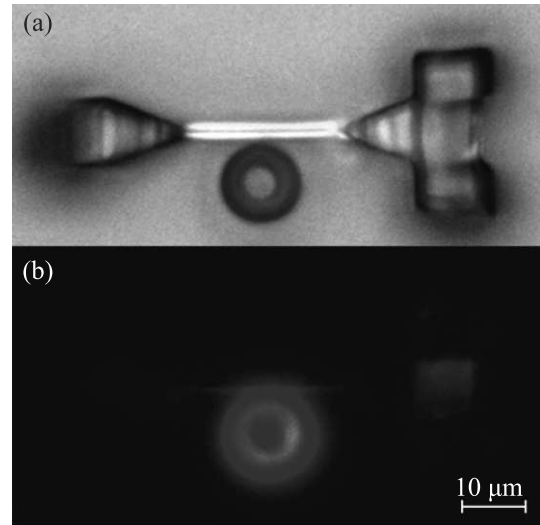


Рис. 6. (Цветной онлайн) Оптическое изображение волновода и расположенного рядом полоого цилиндра диаметром 10 мкм при подсветке: (а) – галогеновой лампой (белый свет) и УФ диодом (длина волны излучения 365 нм); и (b) – только УФ диодом. Материал волновода: чистый полимер OrgmoComp[®]; материал полоого цилиндра – OrgmoComp[®] с красителем кумарин-1

ет флуоресценцию красителя кумарин-1 в полимере OrgmoComp[®], из которого состоит только микрорезонатор. На рисунке 6b приведено изображение этой же структуры при подсветке только УФ диодом. В этом случае на фотографии не видно призмных коннекторов и волновода, материал которых не содержит краситель, люминесцирующий под действием УФ излучения. В то же время, наблюдается яркий сигнал ФЛ кумарина-1 в области микрорезонатора и выход этого излучения из выводящего коннектора, расположенного на рисунке 6 справа, что указывает на реализацию оптической связи волновода и оптического микрорезонатора. Отсутствие сигнала ФЛ в области коннектора, расположенного с другой стороны от микрорезонатора, связано с его конструкцией - выходящее из него излучение направляется преимущественно в сторону от детектора (см. рис. 3), поэтому его детектируемая интенсивность много меньше. Аналогичные результаты получены для целого набора структур волновод и активный микрорезонатор с разными параметрами. Таким образом, показана эффективность предложенной методики ДФЛЛ для изготовления комбинированных активных и пассивных фотонных микроструктур.

3. Заключение. Таким образом, в данной работе представлены результаты по развитию метода двухфотонной лазерной печати с помощью излучения фемтосекундного титан-сапфирового лазера из

гибридного фотополимера OrmoComp[®], активированного красителем кумарин-1. На основе анализа ряда структур, таких как свободно расположенные волноводы, системы волновод и кольцевой микро-резонатор, показано, что использование пространственного фильтра гауссовой моды приводит к возрастанию качества напечатанных микроструктур: достигается уменьшение радиуса закруглений, формирование более четких краев структуры и возрастание ее однородности. Функциональные возможности метода для печати элементов интегральной фотоники продемонстрированы на примере связанных пассивного волновода, поднятого над подложкой, и кольцевого резонатора, активированного красителем. Созданы призменные микроадаптеры ввода/вывода излучения в/из волновода с потерями не более 1.25 дБ на адаптер.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Российского фонда фундаментальных исследований # 20-52-7819 и Междисциплинарной научно-образовательной школы Московского университета “Фотонные и квантовые технологии. Цифровая медицина”.

1. S. Kawata, H.-B. Sun, T. Tanaka, and K. Takada, *Nature* **412**, 697 (2001).
2. S. Maruo, O. Nakamura, and S. Kawata, *Opt. Lett.*, **22**(2), 132 (1997).
3. I. I. Shishkin, M. V. Rybin, K. B. Samusev, M. F. Limonov, R. V. Kiyas, B. N. Chichkov, Y. S. Kivshar, and P. A. Belov, *JETP Lett.* **99**(9), 531 (2014).
4. A. G. Vitukhnovskaya, R. D. Zvagelskaya, D. A. Kolymagina, A. V. Pisarenko, and D. A. Chubicha, *Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys.* **84**(7), 927 (2020).
5. H. Gao, G. F. R. Chen, P. Xing, J. W. Choi, H. Y. Low, and D. T. H. Tan, *Adv. Opt. Mater.* **8**(18), 2000613 (2020).
6. P.-I. Dietrich, M. Blaicher, I. Reuter, M. Billah, T. Hoese, A. Hofmann, C. Caer, R. Dangel, B. Offrein, U. Troppenz, W. Freude, and C. Koos, *Nature Photon.* **12**, 241 (2018).
7. A. Maydykovskiy, E. Mamonov, N. Mitetelo, S. Soria, and T. Murzina, *JETP Lett.* **115**(5), 261 (2022).
8. S. P. Vyatchanin, M. L. Gorodetskii, and V. S. Il'chenko, *Journal of Applied Spectroscopy* **56**, 182 (1992).
9. A. A. Savchenkov, W. Liang, A. B. Matsko, V. S. Ilchenko, D. Seidel, and L. Maleki, *Opt. Lett.* **34**(9), 1318 (2009).
10. X. Wang, Q. Liao, Q. Kong, Y. Zhang, Z. Xu, X. Lu, and H. Fu, *Angewandte Chemie International Edition* **53**(23), 5863 (2014).
11. A. P. Tarasov, A. S. Lavrikov, L. A. Zadorozhnaya, and V. M. Kanevsky, *JETP Lett.* **115**(9), 502 (2022).
12. K. H. Li, Y. F. Cheung, W. Y. Fu, and H. W. Choi, *Appl. Phys. Lett.* **119**(10), 101106 (2021).
13. M. Fujita, A. Sakai, and T. Baba, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **5**(3), 673 (1999).
14. F. Vollmer and S. Arnold, *Nat. Methods* **5**(7), 591 (2008).
15. G. Guan, S. Arnold, and M. V. Otugen, *AIAA J.* **44**(10), 2385 (2006).
16. S. Zhang, S.-J. Tang, S. Feng, Y.-F. Xiao, W. Cui, X. Wang, W. Sun, J. Ye, P. Han, X. Zhang, and Y. Zhang, *Adv. Opt. Mater.* **7**(20), 1900602 (2019).
17. D. Venkatakrishnarao, M. A. Mohiddon, N. Chandrasekhar, and R. Chandrasekar, *Adv. Opt. Mater.* **3**(8), 1035 (2015).
18. I. Staude, M. Decker, M. J. Ventura, C. Jagadish, D. N. Neshev, M. Gu, and Y. S. Kivshar, *Adv. Mater.* **25**(9), 1260 (2013).
19. D. A. Kopylov, M. N. Esaulkov, I. I. Kuritsyn, A. O. Mavritskiy, B. E. Perminov, A. V. Konyashchenko, T. V. Murzina, and A. I. Maydykovskiy, *Laser Phys. Lett.* **15**(4), 045001 (2018).
20. G. O. Dias, O. Lecarme, J. Cordeiro, E. Picard, and D. Peyrade, *Microelectronic Engineering* **257**, 111751 (2022).
21. F. Dumur, *Eur. Polym. J.* **163**, 110962 (2022).
22. N. B. Tomazio, L. D. Boni, and C. R. Mendonca, *Sci. Rep.* **7**(1), 1 (2017).
23. R. M. R. Adao, T. L. Alves, C. Maibohm, B. Romeira, and J. B. Nieder, *Opt. Express* **30**(6), 9623 (2022).
24. S. Zhang, S.-J. Tang, S. Feng, Y.-F. Xiao, W. Cui, X. Wang, W. Sun, J. Ye, P. Han, X. Zhanga, and Y. Zhang, *Adv. Opt. Mater.* **7**(20), 1900602 (2019).
25. L. Cheng, S. Mao, Z. Li, Y. Han, and H. Y. Fu, *Micromachines* **11**(7), 666 (2020).
26. X. Chen, C. Li, C. K. Y. Fung, S. M. G. Lo, and H. K. Tsang, *IEEE Photonics Technol. Lett.* **22**(15), 1156 (2010).
27. D. Taillaert, F. V. Laere, M. Ayre, W. Bogaerts, D. V. Thourhout, P. Bienstman, and R. Baets, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**(8A), 6071 (2006).

Обнаружение индуцированной магнитным полем электрической поляризации в ортоферрите тербия

В. Ю. Иванов, А. М. Кузьменко, А. Ю. Тихановский, А. А. Пронин, А. А. Мухин¹⁾

Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 24 октября 2022 г.

После переработки 4 ноября 2022 г.

Принята к публикации 11 ноября 2022 г.

В ортоферрите TbFeO₃ при температурах ниже температуры антиферромагнитного упорядочения тербиевой подсистемы (~3.2 К) обнаружена индуцированная магнитным полем $H\parallel b$ электрическая поляризация $P_a(H_b)$ вдоль оси a , которая сопровождается аномалиями, связанными с метамагнитными (Tb) и спин-переориентационными (Fe) переходами. При небольших магнитных полях $|H| < H_{cr1} \sim 5$ кЭ зависимость $P_a(H_b)$ проявляет сильный гистерезис и имеет форму “бабочки”, а в промежуточных магнитных конфигурациях $|H_{cr1}| < |H| < |H_{cr2}| \sim 18$ кЭ знак поляризации определяется знаком приложенного электрического поля, а зависимость $P_a(H_b)$ имеет немонотонный характер. Дано качественное объяснение наблюдаемым эффектам в рамках симметричного анализа допускаемых магнитоэлектрических взаимодействий в индуцированных полем магнитных структурах.

DOI: 10.31857/S1234567823010056, EDN: nvhceg

Введение. Интерес к исследованию мультиферроиков, позволяющих осуществлять взаимоконтроль магнитных и электрических характеристик, возник в конце прошлого века и не ослабевает до настоящего времени. Помимо практического значения, изучение таких объектов представляет несомненный научный интерес из-за большого разнообразия механизмов, приводящих к появлению магнитоэлектрических эффектов, например электрической поляризации (спонтанной или индуцированной магнитным полем) [1–3]. Особого внимания заслуживают несобственные магнитоэлектрики, в которых магнитоэлектрические эффекты возникают благодаря особенностям их магнитного упорядочения, в частности, с образованием нецентросимметричных магнитных структур [4–6].

Редкоземельные ортоферриты RFeO₃ принадлежат к центросимметричной пространственной группе $D_{2h}^{16} - R\bar{3}m$. В элементарной ячейке содержится по 4 иона Fe в центросимметричных позициях (4b) и редкоземельного иона (R) в нецентросимметричных позициях (4c). При температурах ниже температуры Нееля ~620–740 К в ортоферритах происходит антиферромагнитное упорядочение спинов ионов Fe³⁺ в скошенную магнитную структуру $G_x F_z$ соответствующую неприводимому представлению Γ_4 группы D_{2h}^{16} в обозначениях Берто [7], где $\mathbf{F} = \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2 + \mathbf{M}_3 + \mathbf{M}_4$ – вектор ферромагне-

тизма, $\mathbf{G} = \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2 + \mathbf{M}_3 - \mathbf{M}_4$ – основной вектор антиферромагнетизма, а \mathbf{M}_i – магнитные моменты ионов Fe³⁺ в элементарной ячейке. Для описания магнитной конфигурации редкоземельной подсистемы с магнитными моментами \mathbf{m}_i используются аналогичные базисные векторы:

$$\begin{aligned} \mathbf{f} &= \mathbf{m}_1 + \mathbf{m}_2 + \mathbf{m}_3 + \mathbf{m}_4, \\ \mathbf{g} &= \mathbf{m}_1 - \mathbf{m}_2 + \mathbf{m}_3 - \mathbf{m}_4, \\ \mathbf{a} &= \mathbf{m}_1 - \mathbf{m}_2 - \mathbf{m}_3 + \mathbf{m}_4, \\ \mathbf{c} &= \mathbf{m}_1 + \mathbf{m}_2 - \mathbf{m}_3 - \mathbf{m}_4, \end{aligned} \quad (1)$$

где \mathbf{f} и \mathbf{c} индуцируются за счет R-Fe взаимодействия, а \mathbf{a} и \mathbf{g} возникают при собственном нецентросимметричном упорядочении редкой земли.

В ортоферрите TbFeO₃ при понижении температуры до 6–8 К за счет Tb-Fe взаимодействия происходит переориентация спинов железа от оси x (a) к оси z (c), т.е. спиновая структура меняется с $\Gamma_4 (G_x F_z)$ на $\Gamma_2 (G_z F_x)$. При дальнейшем понижении температуры в районе 3.5 К происходит собственное антиферромагнитное упорядочение ионов Tb³⁺ в состоянии $\Gamma_8 (a_x g_y)$, при этом спины Fe³⁺ снова переориентируются к конфигурации Γ_4 [8–10]. В магнитном поле $H\parallel a$ и $H\parallel b$ наблюдаются метамагнитные переходы в подсистеме изинговских ионов Tb³⁺, сопровождаемые переориентацией спинов ионов Fe³⁺ [11, 12]. Недавние магнитные и магнитокалорические исследования монокристаллов TbFeO₃ подтверждают эти свойства [13]. Нейтронографические ис-

¹⁾e-mail: mukhin@ran.gpi.ru

следования выявили новое магнитное состояние в TbFeO_3 , проявляющееся в возникновении периодической несоразмерной доменной структуры в подсистеме Tb вблизи температуры упорядочения редкой земли в магнитном поле ~ 20 кЭ, направленном вдоль оси c [14].

Обращаясь к возможным проявлениям магнитоэлектрического эффекта в ортоферритах, отметим, что в центросимметричных магнитных структурах (Γ_1 - Γ_4) Fe- и R-подсистем он запрещен. Однако этот эффект может возникать при собственном антиферромагнитном упорядочении редкоземельной подсистемы в центрo-асимметричные моды (Γ_5 - Γ_8). Симметричный анализ магнитоэлектрических взаимодействий в редкоземельных ортоферритах и ортохромитах был проведен в работе [5] (см. также более ранние работы [15, 16]), в которой, в частности, была предсказана возможность существования электрической поляризации в TbFeO_3 при некоторых конфигурациях спинов Fe^{3+} и магнитных моментов Tb^{3+} . Помимо ортоферрита Tb, упорядочение редкоземельной подсистемы происходит в ортоферритах Gd и Dy, причем в последних существование электрической поляризации (спонтанной в GdFeO_3 [17] и индуцированной магнитным полем в DyFeO_3 [18]) было обнаружено экспериментально. В обоих случаях поляризация возникает вдоль оси c кристаллов. Надежного экспериментального подтверждения существования электрической поляризации в TbFeO_3 , имеющем другую магнитную конфигурацию редкоземельной подсистемы, до настоящего времени не было. В работе [19] сообщается об обнаружении в поликристаллических образцах TbFeO_3 очень маленькой (~ 0.2 мкКл/м²) спонтанной электрической поляризации, подавляемой магнитным полем, что, однако, противоречит, по признанию самих авторов, симметрии магнитной структуры и обусловлено ее искажениями. В то же время, недавнее [20] наблюдение электроактивной резонансной моды (электромагнона) в TbFeO_3 в районе температуры упорядочения тербия указывает на возможность проявления магнитоэлектрических свойств. В данной работе впервые сообщается об обнаружении индуцированной магнитным полем $H \parallel b$ электрической поляризации вдоль оси a в TbFeO_3 при температурах ниже температуры антиферромагнитного упорядочения тербиевой подсистемы, что находится в соответствии с данными симметричного анализа.

Эксперимент. Измерения проводились на пластинке a -среза, вырезанной из монокристалла, выращенного А. М. Балбашовым методом зонной плавки. Изменение электрического заряда производилось с

помощью электрометра Keithley 6517A на установке Quantum Design MPMS XL5. Характер зависимостей $P_a(H_b)$ во многом определяется исходным состоянием образца, т.е. знаками и величинами электрического (E) и магнитного (H) полей, приложенных к образцу в процессе его охлаждения до $T = 1.8$ К. Для получения воспроизводимых результатов существенно также, чтобы сканирование по магнитному полю производилось до определенных значений поля. Измерение диэлектрической проницаемости проводилось емкостным четырехточечным методом на специально сконструированной вставке для установки MPMS с регистрацией сигнала на прецизионном измерителе импеданса Agilent E4980A на частоте 90 кГц.

Известно [11–13], что кривая намагничивания $\sigma(H)$ TbFeO_3 в $H \parallel b$ при низких температурах имеет двухступенчатый характер, обусловленный метамагнитными переходами в Tb-подсистеме и спин-переориентационными в Fe-подсистеме. На рисунке 1 приведены кривые намагничивания,

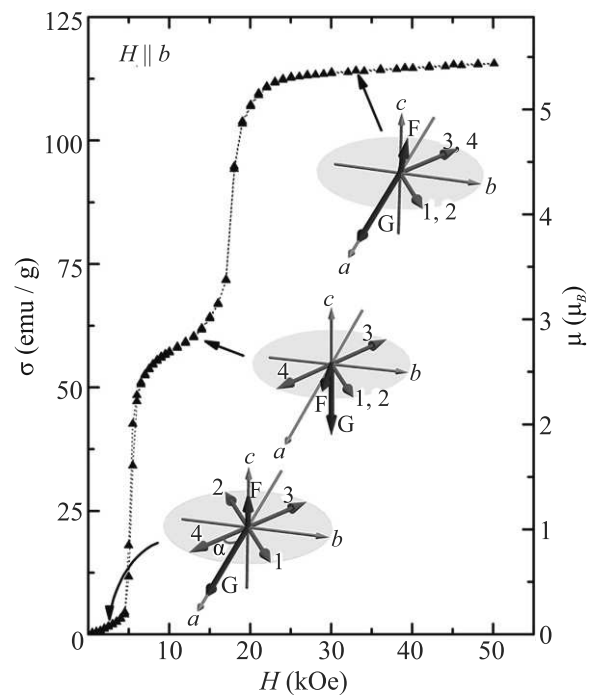


Рис. 1. (Цветной онлайн) Кривая намагничивания кристалла TbFeO_3 вдоль оси b при 1.85 К. Вставки иллюстрируют конфигурации индивидуальных магнитных моментов ионов Tb^{3+} и векторов антиферромагнетизма \mathbf{G} и ферромагнетизма \mathbf{F} подсистемы Fe^{3+} в разных магнитных полях

измеренные вдоль оси b . На этом же рисунке схематически изображены конфигурации магнитных

моментов ионов железа и тербия. В исходном состоянии ($H = 0$), как уже говорилось, ионы железа имеют конфигурацию $\Gamma_4(G_x F_z)$, а изинговские ионы тербия – конфигурацию $\Gamma_8(a_x g_y)$, т.е. образуют неколлинеарную структуру в ab плоскости (“крест”) с моментами вдоль изинговских осей, отклоненными от оси a на угол $\alpha \sim \pm 36^\circ$ у ионов в неэквивалентных кристаллографических позициях. При $H \parallel b$ в $H_{cr1} \sim 5$ кЭ происходит одновременная переориентация магнитных моментов железа в конфигурацию $\Gamma_2(G_z F_x)$ и тербия с опрокидыванием одного из моментов с проекцией против поля (момента 2 на рис. 1). Намагниченность при этом, естественно, скачкообразно увеличивается. При достижении магнитным полем второго критического значения $H_{cr2} \sim 18$ кЭ спины железа возвращаются к исходной конфигурации $\Gamma_4(G_x F_z)$, а оставшийся момент Tb (4) переманивается, вызывая второй скачок на кривой $\sigma(H)$. Отметим, что такой двухступенчатый характер метамагнитных переходов связан с существованием Fe подсистемы и обусловлен выигрышем в энергии в промежуточной фазе за счет дополнительного подмагничивания ионов Tb^{3+} обменным Tb-Fe полем спинов железа при их переориентации из состояния $\Gamma_4(G_x F_z)$ в $\Gamma_2(G_z F_x)$ [11, 12]. В случае $H \parallel a$ в $H_{cr} \sim 2$ кЭ также происходит одноступенчатый метамагнитный переход в Tb-подсистеме, сопровождаемый переориентацией Fe спинов $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_2$. Из соотношений проекстраполированных к нулевому магнитному полю значений намагниченности вдоль a и b осей (с учетом вклада в намагниченность вдоль оси a от скошенного момента Fe равно $\approx 3 \text{ Гс см}^3/\text{г}$) рассчитаны значения магнитных моментов Tb: $\mu_{Tb} = (8.7 \pm 0.1) \mu_B$ и угла $\alpha = (36.5 \pm 0.5)^\circ$, что находится в хорошем согласии с имеющимися литературными данными [11, 12].

На рисунке 2 показана полевая зависимость электрической поляризации образца, который был предварительно охлажден от 5 до 1.8 К в электрическом поле $E = -1.5$ кВ/см и магнитном поле $H = 12$ кЭ. Последующие измерения проводились в том же электрическом поле. Магнитное поле было сначала выведено до нулевого значения (на рис. 2 не показано), затем проведено сканирование: от 0 до +24 кЭ (красная кривая), затем от +24 кЭ до -24 кЭ (синяя кривая) и, наконец, от -24 кЭ до +24 кЭ (зеленая кривая). В области полей, меньших $|H_{cr1}|$, поляризация квазилинейно зависит от магнитного поля, причем ее знак и наклон определяются направлением развертки поля. Конечное значение поляризации сохраняет и в промежуточном диапазоне магнитных полей между H_{cr1} и H_{cr2} , однако в этой области поляризация не-

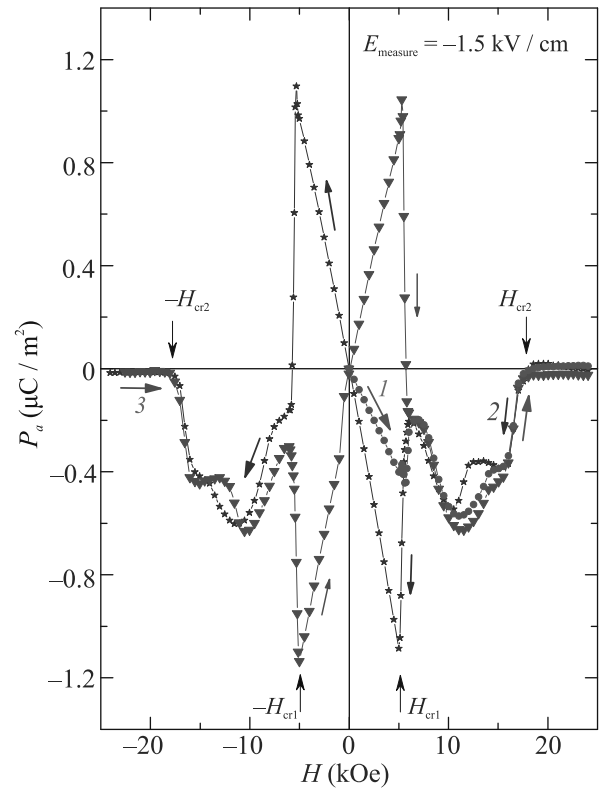


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость поляризации от магнитного поля $P_a(H_b)$ в $TbFeO_3$ при $T = 1.8$ К, измеренная после охлаждения в $E = -1.5$ кВ/см и $H = 12$ кЭ. Стрелки указывают направления сканирования по магнитному полю: 1 (красная) от 0 до 24 кЭ; 2 (голубая) от 24 кЭ до -24 кЭ; 3 (зеленая) от -24 до 24 кЭ

монотонно зависит от магнитного поля и проявляет гистерезис. Скачкообразные изменения поляризации со сменой знаков происходят в полях $\pm H_{cr1}$, в результате чего в интервале от $-H_{cr1}$ до $+H_{cr1}$ зависимость $P(H)$ приобретает форму “бабочки”. При $|H| > |H_{cr2}|$ поляризация полностью исчезает.

После завершения предыдущего цикла в $H = 24$ кЭ знак электрического поля был изменен на положительный и вновь измерены зависимости $P(H)$ (рис. 3). Как видно из рис. 3, после прохождения полем значения H_{cr2} теперь возникает положительная поляризация, полевая зависимость которой подобна предыдущему случаю $E < 0$, но только отличается знаком. Отметим также, что при неполных циклах сканирования по полю, например, от больших положительных полей до отрицательных не ниже $-H_{cr1}$, как показали измерения (см. участки кривых 1 и 2 на рис. 2), перескока с изменением знака поляризации происходить не будет.

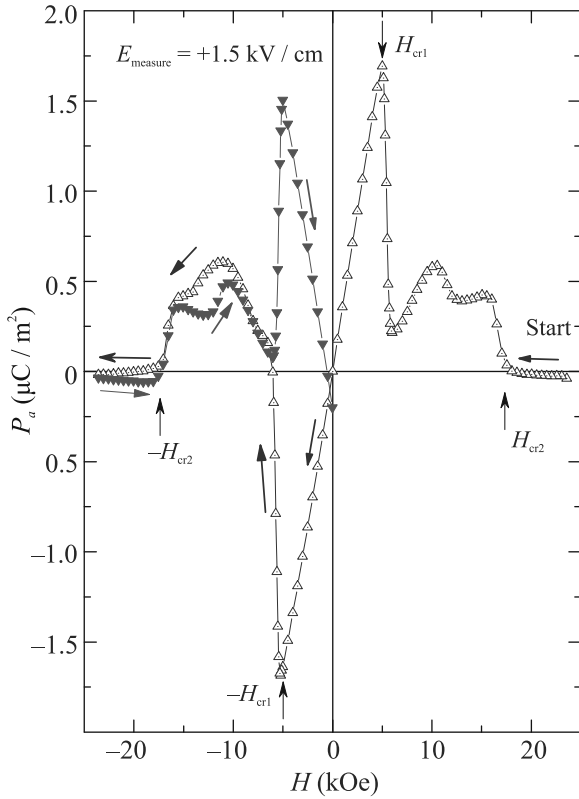


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость поляризации от магнитного поля после переключения электрического поля с -1.5 кВ/см на $+1.5$ кВ/см в $H = 24$ кЭ

Электрическая поляризация сохраняется при температурах до ~ 3.3 К – температуры антиферромагнитного упорядочения тербиевой подсистемы, однако ее величина уменьшается, а аномалии в области $|H_{cr1}| < |H| < |H_{cr2}|$ становятся более размытыми.

На рисунке 4 приведена зависимость диэлектрической проницаемости ε_a от магнитного поля $H \parallel b$ при $T = 1.9$ К. Проницаемость скачкообразно увеличивается при двух значениях магнитного поля, соответствующих величинам H_{cr1} и H_{cr2} . Кроме того, на зависимости $\varepsilon_a(H_b)$ проявляется аномалия (локальный максимум) в районе 10 кЭ, т.е. в той же области полей, где наблюдаются аномалии на зависимостях $P_a(H_b)$.

Обсуждение результатов. Из симметричного анализа (см. табл. 1 в [5]) следует, что электрическая поляризация вдоль оси a в поле $H \parallel b$ разрешена в низкополевой и промежуточной фазах и может быть представлена в виде:

$$P_x \approx \lambda_1 a_x H_y + \lambda'_1 a_x f_y + \lambda_2 a_y G_z + \lambda'_2 a_y f_x \dots, \quad (2)$$

где $a_x, f_{x,y}, G_z$ – проекции базисных векторов Tb и Fe подсистем, λ_i, λ'_i – магнитоэлектрические константы.

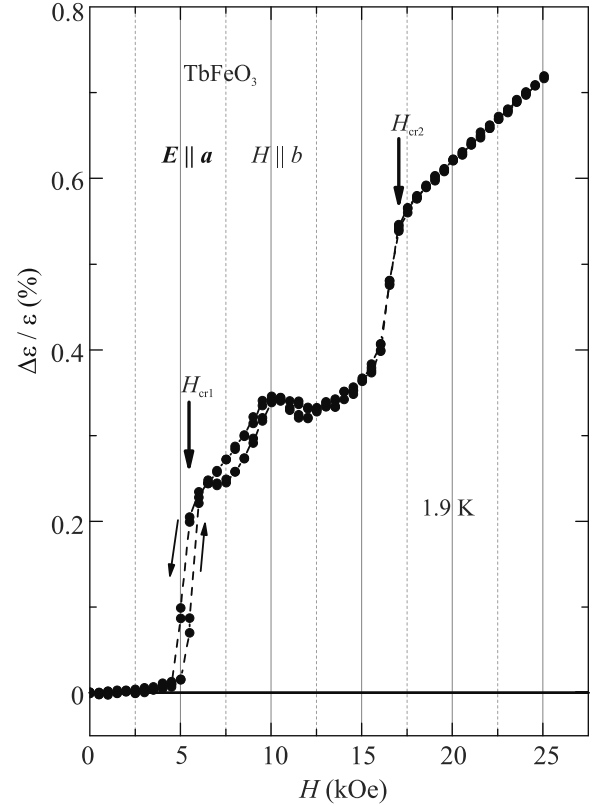


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость диэлектрической проницаемости ε_a от магнитного поля $H \parallel b$ при $T = 1.9$ К

В силу изинговского характера ионов Tb^{3+} остальные компоненты параметров порядка связаны с используемыми a_x, a_y, f_x, f_y соотношениями $g_y = a_x \operatorname{tg} \alpha, g_x = a_y \operatorname{ctg} \alpha, c_y = f_x \operatorname{tg} \alpha, c_x = f_y \operatorname{ctg} \alpha$, поэтому в (2) опущены соответствующие эквивалентные слагаемые. Также мы пренебрегли малыми слагаемыми с $F_{x,y}$ в силу того, что $|F| \ll |G|$.

В ZFC состоянии (охлаждение в $H = 0, E = 0$) образец находится в многодоменном (четырёхкратно вырожденном) состоянии. Домены соответствуют положительному $a_x \approx 4m \cos \alpha > 0$ (домен А), либо отрицательному $a_x \approx -4m \cos \alpha < 0$ (домен В) параметру порядка a_x , где m – величина магнитного момента иона Tb^{3+} вдоль изинговских осей, которая при низких температурах (область насыщения) $m \approx \mu_{Tb}$. Каждому из доменов А и В сопутствуют по две возможные конфигурации спинов железа с положительным или отрицательным значением проекций G_x и F_z . В этой фазе в интервале магнитных полей $-H_{cr1} < H < H_{cr1}$ отличным от нуля является только первый член в выражении (2):

$$P_x \approx \pm 4\lambda_1 m \cos \alpha H_y, \quad (3)$$

в котором знак плюс соответствует доменам А ($a_x > 0$), а знак минус – доменам В ($a_x < 0$). Этот член определяет линейную зависимость поляризации от магнитного поля, поскольку магнитный момент Tb m вдоль изинговских осей в антиферромагнитном состоянии предполагается насыщенным. Однако в ZFC состоянии при одинаковом количестве обоих доменов поляризация отсутствует, и для ее возникновения требуется предварительная магнитоэлектрическая обработка образца.

При переходе из низкополевой в промежуточную фазу при H_{cr1} происходит перемагничивание одного из двух моментов Tb, сопровождаемое переориентацией антиферромагнитного момента Fe от a - к c -оси (рис. 1). В промежуточной фазе можно также выделить домены типа А ($a_x > 0$) с параметрами порядка $a_x \approx 2m \cos \alpha$, $f_y \approx 2m \sin \alpha$, $f_x \approx \pm 2m \cos \alpha$, $a_y \approx \pm 2m \sin \alpha$, $G_z = \pm 1$ и домены типа В ($a_x < 0$), в которых $a_x \approx -2m \cos \alpha$, $f_y \approx 2m \sin \alpha$, $f_x \approx \pm 2m \cos \alpha$, $a_y \approx \pm 2m \sin \alpha$, $G_z = \pm 1$ (используется нормированный вектор \mathbf{G}). Подставляя их значения в выражение (2), получаем, что домены А и В дают одинаковый по величине и противоположный по знаку вклад в поляризацию в промежуточной фазе:

$$P_x \approx \pm(2\lambda_1 m \cos \alpha H_y + \lambda'_1 m \sin 2\alpha + 2\lambda_2 m \sin \alpha |G_z| - \lambda'_2 m \sin 2\alpha), \quad (4)$$

где знаки “ \pm ” соответствует доменам А и В. Обратим внимание на двукратное уменьшение наклона dP/dH в этой фазе. Следует отметить, что выражение (4) не зависит от того, какой из моментов Tb перемагнитился при переходе в промежуточную фазу. В полях, больших H_{cr2} , когда перемагничивается и другой, оставшийся в первоначальном состоянии, момент Tb, нецентросимметричные параметры порядка \mathbf{a} и \mathbf{g} обращаются в нуль, и поляризация исчезает.

Из приведенного анализа видно, что наличие вырожденных состояний и доменной структуры требует приложение электрического поля для наблюдения конечной поляризации. На рисунке 5 изображены идеализированные зависимости электрической поляризации от магнитного поля при приложенном положительном и отрицательном электрическом поле E . Поскольку поведение поляризации зависит от направления изменения магнитного поля и его знака, то на рис. 5 красным цветом показано сканирование поля от положительных значений $H > H_{cr2}$ до $H < -H_{cr2}$, а синим – сканирование от $H < -H_{cr2}$ до $H > H_{cr2}$. На вставках рис. 5 изображены конфигурации магнитных моментов Tb³⁺, соответствующих тем или иным участкам зависимостей $P_a(H_b)$ (для

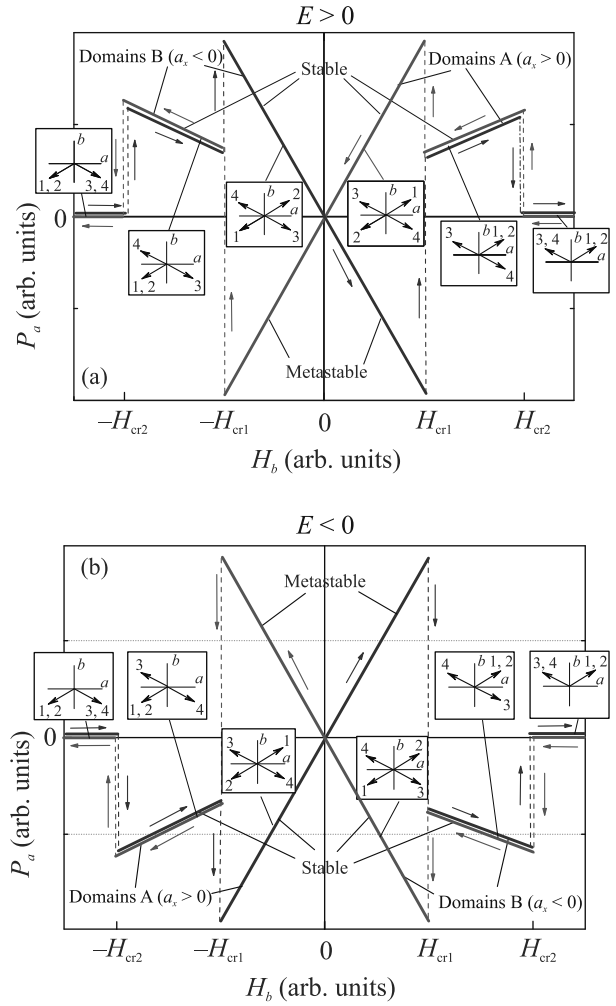


Рис. 5. (Цветной онлайн) Идеализированные зависимости электрической поляризации от магнитного поля при приложенном электрическом поле: (а) – $E > 0$, (б) – $E < 0$. Красным цветом показано сканирование магнитного поля от $H > H_{cr2}$ до $H < -H_{cr2}$; синим – сканирование от $H < -H_{cr2}$ до $H > H_{cr2}$

областей $|H_{cr1}| < |H| < |H_{cr2}|$ показаны по одной из двух возможных конфигураций).

Согласно эксперименту, охлаждение в электрическом поле, либо его приложение в высокополевой фазе частично снимают вырождение, стабилизируя состояния в промежуточной фазе с поляризацией \mathbf{P} , параллельной приложенному электрическому полю $\mathbf{E} \parallel \mathbf{a}$. Рассмотрим случай $E > 0$, когда стабилизируются домены А (рис. 5а). При переходе из промежуточной фазы в низкополевую знак поляризации сохраняется, а ее значение увеличивается, прежде всего, за счет двукратного увеличения параметра порядка a_x . При дальнейшем уменьшении модуля магнитного поля поляризация также уменьшает

ся по модулю, проходит через ноль в $H = 0$ и меняет знак. Теперь при росте магнитного поля другого знака магнитное состояние (домен А) становится метастабильным (знак поляризации противоположен знаку приложенного напряжения) и при достижении величины $-H_{cr1}$ происходит перестройка магнитной структуры в энергетически более выгодное состояние с одинаковыми знаками поляризации и электрического поля (домен В). При достижении $-H_{cr2}$ поляризация исчезает, а при обратном ходе по полю она вновь возникает в промежуточной фазе (причем того же знака) и далее при переходе в низкополевую фазу в $-H_{cr1}$ (домен В) поляризация снова скачком возрастает. В этом состоянии ее наклон $dP/dH < 0$ и при переходе точки $H = 0$ это состояние становится метастабильным ($P < 0$), которое при $+H_{cr1}$ скачком переходит в состояние с $P > 0$, соответствующее домену А с $a_x > 0$. Таким образом, формируется гистерезисное поведение поляризации в низкополевой фазе, имеющее форму “бабочки”. Аналогичное поведение поляризации имеет место и при отрицательном приложенном поле $E < 0$, где, однако, поляризация оказывается повернутой на 180° вокруг оси абсцисс по сравнению со случаем $E > 0$ (рис. 5b).

Представленные на рис. 5 зависимости носят качественный характер и описывают главные черты наблюдаемых зависимостей электрической поляризации, хотя и не отражают дополнительных аномалий $P(H)$, а также диэлектрической проницаемости в промежуточной фазе в районе $H = 10$ кЭ. Это связано с тем, что приведенный выше анализ соответствует насыщенным магнитным моментам Tb в разных подрешетках, которые не зависят от внешнего магнитного поля, за исключением точек переходов со скачкообразным изменением магнитной структуры. При конечных же температурах появляется конкурирующая зависимость антиферромагнитных и ферромагнитных параметров порядка a_x, a_y, f_x, f_y от поля, которая, за счет соответствующих вкладов в магнитоэлектрическое взаимодействие (2), может дать особенности в $P(H)$ в промежуточной фазе. С этим же обстоятельством связана и наблюдаемая аномалия при $H = 10$ кЭ в диэлектрической проницаемости, что требует отдельного количественного анализа.

Заключение. В результате проведенных экспериментальных исследований была обнаружена индуцированная магнитным полем $H||b$ электрическая поляризация вдоль оси a в TbFeO₃ при температурах ниже температуры антиферромагнитного упорядочения тербиевой подсистемы. В области слабых магнитных полей $|H| < H_{cr1}$ зависимость $P_a(H_b)$ имеет форму “бабочки”, а знак поляризации зави-

сит от условий предварительной магнитоэлектрической обработки образца. В области существования промежуточных магнитных конфигураций $|H_{cr1}| < |H| < |H_{cr2}|$ знак поляризации определяется знаком приложенного электрического поля, а зависимость $P_a(H_b)$ имеет немонотонный характер. Наблюдаемые явления объясняются допускаемыми симметрией ортоферритов магнитоэлектрическими взаимодействиями, которые были рассмотрены феноменологически. Их микроскопическая природа может быть обусловлена взаимодействием мультипольных (в частности, квадрупольных) моментов редкоземельного иона с электрическим полем, как недавно было показано на примере редкоземельных лангаситов [21].

В качестве продолжения исследований TbFeO₃ представляет интерес изучение зависимости поляризации от величины приложенного электрического поля, “эффектов памяти”, т.е. поведения электрической поляризации в отсутствии электрического поля после предварительной подготовки определенного магнитоэлектрического состояния, а также поиск новых магнитоэлектрических эффектов в других геометриях эксперимента. В целом, такого рода исследования расширят понимание различных проявлений магнитоэлектрической связи в мультиферроиках.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант # 22-12-00375).

1. S. Dong, J.-M. Liu, S.-W. Cheong, and Z. Ren, *Adv. Phys.* **64**, 519 (2015).
2. *Multiferroic Materials: Properties, Techniques, and Applications*, ed. by Junling Wang, CRC Press Taylor & Francis Group, Boca Raton, London, N.Y. (2017), 387 p.
3. N. A. Spaldin, *Proc. R. Soc. A* **476**, 20190542 (2020).
4. А. М. Кадомцева, А. К. Звездин, Ю. Ф. Попов, А. П. Пятаков, Г. П. Воробьев, *Письма в ЖЭТФ* **79**, 705 (2004).
5. А. К. Звездин, А. А. Мухин, *Письма в ЖЭТФ* **88**, 581 (2008) [A. K. Zvezdin and A. A. Mukhin, *Sov. Phys. JETP Lett.* **88**, 505 (2008)].
6. T. Kimura and Y. Tokura, *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 434204 (2008).
7. E. F. Bertaut, J. Mareschal, and G. F. De Vries, *J. Phys. Chem. Solids* **28**, 2143 (1967).
8. E. F. Bertaut, J. Chappert, J. Mareschal, J. P. Rebouilliat, and J. Sivadire, *Solid State Commun.* **5**, 293 (1967).
9. J. E. Bouree and J. Hammann, *J. Phys. (Paris)* **36**, 391 (1975).
10. К. П. Белов, А. К. Звездин, А. А. Мухин, *ЖЭТФ* **76**, 1100 (1979) [K. P. Belov, A. K. Zvezdin, and A. A. Mukhin, *JETP* **49**, 557 (1979)].

11. R. Bidaux, J. E. Fouree, and J. Hammann, *J. Phys. (Paris)* **36**, 803 (1975).
12. К. П. Белов, А. К. Звездин, А. М. Кадомцева, Н. Б. Крынецкий, А. А. Мухин, *ЖЭТФ* **76**, 1421 (1979) [K. P. Belov, A. K. Zvezdin, A. M. Kadomtseva, N. B. Krynetskii, and A. A. Mukhin, *JETP* **49**, 723 (1979)].
13. Y. Cao, M. Xiang, W. Zhao, G. Wang, Z. Feng, B. Kang, A. Stroppa, J. Zhang, W. Ren, and S. Cao, *J. Appl. Phys.* **119**, 063904 (2016).
14. S. Artyukhin, M. Mostovoy, N. P. Jensen et al. (Collaboration), *Nat. Mater.* **11**, 694 (2012).
15. T. Yamaguchi and K. Tsushima, *Phys. Rev. B* **8**, 5187 (1973).
16. А. К. Звездин, В. М. Матвеев, А. А. Мухин, А. И. Попов, *Редкоземельные ионы в магнито-упорядоченных кристаллах*, Наука, М. (1985), 294 с.
17. Y. Tokunaga, S. Iguchi, T. Arima, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 097205 (2008).
18. Y. Tokunaga, N. Furukawa, H. Sakai, Y. Taguchi, T. Arima, and Y. Tokura, *Nat. Mater.* **8**, 558 (2009).
19. Y.-Q. Song, W.-P. Zhou, Y. Fang, Y.-T. Yang, L.-Y. Wang, D.-H. Wang, and Y.-W. Du, *Chin. Phys. B* **23**, 077505 (2014).
20. T. N. Stanislavchuk, Y. Wang, S.-W. Cheong, and A. A. Sirenko, *Phys. Rev. B* **95**, 054497 (2017).
21. L. Weymann, L. Bergen, T. Kain et al. (Collaboration), *npj Quantum Mater.* **5**, 61 (2020).

Интерференционный транспорт в двумерном топологическом изоляторе в CdHgTe квантовой яме

М. С. Рыжков^{+*}, Д. А. Козлов^{+×1)}, Д. А. Худайбердиев⁺, З. Д. Квон^{+*}, Н. Н. Михайлов⁺

⁺ Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова, 630090 Новосибирск, Россия

^{*} Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

[×] Experimental and Applied Physics, University of Regensburg, D-93040 Regensburg, Germany

Поступила в редакцию 12 октября 2022 г.

После переработки 10 ноября 2022 г.

Принята к публикации 11 ноября 2022 г.

Впервые изучен интерференционный транспорт в мезоскопических образцах двумерного топологического изолятора в квантовых ямах на основе CdHgTe. Установлено, что квазибаллистический краевой транспорт в таком изоляторе существует на длинах до 10 микрон. В этом режиме транспорта обнаружены близкие к периодическим осцилляции Ааронова–Бома, обусловленные формированием краевыми состояниями замкнутых петель с характерным размером около 100 нм. Измерена температурная зависимость их амплитуды и на основе нее впервые определена длина фазовой когерентности в двумерном топологическом изоляторе.

DOI: 10.31857/S1234567823010068, EDN: nvhyaf

В недавней работе [1] было установлено, что двумерный топологический изолятор (ТИ) реализуется не только в HgTe квантовых ямах, но и в квантовых ямах на основе CdHgTe. Тем самым было экспериментально продемонстрировано, что состоянием двумерного ТИ можно управлять не только изменением толщины пленки HgTe, но и переходом к пленке с другим составом исходных материалов. В частности, добавление небольшого количества Cd позволяет перестраивать энергетический спектр квантовой ямы таким образом, что критическая толщина квантовой ямы, соответствующая переходу от прямого к инверсному спектру, растет, и тем самым состояние топологического изолятора может реализовываться при больших толщинах, что также было показано в работе [1]. Однако в этой работе экспериментальные образцы имели макроскопические (свыше 100 мкм) размеры, и тем самым демонстрировали только диффузионный транспорт.

В данной работе сообщается об исследовании уже мезоскопических образцов на основе описанной выше системы, о реализации в них режима квазибаллистического транспорта, а также анализируется поведение мезоскопических флуктуаций кондактанса, вызванных взаимодействием объемных и краевых состояний. Экспериментальные образцы, исследованные в данной работе, представляли собой полевые

холловские транзисторы микронных размеров (их топология и размеры приведены на рис. 1а), изготовленные на основе CdHgTe квантовой ямы толщиной 11.5 нм с ориентацией (013) и снабженные металлическими TiAu затворами. Измерения проводились в диапазоне температур 0.08–10 К и в магнитных полях до 2 Тл с использованием стандартной схемы фазочувствительного детектирования на частотах 1–12 Гц и при величинах измерительного тока через образец 0.1–100 нА в зависимости от характера измерений. Рисунок 1с демонстрирует типичные зависимости локального (R_L) и нелокального (R_{NL}) сопротивления, измеренных на самой короткой части холловского мостика (см. рис. 1б), при $T = 0.85$ К. Представленные кривые имеют схожую асимметричную форму с максимумом, соответствующему положению уровня Ферми в энергетической щели и точке зарядовой нейтральности (ТЗН), и быстрым спадом при смещении уровня Ферми как в зону проводимости, так и в валентную зону. Величина локального сопротивления в максимуме составляет 27 кОм (т.е. его величина превосходит в два раза значение сопротивления в режиме баллистического транспорта) и 20 кОм для нелокального сопротивления. В целом наблюдаемая картина характерна для двумерных топологических изоляторов в HgTe квантовых ямах, находящихся в режиме квазибаллистического транспорта [2, 3]. Вставка к рисунку 1с показывает температурную зависимость локального сопротивления в

¹⁾e-mail: dimko@isp.nsc.ru

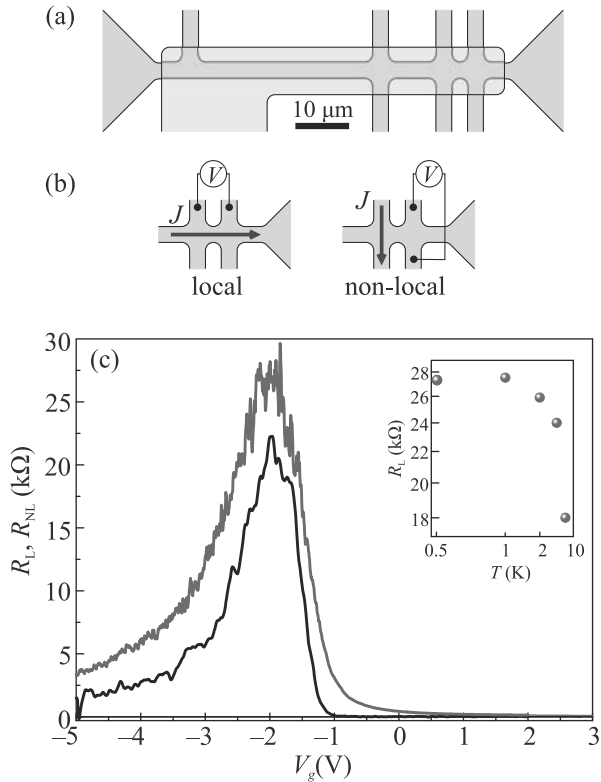


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Схематическое изображение исследуемых 9-контактных холловских мостиков, покрытых металлическим затвором. Расстояние между ближайшими потенциометрическими контактами вдоль края образца, расположенного под затвором, составляет 5 мкм. (б) – Локальная (слева) и нелокальная (справа) геометрия измерений 4-х точечного сопротивления. Измерения проводились на части холловского мостика с наименьшим расстоянием между контактами. (с) – Зависимости локального $R_L(V_g)$ и нелокального $R_{NL}(V_g)$ сопротивления от затворного напряжения V_g при температуре $T = 0.85$ К. На вставке: зависимость максимума локального сопротивления $R_L^{\max}(V_g)$ при $V_g = -2$ В от температуры

максимуме зависимости $R_L(V_g)$ при $V_g = -2$ В. Отметим, что режим доминирующего краевого транспорта начинается при $T < 1$ К. Оценка энергии активации на основе данных со вставки к рис. 1с дает для щели величину порядка 1 мэВ, что согласуется с найденной при анализе краевого транспорта в макроскопических образцах [1].

Более внимательный анализ затворных зависимостей указывает на наличие в изучаемых образцах мезоскопических флуктуаций как локальной, так и нелокальной проводимости, причем амплитуда этих флуктуаций сравнима для обоих типов сопротивлений. Это указывает на ключевую роль краевого транспорта в формировании этих флуктуаций. Ри-

сунки 2а и б демонстрируют семейства зависимостей $R_L(B)$ и $R_{NL}(B)$ при различных затворных напряжениях, соответствующих доминированию краевого транспорта, т.е. при $T = 80$ мК. Хорошо видно, что они представляют собой близкие к периодическим осцилляции со средним периодом около 0.15 Тл. Отметим, что ранее подобные осцилляции со значительно большим периодом (0.5 Тл) и меньшей амплитудой наблюдались в режиме локального транспорта в двумерных топологических изоляторах на основе HgTe квантовых ям [4]. В этой работе осцилляции были интерпретированы как осцилляции Ааронова–Бома, связанные с квантованием магнитного потока через замкнутые траектории двух типов: 1) формируемые в результате взаимодействия с объемными состояниями, представляющие собой озера объемных носителей заряда, возникающими в результате флуктуаций примесного потенциала [5], и 2) возникающими из-за появления замкнутых петель краевых состояний под действием неровностей на краю квантовой ямы. Недостатком экспериментов, приведенных в [4], было отсутствие измерений осцилляций в нелокальной геометрии. Тем самым, строго говоря, в указанной работе не удалось получить однозначного доказательства того, что обнаруженные в ней осцилляции Ааронова–Бома связаны с транспортом по краевым токовым состояниям.

Данные же, представленные на рис. 2, являются прямым экспериментальным свидетельством, что наблюдаемые нами осцилляции Ааронова–Бома отражают отклик именно краевых состояний. Сравним поведение флуктуаций ΔR локального и нелокального сопротивлений. Расчет спектров Фурье близких к периодическим флуктуаций и их анализ не всегда дает однозначный ответ на вопросы о периоде и амплитуде этих флуктуаций. Более подходящим методом является расчет и анализ автокорреляционных функций нормализованных флуктуаций локального и нелокального сопротивления. Для этого использовалась формула $\Delta R = (R - \langle R \rangle) / R(B = 0)$, где $\langle R \rangle$ означает монотонную составляющую, полученную из экспериментальных данных с помощью фильтра низких частот с частотой среза 4 Тл^{-1} , т.е. усреднялись все осцилляции с периодом более 0.25 Тл. Далее из полученных таким образом нормализованных флуктуаций в диапазоне $B = 0 \dots 1.5$ Тл рассчитывались автокорреляционные функции, представленные на рис. 2с и d. Все полученные автокорреляционные зависимости характерны для близких к периодическим флуктуаций и могут быть описаны функцией вида $A \cos(\omega \Delta B) \exp(-k \Delta B)$, где A – амплитуда флуктуаций, ω – характерная частота, а k – декремент за-

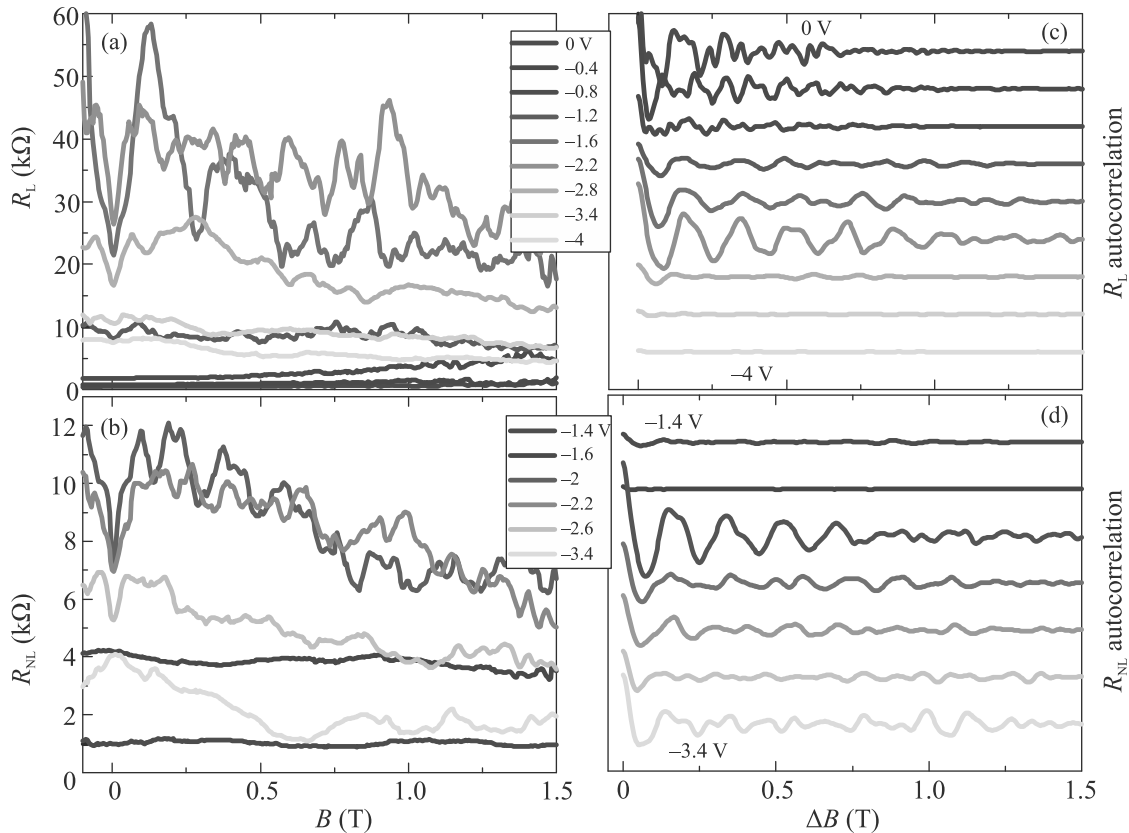


Рис. 2. (Цветной онлайн). (a) и (b) – Зависимости локального R_L и нелокального R_{NL} сопротивления от магнитного поля B соответственно, измеренные при минимальной температуре и различных затворных напряжениях V_g в окрестностях ТЗН. (c) и (d) – Автокорреляционные функции нормализованных флуктуаций локального и нелокального сопротивлений, полученные из кривых с панелей (a) и (b). Все полученные автокорреляционные функции могут быть представлены в виде периодической функции и экспоненциально затухающей огибающей, что характерно для автокорреляционных функций близких к периодическим флуктуаций. При этом отчетливо видно, что вблизи $V_g = -2$ В амплитуда осцилляций автокорреляционных функций достигает максимума, а декремент затухания, напротив, – минимума. Рост амплитуды также наблюдается по мере перехода в зону проводимости (две верхние кривые на панели (c)), но это связано с формированием осцилляций Шубникова–де Гааза в локальном сопротивлении, и в данном случае является артефактом

тухания, указывающий на степень случайности (дисперсию) анализируемых флуктуаций по амплитуде и периоду. При анализе всего семейства функций можно обнаружить следующие особенности: во-первых, период осцилляций практически не зависит от затворного напряжения, одинаков для локального и нелокального сопротивления и составляет ≈ 0.15 Тл; во-вторых, амплитуда нормированных осцилляций имеет выраженный максимум вблизи ТЗН. Вторичный рост амплитуды также наблюдается по мере движения по затворным напряжениям в зону проводимости, однако природа этого явления связана с формированием осцилляций Шубникова–де Гааза на зависимостях $R_L(B)$, и поэтому является, в рамках данной работы, артефактом.

Равенство амплитуды и периода в локальном и нелокальном отклике позволяет резонно предположить, что обсуждаемые осцилляции отражают эффект Ааронова–Бома именно на краевых токовых состояниях двумерного топологического изолятора, как было предсказано в [5]. Малый декремент затухания автокорреляционных функций указывает на тот факт, что характерная площадь интерференционных петель, на которых формируются осцилляции, примерно одинакова. В свою очередь, это указывает на то, что характерные размеры неровностей края исследуемой квантовой ямы не описываются ожидаемым случайным распределением, а имеют определенный размер. Исходя из периода флуктуаций в 0.15 Тл, его можно оценить как $d =$

$= \sqrt{\frac{4}{\pi} \frac{h}{e\Delta B}} = 190$ нм, а периметр контура L составляет ≈ 600 нм.

Обнаружение близких к периодическим по магнитному полю флуктуаций может показаться случайным результатом, связанным с конкретным экземпляром образца и формированием единичной замкнутой петли в нем. Однако имеющиеся данные указывают на то, что это не так. Во-первых, осцилляции наблюдаются на всех участках образца (длиной от 3 до 30 мкм), что однозначно указывает на наличие многих интерференционных контуров, и при этом все они характеризуются близким периодом по магнитному полю, что опять указывает на их характерный размер ≈ 200 нм. Во-вторых, схожие осцилляции (но с существенно меньшей амплитудой) наблюдались и в образцах макроскопического размера [1]. Можно предположить, что формирование замкнутых контуров близкого размера в этой структуре стало возможным благодаря малой величине энергетической щели (порядка 1 мэВ [1]) в присутствии неоднородностей электростатического потенциала.

На рисунке 3а приведена зависимость среднеквадратичного значения осцилляций ΔR_L локального сопротивления от температуры. Как видно, эта зависимость носит практически экспоненциальный характер с насыщением при $T < 0.5$ К. Этот факт является еще одним подтверждением негаусовского распределения обсуждаемых неровностей по размеру. Описанные выше свойства осцилляций позволяют предположить, что температурная зависимость их амплитуды описывается простым выражением:

$$\Delta R = A \exp(-L/L_\phi), \quad (1)$$

где L – периметр контура, а L_ϕ – длина фазовой когерентности.

Используя (1) и предполагая, что при минимальной температуре $L_\phi = L$, можно определить величину L_ϕ и ее зависимость от температуры. Результат показан на рис. 3б. Он говорит о том, что в диапазоне температур 80 мК–10 К длина фазовой когерентности растет с уменьшением температуры от значений 100 нм при 8 К до 600 нм при 80 мК как $L_\phi \sim T^{-\alpha}$, где $\alpha = 0.5 \pm 0.05$. Такая температурная зависимость качественно соответствует теории для случая одномерного диффузионного металла [6]. Обсудим полученный результат. Как было отмечено выше, в исследуемых структурах с двумерным ТИ реализуется квазибаллистический режим. Оценка длины пробега l_B вдоль края дает величину около 3 микрон. Такая величина на порядок превышает значения длины фазовой когерентности (см. рис. 3б). В исследуемых образцах величина магнетосопротивления от-

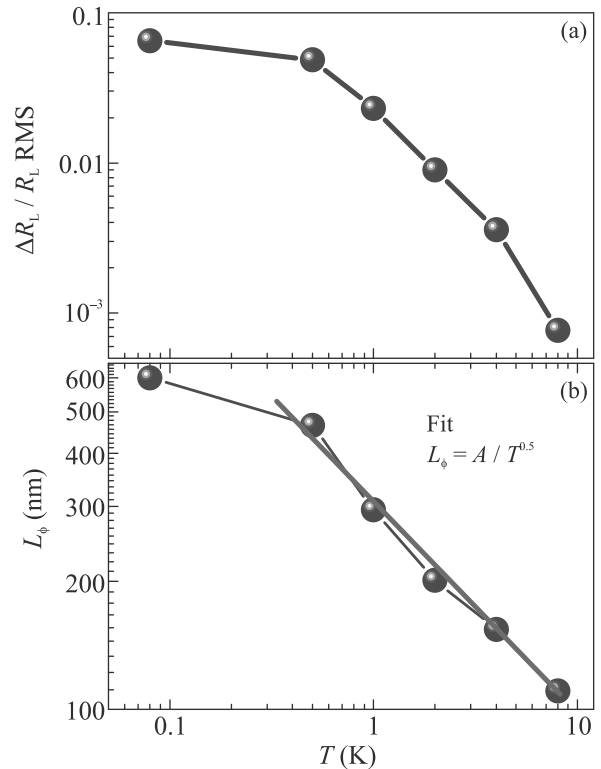


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость среднеквадратичного значения осцилляций локального сопротивления ΔR_L от температуры в ТЗН, т.е. при $V_g = -2.2$ В. (б) – Зависимость длины фазовой когерентности L_ϕ от температуры, рассчитанная на основе данных из панели (а) и формулы (1). Подгонка зависимости проводилась по формуле $L_\phi = A/T^\alpha$ с параметром подгонки $\alpha = 0.495$

носительно мала и составляет не более нескольких десятков процентов (см. рис. 2а), поэтому соотношение $L_\phi \ll l_B$ остается верным даже в магнитном поле. По-видимому, этот факт сделал возможным наблюдение осцилляций Ааронова–Бома. Отметим, что незначительный рост сопротивления образца в слабом магнитном поле (до 0.3 Тл) противоречит результатам работ [1] и [7], где было показано, что слабое магнитное поле приводит к экспоненциальному росту сопротивления образца с пропорциональным уменьшением l_B и переходом к соотношению $l_B \ll l_\phi$. В наших образцах реализуется противоположная физическая картина, которая подтверждается прямыми измерениями L_ϕ .

Заключая данную работу, еще раз отметим, что в ней проведено детальное экспериментальное исследование квантового интерференционного транспорта в двумерном топологическом изоляторе в квантовой яме на основе тройного соединения CdHgTe. Обнаружены осцилляции Ааронова–Бома, связанные с формированием замкнутых траекторий одномерными ге-

ликоидальными краевыми состояниями, и на основе этого впервые определена длина фазовой когерентности при движении носителей заряда вдоль этих состояний.

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования (075-15-2020-797 (13.1902.21.0024)).

1. М. С. Рыжков, Д. А. Козлов, Д. А. Худайбердиев, З. Д. Квон, Н. Н. Михайлов, С. А. Дворецкий, Письма в ЖЭТФ **115**, 230 (2022).
2. G. M. Gusev, Z. D. Kvon, E. B. Olshanetsky, and N. N. Mikhailov, Solid State Commun. **302**, 113701 (2019).
3. З. Д. Квон, Д. А. Козлов, Е. Б. Олышанецкий, Г. М. Гусев, Н. Н. Михайлов, С. А. Дворецкий, УФН **190**, 643 (2020).
4. G. M. Gusev, Z. D. Kvon, O. A. Shegai, N. N. Mikhailov, and S. A. Dvoretzky, Solid State Commun. **205**, 4 (2015).
5. P. Delplace and M. Büttiker, Phys. Rev. Lett. **109**, 246803 (2012).
6. B. L. Altshuler, A. G. Aronov, and D. E. Khmel'nitsky, J. Phys. C: Solid State Phys. **15**, 7367 (1982).
7. S. U. Piatrusha, E. S. Tikhonov, Z. D. Kvon, N. N. Mikhailov, S. A. Dvoretzky, and V. S. Khrapai, Phys. Rev. Lett. **123**, 056801 (2019).

Hubbard bands, Mott transition and deconfinement in strongly correlated systems

V. Yu. Irkhin¹⁾

M. N. Mikheev Institute of Metal Physics, 620108 Ekaterinburg, Russia

Ural Federal University, 620002 Ekaterinburg, Russia

Submitted 10 November 2022
Resubmitted 15 November 2022
Accepted 16 November 2022

DOI: 10.31857/S123456782301007X, EDN: nvlwux

The old problem of Mott (metal-insulator) transition is still of interest and importance. Usually this transition occurs in antiferromagnetic phase (Slater scenario), but the situation changes for frustrated systems: only the paramagnetic metallic and insulator state are involved, a spin liquid being formed [1]. The transition into insulator state is related to correlation Hubbard splitting (the Mott scenario). In the Mott state the gap in the spectrum is essentially the charge gap determined by boson excitation branch. Therefore the electrons become fractionalized: the spin degrees of freedoms are determined by neutral fermions (spinons), and charge ones by bosons. The corresponding slave-boson representation was first introduced by Anderson, see [2]. The deconfined spin-liquid state involved includes fractionalization and long-range many-particle quantum entanglement [3]. Generally, description of the correlated paramagnetic phase, which may have a complicated internal structure, is an important problem.

In fact, boson and fermion are coupled by a gauge field, so that the problem of confinement occurs [2]. The transition into the metallic confinement state is described as a Bose condensation, the electron Green's function acquiring the finite residue. On the other hand, in the insulator state the bosons have a gap, so that the spectrum is incoherent (the electron Green's function is a convolution of boson and fermion ones) and includes Hubbard's bands.

New theoretical developments provided a topological point of view for the Mott transition, since spin liquid possesses topological order (see review in [3]). Phase transitions in frustrated systems can be treated in terms of topological excitations (instantons, monopoles, visons, vortices) which play a crucial role for confinement.

A useful analogy is given by the charged Bose liquid in a magnetic field where one has to take into account the gauge invariance. Here, the magnetic field

penetrates into the sample as vortex filaments which carry unit flux quanta and can originate and terminate at instantons and anti-instantons [4].

In a pure gauge model, the magnetic monopoles (instantons) – the point singularities of the gauge field – occur, which are non-local excitations of the system, interacting according to the Coulomb law. In the case of compact field, a confinement situation can occur owing to the monopoles. With adding a material field the Higgs effect (occurrence of the gauge boson mass) can result in formation of a new “Coulomb” phase which is essentially a deconfined phase.

The pure gauge model in the space-time dimension $d = 2+1$ is always confining at arbitrarily small coupling constant g owing to occurrence of instantons which provide tunneling events. In the presence of a material field, the situation can change due to the Higgs phenomenon. The phase diagram for $d = 3+1$ case contains the Higgs-confinement phase and Coulomb (free charge) phase [4]. A crossover between the Higgs and confinement states is also possible. In the Coulomb phase, the gauge field is deconfining and massless, and the Bose field remains disordered.

For $d = 2 + 1$ we have only the confinement phase where the gauge field is massive due to instantons. In the strong coupling (large g) limit the gauge field does not have its own dynamics and provides the constraint of integer boson occupation at each lattice site, resulting in an insulator state. Therefore the confinement phase may be understood as a Bose Mott insulator. This Mott phase turns out to extend to include the entire phase diagram up to the line $g = 0$.

The situation in $d = 2 + 1$ can change in a gapless spin liquids with a large number of gapless fermionic matter fields, e.g., Dirac points [1, 5] where gauge field can become non-compact.

The Kotliar–Ruckenstein representation (see [6]) uses the Bose operators e_i , $p_{i\sigma}$, d_i and Fermi operators $f_{i\sigma}$:

$$c_{i\sigma}^\dagger \rightarrow f_{i\sigma}^\dagger z_{i\sigma}^\dagger, \quad z_{i\sigma}^\dagger = g_{2i\sigma} (p_{i\sigma}^\dagger e_i + d_i^\dagger p_{i-\sigma}) g_{1i\sigma}, \quad (1)$$

¹⁾e-mail: valentin.irkhin@imp.uran.ru

with the constraints

$$\sum_{\sigma} p_{i\sigma}^{\dagger} p_{i\sigma} + e_i^{\dagger} e_i + d_i^{\dagger} d_i = 1, \quad f_{i\sigma}^{\dagger} f_{i\sigma} = p_{i\sigma}^{\dagger} p_{i\sigma} + d_i^{\dagger} d_i. \quad (2)$$

The critical value for the Mott transition in the Brinkman–Rice approximation reads $U_c = 8\varepsilon$ where $\varepsilon = 2 \left| \int_{-\infty}^{\mu} d\omega \rho(\omega) \right|$ the average non-interacting energy, $\rho(\omega)$ the bare density of electron states.

Similar to [7], the calculation of the boson Green's function yields the spectrum

$$\omega_{a\mathbf{q}} = \frac{1}{2} [\pm U\zeta - (-1)^a \sqrt{U^2\zeta^2 + U(U_c - 4\Sigma(\mathbf{q}))}]. \quad (3)$$

Here $\zeta = (1 - U_c/U)^{1/2}$, we have taken into account the boson self-energy

$$\Sigma(\mathbf{q}) = -2 \sum_{\mathbf{k}\sigma} t_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} n_{\mathbf{k}\sigma}, \quad n_{\mathbf{k}\sigma} = \langle f_{\mathbf{k}\sigma}^{\dagger} f_{\mathbf{k}\sigma} \rangle. \quad (4)$$

The dispersion of bosons is influenced by details of fermion spectrum which is determined by the f -system state. Spin degrees of freedom can be treated separately with the Heisenberg Hamiltonian in the f -pseudofermion representation. Under some conditions, one can expect formation of a spin-liquid state where excitation are essentially spinons – neutral fermions.

The mean-field picture of spinon spectrum $E_{\mathbf{k}}$ can be stabilized in the case of a non-compact gauge field or by gapless Fermi excitations. In the insulator state this spectrum is not influenced by bosons, various spin-liquid phases being obtained [2].

In the absence of considerable \mathbf{k} -dependence of $n_{\mathbf{k}\sigma}$ (a localized spin phase without fermion hopping), Σ tends to zero. However, for a spin liquid we have a sharp Fermi surface. Indeed, for Mott insulators the spinon Fermi surface is expected to be preserved even in the insulating phase, so that the Luttinger theorem remains valid. Although, generally speaking, the spinon spectrum form differs from bare electron one, for $q = 0$ we still have $\Sigma(0) = U_c/4$ since the spinon band is half-filled and the chemical potential (the position of the Fermi energy) is fixed.

Thus the spectrum picture in the insulating state is considerably influenced by the spinon spin-liquid spectrum and hidden Fermi surface. This interpretation of spectrum is different from that in [7] where the limit of vanishing renormalized electron bandwidth (i.e., in the Mott phase where the averages $e, d \rightarrow 0$) is treated in a Gutzwiller-type approach.

In the nearest-neighbor approximation, after passing in (4) to the coordinate representation one can see that the spectrum of spinons and correction to holon spectrum differ, roughly speaking, only in the replacement

of J by t ($\Sigma(\mathbf{q}) \propto E(\mathbf{q})$). In particular, we have for a square lattice

$$\begin{aligned} \Sigma(\mathbf{q}) &= U_c(\cos q_x + \cos q_y)/8, \\ \Sigma(\mathbf{q}) &= \pm U_c \sqrt{\cos^2 q_x + \cos^2 q_y} / (4\sqrt{2}) \end{aligned} \quad (5)$$

for the the uniform RVB phase and π -flux phase (which contains Dirac points), respectively.

In the large- U limit we have

$$\omega_{a\mathbf{q}} = \text{const} - (-1)^a \Sigma(\mathbf{q})/\zeta.$$

It is important that a characteristic scale of spinon energies is small in comparison with that of electron ones, so that the spinon Fermi surface is strongly temperature dependent; this situation is somewhat similar to the case of magnetic order.

The observable electron Green's function is obtained as a convolution of the boson and spinon Green's functions. Then we obtain the upper and lower Hubbard subbands with energies near 0 and U and the width of order of bare bandwidth, the gap between them vanishing at the transition point $U \rightarrow U_c$. At some points in the Brillouin zone the interaction with the gauge field owing to constraints can play an important role [2]. The expressions for the Green's functions can be used to calculate the optical conductivity, cf. [7].

Although most theoretical investigations are performed in $d = 2 + 1$, spin-liquid states exists in some three-dimensional systems, e.g., pyrochlores. Even if an instability with respect to magnetic ordering or superconductivity occurs in the ground state, a spin-liquid-like state can occur in an intermediate temperature regime, especially in frustrated systems.

The author is grateful to Yu. N. Skryabin for numerous fruitful discussions.

This is an excerpt of the article ‘‘Hubbard bands, Mott transition and deconneement in strongly correlated systems’’. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S002136402260269X

1. T. Senthil, Phys. Rev. B **78**, 045109 (2008).
2. P. A. Lee, N. Nagaosa, and X.-G. Wen, Rev. Mod. Phys. **78**, 17 (2006).
3. V. Yu. Irkhin and Yu. N. Skryabin, Phys. Met. Metallogr. **120**, 513 (2019).
4. N. Nagaosa and P. A. Lee, Phys. Rev. B **61**, 9166 (2000).
5. M. Hermele, T. Senthil, M. P. A. Fisher, P. A. Lee, N. Nagaosa, and X.-G. Wen, Phys. Rev. B **70**, 214437 (2004).
6. M. Lavagna, Phys. Rev. B **41**, 142 (1990).
7. R. Raimondi and C. Castellani, Phys. Rev. B **48**, 11453(R) (1993).

Магнитное состояние слоистых халькогенидов кобальта Co_7Se_8 и Co_7Te_8

Ю. В. Пискунов⁺¹⁾, В. В. Оглобличев⁺, А. Ф. Садыков⁺, Д. Ф. Акрамов^{+*}, А. Г. Смольников⁺,
А. П. Геращенко⁺, Н. В. Селезнева^{*}, Н. В. Баранов^{+*}

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

^{*}Уральский федеральный университет им. первого Президента России Б. Н. Ельцина, 620002 Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 28 октября 2022 г.

После переработки 20 ноября 2022 г.

Принята к публикации 22 ноября 2022 г.

Впервые выполнено исследование структурных и магнитных свойств слоистого соединения Co_7Te_8 с помощью рентгеновской дифрактометрии, измерений магнитной восприимчивости и спектроскопии ядерного магнитного резонанса (ЯМР) на ядрах ^{59}Co . Также впервые проведено ЯМР-исследование селенида Co_7Se_8 , принадлежащего к тому же структурному типу (NiAs), что и Co_7Te_8 . В отличие от Co_7Se_8 в соединении Co_7Te_8 отсутствует упорядочение вакансий и атомов кобальта в катионных слоях, а кристаллическая структура Co_7Te_8 является более плоской и характеризуется существенно меньшим отношением параметров c_0/a_0 по сравнению с Co_7Se_8 (a и c_0 – параметры базовой элементарной ячейки NiAs). Определены значения компонент тензоров магнитного сдвига и градиента электрического поля в месте расположения ядер кобальта. Выявлена существенная локальная зарядовая и спиновая неоднородность соединений. Из температурных зависимостей сдвига и восприимчивости в Co_7Te_8 оценена константа сверхтонкого взаимодействия в ионах кобальта. Анизотропное увеличение межатомных расстояний не приводит к большей локализации $3d$ электронов и к появлению магнитных моментов на атомах кобальта в Co_7Te_8 . Это соединение остается паулиевским парамагнетиком вплоть до самых низких температур.

DOI: 10.31857/S1234567823010081, EDN: nvnucs

Исследованные в данной работе халькогениды кобальта Co_7Se_8 и Co_7Te_8 относятся к классу катиондефицитных слоистых соединений M_7X_8 , где M – это атомы $3d$ переходных металлов, а X – двухвалентные анионы VI группы таблицы Менделеева S, Se, Te. Для этих соединений характерно наличие вакансий в металлических слоях, а также образование разных сверхструктур в результате упорядочения вакансий и M атомов в слоях. Вакансии в соединениях M_7X_8 со структурой типа NiAs распределяются в каждом втором базисном слое атомов переходных металлов, что является основным принципом формирования этих сверхструктур (см. рис. 1). Хорошо известным представителем этого класса соединений является железосодержащий минерал – пирротин Fe_7S_8 [1, 2].

В M_7X_8 с ростом атомного номера $3d$ -элемента параметр c_0 (здесь и далее a_0 и c_0 – параметры базовой элементарной ячейки NiAs), характеризующий среднее межслоевое расстояние, слабо уменьшается в ряду V–Cr–Fe, однако при переходе от Fe_7X_8 к Co_7X_8 наблюдается резкое (около 10%) сжатие ре-

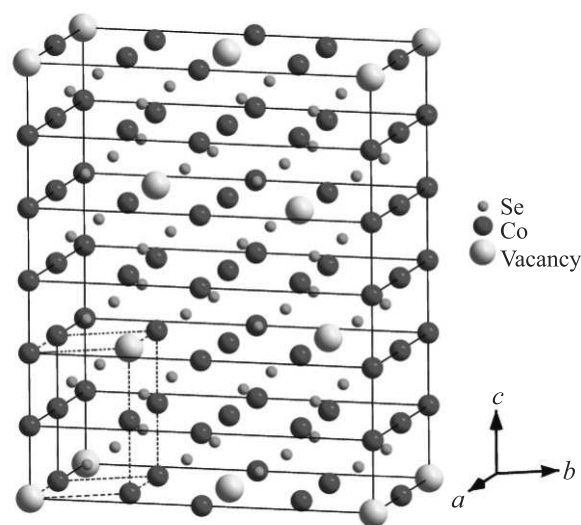


Рис. 1. (Цветной онлайн) Элементарная ячейка 3С сверхструктуры соединения Co_7Se_8 . Пунктирными линиями показана базисная элементарная ячейка

шетки в направлении оси c [3]. Соединения Fe_7S_8 и Fe_7Se_8 являются ферромагнетиками с температура-

¹⁾e-mail: piskunov@imp.uran.ru

ми Кюри $T_C = 588\text{--}598\text{ K}$ [2, 4] и $T_C = 450\text{--}483\text{ K}$ [5, 6], соответственно. Что касается соединений Co_7S_8 и Co_7Se_8 , исследование выявило слабую зависимость их магнитной восприимчивости от температуры, что позволило отнести эти халькогениды к парамагнетикам Паули [7–9]. Нестабильность магнитного момента атомов $3d$ металлов в слоистых халькогенидах выявлена также при приложении гидростатического давления. В частности, в соединениях FeS и Fe_7S_8 наблюдался коллапс магнитного момента атомов Fe при давлениях около 6.5 и 4.5 ГПа, соответственно [10, 11]. Природа такого поведения до конца не выяснена, однако различия в магнитном состоянии и в межслоевом расстоянии таких соединений позволяет сделать заключение о том, что существует связь между параметром решетки c_0 и типом магнетизма в этих соединениях. Следует отметить, что халькогениды кобальта рассматриваются в последние годы в качестве перспективных катализаторов, в частности, для электролиза воды [12]. Изучение причин зарядовой и спиновой нестабильности ионов кобальта в таких соединениях представляется чрезвычайно важным для более глубокого понимания механизмов каталитической активности таких соединений.

В этом отношении представляет интерес исследовать магнитное состояние теллурида кобальта Co_7Te_8 . В нем, вследствие большего ионного радиуса Te в сравнении с радиусами S и Se , ожидается возрастание параметра c_0 и, возможно, появление магнитных моментов на атомах Co и магнитного упорядочения. До сих пор было выполнено лишь исследование халькогенидов кобальта с частичным замещением селена теллуридом, а именно, $\text{Co}_7(\text{Se}_{1-x}\text{Te}_x)_8$ ($x = 0.2$ и 0.5) [9]. Данное исследование показало, что замещение селена теллуридом приводит к возникновению кюри-вейсовского вклада в магнитную восприимчивость, что, по мнению автора, указывает на появление локализованных магнитных моментов на атомах кобальта. По его оценке величина эффективного момента, приходящегося на один атом Co , составляет $\mu_{\text{eff}} = 0.077 \mu_B$ в $\text{Co}_7(\text{Se}_{0.8}\text{Te}_{0.2})_8$ и $\mu_{\text{eff}} = 0.106 \mu_B$ в $\text{Co}_7(\text{Se}_{0.5}\text{Te}_{0.5})_8$. Логично ожидать, что в полностью замещенном составе Co_7Te_8 величина этих эффективных моментов возрастет.

В данной работе нами было впервые выполнено исследование структурных и магнитных свойств соединения Co_7Te_8 посредством рентгенографии, измерения объемной магнитной восприимчивости и использования ядерного магнитного резонанса (ЯМР) ядер ^{59}Co . Также впервые проведено ЯМР-исследование селенида Co_7Se_8 . Выполнен

сравнительный анализ данных, полученных для этих двух соединений.

Поликристаллический образец Co_7Se_8 был получен методом твердофазного ампульного синтеза в вакуумированной кварцевой ампуле по одностадийной методике. Синтез Co_7Se_8 производился при $T = 800^\circ\text{C}$ с выдержкой при данной температуре в течение 5 дней. Поскольку согласно фазовой диаграмме $\text{Co}\text{--}\text{Te}$ [13] при комнатной температуре стабильного соединения Co_7Te_8 не существует, то оно было получено в метастабильном состоянии из расплава закалкой от $T = 1000^\circ\text{C}$.

Рентгенографическая аттестация полученных образцов проводилась на дифрактометре Bruker D8 ADVANCE с $\text{Cu } K_\alpha$ излучением. На рисунке 2 пред-

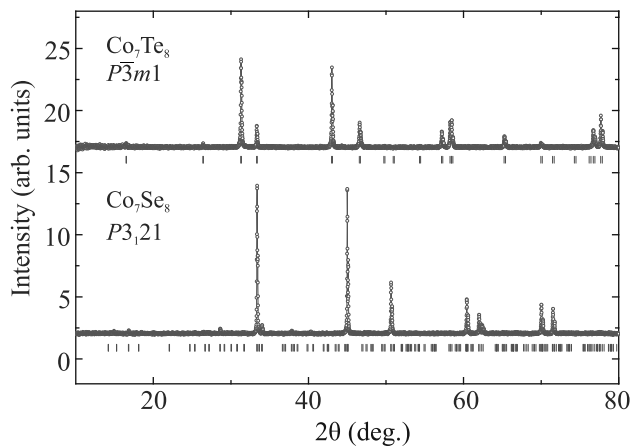


Рис. 2. (Цветной онлайн) Дифрактограммы соединений Co_7Te_8 (пр. группа $P\bar{3}m1$) и Co_7Se_8 (пр. группа $P3121$)

ставлены дифрактограммы соединений Co_7Se_8 и Co_7Te_8 при комнатной температуре. Рентгеноструктурный анализ поликристаллических образцов показал, что соединения Co_7Se_8 и Co_7Te_8 имеют слоистую кристаллическую структуру типа NiAs . В пределах погрешности метода присутствие других фаз не выявлено. Для состава Co_7Se_8 характерно наличие упорядочения атомов кобальта и вакансий [14] с образованием сверхструктуры $2a_0 \times 3c_0$. Кристаллическая структура Co_7Se_8 описывается пространственной группой $P3121$ с параметрами элементарной ячейки $a_0 = 3.604(7) \text{ \AA}$ и $c_0 = 5.275(2) \text{ \AA}$. Приведенные к $1C$ структуре параметры Co_7Se_8 находятся в согласии с данными из работ [7, 15]. В отличие от Co_7Se_8 в соединении Co_7Te_8 атомы кобальта и вакансии среднестатистически распределены в катионных слоях без образования сверхструктур; структура теллурида Co_7Te_8 описывается пространственной группой $P\bar{3}m1$ и характеризуется параметрами эле-

ментарной ячейки $a_0 = 3.897(3) \text{ \AA}$ и $c_0 = 5.374(7) \text{ \AA}$. Из-за большого ионного радиуса теллура объем элементарной ячейки Co_7Te_8 ($V_0 = 70.616 \text{ \AA}^3$) значительно превышает значение $V_0 = 59.138 \text{ \AA}^3$, полученное для Co_7Se_8 . Важно отметить, что увеличение V_0 при переходе от Co_7Se_8 к Co_7Te_8 носит существенно анизотропный характер, о чем свидетельствует отношение параметров c_0/a_0 , которое для селенидного соединения составляет 1.464, тогда как для Co_7Te_8 $c_0/a_0 = 1.379$. Такое уплощение структуры в теллуридном соединении, по-видимому, является следствием большей поляризуемости ионов теллура по сравнению с селеном и более высокой степенью ковалентности связей Co–Te по отношению к Co–Se связям.

Температурные зависимости магнитной восприимчивости образцов Co_7Se_8 и Co_7Te_8 измерялись на установке PPMS DynaCool (Quantum Design, USA), в температурном интервале 2–300 К в магнитных полях до 90 кЭ. ЯМР измерения были выполнены на импульсном спектрометре ЯМР в диапазоне температур $10 \leq T \leq 400 \text{ К}$ во внешнем магнитном поле $H_0 = 92.8 \text{ кЭ}$. Сигнал спинового эха $E(2t)$ формировался последовательностью двух когерентных радиочастотных импульсов $(\tau_p)_x - t_{\text{del}} - (\tau_p)_y - t_{\text{del}} - \text{echo}$, создающих в резонансной катушке с образцом переменное магнитное поле с амплитудой $H_1 \approx 50\text{--}200 \text{ Э}$. Для измерения спектров, ширина которых превышала полосу частот, возбуждаемую радиочастотным импульсом, применялась методика суммирования массива Фурье-спектров, полученных при изменении частоты спектрометра с шагом $\Delta\nu = 150 \text{ кГц}$. Скорость ядерной спин-решеточной релаксации T_1^{-1} измерялась с использованием методики инвертирования и последующего восстановления ядерной намагниченности.

На рисунке 3 представлены спектры ЯМР ядер ^{59}Co в поликристаллических образцах Co_7Se_8 и Co_7Te_8 , полученные при $T = 293 \text{ К}$ во внешнем магнитном поле $H_0 = 92.8 \text{ кЭ}$. Ядро изотопа ^{59}Co обладает спином $^{59}I = 7/2$ и электрическим квадрупольным моментом $e^{59}Q = 0.42 \cdot 10^{-24} \text{ см}^2$. В этом случае ЯМР-спектр представляет собой набор из $2I = 7$ линий, одна из которых соответствует центральному переходу ($m = -1/2 \leftrightarrow +1/2$), а 6 других – сателлитным переходам ($m = \pm 3/2 \leftrightarrow \pm 1/2$), ($m = \pm 5/2 \leftrightarrow \pm 3/2$) и ($m = \pm 7/2 \leftrightarrow \pm 5/2$). В данной работе для расчета формы линий ЯМР использовалась специальная программа моделирования спектров “Simul” [16], численно рассчитывающая энергетические уровни и вероятности переходов на основе диагонализации матричных элементов гамильтониана

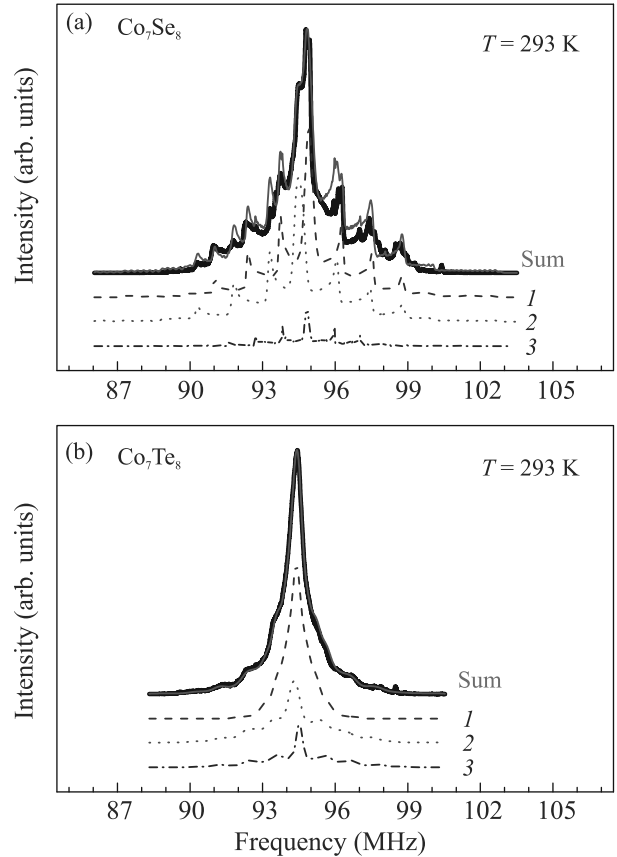


Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектры ЯМР ядер ^{59}Co в поликристаллических образцах Co_7Se_8 и Co_7Te_8 в магнитном поле $H_0 = 92.8 \text{ кЭ}$ при температуре $T = 293 \text{ К}$ и результат моделирования экспериментальных спектров набором из трех подспектров (1–3) с различными значениями компонент тензора магнитного сдвига и тензора ГЭП (представлены в табл. 1). Спектр Sum является суммой подспектров 1, 2, 3

на (квадрупольного и зеемановского) ядерной системы. Программа позволяет определять компоненты магнитного сдвига K_α ($\alpha = x, y, z$ – главные оси тензора градиента электрического поля (ГЭП)), а также значения квадрупольной частоты ν_Q и параметра асимметрии η . Величины ν_Q и η связаны с компонентами ГЭП V_{ii} следующим образом [17]:

$$\nu_Q = \frac{3eQV_{ZZ}}{4\pi I(2I-1)\hbar}, \quad \eta = \frac{V_{XX} - V_{YY}}{V_{ZZ}}. \quad (1)$$

Моделирование спектров ^{59}Co как в Co_7Se_8 , так и в Co_7Te_8 показало, что полные экспериментальные спектры ЯМР могут быть описаны не менее чем тремя различными наборами резонансных линий, как это показано на рис. 3. Каждый такой подспектр, который мы в порядке убывания интенсивности обозначили цифрами 1, 2, 3, характеризуется собственным

Таблица 1. Магнитные сдвиги K_{iso} и квадрупольные частоты ν_Q для трех подспектров ЯМР ядер ^{59}Co в соединениях Co_7Se_8 и Co_7Te_8 при $T = 293\text{ K}$

	Co_7Se_8			Co_7Te_8		
	1	2	3	1	2	3
K_{iso} , (%)	1.774	1.356	1.677	1.190	1.150	1.344
ν_Q , (МГц)	2.61	2.85	2.17	0.88	2.14	2.28

набором параметров K_α , ν_Q и η . Невозможность описать экспериментальный спектр одним набором резонансных линий свидетельствует о наличии в Co_7Se_8 и Co_7Te_8 кристаллографически и магнитно-неэквивалентных позиций кобальта. Как упоминалось ранее, в системе Co_7Se_8 имеются вакансии кобальта в решетке. Кроме того, в работе [14] было показано, что в кристаллической решетке Co_7Se_8 имеются четыре различных позиции кобальта Co1-Co4. Они отличаются размерами октаэдров из атомов Se, окружающих Co. Наличие вакансий в кобальтовых слоях, а также их структурная неэквивалентность могут приводить к различию параметров K_α , ν_Q и η для отдельных групп ионов Co, что и проявляется в различии их спектров ЯМР. К сожалению, идентифицировать подспектры 1–3 по их интенсивностям без дополнительных исследований не представляется возможным, поскольку один и тот же набор параметров K_α , ν_Q и η могут иметь различные сочетания позиций кобальта Co1-Co4 с окружающими эти позиции вакансиями. Более широкое уширение ЯМР-спектра, наблюдаемое в Co_7Te_8 , и размытие резонансных пиков по сравнению с таковыми в Co_7Se_8 , по-видимому, обусловлено среднестатистическим распределением атомов кобальта и вакансий в слоях. Тем не менее, спектры ЯМР обоих образцов на рис. 3 однозначно свидетельствуют о существенной локальной неоднородности, как зарядовой, так и магнитной, соединений Co_7Se_8 и Co_7Te_8 .

Отметим некоторое несоответствие интенсивностей экспериментальных и теоретических линий ЯМР на отдельных участках полных спектров ^{59}Co , особенно в образце Co_7Se_8 . Дело в том, что теоретический расчет формы и интенсивности линий ЯМР не учитывает некоторых экспериментальных деталей измерений спектров (например, зависимость добротности колебательного контура от резонансной частоты). Вследствие этого при измерениях спектров в широком диапазоне частот могут возникать достаточно значительные расхождения в интенсивностях экспериментальных и теоретических линий ЯМР. Однако выводы, сделанные в данной работе, основываются на данных о *положении* пиков в спектрах ЯМР, а не на их интенсивностях.

При анализе спектров ЯМР в поликристаллических образцах часто удобно перейти от компонент K_α к изотропной $K_{\text{iso}} = 1/3(K_x + K_y + K_z)$, аксиальной $K_{\text{ax}} = 1/3(K_z - 1/2(K_x + K_y))$ и анизотропной $K_{\text{aniso}} = 1/2(K_y - K_x)$ частям тензора магнитного сдвига линии ЯМР. В таблице 1 значения этих параметров, а также ν_Q и η при $T = 293\text{ K}$ показаны для каждого подспектра 1–3 в соединениях Co_7Se_8 и Co_7Te_8 . При анализе спектров было выяснено, что ν_Q и η для каждого подспектра 1–3 в пределах погрешности не изменяется в температурном диапазоне $T = 10\text{--}400\text{ K}$. Что касается K_{iso} , то его температурная эволюция идентична для каждого из подспектров. Поэтому на рис. 4а (чтобы не перегружать рисунок) представлены только данные $K_{\text{iso}}(T)$ для наиболее интенсивного спектра 1. Значения $K_{\text{iso}}(T)$ для Co_7Se_8 и Co_7Te_8 отличаются в полтора раза по величине, но их температурные зависимости подобны.

Поведение магнитных восприимчивостей $\chi(T)$ соединений Co_7Se_8 и Co_7Te_8 (рис. 4б) различно. Для Co_7Se_8 наблюдается немонотонный характер зависимости $\chi(T)$ с широким максимумом вблизи $T = 200\text{ K}$. Кроме того при понижении температуры ниже 30 K происходит увеличение восприимчивости, что, возможно, связано с наличием локализованных магнитных моментов на некоторых атомах Co. Аппроксимация T -зависимости восприимчивости выражением $\chi(T) = C/(T - T_c) + \text{const}$ (штриховая линия на рис. 4б) дает для μ_{eff} значение $\sim 0.2\mu_B$ на формульную единицу. В случае с Co_7Te_8 по данным измерений полевых зависимостей намагниченности обнаружено наличие небольшой ферромагнитной примеси, по-видимому, металлического Co. Оценка содержания этой примеси дала значение порядка $\sim 2\%$. Для определения магнитной восприимчивости соединения Co_7Te_8 были получены кривые намагничивания при разных температурах (см. вставку на рис. 4б), и из наклона высокополевой области зависимостей $M(H)$ определены значения восприимчивости, что позволило исключить вклад примеси. Полученная после вычитания вклада от примеси $\chi(T)$ для образцов Co_7Te_8 не зависит от температуры при $T \geq 100\text{ K}$ и немного уменьшается ниже 100 K .

Отметим, что в предыдущих исследованиях соединения Co_7Se_8 [7, 9] наблюдался пик в температурной зависимости восприимчивости при $T = 45\text{ K}$. Данная аномалия объяснялась либо наличием примеси антиферромагнетика Co_3O_4 [9], либо отражением магнитных свойств самого селенида [7]. Исчезновение этого пика в полученной нами T -зависимости восприимчивости свидетельствует об отсутствии в

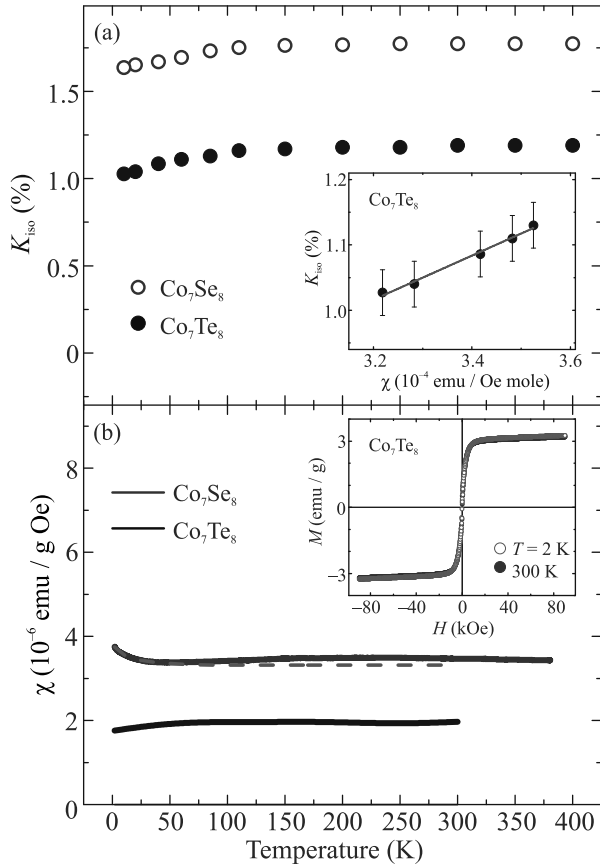


Рис. 4. (Цветной онлайн) (a) – Температурные зависимости магнитного сдвига ядер ^{59}Co K_{iso} в порошковых Co_7Se_8 и Co_7Te_8 ; во вставке показана зависимость $K_{\text{iso}}(\chi)$ в Co_7Te_8 с температурой в качестве параметра, аппроксимированная прямой линией. (b) – Температурные зависимости магнитной восприимчивости $\chi(T)$ в Co_7Se_8 и Co_7Te_8 . Штриховая линия – результат аппроксимации экспериментальных данных выражением $\chi(T) = C/(T - T_c) + \text{const}$. Во вставке – полевые зависимости намагниченности Co_7Te_8 , измеренные при 2 и 300 К

исследованном нами образце Co_7Se_8 каких-либо локальных магнитоупорядоченных примесей.

Из анализа спектров было выяснено, что для обоих соединений Co_7Se_8 и Co_7Te_8 K_{ax} и K_{aniso} равны нулю. В общем случае изотропный магнитный сдвиг линии ЯМР $K_{\text{iso}}(T)$ можно записать в виде двух вкладов: независящего от температуры орбитального $K_{\text{orb,iso}}$ и спинового $K_{\text{s,iso}}$, связанных соответственно с орбитальными и спиновыми степенями свободы [18]:

$$K_{\text{iso}}(T) = K_{\text{s,iso}}(T) + K_{\text{orb,iso}} = \frac{1}{\mu_B} H_{\text{hf}} \chi_s(T) + K_{\text{orb,iso}}. \quad (2)$$

Константа сверхтонкого взаимодействия (СТВ) $H_{\text{hf}} = (H_c + H_{\text{cp}})$, где H_c и H_{cp} – изотропные кон-

станты контактного фермиевского взаимодействия и поляризации остова, соответственно. Контактный вклад в СТВ H_c обусловлен сверхтонким взаимодействием ядерного спина с валентными s -электронами. Он является положительным и существенен, как правило, в металлах. Слагаемое H_{cp} описывает СТВ, обусловленное поляризацией неспаренными d -электронами заполненных s -оболочек иона. Этот вклад изотропен и, за редкими исключениями, отрицателен [19]. Орбитальный вклад в сдвиг $K_{\text{orb,iso}}$ обусловлен ван-Флекковским парамагнетизмом валентных электронов иона, имеющих ненулевой орбитальный момент (т. е. p -, d -, и f -электронов). Он возникает вследствие частичного размораживания орбитального момента во внешнем магнитном поле, не зависит от температуры и является положительным.

В свою очередь однородная магнитная восприимчивость $\chi(T)$ также состоит из двух слагаемых: зависящей от температуры спиновой восприимчивости $\chi_s(T)$ и орбитальной восприимчивости χ_{orb} , которая в экспериментах, ведущихся при достаточно низких температурах $T \leq 400$ К, полагается T -независимой:

$$\chi(T) = \chi_s(T) + \chi_{\text{orb}}. \quad (3)$$

Используя выражения (2) и (3), можно получить зависимость сдвига K_{iso} от χ с температурой в качестве параметра:

$$K_{\text{iso}}(\chi) = H_{\text{hf}} \chi + K_{\text{orb}} - H_{\text{hf}} \chi_{\text{orb}}, \quad (4)$$

которая имеет форму прямой линии с тангенсом угла наклона, равным H_{hf} . Такая параметрическая зависимость ^{59}Co $K_{\text{iso}}(\chi)$ для Co_7Te_8 представлена во вставке на рис. 4а. Аппроксимируя данные параметрической зависимости $K_{\text{iso}}(\chi)$ прямой (4), находим значение изотропной константы сверхтонкого электрон-ядерного взаимодействия в ионах кобальта $H_{\text{hf}} = 188(5)$ кЭ/ μ_B .

К сожалению, мы не можем определить подобным образом константу СТВ H_{hf} для Co_7Se_8 , поскольку сдвиг $K_{\text{iso}}(T)$ в данном соединении во всем диапазоне температур не пропорционален магнитной восприимчивости $\chi(T)$. В зависимости $K_{\text{iso}}(T)$ отсутствует максимум при $T \approx 200$ К, а ниже $T = 30$ К наблюдается уменьшение сдвига в отличие от роста $\chi(T)$.

В модели свободного электронного газа спиновая восприимчивость определяется плотностью состояний на уровне Ферми $\chi_{s,0} = 2\mu_B^2 N(E_F)$ и в простых паулиевских парамагнитных металлах, характеризующихся широкой s -зоной, не зависит от температуры. Что касается металлов, содержащих атомы пе-

реходных элементов, то в них спиновая восприимчивость может зависеть от температуры. Это является следствием узости d - или f -зоны таких металлов. В этом случае плотность состояний $N(E_F)$ может как уменьшаться, так и увеличиваться с понижением температуры [18]. Так же на величину и температурную зависимость спиновой восприимчивости могут влиять электрон-электронные взаимодействия. Учет таких взаимодействий приводит к следующему выражению для $\chi_s(T)$ [18, 19]:

$$\chi_s(T) = \frac{\chi_{s,0}}{1 - JN(E_F)} = 2\mu_B^2 \frac{N(E_F)}{1 - JN(E_F)}, \quad (5)$$

где J – эффективный потенциал электрон-электронного взаимодействия. В общем случае обе величины, входящие в правую часть выражения (5), могут зависеть от температуры. Тогда наличие широкого максимума в $\chi(T)$ при $T \approx 200$ К в Co_7Se_8 качественно можно объяснить следующим образом. С понижением температуры от 400 до 200 возрастает электрон-электронное взаимодействие (J), а $N(E_F)$ не изменяется, при этом знаменатель в (5) уменьшается, и $\chi(T)$ возрастает. Ниже $T = 200$ К начинается уменьшение числителя ($N(E_F)$) и рост знаменателя – $\chi(T)$ уменьшается. Отсутствие подобного максимума в халькогениде Co_7Te_8 может свидетельствовать о слабом или независимом от температуры электрон-электронном взаимодействии в этом соединении.

Как упоминалось выше, в соединении Co_7Se_8 мы не наблюдаем широкого максимума при $T \approx 200$ К в зависимости $K_{\text{iso}}(T)$. Это может свидетельствовать об относительной малости спинового вклада K_s в полный сдвиг линии ЯМР. Касательно различия T -зависимостей сдвига и восприимчивости в этом халькогениде ниже $T = 30$ К отметим, что магнитный сдвиг ЯМР пропорционален *однородному* вкладу в спиновую восприимчивость $\chi(q = 0)$. Восприимчивость $\chi(T)$ может включать в себя и *неоднородные* по образцу слагаемые. К ним относятся вклады от различного рода примесей, а также магнитных или немагнитных кластеров, распределенных внутри исследуемого образца. По-видимому, с такого рода неоднородностями мы имеем дело в образце Co_7Se_8 . Они могут вносить вклад в ширину линии ЯМР, но не в ее сдвиг.

Результаты измерений скорости спин-решеточной релаксации (СРР) ядерной намагниченности $M_z = {}^{59}\gamma_n \hbar \langle I_z(t) \rangle$ ионов кобальта в соединениях Co_7Se_8 и Co_7Te_8 представлены на рис. 5. Времена спин-решеточной релаксации T_1 измеряли методом инвертирования и последующего восстановления ядерной

намагниченности. При измерении T_1 использовалась импульсная последовательность $2\tau - t_{\text{inv}} - (\tau_p)_x - t_{\text{del}} - (\tau_p)_y - t_{\text{del}} - \text{echo}$.

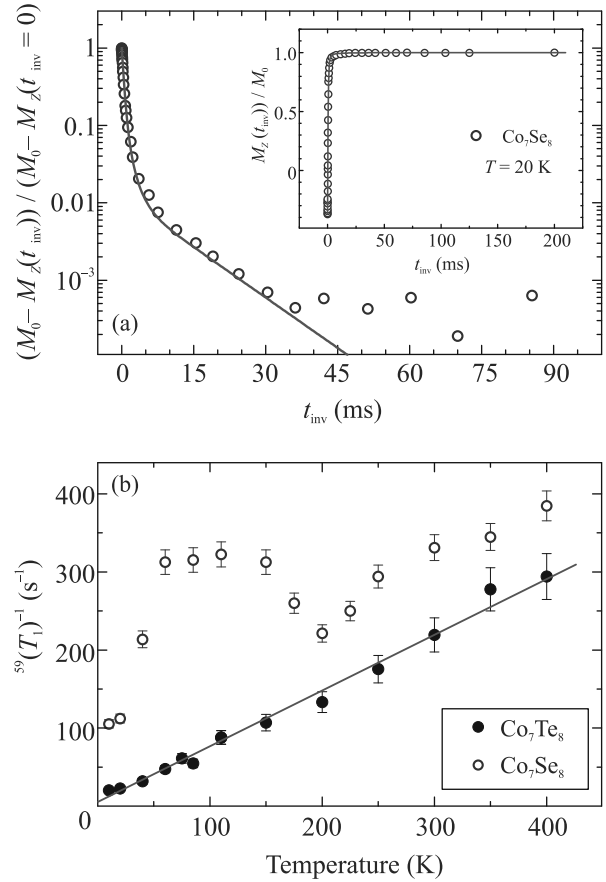


Рис. 5. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость величин $(M_0 - M_z(t_{\text{inv}}))/(M_0 - M_z(t_{\text{inv}} = 0))$ и $M_z(t_{\text{inv}})/M_0$ (во вставке) от t_{inv} в соединении Co_7Se_8 при $T = 20$ К, сплошные линии – результат аппроксимации данных выражением (6). (б) – Температурные зависимости скорости ядерной спин-решеточной релаксации T_1^{-1} в соединениях Co_7Se_8 и Co_7Te_8 . Прямая линия – аппроксимация данных прямой линией

Спин-решеточная релаксация макроскопической ядерной намагниченности $M_z(t)$ к термодинамически равновесному значению M_0 происходит за характерное время T_1 . В случае квадрупольно расщепленного спектра и инвертирования населенностей энергетических уровней, соответствующих квантовым числам $m = +1/2$ и $m = -1/2$ (центральный переход) кривая восстановления ядерной намагниченности для спина $I = 7/2$ определяется следующим выражением [20]:

$$M_z(T) = M_0 - (M_0 - M_z(t = 0)) \times [0.714e^{-\frac{28t}{T_1}} + 0.206e^{-\frac{15t}{T_1}} + 0.068e^{-\frac{6t}{T_1}} + 0.012e^{-\frac{t}{T_1}}]. \quad (6)$$

На рисунке 5а показан пример аппроксимации экспериментальной кривой намагниченности выражением (6).

В приближении свободного электронного газа в металлах величина T_1^{-1} растет пропорционально температуре. При этом выполняется так называемое соотношение Корринги [21]:

$$\left(\frac{1}{T_1}\right)_K = \left(\frac{\gamma_n}{\gamma_e}\right)^2 \frac{4\pi k_B}{\hbar} K_s^2 T, \quad (7)$$

где γ_e и γ_n – электронное и ядерное гиромагнитные отношения. Данное соотношение является следствием того, что релаксация и сдвиг в металле определяются, соответственно, флуктуирующей и статической частями локального поля $\chi_s H_{hf}$, обусловленного сверхтонким взаимодействием H_{hf} и связанного с плотностью состояний на уровне Ферми, $N(E_F) = \chi_s / 2\mu_B^2$. Кроме того, в 3d-металлах может быть значительным так называемый орбитальный вклад в СРР $\left(\frac{1}{T_1}\right)_{orb}$, вызываемый флуктуациями орбитальных токов d -электронов. В отличие от орбитального вклада в магнитный сдвиг слагаемое $\left(\frac{1}{T_1}\right)_{orb}$ никак не связано с орбитальной восприимчивостью χ_{orb} , и потому не может быть выражено через сдвиг K_{orb} . Этот вклад определяется непосредственно плотностью d -электронных состояний на уровне Ферми и, так же как $\left(\frac{1}{T_1}\right)_K$, пропорционален температуре [22]. Таким образом, в металлах, даже содержащих 3d-элементы, имеет место температурная зависимость скорости СРР корринговского типа, т. е. $1/T_1 \propto T$.

Рисунок 5 демонстрирует, что в Co_7Te_8 во всем диапазоне температур скорость СРР ^{59}Co $\left(\frac{1}{T_1}\right)$ пропорциональна температуре, т. е. имеет коррингоподобный характер, что является дополнительным подтверждением того, что данное соединение – это паулиевский парамагнитный металл. Что касается состава Co_7Se_8 , то в нем температурная зависимость ^{59}Co $\left(\frac{1}{T_1}\right)$ показывает более сложную форму. В диапазоне температур $T = 200–400$ К скорость СРР является линейной функцией температуры, однако ниже 200 К наблюдается ее куполообразная T -зависимость с широким максимумом вблизи $T_{max} = 100$ К. Наличие подобного максимума не характерно для обычных парамагнитных металлов и может служить указанием на наличие существенных электрон-электронных взаимодействий в исследуемом веществе. Действительно, рассмотренное выше выражение (7) для вклада в скорость СРР получено без учета электрон-электронных взаимодействий.

Учет таких взаимодействий приводит к зависимости скорости СРР не от однородной восприимчивости $\chi(q=0)$, а от мнимой части обобщенной магнитной восприимчивости $\chi(q, \omega)$, которая, в свою очередь, является функцией температуры [23]. Увеличение скорости СРР вследствие электрон-электронных взаимодействий в металлах определяется следующим выражением [19]:

$$\frac{1}{T_1} = \frac{(T_1^{-1})_0}{\langle [1 - JN(E_F)F(q)]^2 \rangle}. \quad (8)$$

Здесь $(T_1^{-1})_0$ – скорость релаксации без учета взаимодействия, $F(q)$ – статическая диэлектрическая функция [18, 19], усреднение проводится по всем волновым векторам q . Мы полагаем, что именно усиление обменного электрон-электронного взаимодействия ниже 200 К является причиной нелинейной, с максимумом, T -зависимости скорости СРР в Co_7Se_8 . Возникновение такой куполообразной зависимости $1/T_1$ от температуры качественно, так же как и пик в $\chi(T)$, может быть объяснено разными формами T -зависимости каждой из величин, входящих в выражение (8).

В заключение, впервые выполнено исследование структурных и магнитных свойств соединения Co_7Te_8 посредством рентгенографии, измерения магнитной восприимчивости и использования ядерного магнитного резонанса ядер ^{59}Co . Также впервые проведено ЯМР-исследование селенида Co_7Se_8 . Анализ спектров ЯМР ^{59}Co позволил определить значения компонент тензоров магнитного сдвига и градиента электрического поля в месте расположения этих ядер, а также выявил существенную локальную неоднородность, как зарядовую, так и магнитную, соединений Co_7Se_8 и Co_7Te_8 . Из температурных зависимостей сдвига и восприимчивости в Co_7Te_8 сделана оценка константы сверхтонкого взаимодействия в ионах кобальта. Выяснено, что в теллуридном соединении отсутствует упорядоченность вакансий и атомов кобальта в катионных слоях, а структура Co_7Te_8 является более плоской и характеризуется существенно меньшим значением отношения параметров c_0/a_0 , чем в Co_7Se_8 . Это различие, по-видимому, является следствием большей поляризуемости ионов теллура и более высокой степени ковалентности связей $Co-Te$ по сравнению со связями $Co-Se$. В результате того, что увеличение межатомных расстояний при переходе от Co_7Se_8 к Co_7Te_8 происходит преимущественно в плоскости, это не привело к большей локализации 3d электронов и появлению магнитных моментов на атомах кобальта, как можно было ожидать. Соединение Co_7Te_8 ока-

залось даже ближе к классическим парамагнетикам Паули, чем Co_7Se_8 . Показано, что причиной немонотонного изменения с температурой магнитной восприимчивости и скорости спин-решеточной релаксации в соединении Co_7Se_8 могут являться сильные электрон-электронные корреляции.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект # 22-12-00220).

Работа выполнена с использованием оборудования ЦКП “Испытательный центр нанотехнологий и перспективных материалов” ИФМ УрО РАН.

1. C. I. Pearce, R. A. D. Pattrick, and D. J. Vaughan, *Rev. Mineral. Geochem.* **61**, 127 (2006).
2. H. Wang and I. Salveson, *Phase Transitions* **78**, 547 (2005).
3. T. Kamimura, *J. de Physique* **49**, 191 (1988).
4. A. V. Powell, P. Vaqueiro, K. S. Knight, L. C. Chapon, and R. D. Sánchez, *Phys. Rev. B* **70**, 014415 (2004).
5. M. Kawaminami and A. Okazaki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **22**, 924 (1967).
6. A. F. Andresen and J. Leciejewicz, *J. Physique* **25**, 574 (1964).
7. V. L. Miller, W. L. Lee, G. Lawes, N.-P. Ong, and R. J. Cava, *J. Solid State Chem.* **178**, 1508 (2005).
8. N. V. Baranov, P. N. G. Ibrahim, N. V. Selezneva, A. F. Gubkin, A. S. Volegov, D. A. Shishkin, L. Keller, D. Sheptyakov, and E. A. Sherstobitova, *J. Phys. Condens Matter* **27**, 286003 (2015).
9. П. Н. Г. Ибрахим, Дис. канд. физ.-мат. наук, Екатеринбург, УрФУ (2015).
10. H. Kobayashi, M. Sato, T. Kamimura, H. Onodera, N. Kurodo, and Y. Yamaguchi, *J. Physics: Condens. Matter* **9**, 515 (1997).
11. W. G. Marshall, R. J. Nelmes, J. S. Loveday, S. Klotz, J. M. Besson, G. Hamel, and J. B. Parise, *Phys. Rev. B* **61**, 11201 (2000).
12. J. Wang, W. Cui, Q. Liu, Z. Xing, A. M. Asiri, and X. Sun, *Adv. Mater.* **28**, 215 (2016).
13. K. O. Klepp and K. L. Komarek, *Monatsh. Chem.* **104**, 105 (1973).
14. F. J. Garcia-Garcia, A. Larsson, L. Noren, and R. L. Withers, *Solid State Sciences* **6**, 725 (2004).
15. H. Ikeda, M. Shirai, N. Suzuki, and K. Motizuki, *J. Magn. Magn. Mater.* **140**, 159 (1995).
16. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ # 2018663091. Simul 2018. А. П. Геращенко, С. В. Верховский, А. Ф. Садыков, А. Г. Смольников, Ю. В. Пискунов, К. Н. Михалев, Зарегистрировано в Реестре программ для ЭВМ 22.10.2018 г.
17. А. Абрагам, *Ядерный магнетизм*, ИЛ, М. (1963), 551 с.
18. Ж. Винтер, *Магнитный резонанс в металлах*, Мир, М. (1976), 288 с.
19. *Сверхтонкие взаимодействия в твердых телах: избранные лекции и обзоры*, пер. с англ., Мир, М. (1970), 368 с.
20. A. Narath, *Phys. Rev.* **162**, 320 (1967).
21. J. Korringa, *Physica* **16**, 601 (1950).
22. Y. Obata, *J. Phys. Soc. Jpn.* **18**, 1020 (1963).
23. T. Moriya, *J. Phys. Soc. Jpn.* **18**, 516 (1963).

Электронная структура InCo_2As_2 и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$: LDA + DMFT

Н. С. Павлов¹⁾, И. Р. Шеин[×], К. С. Перваков*, И. А. Некрасов⁺⁺

⁺Институт электрофизики Уральского отделения РАН, 620016 Екатеринбург, Россия

*Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

[×]Институт химии твердого тела Уральского отделения РАН, 620108 Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 14 ноября 2022 г.

После переработки 22 ноября 2022 г.

Принята к публикации 23 ноября 2022 г.

Проведен сравнительный анализ электронной структуры, полученной в рамках DFT/LDA и LDA + DMFT подходов, возможных изоструктурных аналогов железных сверхпроводников InCo_2As_2 и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ с электронной структурой родительской высокотемпературной сверхпроводящей системы BaFe_2As_2 . Установлено, что несмотря на достаточно большую величину электрон-электронных корреляций (локальное кулоновское взаимодействие на $\text{Co-}3d$ оболочке $U = 4.0$ эВ, хундовское обменное взаимодействие $J = 0.85$ эВ), в рассмотренных системах наблюдается относительно небольшая величина перенормировки квазичастичной массы 1.2–1.35 на уровне Ферми. При этом корреляционные эффекты приводят к заметному смещению и сжатию спектра ниже -0.8 эВ. Зонная структура InCo_2As_2 вблизи уровня Ферми качественно схожа с ранее детально изученным BaCo_2As_2 , и существенно отличается от зонной структуры BaFe_2As_2 . В системе $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ зоны вблизи уровня Ферми напоминают зонную структуру BaFe_2As_2 , а поверхности Ферми имеют схожую топологию. Это косвенно указывает на возможность реализации сверхпроводимости в $\text{KInCo}_4\text{As}_4$. Также по результатам LDA + DMFT расчетов видно, что при небольшом дырочном или электронном допировании в системе $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ будут происходить топологические переходы Лифшица. Считаем, что синтез рассмотренных в данной работе соединений InCo_2As_2 и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ является важным для изучения сверхпроводимости в данном классе материалов.

DOI: 10.31857/S1234567823010093, EDN: nvsgbig

1. Введение. Открытие семейства высокотемпературных сверхпроводников на основе пниктидов и халькогенидов железа (см. обзоры [1–4] и недавние работы [5–8]) породило интенсивный поиск новых химических и/или структурных аналогов систем данного класса (см., например, [9, 10]). Среди аналогов железных сверхпроводников есть сверхпроводящие системы, но с достаточно малой критической температурой сверхпроводящего перехода T_C . Необходимо отметить, что многие из вновь полученных систем аналогов не являются сверхпроводниками. В частности, при полном замещении Fe на Co в соединении BaCo_2As_2 не наблюдается сверхпроводимость [11], даже под давлением до 8 ГПа [12]. Возможной причиной отсутствия сверхпроводимости может являться совершенно другая электронная структура, в которой не может реализоваться спин-флуктуационный механизм сверхпроводимости [11].

Относительно недавно в рамках DFT (Density Functional Theory) были теоретически рассмотрены

возможные соединения InCo_2As_2 и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ [13]. В сравнении с родительским соединением BaFe_2As_2 (так называемый, класс 122 железосодержащих сверхпроводников) данные системы имеют большее число электронов. При этом, в InCo_2As_2 на один валентный электрон больше, чем в BaCo_2As_2 . В $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ имеется эффективно такое же число валентных электронов, как и в BaCo_2As_2 . Однако, электронные зоны $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ сильно отличаются от BaCo_2As_2 . Отметим, что система $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ относится к так называемому классу 1144 железосодержащих сверхпроводников, которые впервые синтезированы сравнительно недавно – в 2016 году [14, 15]. В работе [13] рассмотрены зонная структура, плотности стояний InCo_2As_2 и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$, полученные в рамках DFT. Однако, отсутствует изучение поверхности Ферми для $\text{KInCo}_4\text{As}_4$. Также, ранее было показано, что в системе BaCo_2As_2 электронные корреляции на $\text{Co-}3d$ оболочке существенны при описании электронной структуры [16].

Ввиду выше сказанного, в данной работе в

¹⁾e-mail: pavlovns@lebedev.ru

рамках DFT/LDA и LDA + DMFT [17, 18] подходов проведено систематическое детальное исследование электронной структуры изоструктурных аналогов железных сверхпроводников InCo_2As_2 и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$. Получены соответствующие электронные зоны, плотности состояний и поверхности Ферми, а также спектральные функции. Проведено сравнение DFT/LDA и LDA + DMFT результатов между собой и с аналогичными результатами для родительской системы BaFe_2As_2 . Показана существенная роль электрон-электронных корреляций в $\text{KInCo}_4\text{As}_4$.

2. Структура и методы. Зонная структура исследуемых систем получена в рамках теории функционала плотности в приближении локальной электронной плотности DFT/LDA, реализованного в программном пакете *wien2k* [19] (полнопотенциальный метод линейаризованных присоединенных плоских волн (FP-LAPW)). Кристаллическая структура рассматриваемых Co-содержащих соединений была получена в ходе оптимизации параметров решетки и позиций атомов в DFT расчетах. В итоге для InCo_2As_2 была найдена пространственная группа симметрии $I4/mmm$ со следующими значениями параметров решетки и позициями атомов: $a = 3.719 \text{ \AA}$, $c = 13.554 \text{ \AA}$, $z_{\text{As}} = 0.351657$. Для соединения $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ – пространственная группа симметрии $P4/mmm$, параметры решетки и позиции атомов: $a = 3.756 \text{ \AA}$, $c = 13.600 \text{ \AA}$, $z_{\text{As}1} = 0.14784$, $z_{\text{As}2} = 0.33960$, In (0, 0, 0), K (0.5, 0.5, 0.5). Для расчетов в рамках DFT/LDA было выбрано оптимальное разбиение неприводимой зоны Бриллюэна в k -пространстве: $16 \times 16 \times 16$. Для InCo_2As_2 и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ выполнен DFT анализ возможных магнитных состояний, который показал, что все рассмотренные магнитные конфигурации (FM, AFM-A, AFM-C и AFM-G) сходятся к парамагнитному решению. Для задания кинетической части гамильтониана в DMFT был использован LDA гамильтониан, спроектированный на базис функций Ваннье, состоящий из Co(Fe)- $3d$, As- $4p$, In- $5s$ состояний, с помощью пакета *Wannier90* [20]. Проверено, что зоны, построенные на функциях Ваннье, совпадают с исходными LDA зонами, что говорит о достаточно хорошем качестве выполненного проектирования.

Для решения примесной задачи в DMFT использован метод квантового Монте-Карло в непрерывном времени (CT-QMC) [21], реализованный в программном пакете *AMULET* [22]. DMFT(CT-QMC) вычисления выполнены при обратной температуре $\beta = 100$ (116 K). Количество усредненных Монте-Карло шагов было выбрано 10^6 .

В данной работе для рассматриваемых систем ве-

личина прямого кулоновского взаимодействия в модели Хаббарда выбрана $U = 4.0 \text{ эВ}$, а величина обменного взаимодействия Хунда – $J = 0.85 \text{ эВ}$. Величина U взята немного больше, чем типичные значения для арсенидов железа ($U = 3.5 \text{ эВ}$) [23, 24], так как в статье [25] показано, что величина U в ряде $3d$ металлов с ростом порядкового номера растет. Обменное взаимодействие взято такое же по величине как и для Fe- $3d$ состояний в арсенидах железа.

В данной работе выполнено самосогласованное вычисление поправки на двойной учет (E_{dc}) в приближении FLL (*fully-localized limit*) [26, 27], получены следующие значения E_{dc} для заполнения Co- $3d$ состояний n_d : InCo_2As_2 $n_d = 8.32$, $E_{dc} = 28.18 \text{ эВ}$; $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ $n_d = 8.22$, $E_{dc} = 27.84 \text{ эВ}$.

Собственно энергетическая часть на реальных частотах $\Sigma(\omega)$ получена с помощью метода Паде аппроксимантов [28]. Также для проверки корректности выполненного аналитического продолжения собственно энергетической части были сопоставлены функции Грина, полученные интегрированием уравнения Дайсона с $\Sigma(\omega)$, с функциями Грина, вычисленными в рамках метода максимальной энтропии [29].

3. Результаты. На рисунке 1 представлены плотности состояний (полная, Co- $3d$ и As- $4p$) для InCo_2As_2 (панель (a)) и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ (панель (b)) систем, рассчитанные в LDA (черные пунктирные линии) и LDA + DMFT (красные сплошные линии) методах в сравнении с BaFe_2As_2 LDA результатами (синие точка-пунктир линии). В отличие от железосодержащих сверхпроводников, в системах на основе Co из-за дополнительного электрона уровень Ферми расположен ближе к верхнему краю Co- $3d$ зоны (сдвиг относительно BaFe_2As_2 около 0.7 эВ).

Общая структура плотностей состояний в системах с Co и в BaFe_2As_2 достаточно схожа (см. синюю линию на рис. 1). Однако, как будет показано дальше, зонные структуры трех данных систем достаточно заметно различаются. В рассматриваемых системах уровень Ферми расположен немного ниже пика, который формируется плоскими участками зон в направлении $\Gamma-X(M)$ (см. рис. 2), в отличие от BaCo_2As_2 , где уровень Ферми попадает точно на пик [30]. Отметим, что для систем с Co вблизи уровня Ферми вклад As- $4p$ состояний в плотность состояний существенно больше, чем в BaFe_2As_2 .

За счет электрон-электронных корреляционных эффектов в плотности состояний происходит смещение пика в области -1 эВ на 0.25 эВ выше по энергии (см. красную линию рис. 1). Однако, форма плотности состояний на уровне Ферми и выше прак-

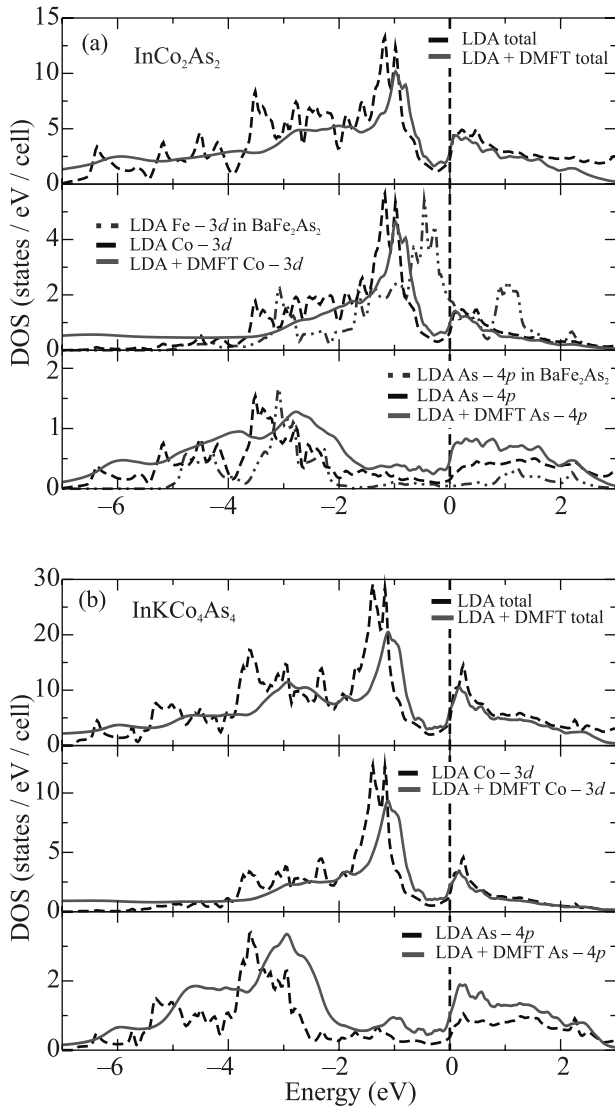


Рис. 1. (Цветной онлайн) Плотности состояний (полная, $\text{Co-}3d$ и $\text{As-}4p$): (a) – InCo_2As_2 и (b) – $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ соединений, рассчитанная в LDA (черные пунктирные линии) и LDA+DMFT (красные сплошные линии) в сравнении с BaFe_2As_2 LDA (синие точка-пунктир линии). Ноль энергии соответствует уровню Ферми

тически не изменяется в присутствии электронных корреляций.

На рисунке 2а представлена зонная структура InCo_2As_2 , полученная в LDA (черные линии) и LDA+DMFT (красные линии). Зонная структура InCo_2As_2 напоминает зонную структуру BaCo_2As_2 [30], только со сдвигом уровня Ферми ниже по энергии примерно на 0.3–0.5 эВ. Таким образом плоские участки зон в направлении Γ – X

сдвигаются с уровня Ферми в BaCo_2As_2 выше на 0.5 эВ по энергии.

Как известно, зоны, пересекающие уровень Ферми в BaFe_2As_2 , в основном сформированы $\text{Fe-}3d$ (xy, xz, yz) [31] орбиталями. За счет дополнительного электрона в рассматриваемых системах с Co соответствующие $3d$ (xy, xz, yz) орбитали кобальта располагаются теперь ниже уровня Ферми, а основной вклад на уровне Ферми теперь дает $\text{Co-}3d_{x^2-y^2}$ орбиталь. Также видно, что чуть выше уровня Ферми в направлении Γ – M $\text{Co-}3d_{x^2-y^2}$ орбиталь формирует плоскую зону.

Классическая зонная структура для железосодержащих сверхпроводников, таких как BaFe_2As_2 – это 3 дырочных кармана в Γ -точке и два электронных в M -точке (см. рис. 2b) [31]. В случае InCo_2As_2 в Γ -точке имеется только один достаточно маленький электронный карман и два электронных в X -точке (см. рис. 2a). Для $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ (рис. 2c) структура зон пересекающих уровень Ферми также отличается от классического вида BaFe_2As_2 .

Учет электронных корреляций (LDA + DMFT) не меняют зоны на уровне Ферми в области точки X , однако смещают плоскую зону в направлении Γ – X ниже по энергии в обеих системах с Co. Рассчитанная величина корреляционной перенормировки квазичастичной массы на уровне Ферми для всех орбитальных $\text{Co-}3d$ состояний практически одинаковая и составляет – 1.25 для InCo_2As_2 . Таким образом в InCo_2As_2 практически отсутствует сжатие зон на уровне Ферми в отличие от BaFe_2As_2 , где перенормировка в два-три раза больше. Однако, при отходе от уровня Ферми сжатие и сдвиг зон становятся заметными ниже –0.8 эВ.

Рассмотрим зонную структуру системы 1144 $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ (рис. 2c). Около Γ -точки одна электронная зона пересекает уровень Ферми, а вторая электронная зона формирует дырочный карман в центре Γ – M (Z – A) направления. Вокруг M -точки наблюдается три электронных зоны. При этом в LDA + DMFT случае в M -точке дополнительно появляется зона, касающаяся уровня Ферми. Такое расположение зон может способствовать возникновению нестинга (см. рис. 3). Среди рассмотренных Co содержащих соединений зонная структура $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ наиболее схожа с зонной структурой BaFe_2As_2 .

Рассчитанная в LDA + DMFT величина корреляционной перенормировки квазичастичной массы на уровне Ферми для $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ – 1.22. Так же как и в InCo_2As_2 в $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ отсутствует сжатие зон на уровне Ферми, которое становится заметно при

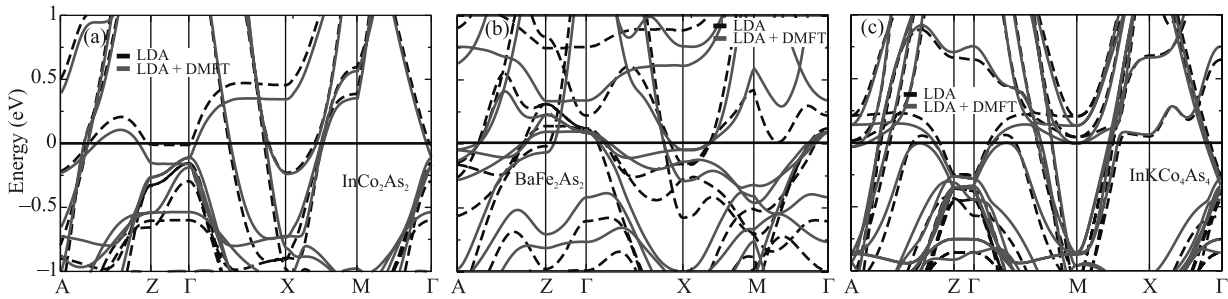


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зонная структура: (a) – $\text{KInCo}_4\text{As}_4$; (b) – BaFe_2As_2 ; (c) – InCo_2As_2 соединений, полученная в LDA (черные пунктирные линии) и LDA + DMFT (красные сплошные линии). Уровень Ферми – ноль энергии

энергиях ниже -0.5 эВ. Небольшим, но существенным, на наш взгляд, изменением зонной структуры за счет учета электрон-электронных корреляционных эффектов является смещение зон вблизи уровня Ферми в середине $\Gamma - M$ направления и в точке M . Вследствие этого смещения верхняя и нижняя часть зон попадает прямо на уровень Ферми. За счет этого при небольшом дырочном или электронном допировании будет меняться топология поверхности Ферми (переходы Лифшица).

На рисунке 3 представлены поверхности Ферми для InCo_2As_2 (панель (a)) и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ (панель (b)), полученные в LDA. Практически все крупные листы Ферми поверхности в InCo_2As_2 на уровне Ферми сосредоточены в области угла зоны Бриллюэна. Практически все листы поверхности Ферми для InCo_2As_2 имеют явно выраженную k_z зависимость. В системе $\text{KInCo}_4\text{As}_4$, где в кристаллической структуре чередуются слои K и In, поверхность Ферми становится практически квазидвумерной (рис. 3b). Это так же можно увидеть в зонной структуре в том, что направления $\Gamma - M$ и $Z - A$ вблизи уровня Ферми практически идентичны (рис. 2c), в отличие от InCo_2As_2 (рис. 2a). Так же видно, что поверхность Ферми для $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ имеет вид, схожий с поверхностью Ферми железосодержащих сверхпроводников, однако форма листов поверхности Ферми около Γ -точки ближе к прямоугольной призме, чем к цилиндру. Такая форма листов поверхности Ферми может способствовать возникновению нестинга. В то же время все листы поверхности Ферми около Γ -точки являются электронными, в отличие от BaFe_2As_2 , где возле Γ точки сосредоточены дырочные листы поверхности Ферми. Таким образом, можно сделать вывод, что экспериментальный синтез образцов $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ является интересным для проверки реализации сверхпроводимости.

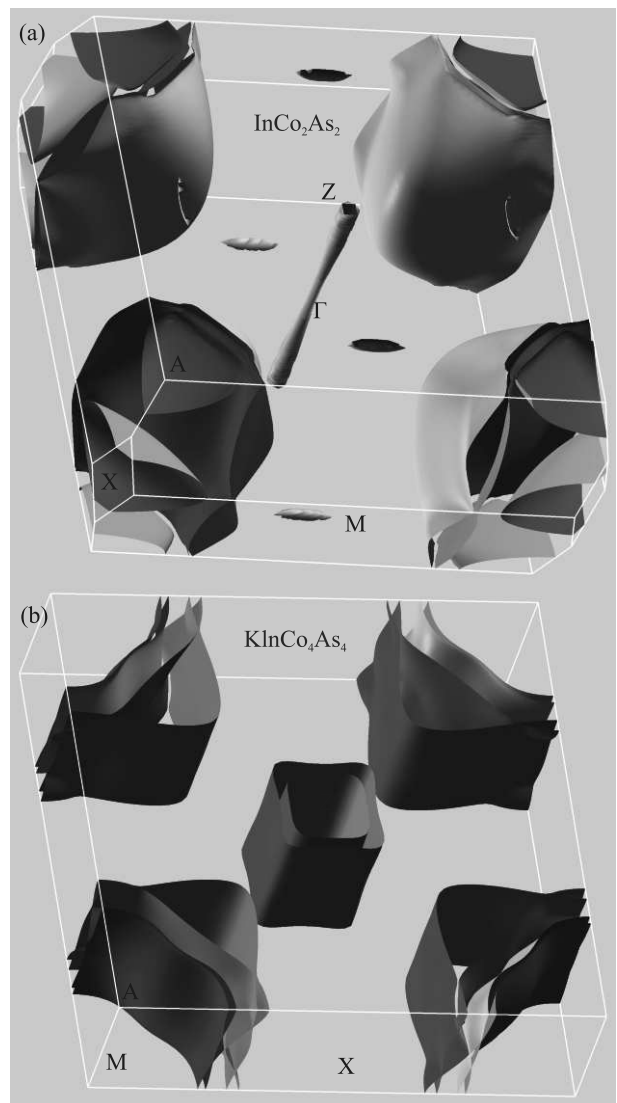


Рис. 3. (Цветной онлайн) Поверхности Ферми, вычисленные в LDA: (a) – InCo_2As_2 ; (b) – $\text{KInCo}_4\text{As}_4$

Электронные корреляции в LDA + DMFT практически не изменяют вид поверхности Ферми

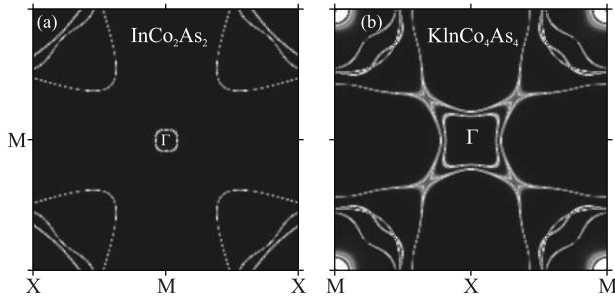


Рис. 4. (Цветной онлайн) Карта поверхности Ферми в плоскости $k_z = 0$ для InCo_2As_2 (a) и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ (b), вычисленная в LDA + DMFT

в InCo_2As_2 (рис. 4a). В случае $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ в LDA + DMFT расчете происходит изменение двух листов поверхности Ферми с наибольшим объемом, за счет смещения зон в середине направления Γ – M . В результате данные листы поверхности Ферми касаются друг друга (рис. 4b). При этом остальные листы остаются практически неизменными.

Проявление электронных корреляций хорошо видно в спектральной функции, полученной в LDA + DMFT расчете (рис. 5). Начиная от -0.8 эВ и ниже по энергии, время жизни квазичастичных состояний для InCo_2As_2 и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ уменьшается. В то же время вблизи уровня Ферми находятся хорошо определенные квазичастичные зоны. Аналогичное проявление корреляций наблюдали для BaCo_2As_2 ниже -0.8 эВ [16]. Тогда как для железосодержащих сверхпроводников (в том числе и для BaFe_2As_2) проявление электронных корреляций приводит к уширению всех ветвей Fe-3d спектральной функции, в том числе и на уровне Ферми [24].

На рисунке 6 представлена спектральная функция с явно выделенными орбитальными вкладами для InCo_2As_2 и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$: (a) – Co-3d_{x²-y²}; (b) – Co-3d_{z²}; (c) – Co-3d_{xy}; (d) – Co-3d_{yz}, вычисленная в LDA + DMFT. Вблизи уровня Ферми ярко выражены Co-3d_{x²-y²} состояния с относительно плоскими зонами в направлении Γ – M . Остальные орбитальные состояния сосредоточены вблизи -1 эВ, формируя пик в плотности Co-3d состояний (рис. 1).

3. Заключение. В данной работе проведен сравнительный анализ электронной структуры потенциальных изоструктурных аналогов железных сверхпроводников InCo_2As_2 и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$, полученных в рамках DFT/LDA и LDA + DMFT подходов, и с аналогичными результатами родительской высокотемпературной сверхпроводящей системы BaFe_2As_2 . Зонная структура InCo_2As_2 вблизи уровня Ферми существенно отличается от зонной структуры

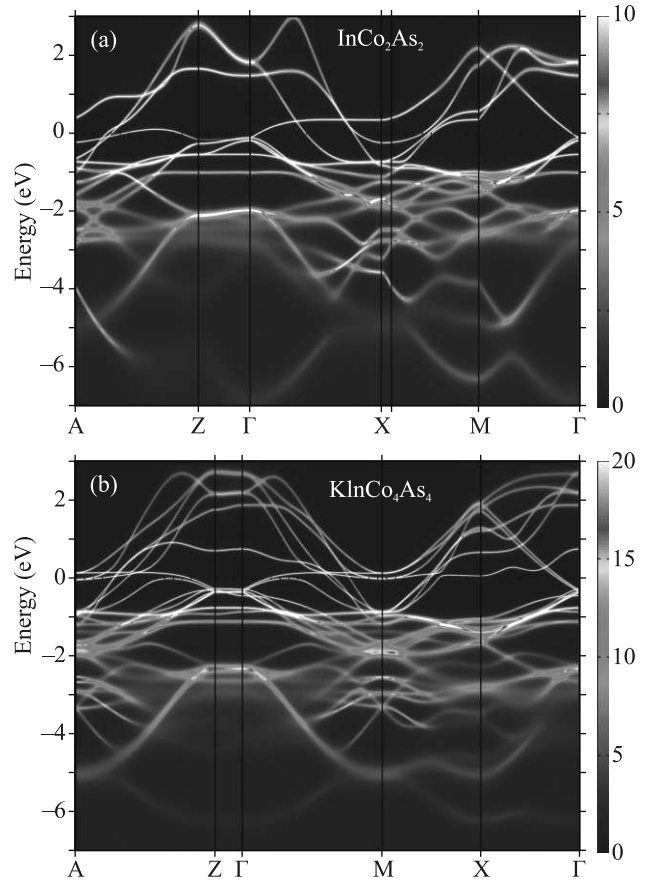


Рис. 5. (Цветной онлайн) Спектральная функция для InCo_2As_2 (a) и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ (b), полученная в LDA + DMFT. Ноль энергии соответствует уровню Ферми

BaFe_2As_2 , при этом качественно схожа с ранее детально изученным BaCo_2As_2 . Для $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ зоны вблизи уровня Ферми и поверхность Ферми напоминают BaFe_2As_2 , что косвенно указывает на возможную реализацию сверхпроводимости в $\text{KInCo}_4\text{As}_4$.

Показано, что влияние электронных корреляционных эффектов (с достаточно большими величинами параметров взаимодействия) на уровне Ферми минимально, и проявляется при отходе от уровня Ферми. При этом корреляционные эффекты приводят к заметному смещению и сжатию спектра ниже -0.8 эВ. За счет электронных корреляций происходит перестройка поверхности Ферми в $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ в Γ – M направлении зоны Бриллюэна. Также обнаружено, что в системе $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ при относительно небольшом дырочном или электронном допировании возможны переходы Лифшица. Синтез рассмотренных в данной работе соединений InCo_2As_2 и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ послужит важным шагом в изучении сверхпроводимости в данном классе материалов.

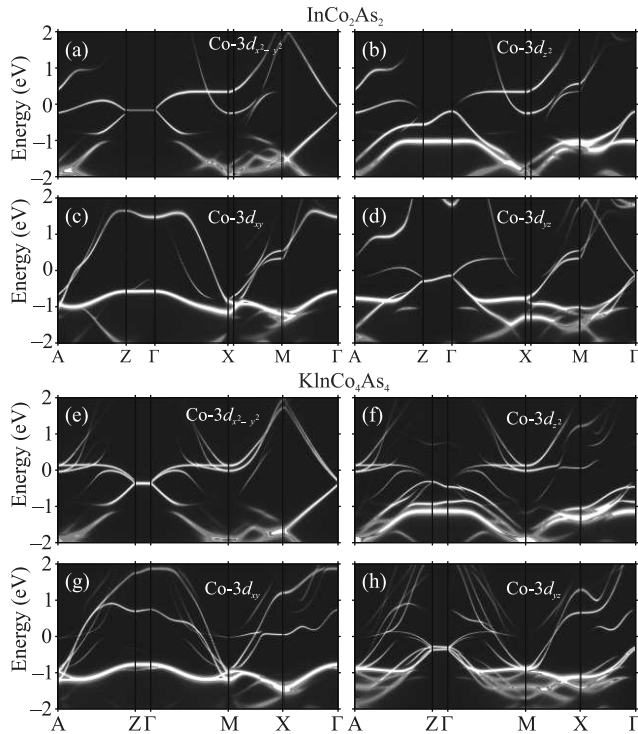


Рис. 6. (Цветной онлайн) Орбитальные вклады в спектральную функцию для InCo_2As_2 (верхняя панель) и $\text{KInCo}_4\text{As}_4$ (нижняя панель): (a) – $\text{Co-}3d_{x^2-y^2}$; (b) – $\text{Co-}3d_{z^2}$; (c) – $\text{Co-}3d_{xy}$; (d) – $\text{Co-}3d_{yz}$, полученные на основе LDA + DMFT

Работа Н. С. Павлова, К. С. Первакова, И. А. Некрасова выполнялась при частичной поддержке гранта Российского научного фонда (грант # 21-12-00394). Работа И. Р. Шейна выполнялась при частичной поддержке Госзадания # АААА-А19-119031890025-9.

1. М. В. Садовский, *Успехи физических наук* **178**, 1243 (2008).
2. G. R. Stewart, *Успехи физических наук* **83**, 1589 (2011).
3. М. В. Садовский, *Успехи физических наук* **186**, 1035 (2016).
4. Т. Е. Кузьмичева, С. А. Кузьмичев, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 685 (2021).
5. К. В. Фролов, И. С. Любутин, Д. А. Чареев, М. Абдель-Хафиз, *Письма в ЖЭТФ* **110**, 557 (2019).
6. Т. Е. Кузьмичева, С. А. Кузьмичев, И. В. Морозов, С. Вурмель, Б. Бюхнер, *Письма в ЖЭТФ* **111**, 388 (2020).
7. Е. И. Мальцев, В. А. Власенко, О. А. Соболевский, А. В. Садаков, Б. И. Массалимов, К. С. Перваков, *Письма в ЖЭТФ* **111**, 475 (2020).

8. Т. Е. Кузьмичева, С. А. Кузьмичев, К. С. Перваков, В. А. Власенко, *Письма в ЖЭТФ* **112**, 822 (2020).
9. M. Neupane, Ch. Liu, S.-Y. Xu, Y.-J. Wang, N. Ni, J. M. Allred, L. A. Wray, N. Alidoust, H. Lin, R. S. Markiewicz, A. Bansil, R. J. Cava, and M. Z. Hasan, *Phys. Rev. B* **85**, 094510 (2012).
10. И. А. Некрасов, М. В. Садовский, *Письма в ЖЭТФ* **10**, 687 (2014).
11. A. S. Sefat, D. J. Singh, R. Jin, M. A. McGuire, B. C. Sales, and D. Mandrus, *Phys. Rev. B* **79**, 024512 (2009).
12. Ch. Ganguli, K. Matsubayashi, K. Ohgushi, Y. Uwatoko, M. Kanagaraj, and S. Arumugam, *Materials Research Bulletin* **48**, 4329 (2013).
13. B. Q. Song, M. C. Nguyen, C. Z. Wang, P. C. Canfield, and K. M. Ho, *Physical Review Materials* **2**, 104802 (2018).
14. A. Iyo, K. Kawashima, T. Kinjo, T. Nishio, Sh. Ishida, H. Fujihisa, Y. Gotoh, K. Kihou, H. Eisaki, and Y. Yoshida, *J. Am. Chem. Soc.* **138**, 3410 (2016).
15. D. Mou, T. Kong, W. R. Meier, F. Lochner, L.-L. Wang, Q. Lin, Y. Wu, S. L. Bud'ko, I. Eremin, D. D. Johnson, P. C. Canfield, and A. Kaminski, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 277001 (2016).
16. A. van Roekeghem, Th. Ayral, J. M. Tomczak, M. Casula, N. Xu, H. Ding, M. Ferrero, O. Parcollet, H. Jiang, and S. Biermann, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 266403 (2014).
17. K. Held, I. A. Nekrasov, N. Blümer, V. I. Anisimov, and D. Vollhardt, *Int. J. Mod. Phys.* **15**, 2611 (2001).
18. G. Kotliar, S. Y. Savrasov, K. Haule, V. S. Oudovenko, O. Parcollet, and C. A. Marianetti, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 865 (2006).
19. P. Blaha, K. Schwarz, F. Tran, R. Laskowski, G. K. H. Madsen, and L. D. Marks, *J. Chem. Phys.* **152**, 074101 (2020).
20. G. Pizzi, V. Vitale, R. Arita et al. (Collaboration), *J. Phys. Condens. Matter* **32**, 165902 (2020).
21. E. Gull, A. J. Millis, A. I. Lichtenstein, A. N. Rubtsov, M. Troyer, and Ph. Werner, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 349 (2011).
22. <http://www.amulet-code.org><http://www.amulet-code.org>
23. S. L. Skornyakov, V. I. Anisimov, and D. Vollhardt, *Phys. Rev. B* **86**, 125124 (2012).
24. Ph. Werner, M. Casula, T. Miyake, F. Aryasetiawan, A. J. Millis, and S. Biermann, *Nature Phys.* **8**, 331 (2012).
25. I. V. Solovyev, P. H. Dederichs, and V. I. Anisimov, *Phys. Rev. B* **50**, 16861 (1994).
26. M. T. Czyżyk and G. A. Sawatzky, *Phys. Rev. B* **49**, 14211 (1994).
27. V. I. Anisimov, I. V. Solovyev, M. A. Korotin, and M. T. Czyżyk, and G. A. Sawatzky, *Phys. Rev. B* **48**, 16929 (1993).

-
28. H. J. Vidberg and J. W. Serene, *J. Low Temp. Phys.* **29**, 179 (1977).
29. M. Jarrell and J. E. Gubernatis, *Phys. Rep.* **269**, 133 (1996).
30. N. Xu, P. Richard, A. van Roekeghem, P. Zhang, H. Miao, W.-L. Zhang, T. Qian, M. Ferrero, A. S. Sefat, S. Biermann, and H. Ding, *Phys. Rev. X* **3**, 011006 (2013).
31. I. A. Nekrasov, Z. V. Pchelkina, and M. V. Sadovskii, *Pis'ma v ZhETF* **88**, 155 (2008).

Необычные состояния дробного квантового эффекта Холла в широкой квантовой яме

С. И. Дорожкин⁺¹⁾, А. А. Капустин⁺, И. Б. Федоров⁺, В. Уманский*, Ю. Х. Смет[×]

⁺ Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия

* Department of Physics, Weizmann Institute of Science, 76100 Rehovot, Israel

[×] Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, Heisenbergstrasse 1, D-70569 Stuttgart, Germany

Поступила в редакцию 8 ноября 2022 г.

После переработки 23 ноября 2022 г.

Принята к публикации 24 ноября 2022 г.

Выполнены исследования двухслойной электронной системы, реализующейся в квантовой яме GaAs шириной 60 нм и имеющей большую разность плотностей электронов в слоях. Обнаружено, что наклон магнитного поля относительно нормали к плоскости системы приводит к исчезновению состояний целочисленного квантового эффекта Холла при значениях полного фактора заполнения уровней Ландау единица и двойка и возникновению состояний дробного квантового эффекта Холла в промежутке между этими факторами заполнения. Состояния дробного квантового эффекта Холла обнаружены на факторах заполнения ν_F как с нечетными знаменателями ($\nu_F = 4/3, 10/7, 6/5$), так и на факторе заполнения $\nu_F = 5/4$. При развертке магнитного поля могут наблюдаться несколько различных состояний. Обнаруженные состояния дробного квантового эффекта Холла объясняются как комбинированные состояния с одинаковым значением фактора заполнения, равным единице, в слое большей плотности и с факторами заполнения $\nu_F - 1$ в слое меньшей плотности. Эти состояния реализуются в результате перераспределения электронов между слоями, происходящего при изменении магнитного поля. Предполагается, что возникновение состояния на факторе заполнения $\nu_F = 5/4$ с четным знаменателем обусловлено доминированием межслоевого электрон-электронного взаимодействия по сравнению с внутрислоевым для электронов слоя меньшей плотности.

DOI: 10.31857/S123456782301010X, EDN: nvsrmf

В двухслойных электронных системах (ЭС), создаваемых в двойных [1] и широких [2] квантовых ямах GaAs, а также в двойных слоях на основе графена [3, 4], условия возникновения состояний квантового эффекта Холла (КЭХ) существенно меняются по сравнению с однослойными двумерными электронными системами. В двухслойных системах в формировании состояний КЭХ почти всегда существенную роль играют эффекты межэлектронного взаимодействия, включающие корреляцию между электронами разных слоев. В результате в таких системах наблюдаются состояния дробного квантового эффекта Холла (ДКЭХ) на полных факторах заполнения разрешенных по спину уровней Ландау ν_F как с обычными нечетными, так и с четными знаменателями, таких как $\nu_F = 1/2$ [5, 6] и $\nu_F = 1/4$ [7, 8]. Кроме того, в них возникает необычное состояние целочисленного КЭХ на факторе заполнения единица с уникальными транспортными характеристиками, связываемыми с образованием экситонного кон-

денсата (см. обзор [9] для двойных GaAs квантовых ям и недавние работы [10, 11] для двойных слоев на основе графена).

Другой отличительной особенностью состояний КЭХ в двухслойных электронных системах является сложное поведение в магнитном поле, отклоненном от нормали к плоскости системы, когда могут существенно меняться факторы заполнения наблюдаемых состояний. Такой эффект ярко проявился в сбалансированных (имеющих одинаковую плотность электронов) двойных слоях, создаваемых в широких квантовых ямах GaAs [12, 13]. Наблюдавшиеся в этих работах в наклонном магнитном поле новые состояния ДКЭХ интерпретировались [12] как результат спонтанного нарушения баланса вследствие перераспределения электронов между слоями и формирования комбинированных состояний ДКЭХ из подходящих состояний отдельных слоев. Отметим, что первое наблюдение состояния ДКЭХ на полном факторе заполнения $1/4$ [7] также было выполнено в наклонном магнитном поле на образце с широкой квантовой ямой.

¹⁾e-mail: dorozh@issp.ac.ru

Данная работа посвящена изучению сильно разбалансированных двухслойных электронных систем. В ней реализованы условия, когда ближайшими соседями электронов слоя с меньшей плотностью оказываются электроны другого слоя и, таким образом, можно ожидать, что для этих электронов межслоевое кулоновское взаимодействие оказывается сильнее внутрислоевое. Отметим, что такое условие нельзя реализовать в сбалансированной системе с конечным расстоянием между слоями из-за одинаковости расстояний между электронами в обоих слоях.

Нами исследовано влияние наклонного магнитного поля на состояния КЭХ в разбалансированной двухслойной электронной системе, создаваемой в квантовой яме GaAs шириной 60 нм и имеющей отношение плотностей электронов в разных слоях в нулевом магнитном поле, большее 2.4. Обнаружено, что состояния КЭХ на полных факторах заполнения $\nu = 1$ и 2, доминирующие в перпендикулярном магнитном поле, исчезают при наклоне поля на угол Θ в $30 - 50^\circ$, величина которого зависит от значения фактора заполнения и соотношения плотностей электронов в разных слоях. Вместо них возникают состояния ДКЭХ при значениях факторов заполнения $\nu_F = 4/3, 10/7, 6/5$ и $5/4$, соответствующие квантовым числам $q = 3/4, 7/10, 5/6$ и $4/5$ в холловском сопротивлении $R_{xy} = qh/e^2$. Наиболее примечательным является наблюдение состояния ДКЭХ с квантовым числом $4/5$, свидетельство о существовании которого до сих пор было получено только при измерениях диссипативной проводимости, выполненных в сбалансированных двойных слоях графена на образцах геометрии Корбино [3]. Использование в нашей работе комбинации магнетотранспортных и магнетоемкостных измерений позволило характеризовать распределение электронов между слоями и установить комбинированный характер наблюдающихся состояний ДКЭХ. Полученные результаты указывают на изменение характера электронных корреляций в наклонном поле и перераспределение электронов между слоями при изменении величины поля. В результате такого перераспределения реализуются комбинированные состояния ДКЭХ на факторах заполнения ν_F , соответствующие фактору заполнения единица в слое с большей плотностью электронов ($\nu_{ul} = 1$) и фактору $\nu_{dl} = \nu_F - 1$ в слое малой плотности. Насколько нам известно, это первое сообщение о наблюдении различных комбинированных состояний ДКЭХ при сканировании магнитного поля, соответствующих одинаковому значению фактора заполнения в одном из слоев. Наблюдение состояния на факторе заполнения $5/4$ свидетельствует

о влиянии слоя с фактором заполнения единица на внутрислоевое электрон-электронное взаимодействие в соседнем слое.

Эксперименты были выполнены на двух образцах, изготовленных из одной пластины гетероструктуры GaAs/AlGaAs с квантовой ямой GaAs шириной 60 нм, расположенной на глубине 140 нм от поверхности гетероструктуры. Полученные на разных образцах результаты были идентичны. Селективное легирование, обеспечивающее заполнение ямы электронами, в использованной гетероструктуре было выполнено над ямой на расстоянии 65 нм от ее верхней границы. Такое легирование приводило к сильной исходной асимметрии ямы. По обе стороны ямы создавались полевые электроды (затворы). Нижний затвор был образован сильно легированным слоем GaAs, изготавливавшимся в процессе роста гетероструктуры, и располагался на расстоянии 850 нм от нижнего края ямы. Верхний затвор создавался напылением тонкой металлической пленки на поверхность гетероструктуры. При нулевых затворных напряжениях около верхней стенки квантовой ямы существовала двумерная электронная система (далее верхний слой) с плотностью $n_u = 18 \times 10^{10} \text{ см}^{-2}$ и подвижностью $\mu_u = 11 \times 10^6 \text{ см}^2/\text{В.с}$. Для достижения интересующих нас факторов заполнения в наклонном магнитном поле большинство измерений было выполнено при напряжении на верхнем затворе $V_{ug} = -0.2 \text{ В}$. При таком значении V_{ug} второй двумерный слой ЭС (далее нижний слой) возникал около нижней стенки ямы при подаче на нижний затвор напряжения V_{dg} , большего $+0.15 \text{ В}$, и полной плотности электронов $n_t > 16.5 \times 10^{10} \text{ см}^{-2}$. Утечки на затворы, а также эффект нестабильности электронной плотности ограничивали область изменения полной плотности в исследованных образцах при наличии в них двух слоев диапазоном от $n_t = 14 \times 10^{10} \text{ см}^{-2}$ до $n_t = 24 \times 10^{10} \text{ см}^{-2}$. Все измерения были выполнены в этом диапазоне, где указанные артефакты были несущественны. Образцы имели геометрию холловских мостиков. Омические контакты к обоим слоям создавались диффузией сплава NiGeAu. Используемая электрическая схема позволяла одновременно измерять магнетосопротивление и холловское сопротивление образца, а также электрические емкости между обоими затворами и электронной системой. Детальное описание исследованных образцов и измерительной схемы приведено в работе [14]. В слабых магнитных полях на зависимостях емкостей от поля наблюдались минимумы при целочисленных факторах заполнения уровней Ландау электронами слоя, ближайшего к данному затвору, что позволяло

непосредственно определять плотность электронов в каждом из слоев [14] и регистрировать ее изменение при изменении величины поля. Значения плотности электронов в нижнем слое n_d , определенные на основании измерений емкости между нижним затвором и ЭС в слабых магнитных полях, приведены на рис. 1–4 вместе с полной плотностью электронов n_t , определявшейся из положений хорошо выраженных состояний целочисленного КЭХ. Минимумы обеих емкостей, одновременно наблюдавшиеся в сильном перпендикулярном магнитном поле на полных факторах заполнения, равных единице и двойке, свидетельствовали о формировании однослойного состояния ЭС в соответствующих состояниях КЭХ [15]. Образец монтировался на поворотную платформу, обеспечивающую плавный наклон плоскости квантовой ямы относительно направления магнитного поля сверхпроводящего соленоида с величиной критического поля 12 Тл. Угол поворота был откалиброван с точностью 2° . Более высокая точность определения угла поворота ($\sim 0.2^\circ$) могла быть получена из сравнения величин холловского сопротивления в перпендикулярном и наклонном полях. Образец размещался в жидком ^3He . Измерения проводились при температуре 0.5 К, получаемой откачкой паров ^3He .

На рисунке 1 приведено сравнение магнетотранспортных (магнетосопротивление R_{xx} и холловское сопротивление R_{xy}) кривых, измеренных в перпендикулярном и наклонном магнитных полях. Прежде всего, отметим полное исчезновение состояния КЭХ на факторе заполнения двойка в наклонном поле. Такое же исчезновение наблюдается и на факторе заполнения единица, как это будет продемонстрировано ниже. Эффект подавления КЭХ в наклонном магнитном поле при $\nu = 1$ и 2 наблюдался ранее в двухслойных электронных системах, создаваемых как в двойных, так и в широких квантовых ямах. Однако его проявление в сильной степени зависит от различных условий, одним из которых является сбалансированность двухслойной электронной системы. Так, например, в работе [16], выполненной на образцах с двойными квантовыми ямами, подавление квантового эффекта Холла на факторе заполнения двойка наблюдалось только в случае несбалансированной системы. В работах же [12, 13] в широкой квантовой яме наблюдалось только исчезновение состояний КЭХ с $\nu = 1$. Здесь мы лишь отметим наблюдаемое нами одинаковое поведение состояний КЭХ с $\nu = 2$ и $\nu = 1$ в наклонном поле, основным же результатом этой работы является появление в таком поле необычных состояний ДКЭХ. На рисунке 1 в наклонном поле наблюдаются два состояния

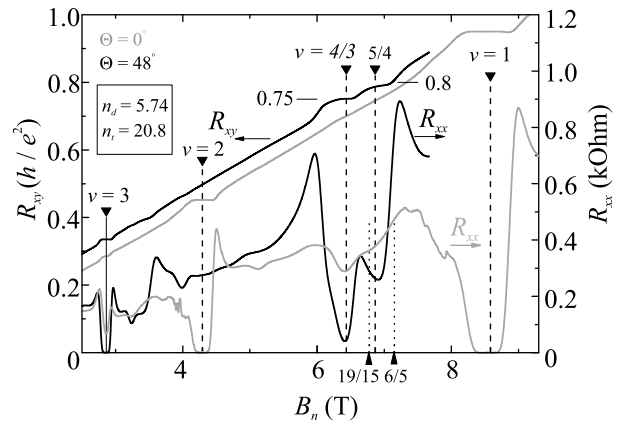


Рис. 1. Магнетосопротивление R_{xx} (правая шкала) и холловское сопротивление R_{xy} (левая шкала) в функции нормальной к плоскости квантовой ямы компоненты магнитного поля B_n для двух углов между направлением поля и нормалью к квантовой яме: $\Theta = 0^\circ$ (светлые сплошные кривые) и $\Theta = 48^\circ$ (темные кривые). Светлая кривая холловского сопротивления в перпендикулярном поле для ясности сдвинута вниз на 0.05. Вертикальными пунктирными и точечными прямыми показаны положения обсуждаемых в тексте факторов заполнения ν и ν_F , определенные из положения состояния целочисленного квантового эффекта Холла при $\nu = 3$. Горизонтальными отрезками отмечены квантованные значения холловского сопротивления для состояний дробного квантового эффекта Холла с квантовыми числами $3/4$ и $4/5$. На рисунке приведены величины плотности электронов в нижнем слое n_d в слабых магнитных полях и полной плотности электронов в ЭС n_t (обе величины в единицах 10^{10} см^{-2})

ДКЭХ, наиболее соответствующие факторам заполнения $\nu_F = 4/3$ и $\nu_F = 5/4$. Последнее из этих состояний до сих пор в полупроводниковых гетероструктурах на основе GaAs не наблюдалось. В работах [12, 13] сообщалось о возникновении в наклонном поле состояний ДКЭХ на факторах заполнения как с четными ($\nu_F = 4/5, 6/5$), так и с нечетными ($\nu_F = 11/15, 19/15$) числителями, наблюдавшемся в исходно сбалансированной двухслойной ЭС в широкой квантовой яме GaAs. Эти состояния возникали в дополнение к состояниям на факторах заполнения $\nu_F = 2/3$ и $4/3$, существующим и в перпендикулярном поле. Все эти состояния интерпретировались как комбинированные состояния ДКЭХ в разных слоях. Состояния с четными числителями могут быть реализованы в сбалансированном состоянии ЭС. Для объяснения же состояний с нечетными числителями было предположено, что они возникают в результате спонтанного нарушения баланса, сопровождающегося перераспределением электронов между слоями.

Так состояние на факторе заполнения $\nu_F = 11/15$ ($\nu_F = 19/15$) приписывалось комбинации состояний $\nu_{F1} = 1/3$ и $\nu_{F2} = 2/5$ ($\nu_{F1} = 2/3$ и $\nu_{F2} = 3/5$) в разных слоях. Отметим здесь, что дробь $19/15$ отличается от $5/4$ на 1.3%. Положения факторов заполнения $\nu_F = 19/15$ и $6/5$ также отмечены на рис. 1 и хуже описывают положение правого из пары соседних минимумов на кривой $R_{xx}(B_n)$ в наклонном поле, которое мы отождествляем с $\nu_F = 5/4$. Обсуждение возможной природы наблюдаемых нами состояний ДКЭХ будет приведено ниже.

Эволюция состояний КЭХ при наклоне магнитного поля показана на рис. 2, где холловское сопро-

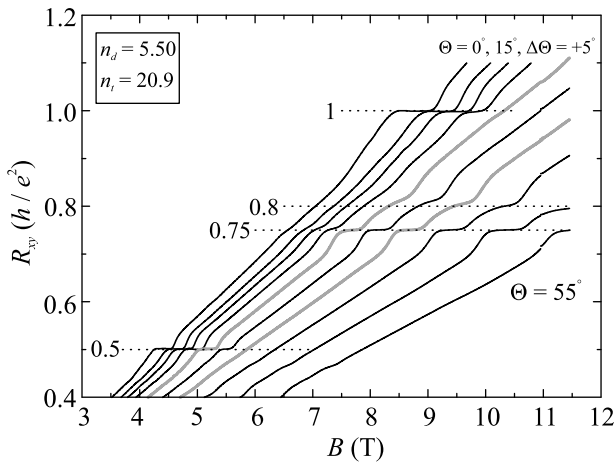


Рис. 2. Зависимости холловского сопротивления R_{xy} от полной величины магнитного поля для различных углов наклона Θ . Самая левая кривая измерена при $\Theta = 0^\circ$, а соседняя – при $\Theta = 15^\circ$. Все последующие кривые измерены с шагом по углу наклона $\Delta\Theta = 5^\circ$. Горизонтальными пунктирными линиями отмечены уровни, на которых наблюдается эффект квантования холловского сопротивления. Двумя светлыми линиями показаны кривые, демонстрирующие исчезновение состояний КЭХ с $R_{xy} = 1 \times h/e^2$ и $R_{xy} = 1/2 \times h/e^2$

тивление, измеренное при разных углах Θ , представлено в функции полного магнитного поля. В таком представлении средний наклон холловских кривых пропорционален косинусу угла Θ . Хорошо выраженные горизонтальные участки кривых соответствуют квантованным значениям холловского сопротивления. Для приведенных данных квантовое плато с $R_{xy} = 1 \times h/e^2$ исчезает при $\Theta \approx 30^\circ$, а с $R_{xy} = 1/2 \times h/e^2$ при $\Theta \approx 40^\circ$. В то же время видно появление холловского плато с $R_{xy} = 3/4 \times h/e^2$ при $\Theta \approx 25^\circ$ и плато, значение холловского сопротивления на котором стремится к $R_{xy} = 4/5 \times h/e^2$ по мере увеличения угла наклона магнитного поля при $\Theta > 30^\circ$.

Изменение плотности электронов в ЭС и ее исходного распределения между слоями приводит к изменению наблюдаемых состояний ДКЭХ. Так, помимо состояний на факторах заполнения $\nu_F = 4/3$ и $5/4$, представленных на рис. 1 и 2, нам удалось наблюдать состояния ДКЭХ на факторах заполнения $\nu_F = 10/7$ и $6/5$ (см. рис. 3 и 4). Понять условие возникнове-

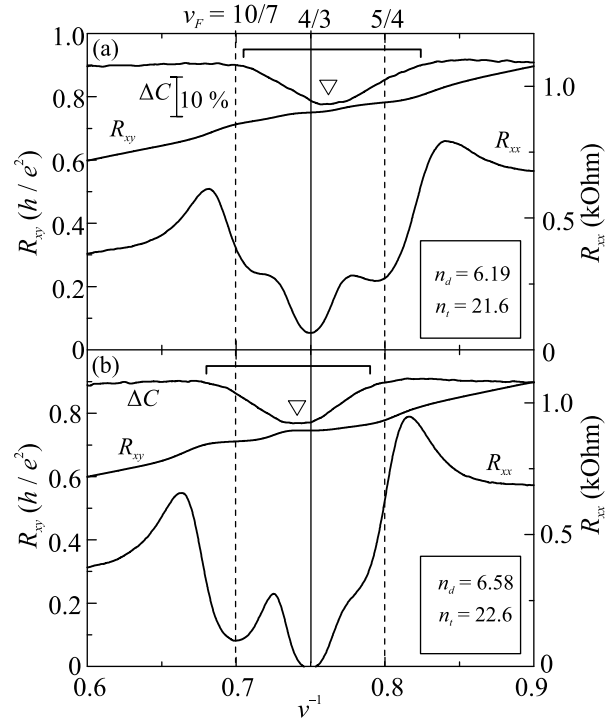


Рис. 3. Зависимости холловского сопротивления R_{xy} (левая шкала), магнетосопротивления R_{xx} (правая шкала) и изменения ΔC емкости между верхним затвором и ЭС от обратной величины полного фактора заполнения $\nu^{-1} = eB_n/hc\epsilon_t$, пропорциональной перпендикулярной компоненте магнитного поля. Данные, приведенные на рис. (a) и (b), получены при различных величинах плотности электронов в слоях, указанных на рисунках. Все кривые на каждой из панелей измерены одновременно при сканировании магнитного поля, наклоненного на угол $\Theta = 40^\circ$, и при температуре $T = 0.5$ К. Положения дробных факторов заполнения $\nu_F = 10/7$, $4/3$ и $5/4$ отмечены вертикальными линиями. Полные ширины минимумов в емкости показаны горизонтальными отрезками, а положения экстремумов указаны открытыми треугольниками

ния тех или иных состояний нам удалось на основании измерений емкостей между затворами и ЭС. Эти измерения показали, что все перечисленные состояния ДКЭХ возникают в области широкого минимума в емкости между верхним затвором и электронной системой, соответствующего фактору заполнения единица в верхнем слое с большей плотностью

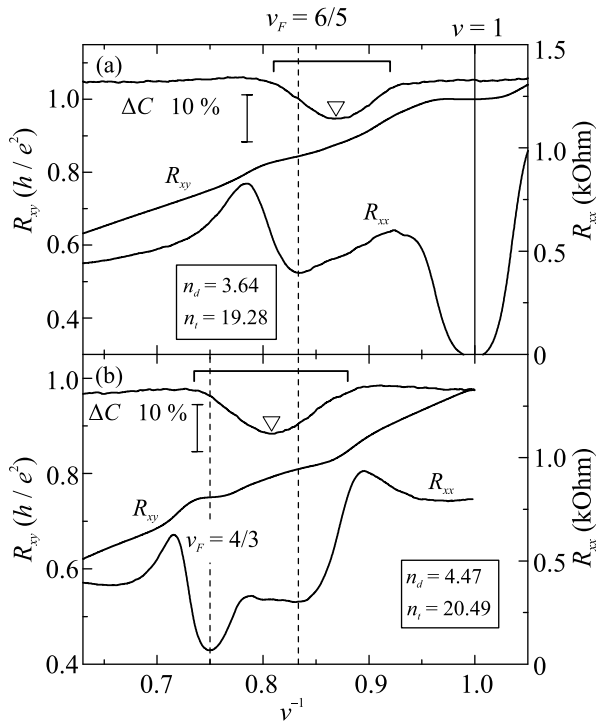


Рис. 4. Экспериментальные кривые, аналогичные приведенным на рис. 3, измеренные при $\Theta = 40^\circ$ и существенно меньших значениях плотности электронов n_d , при которых наблюдается состояние ДКЭХ на факторе заполнения $\nu_F = 6/5$ и может отсутствовать состояние с $\nu_F = 4/3$ (панель (a))

электронов (о минимумах в емкости между затворами и двухслойной ЭС подробнее см. работы [14, 15] и рис. 5). Этот результат иллюстрируется данными на рис. 3 и 4, полученными для каждого рисунка *одновременно* при одной развертке магнитного поля. Основными критериями появления того или иного состояния ДКЭХ является его попадание в область минимума в емкости и близость к центру этого минимума, отмеченному на рис. 3 и 4 треугольником. Так на рис. 3 смещение треугольника влево приводит к исчезновению правого минимума в магнетосопротивлении ($\nu_F = 5/4$) и появлению хорошо выраженного левого минимума ($\nu_F = 10/7$) при одновременном сохранении доминирующего центрального минимума ($\nu_F = 4/3$), ближайшего к положению треугольника. Справедливость сформулированных критериев подтверждается данными на рис. 4. В этом случае доминирующее на рис. 3 состояние при $\nu_F = 4/3$ не наблюдается, когда оказывается за пределами минимума (рис. 4a), и опять становится доминирующим (в этом случае по сравнению с состоянием $\nu_F = 6/5$, присутствующим на обеих панелях), когда попадает в эти пределы (рис. 4b).

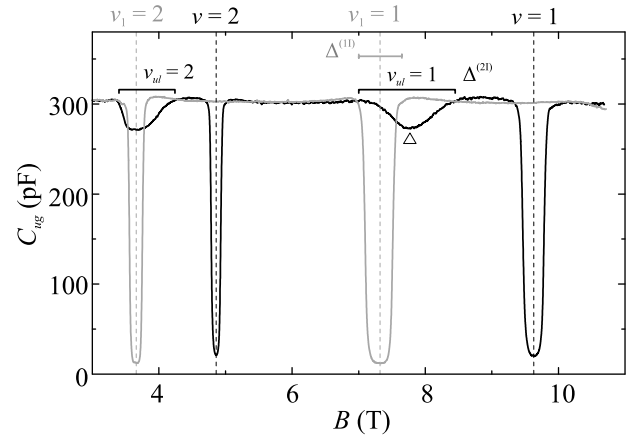


Рис. 5. Зависимости емкости C_{ug} между верхним затвором и ЭС от перпендикулярного магнитного поля в случаях заполнения только одного слоя (светлая кривая) и двух слоев (темная кривая). Глубокие минимумы в емкости соответствуют целочисленным факторам заполнения уровней Ландау всеми электронами системы. Их положения отмечены штриховыми вертикальными линиями со значениями полных факторов заполнения в однослойном (ν_1) и двухслойном (ν) состояниях. Отрезками с надписями $\nu_{ul} = 1$ и 2 показаны полные ширины минимумов в емкости, соответствующие указанным около них значениям факторов заполнения ν_{ul} в верхнем слое двухслойной ЭС. Треугольником отмечено положение экстремума в минимуме с $\nu_{ul} = 1$, соответствующем минимумам, представленным на рис. 3 и 4. Ширина этого минимума обозначена $\Delta^{(2l)}$. Для сравнения светлым горизонтальным отрезком представлена полная ширина $\Delta^{(1l)}$ минимума в емкости в однослойном состоянии при $\nu_1 = 1$

Обсудим теперь причину установленной корреляции между положениями минимумов в емкости и состояний ДКЭХ. Хорошо известно, что при увеличении магнитного поля и достижении любого целочисленного фактора заполнения химический потенциал двумерной электронной системы испытывает скачок вниз на более низкий уровень Ландау (спиновый подуровень в случае фактора заполнения единица). Это соответствует минимуму в сжимаемости электронной системы, проявляющемуся в минимуме квантовой добавки к емкости полевого транзистора с двумерной электронной системой [17, 18]. Дополнительный (и часто основной) вклад в амплитуду минимума в измеряемой емкости могут давать резистивные эффекты, связанные с большими временами изменения заряда двумерной ЭС в состоянии КЭХ вследствие малой величины ее диссипативной проводимости [19]. В случае двух слоев с разной плотностью электронов, находящихся в равновесии, такой скачок химического потенциала, происходящий

в одном из слоев, приводит к переходу электронов в этот слой из соседнего, поддерживая в нем целочисленное значение фактора заполнения. Такой эффект приводит к значительному уширению по магнитному полю соответствующих несжимаемых состояний в отдельном слое, наблюдавшемуся в образцах с двойными квантовыми ямами в работах [20–22] и получившему приведенное выше объяснение в работе [22]. Аналогичный эффект естественным образом присутствует и в изученных здесь образцах с двухслойной системой в широкой квантовой яме, как это демонстрирует рис. 5. На этом рисунке приведены емкостные кривые, измеренные между верхним затвором и ЭС при заполнении только верхнего слоя (светлая кривая) и заполнении двух слоев (темная кривая). На темной кривой присутствуют два типа минимумов. Глубокие минимумы соответствуют целочисленным значениям $\nu = 1$ и 2 факторов заполнения разрешенных по спину уровней Ландау всеми электронами двухслойной системы (полных факторов заполнения), а минимумы меньшей амплитуды – таким же значениям факторов заполнения ν_{ul} электронами верхнего слоя [22, 15]. Обе кривые измерены практически при одинаковой исходной плотности электронов в верхнем слое, что очевидно из совпадения положений минимумов в емкости, соответствующих фактору заполнения $\nu_1 = 2$ в однослойной системе и фактору заполнения $\nu_{ul} = 2$ в верхнем слое двухслойной системы. Так как однослойная система фактически образована верхним слоем электронов, единственное качественное различие между состояниями с одинаковыми значениями ν_1 и ν_{ul} состоит в существовании в последнем случае второго (нижнего) слоя электронов. Малая глубина минимумов в емкости при целочисленных ν_{ul} обусловлена экранировкой электрического поля затвора вторым слоем. Отметим также, что, как это было установлено экспериментально, резистивные эффекты дают заметный вклад в амплитуду глубоких минимумов в емкости и отсутствуют в области мелких минимумов. Ключевым обстоятельством для нашего анализа является значительная разница полной ширины глубоких и мелких минимумов, соответствующих одинаковым значениям факторов заполнения ν_1 и ν_{ul} . Так для данных на рис. 5 $\Delta^{(2l)}/\Delta^{(1l)} > 2$. Заметим также, что ширины минимумов на полных факторах заполнения ν меньше ширин минимумов на факторах ν_1 , имеющих такие же значения. Большая ширина мелких минимумов как раз обусловлена поддержанием целочисленного значения фактора заполнения в верхнем слое при изменении магнитного поля за счет перехода электронов из нижнего слоя. Таким об-

разом, в этом случае фактически реализуется КЭХ в системе с электронным резервуаром [23, 24], роль которого выполняет нижний слой с меньшей плотностью электронов. Относительное изменение плотности электронов в верхнем слое в пределах минимума с $\nu_{ul} = 1$ может быть оценено из следующего соотношения: $\Delta n_u/n_u \approx (\Delta^{(2l)} - \Delta^{(1l)})/\tilde{B}$, где \tilde{B} – магнитное поле в центре минимума. Такая оценка для данных на рис. 5 дает значение около 10%. Так как плотность электронов в нижнем слое в разы меньше, то относительное уменьшение плотности электронов в нем существенно больше, в результате чего в пределах одного минимума в емкости оказывается возможным достижение различных дробных факторов заполнения в нижнем слое, как это демонстрируют данные на рис. 3 и 4.

Следовательно, наблюдаемые нами в этой работе необычные состояния ДКЭХ естественно интерпретировать как комбинированные состояния КЭХ с фактором заполнения единица в верхнем слое и факторами заполнения $\nu_F - 1$ в нижнем слое. Таким образом, мы можем констатировать, что в нашем случае в слое меньшей плотности реализуются состояния ДКЭХ на факторах заполнения $1/3, 1/5, 3/7$ с нечетными знаменателями и факторе заполнения $1/4$. В рамках предложенного объяснения нетрудно вычислить величину изменения плотности электронов в слоях Δn , происходящего при развертке магнитного поля между двумя состояниями ДКЭХ на факторах заполнения ν_{F1} и ν_{F2} ($\nu_{F1} < \nu_{F2}$). Для верхнего слоя это изменение описывается формулой

$$\Delta n_u = e(B_n(\nu_{F1}) - B_n(\nu_{F2}))/hc = n_t(\nu_{F1}^{-1} - \nu_{F2}^{-1}), \quad (1)$$

где n_t – полная плотность электронов в ЭС. Для нижнего слоя $\Delta n_d = -\Delta n_u$. Так для данных на рис. 3 Δn_u составляет +5% от n_t для перехода между состояниями с $\nu_{F2} = 10/7$ и $\nu_{F1} = 4/3$ или $\nu_{F2} = 4/3$ и $\nu_{F1} = 5/4$. Так что сделанная выше оценка для изменения плотности электронов в слоях из величины уширения минимума в емкости только немного меньше величины, необходимой для реализации трех отмеченных состояний ДКЭХ, и вполне достаточна для наблюдения пар состояний, включающих состояние с $\nu_F = 4/3$. С другой стороны нетрудно оценить, что для реализации комбинированного состояния на факторе заполнения $\nu_F = 19/15 = 2/3 + 3/5$ при переходе из состояния $\nu_F = 4/3 = 1 + 1/3$ потребовалось бы гораздо большее перераспределение электронов между слоями, соответствующее $\Delta n_u = -(17/76)n_t \approx -0.22n_t$, что представляется нереальным в силу значительно меньших скачков хими-

ческого потенциала в состояниях ДКЭХ на факторах заполнения $2/3$ и $3/5$ по сравнению с фактором заполнения единица. Эта оценка дополнительно подтверждает сделанный нами вывод о наблюдении комбинированного состояния ДКЭХ именно на факторе заполнения $\nu_F = 5/4 = 1 + 1/4$. Для полноты картины отметим также увеличение плотности электронов в верхнем слое, происходящее на факторе заполнения $\nu_{ul} = 2$ (см. рис. 5), которое приводит к сдвигу вправо положения центра минимума $\nu_{ul} = 1$ относительно линии $\nu_1 = 1$.

Если существование состояний ДКЭХ с нечетными знаменателями является хорошо установленным результатом для однослойных ЭС, возникновение состояния с фактором заполнения $1/4$ в слое меньшей плотности должно быть связано с особыми обстоятельствами. На наш взгляд, таким обстоятельством в нашем случае может являться тот факт, что взаимодействие электронов нижнего слоя с электронами верхнего слоя оказывается более сильным, чем их внутрислойное взаимодействие. Так в комбинированном состоянии ДКЭХ на факторе заполнения $\nu_F = 5/4$ плотность электронов в нижнем (верхнем) слое $\tilde{n}_d = (1/5)n_t$ ($\tilde{n}_u = (4/5)n_t$). Тогда для данных, представленных на рис. 1, среднее расстояние между электронами в нижнем слое $a_{d-d} = 2(\pi\tilde{n}_d)^{-1/2} > 55$ нм, а среднее расстояние между электронами нижнего и верхнего слоев $a_{d-u} = \sqrt{d^2 + 4(\pi\tilde{n}_u)^{-1}} < 44$ нм. Здесь $d = 34$ нм – эффективное расстояние между слоями, определенное экспериментально (см. работу [14]).

Коснемся кратко вопроса о возможных причинах появления наблюдаемых состояний ДКЭХ именно в наклонном поле. Феноменологически, параллельная плоскости слоев компонента магнитного поля существенно изменяет связь между слоями. Такой эффект имеет место как в случае двойной квантовой ямы фиксированного профиля, так и в случае широкой квантовой ямы, где двухслойная система возникает в самосогласованном потенциале. В первом случае параллельная компонента магнитного поля уменьшает модули туннельных матричных элементов, связывающих уровни Ландау разных слоев (для ненулевых уровней Ландау эти матричные элементы, кроме того, осциллируют в функции магнитного поля) [25]. В случае когерентных межслоевых состояний параллельная компонента магнитного поля дополнительно приводит к латеральному изменению фазы [26], которое при большой величине этой компоненты может сформировать решетку солитонов [27]. Численные решения [28] для широкой квантовой ямы свидетельствуют об увеличении эф-

фективного расстояния между слоями за счет параллельного поля, а экспериментальные результаты, полученные в этой работе, указывают на переход между однослойно-подобным состоянием ЭС в перпендикулярном поле к двухслойному в наклонном. Здесь необходимо упомянуть, что в работе [15], выполненной в перпендикулярном магнитном поле, в зависимости от значений факторов заполнения было обнаружено существование как двухслойных, так и однослойно-подобных состояний в номинально двухслойной ЭС, а также индуцированные магнитным полем квантовые фазовые переходы между такими состояниями. Именно отмеченное изменение связи между слоями за счет параллельной слоям компоненты магнитного поля, на наш взгляд, и приводит к исчезновению состояний КЭХ на факторах заполнения единица и двойка и появлению наблюдаемых состояний ДКЭХ. Определение роли каждого из перечисленных возможных механизмов является задачей будущих исследований.

Таким образом, нами обнаружено радикальное изменение картины КЭХ, происходящее в образце с двухслойной электронной системой в широкой квантовой яме при наклоне магнитного поля и состоящее в исчезновении состояний целочисленного КЭХ и появлении состояний ДКЭХ в интервале факторов заполнения уровней Ландау между единицей и двойкой. Наблюдались дробные состояния как с нечетными, так и с четными знаменателями. Получены свидетельства, что обнаруженные состояния являются комбинированными состояниями целочисленного и ДКЭХ в разных слоях, реализующимися за счет перераспределения электронов между слоями. Отмечены особенности межслоевого и внутрислоевого кулоновского взаимодействия в исследованных образцах, имеющих сильно различающуюся плотность электронов в разных слоях.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № # 22-22-00753, <https://rscf.ru/project/22-22-00753/>.

1. G. S. Boebinger, H. W. Jiang, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, Phys. Rev. Lett. **64**, 1793 (1990).
2. Y. W. Suen, J. Jo, M. B. Santos, L. W. Engel, S. W. Hwang, and M. Shayegan, Phys. Rev. B **44**, 5947 (1991).
3. J. I. A. Li, Q. Shi, Y. Zeng, K. Watanabe, T. Taniguchi, J. Hone, and C. R. Dean, Nat. Phys. **15**, 898 (2019).
4. X. Liu, Z. Hao, K. Watanabe, T. Taniguchi, B. I. Halperin, and P. Kim, Nat. Phys. **15**, 893 (2019).
5. Y. W. Suen, L. W. Engel, M. B. Santos, M. Shayegan, and D. C. Tsui, Phys. Rev. Lett. **68**, 1379 (1992).

6. J. P. Eisenstein, G. S. Boebinger, L. N. Pfeiffer, K. W. West, and S. He, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1383 (1992).
7. D. R. Luhman, W. Pan, D. C. Tsui, L. N. Pfeiffer, K. W. Baldwin, and K. W. West, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 266804 (2008).
8. J. Shabani, T. Gokmen, and M. Shayegan, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 046805 (2009)
9. J. P. Eisenstein, *Ann. Rev. Condens. Matter Phys.* **5**, 159 (2014).
10. X. Liu, K. Watanabe, T. Taniguchi, B. I. Halperin, and P. Kim, *Nat. Phys.* **13**, 746 (2017).
11. J. I. A. Li, T. Taniguchi, K. Watanabe, J. Hone and C. R. Dean, *Nat. Phys.* **13**, 751 (2017).
12. H. C. Manoharan, Y. W. Suen, T. S. Lay, M. B. Santos, and M. Shayegan, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2722 (1997).
13. Y. Liu, S. Hasdemir, J. Shabani, M. Shayegan, L. N. Pfeiffer, K. W. West, and K. W. Baldwin, *Phys. Rev. B* **92**, 201101(R) (2015).
14. S. I. Dorozhkin, A. A. Kapustin, I. B. Fedorov, V. Umansky, K. von Klitzing, and J. H. Smet, *J. Appl. Phys.* **123**, 084301 (2018).
15. S. I. Dorozhkin, A. A. Kapustin, I. B. Fedorov, V. Umansky, and J. H. Smet, *Phys. Rev. B* **102**, 235307 (2020).
16. A. Sawada, Z. F. Ezawa, H. Ohno, Y. Horikoshi, A. Urayama, Y. Ohno, S. Kishimoto, F. Matsukura, and N. Kumada, *Phys. Rev. B* **59**, 14 888 (1999).
17. T. P. Smith, B. B. Goldberg, P. J. Stiles, and M. Heiblum, *Phys. Rev. B* **32**, 2696(R) (1985).
18. S. V. Kravchenko, V. M. Pudalov, and S. G. Semenchinsky, *Phys. Lett. A* **141**, 71 (1989).
19. С. И. Дорожкин, А. А. Пашкин, Н. Б. Житенев, В. Т. Долгополов, *Письма в ЖЭТФ* **44**, 189 (1986).
20. A. R. Champagne, A. D. K. Finck, J. P. Eisenstein, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, *Phys. Rev. B* **78**, 205310 (2008).
21. H. Deng, Y. Liu, I. Jo, L. N. Pfeiffer, K. W. West, K. W. Baldwin, and M. Shayegan, *Phys. Rev. B* **96**, 081102(R) (2017).
22. А. А. Капустин, С. И. Дорожкин, И. Б. Федоров, В. Уманский, Ю. Х. Смет, *Письма в ЖЭТФ* **110**, 407 (2019).
23. G. A. Baraff and D. C. Tsui, *Phys. Rev. B* **24**, 2274 (1981).
24. С. И. Дорожкин, *Письма в ЖЭТФ* **103**, 578 (2016).
25. J. Hu and A. H. MacDonald, *Phys. Rev. B* **46**, 12554 (1992).
26. K. Yang, K. Moon, L. Zheng, A. H. MacDonald, S. M. Girvin, D. Yoshioka, and S.-C. Zhangs, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 732 (1994).
27. C. B. Hanna, A. H. MacDonald, and S. M. Girvin, *Phys. Rev. B* **63**, 125305 (2001).
28. M. A. Mueed, D. Kamburov, L. N. Pfeiffer, K. W. West, K. W. Baldwin, and M. Shayegan, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 246801 (2016).

Квантовый алгоритм инвариантной оценки близости классических шифров к одноразовому блокноту

С. Н. Молотков¹⁾

Академия криптографии Российской Федерации, 121552 Москва, Россия

Институт физики твердого тела РАН, 42432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 5 октября 2022 г.

После переработки 10 ноября 2022 г.

Принята к публикации 17 ноября 2022 г.

Предложена инвариантная мера близости блочного шифра к совершенному (идеальному) шифру – одноразовому блокноту. Мера близости является инвариантной, не зависит от конкретной реализации одноразового блокнота – является одинаковой для любой реализации. Предложен квантовый алгоритм оценки близости блочного шифра к идеальному, в смысле предложенной меры. Квантовый алгоритм, основанный на определении собственного значения (фазы) квантового состояния, с высокой вероятностью и точностью позволяет оценить меру близости шифра к идеальному.

DOI: 10.31857/S1234567823010123, EDN: nvycqs

1. Введение. На сегодняшний день известно достаточно большое число квантовых алгоритмов для решения различных вычислительных задач и задач в криптографии [1–32]. Наиболее известными являются алгоритм Шора [2] – алгоритм разложения на простые множители составного числа и алгоритм Гровера [3] – алгоритм поиска в неструктурированной базе данных. Алгоритм Шора решает задачу вскрытия шифров в асимметричной криптографии.

Алгоритмы Шора и Гровера являются базовыми. Существует большое число новых задач [5–36], в которых, так или иначе используются данные базовые алгоритмы и их вариации, приспособленные для решения конкретной задачи.

Несмотря на большое разнообразие приложений квантовых алгоритмов существует базовый элемент квантовых алгоритмов, который делает их эффективными по сравнению с классическими алгоритмами.

Одним из таких общих элементов большего числа квантовых алгоритмов является квантовое преобразование Фурье, которое эффективно реализуется квантовыми схемами по сравнению с классическим случаем. В классической области преобразование Фурье используется при решении огромного количества задач в различных областях.

Говоря формально, любое вычисление, классическое или квантовое, сводится к вычислению некоторой содержательной булевой функции, содержа-

тельность которой определяется решаемой задачей. В квантовой области задача сводится к обратному вычислению некоторой булевой функции. Методы вычисления могут быть общими. Если удастся свести вычисление булевой функции к задаче определения периода, то задача может быть ускорена на квантовом вычислителе с использованием квантового преобразования Фурье.

Задача разложения числа на простые множители была сведена Шором к задаче нахождения периода, что позволило эффективно ее решать с помощью преобразования Фурье. Задача нахождения скрытой подгруппы [32] также может быть сведена к нахождению периода, что приводит к ее ускорению с использованием квантового преобразования Фурье. Подсчет числа элементов в некотором множестве [27, 37] также может быть сведено к нахождению периода функции, который определяется размером множества.

Нас будет интересовать задача о близости блочного шифра к совершенному шифру – одноразовому блокноту.

Близость блочного шифра к совершенному определяет стойкость ключей при их “проталкивании” по квантовым сетям [38], стойкость теоретико-информационной аутентификации ключей в квантовой криптографии [39], сложность поиска (трудоемкость поиска) ключей [40, 41], полученных в квантовой криптографии.

Близость блочного шифра к совершенному подразумевает использование некоторой меры (метри-

¹⁾e-mail: sergei.molotkov@gmail.com

ки) близости, которая не зависит от конкретной реализации одноразового блокнота – совершенного шифра.

В работе предлагается инвариантная метрика близости, не зависящая от конкретной реализации одноразового блокнота.

Будет показано, что вычисление данных инвариантов может быть сведено к нахождению периода некоторой булевой функции, период которой определяется инвариантами шифра, что позволяет использовать квантовое преобразование Фурье, которое эффективно реализуется квантовой схемой и используется, как упоминалось выше, в различных задачах (например, [3, 5, 27, 36, 37]).

2. Определение инвариантов. Пусть задана функция двух аргументов $c(k, m)$ – алгоритм шифрования. Пусть имеется множество открытых текстов $M = \{0, 1\}^M$, множество ключей $K = \{0, 1\}^n$ и множество шифр-текстов $C = \{0, 1\}^M$. Алгоритм шифрования – блочный шифр $c(k, m)$ ($k \in K, m \in M, c \in C$), реализующий отображение $K \times M \rightarrow C : \{0, 1\}^n \times \{0, 1\}^M \rightarrow \{0, 1\}^M$.

Ниже нас будет интересовать случай, когда длина сообщения равна длине ключа, такая ситуация возникает при проталкивании внешнего ключа посредством его шифрования на “квантовых ключах” в квантовых сетях.

Эталоном шифрования – идеальным шифром является шифрование в режиме одноразового блокнота. В этом случае, для любого сообщения m при пробегании ключом шифрования k_i всего множества ключей K , шифр-текст $c(k_i, m)$ пробегает однократно все множество шифр-текстов C .

Шифрование в режиме одноразового блокнота было независимо открыто Вернамом [34], Котельниковым [35] и Шенноном [36]. При таком шифровании ключ, случайная битовая строка, известная только легитимным пользователям, используется однократно и его длина в битах не менее длины открытого текста. В этом случае шифр-текст, доступный подслушивателю, который не знает ключа, является статистически независимым от открытого сообщения.

Аналогично, для любого ключа k при пробегании сообщением m_i всего множества открытых текстов M , шифр-текст $c(k, m_i)$ пробегает однократно все множество шифр-текстов C .

Для блочных шифров, функция шифрования $c(k, m)$ всегда выбирается таким образом, чтобы она не имела никакой скрытой внутренней структуры.

Одним из свойств, определяющих стойкость классических блочных шифров, является число коллизий. Под коллизией ниже понимаем следующее. Кол-

лизия на заданном открытом тексте m , это совпадение шифр-текстов, полученных при шифровании одного и того же открытого текста на разных ключах: $c(k_1, m) = c(k_2, m)$.

Ни для одного серьезного блочного шифра число коллизий неизвестно.

Почему важно уметь оценивать число коллизий?

Отметим, сразу, что инвариант, связанный с коллизиями лишь один из восьми возможных. Именно на нем сосредоточимся, остальные вычисляются аналогично.

Пусть открытый текст задан. Коллизии в блочных шифрах неизбежно возникают из-за того, что при одном и том же открытом тексте, зашифрованным на разных ключах, шифр-текст отображается не на все множество C , а лишь на некоторое подмножество. Сказанное поясняется рис. 1а, б.

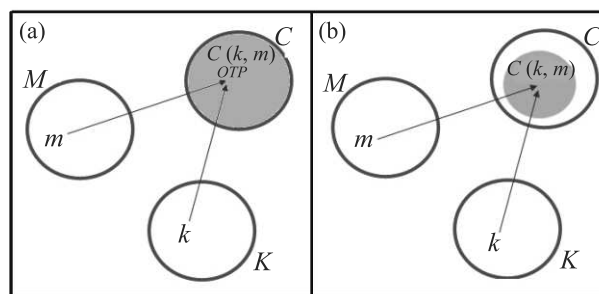


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематическое изображение множеств (инвариантов) шифр-текстов для: (а) – любой реализации шифрования одноразовым блокнотом $C_{OTP}(k, m)$ (ОТП сокращение от One Time Pad); (б) – блочным шифром $c(k, m)$

Чем больше коллизий, тем шифр является менее стойким, поскольку, например, при известной атаке известный открытый текст и шифр-текст $(m, c(k, m))$ достаточно найти не единственный ключ, а любой ключ из множества ключей, которые удовлетворяют условию $c = c(k, m)$, что уменьшает число опробованных ключей.

Возможны различные меры близости блочного шифра к идеальному. Ниже за меру близости блочного шифра к идеальному выберем близость размера определенных множеств к размеру соответствующих множеств для совершенного шифра (см. детали ниже). Как известно, что одноразовый блокнот может быть реализован множеством способов, например, при помощи латинских квадратов.

При таком выборе меры близости, размеры множеств для совершенного шифра не зависят от конкретной реализации одноразового блокнота – являются инвариантами. Далее для кратко-

сти такие множества будем называть инвариантами. При таком выборе меры близости – вычисления размера множеств (инвариантов) блочного шифра не требуется апелляция к конкретной реализации одноразового блокнота.

Все реализации одноразового блокнота являются структурно одинаковыми, поэтому размеры данных множеств являются инвариантными – не зависят от конкретной реализации одноразового блокнота.

Размеры данных множеств для одноразового блокнота являются эталонными. Для блочного шифра, чем размеры множеств ближе к соответствующим размерам множеств для одноразового блокнота, тем шифр ближе к идеальному. Далее для краткости будем называть размеры множеств инвариантами. Забегая вперед, отметим, что при вычислении квантовым алгоритмом размеров множеств для блочного шифра не требуется апелляция к одноразовому блокноту. Размеры множеств вычисляются исходя только из функции шифрования блочного шифра $c(k, m)$, а затем сравниваются размеры множеств с соответствующими эталонными инвариантами для одноразового блокнота.

Более формально, задача сводится к оценке размера следующих множеств:

$$\begin{aligned}
& |0, 0, 0| = \tag{1} \\
& = \sum_{k_1 \in \mathcal{K}} \sum_{k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1 \in \mathcal{M}} \sum_{m_2 \in \mathcal{M}} \delta_{k_1, k_2} \delta_{m_1, m_2} \delta_{c(k_1, m_1), c(k_2, m_2)}, \\
& |0, \neq 0, 0| = \\
& = \sum_{k_1 \in \mathcal{K}} \sum_{k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1 \in \mathcal{M}} \sum_{m_2 \in \mathcal{M}} \delta_{k_1, k_2} (1 - \delta_{m_1, m_2}) \times \\
& \quad \times \delta_{c(k_1, m_1), c(k_2, m_2)}, \\
& |0, \neq 0, \neq 0| = \\
& = \sum_{k_1 \in \mathcal{K}} \sum_{k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1 \in \mathcal{M}} \sum_{m_2 \in \mathcal{M}} \delta_{k_1, k_2} (1 - \delta_{m_1, m_2}) \times \\
& \quad \times (1 - \delta_{c(k_1, m_1), c(k_2, m_2)}), \\
& |\neq 0, 0, 0| = \\
& = \sum_{k_1 \in \mathcal{K}} \sum_{k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1 \in \mathcal{M}} \sum_{m_2 \in \mathcal{M}} (1 - \delta_{k_1, k_2}) \times \\
& \quad \times \delta_{m_1, m_2} \delta_{c(k_1, m_1), c(k_2, m_2)}, \\
& |\neq 0, 0, \neq 0| = \\
& = \sum_{k_1 \in \mathcal{K}} \sum_{k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1 \in \mathcal{M}} \sum_{m_2 \in \mathcal{M}} (1 - \delta_{k_1, k_2}) \times \\
& \quad \times \delta_{m_1, m_2} (1 - \delta_{c(k_1, m_1), c(k_2, m_2)}), \\
& |\neq 0, \neq 0, 0| =
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& = \sum_{k_1 \in \mathcal{K}} \sum_{k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1 \in \mathcal{M}} \sum_{m_2 \in \mathcal{M}} (1 - \delta_{k_1, k_2}) \times \\
& \quad \times (1 - \delta_{m_1, m_2}) \delta_{c(k_1, m_1), c(k_2, m_2)}, \\
& |\neq 0, \neq 0, \neq 0| = \\
& = \sum_{k_1 \in \mathcal{K}} \sum_{k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1 \in \mathcal{M}} \sum_{m_2 \in \mathcal{M}} (1 - \delta_{k_1, k_2}) (1 - \delta_{m_1, m_2}) \times \\
& \quad \times (1 - \delta_{c(k_1, m_1), c(k_2, m_2)}), \\
& |0, 0, \neq 0| = \\
& = \sum_{k_1 \in \mathcal{K}} \sum_{k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1 \in \mathcal{M}} \sum_{m_2 \in \mathcal{M}} \delta_{k_1, k_2} \delta_{m_1, m_2} \times \\
& \quad \times (1 - \delta_{c(k_1, m_1), c(k_2, m_2)}).
\end{aligned}$$

Здесь введены обозначения, $|i, j, k|$ – размер множества ($i, j, k = 0, \neq 0$), индексы $i = 0/ \neq 0$ означают, что ключи шифрования равны/не равны ($k_1 = k_2/k_1 \neq k_2$), $j = 0/ \neq 0$ – открытые тексты ($m_1 = m_2/m_1 \neq m_2$) совпадают/не совпадают, индекс $k = 0/ \neq 0$ – шифр-тексты $c_1 = c(k_1, m_1) = c_2(k_2, m_2)/c_1 = c(k_1, m_1) \neq c_2 = c(k_2, m_2)$ совпадают/не совпадают.

Для шифров размеры некоторых множеств тождественно равны нулю: $|0, \neq 0, 0| \equiv 0$, так как открытые тексты зашифрованные на одном и том же ключе имеют разные шифр-тексты – условие однозначного расшифрования; $|0, 0, \neq 0| \equiv 0$, так как одинаковые открытые тексты, зашифрованные на одном и том же ключе не могут иметь разные шифр-тексты.

3. Постановка задачи. Любой квантовый алгоритм состоит из трех стадий: приготовление входного состояния, специально подобранная унитарная эволюция (собственно “вычисление”), получение результата вычисления – измерение квантового состояния. Измерение результата носит вероятностный характер.

Для вычисления каждого инварианта используется свой алгоритм. Все алгоритмы однотипны. каждый алгоритм дает оценку следующих вероятностей,

$$\begin{aligned}
& \Pr\{0, 0, 0\}, \quad \Pr\{0, \neq 0, 0\}, \\
& \Pr\{0, \neq 0, \neq 0\}, \quad \Pr\{\neq 0, 0, 0\}, \\
& \Pr\{\neq 0, \neq 0, 0\}, \quad \Pr\{\neq 0, \neq 0, 0\}, \\
& \Pr\{\neq 0, \neq 0, \neq 0\}, \quad \Pr\{0, 0, \neq 0\},
\end{aligned} \tag{2}$$

которые с точностью до множителя $|\mathcal{K}||\mathcal{M}|$ равны размерам множеств (1).

Поскольку алгоритмы однотипны, то проведем рассмотрение оценки размера множества, например,

$|\neq 000\rangle$. Для одноразового блокнота данный инвариант равен 0, поскольку одно и то же сообщение m , зашифрованное на разных ключах, не может иметь совпадающих шифр-текстов. Для блочных шифров возможны коллизии, т.е. размер $|\neq 000\rangle$ не будет равен 0. Чем больше уклонение от 0, тем блочный шифр будет хуже – дальше от одноразового блокнота.

Прямое вычисление инвариантов (1) на классическом вычислителе представляет собой переборную задачу.

Квантовый алгоритм оценивает инварианты не напрямую, а через оценку фазы квантового состояния.

Алгоритм состоит из следующих шагов.

- 1) Приготовление входного состояния, представляющего собой две копии суперпозиций всех состояний ключей и открытых сообщений.
- 2) Вычисление двух независимых копий функций шифрования для суперпозиции состояний ключей и сообщений.
- 3) Выделение унитарным преобразованием внутри суперпозиции компонент, отвечающих вычисляемому инварианту.
- 4) Фазовое унитарное преобразование состояния.
- 5) Вычисление квантового преобразования Фурье от состояния.
- 6) Измерение состояния – получение оценки инварианта.
- 7) Оценка точности вычисляемого инварианта.

4. Описание алгоритма.

1) *Приготовление входного состояния.* Входным состоянием являются две независимые копии состояний, являющиеся произведением двух состояний – первое состояние суперпозиция всех ключей, второе – суперпозиция всех открытых сообщений,

$$\begin{aligned} (k_1, k_2, \dots, k_n) &\rightarrow \frac{1}{\sqrt{|\mathcal{K}|}} \sum_{k \in \mathcal{K}} |\bar{k}\rangle = \\ &= \sum_{k \in \mathcal{K}} |k_1\rangle \otimes |k_2\rangle \otimes \dots \otimes |k_n\rangle, \\ k_i &= 0, 1, \quad i = 1, \dots, n, \quad |\mathcal{K}| = 2^n, \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} (m_1, m_2, \dots, m_M) &\rightarrow \frac{1}{\sqrt{|\mathcal{M}|}} \sum_{m \in \mathcal{M}} |\bar{m}\rangle = \\ &= \sum_{m \in \mathcal{M}} |m_1\rangle \otimes |m_2\rangle \otimes \dots \otimes |m_n\rangle, \\ m_i &= 0, 1, \quad i = 1, \dots, M, \quad |\mathcal{M}| = 2^M. \end{aligned} \quad (4)$$

Для блочного шифра длина сообщения может отличаться от длины ключа и обычно больше. В квантовых сетях при продвижении внешнего ключа через

сегменты сети с квантовым распределением ключей возникает необходимость шифрования внешнего ключа на “квантовых” ключах на отдельных сегментах сети [37]. В этом случае длина сообщения – внешнего ключа равна длине ключа шифрования. При шифровании одноразовым блокнотом сохраняется так называемая “составная секретность” продвигаемого ключа [37].

Имея ввиду упомянутую задачу, ниже считаем, что длина открытого текста совпадает с длиной ключа, соответственно, $|\mathcal{M}| = |\mathcal{K}|$ ($M = n$). Общий случай требует несколько большего места и будет рассмотрен отдельно.

Состояния приготавливаются посредством поворота Адамара H регистра состояний из n кубитов, находящихся изначально в состоянии 0,

$$\begin{aligned} |0\rangle_K^{\otimes n} &\rightarrow H^{\otimes n} |0\rangle_K^{\otimes n} = \left(\frac{|0\rangle_K + |1\rangle_K}{\sqrt{2}} \right)^{\otimes n}, \\ |0\rangle_M^{\otimes M} &\rightarrow H^{\otimes M} |0\rangle_M^{\otimes M} = \left(\frac{|0\rangle_M + |1\rangle_M}{\sqrt{2}} \right)^{\otimes M}. \end{aligned} \quad (5)$$

Далее приготавливается еще одна копия состояний (3), (4). Окончательно входное состояние для алгоритма принимает вид

$$\begin{aligned} |\Psi_1\rangle &= \frac{1}{\sqrt{|\mathcal{M}|}} \sum_{k_1, k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1, m_2 \in \mathcal{M}} |\bar{k}_1, \bar{k}_2 \bar{m}_1, \bar{m}_2\rangle, \quad (6) \\ |\bar{k}_1, \bar{k}_2 \bar{m}_1, \bar{m}_2\rangle &= |\bar{k}_1\rangle \otimes |\bar{k}_2\rangle \otimes |\bar{m}_1\rangle \otimes |\bar{m}_2\rangle, \\ \sqrt{|\mathcal{N}|} &= |\mathcal{K}| |\mathcal{M}| \end{aligned}$$

2) *Вычисление функции шифрования для блочного шифра.* Зашифрование реализуется при помощи операторов U_{C_1} и U_{C_2} ²⁾, которые реализуются квантовой схемой. Схемы получают входные квантовые состояния ключей и открытых текстов, на выходе

²⁾Для унитарной реализации функции шифрования требуются дополнительные “мусорные” кубиты, которые изначально находятся в состоянии 0, после вычисления функции опять возвращаются в исходное нулевое состояние (см. детали общего метода очистки мусорных кубитов в [32]). По этой причине данные вспомогательные кубиты из экономии места далее опускаем. Число вспомогательных кубитов зависит от используемой функции шифрования. Оценки для ряда шифров различаются, разные оценки показывают, что число вспомогательных кубитов при одном обращении к квантовой схеме, реализующей шифрование, полиномиально по длине ключа n [12]. При длине сообщения больше длины ключа, сообщения шифруются блоками. Пусть число блоков N_c , при этом число обращений к квантовой схеме также будет N_c , т.е. линейно по числу блоков, при этом число вспомогательных кубитов не растет с числом блоков – длины сообщения, поскольку вспомогательные кубиты после каждого обращения “обнуляются” и используются повторно.

возникает зашифрованное сообщение, которое записывается в два дополнительных регистра $|0\rangle_{C_1}^{\otimes M}$ и $|0\rangle_{C_2}^{\otimes M}$ из M кубитов, находящихся изначально в нулевом состоянии. В итоге возникает новое квантовое состояние

$$\begin{aligned} |\Psi_2\rangle &= (U_{C_1} \otimes U_{C_2})(|\Psi_1\rangle \otimes |0\rangle_{C_1} \otimes |0\rangle_{C_2}) = \\ &= \frac{1}{\sqrt{|\mathcal{M}|}} \sum_{k_1, k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1, m_2 \in \mathcal{M}} |\bar{k}_1, \bar{k}_2, \bar{m}_1, \bar{m}_2, \bar{c}_1, \bar{c}_2\rangle, \quad (7) \\ |\bar{k}_1, \bar{k}_2, \bar{m}_1, \bar{m}_2, \bar{c}_1, \bar{c}_2\rangle &= |\bar{k}_1, \bar{k}_2, \bar{m}_1, \bar{m}_2\rangle \otimes |\bar{c}_1, \bar{c}_2\rangle, \\ |\bar{c}_1, \bar{c}_2\rangle &= (|c(k_{1_1}, m_{1_1})\rangle \otimes \dots \otimes |c(k_{1_n}, m_{1_n})\rangle) \otimes \\ &\quad \otimes (|c(k_{2_1}, m_{2_1})\rangle \otimes \dots \otimes |c(k_{2_n}, m_{2_n})\rangle). \end{aligned}$$

3) *Выделение унитарным преобразованием внутри суперпозиции компонент, отвечающих вычисляемому инварианту.* Для определенности вычисления проводятся для инварианта $|\neq 000\rangle$. Вычисления для остальных проводятся аналогично. Для вычисления требуется выделить в суперпозиции состояний в (7) две компоненты. Первая компонента содержит состояния с неравными ключами $k_1 \neq k_2$, равными сообщениями $m_1 = m_2$ и равными шифр-текстами $c(k_1, m_1) = c(k_2, m_2)$. Вторая компонента в суперпозиции содержит все остальные компоненты.

Такое выделение должно быть сделано при помощи унитарного преобразования, при таком выделении никакой информации получить нельзя – состояние не “портится”.

Идея выделения состоит в использовании булевой функции

$$\begin{aligned} \mathcal{F}(\bar{k}_1, \bar{k}_2, \bar{m}_1, \bar{m}_2, \bar{c}_1, \bar{c}_2) &= \\ &= \begin{cases} 1, & \bar{k}_1 \neq \bar{k}_2, \quad \bar{m}_1 = \bar{m}_2, \quad \bar{c}_1 = \bar{c}_2, \\ 0, & \text{для других значений аргументов.} \end{cases} \quad (8) \end{aligned}$$

В зависимости от того, какой инвариант нужно вычислить, выбирается соответствующая булева функция – функция, которая имеет значение 1 на выбранном множестве аргументов, отвечающих инварианту, и равная 0 при остальных значениях аргументов.

Вычисляемая булевая функция может быть реализована обратимым образом – унитарным преобразованием с использованием вспомогательных “мусорных” состояний, которые изначально находятся в нулевом состоянии $|0\rangle_G$, и после преобразования возвращаются в исходное состояние (см. детали обратной реализации булевых функций в [36]). Значение булевой функции записывается в регистр $|0\rangle_{\mathcal{F}}$. Унитарный оператор обозначим $U_{\mathcal{F}}$.

$$|\Psi_3\rangle = U_{\mathcal{F}}(|\Psi_2\rangle \otimes |0\rangle_{\mathcal{F}} \otimes |0\rangle_G) = \quad (9)$$

$$\begin{aligned} &= \frac{1}{\sqrt{|\mathcal{M}|}} \left(\sum_{k_1, k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1, m_2 \in \mathcal{M}} (1 - \delta_{\bar{k}_1, \bar{k}_2}) \delta_{\bar{m}_1, \bar{m}_2} \delta_{\bar{c}_1, \bar{c}_1} |\bar{k}_1, \bar{k}_2, \bar{m}_1, \bar{m}_2, \bar{c}_1, \bar{c}_2\rangle \right) \otimes |1\rangle_{\mathcal{F}} \otimes |0\rangle_G + \\ &+ \frac{1}{\sqrt{|\mathcal{M}|}} \left(\sum_{k_1, k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1, m_2 \in \mathcal{M}} [1 - (1 - \delta_{\bar{k}_1, \bar{k}_2}) \delta_{\bar{m}_1, \bar{m}_2} \delta_{\bar{c}_1, \bar{c}_1}] |\bar{k}_1, \bar{k}_2, \bar{m}_1, \bar{m}_2, \bar{c}_1, \bar{c}_2\rangle \right) \otimes |0\rangle_{\mathcal{F}} \otimes |0\rangle_G. \end{aligned}$$

В первом слагаемом в сумме фигурируют значения аргументов $(\bar{k}_1, \bar{k}_2, \bar{m}_1, \bar{m}_2, \bar{c}_1, \bar{c}_2)$ такие, что $\mathcal{F}(\bar{k}_1, \bar{k}_2, \bar{m}_1, \bar{m}_2, \bar{c}_1, \bar{c}_2) = 1$. Во втором слагаемом в сумме фигурируют значения аргументов такие, что $\mathcal{F}(\bar{k}_1, \bar{k}_2, \bar{m}_1, \bar{m}_2, \bar{c}_1, \bar{c}_2) = 0$.

Заметим, что квадрат модуля амплитуды первого слагаемого как раз равен $\text{Pr}\{\neq 000\}$ (см. (2)).

Для дальнейшего удобно записать состояние (9) в более кратком и удобном виде, вводя нормированные состояния,

$$|\Psi_3\rangle = \sin(\theta)|OK, 1\rangle + \cos(\theta)|\neq OK, 0\rangle, \quad (10)$$

$$|OK, 1\rangle = \frac{1}{\sqrt{\text{Pr}\{\neq 000\}}} \left(\sum_{k_1, k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1, m_2 \in \mathcal{M}} (1 - \delta_{\bar{k}_1, \bar{k}_2}) \delta_{\bar{m}_1, \bar{m}_2} \delta_{\bar{c}_1, \bar{c}_1} |\bar{k}_1, \bar{k}_2, \bar{m}_1, \bar{m}_2, \bar{c}_1, \bar{c}_2\rangle \right) \otimes |1\rangle_{\mathcal{F}} \otimes |0\rangle_G, \quad (11)$$

$$|\neq OK, 0\rangle = \frac{1}{\sqrt{1 - \text{Pr}\{\neq 000\}}} \left(\sum_{k_1, k_2 \in \mathcal{K}} \sum_{m_1, m_2 \in \mathcal{M}} [1 - (1 - \delta_{\bar{k}_1, \bar{k}_2}) \delta_{\bar{m}_1, \bar{m}_2} \delta_{\bar{c}_1, \bar{c}_1}] |\bar{k}_1, \bar{k}_2, \bar{m}_1, \bar{m}_2, \bar{c}_1, \bar{c}_2\rangle \right) \otimes |0\rangle_{\mathcal{F}} \otimes |0\rangle_G, \quad (12)$$

$$\sin^2(\theta) = \text{Pr}\{\neq 000\} = \frac{|\neq 000|}{|\mathcal{N}|}.$$

Квадрат амплитуды, интересующего нас состояния, $\sin^2(\theta)$ напрямую связан с инвариантом. Сама фаза θ неизвестна. Дальнейшая задача будет состоять в оценке фазы θ .

4) *Фазовое унитарное преобразование состояния – оценка фазы состояния.* Первое преобразование состоит в изменении знака в состоянии (10) перед компонентой $|OK, 1\rangle$. Изменение фазы производится унитарным оператором $U_\pi = \sigma_Z$ – оператором Паули, который действует только на состояния $|1\rangle_{\mathcal{F}}, |0\rangle_{\mathcal{F}}$, на остальные – действие тождественное, имеем

$$|\Psi_4\rangle = U_\pi|\Psi_3\rangle = -\sin(\theta)|OK, 1\rangle + \cos(\theta)|\neq OK, 0\rangle. \quad (13)$$

Все преобразования происходят в пространстве, натянутом на ортогональные базисные векторы $\{|OK, 1\rangle, |\neq OK, 0\rangle\}$. Далее удобно ввести другие ортогональные базисные векторы $\{|\Psi\rangle, |\Psi^\perp\rangle\}$ ($|\Psi\rangle$ – исходное состояние), которые связаны с предыдущими векторами соотношением

$$\begin{aligned} |\Psi\rangle &= \sin(\theta)|OK, 1\rangle + \cos(\theta)|\neq OK, 0\rangle, \\ |\Psi^\perp\rangle &= \cos(\theta)|OK, 1\rangle - \sin(\theta)|\neq OK, 0\rangle. \end{aligned} \quad (14)$$

С учетом (10), (14) состояние $|\Psi_4\rangle$ в (13) после изменения знака фазы представляется как

$$|\Psi_4\rangle = \cos(2\theta)|\Psi\rangle - \sin(2\theta)|\Psi^\perp\rangle. \quad (15)$$

Следующее преобразование – отражение состояния $|\psi_4\rangle$ относительно среднего, как в алгоритме Гровера. Преобразование реализуется унитарным оператором $U_\perp = (2|\Psi\rangle\langle\Psi| - I)$ (I – единичный оператор в пространстве, натянутом на базисные векторы $\{|\Psi\rangle, |\Psi^\perp\rangle\}$), получаем

$$\begin{aligned} U_\perp|\Psi_4\rangle &= (2|\Psi\rangle\langle\Psi| - I)(\cos(2\theta)|\Psi\rangle - \sin(2\theta)|\Psi^\perp\rangle) = \\ &= \cos(2\theta)|\Psi\rangle - \sin(2\theta)|\Psi^\perp\rangle = \\ &= \sin(3\theta)|OK, 1\rangle + \cos(3\theta)|\neq OK, 0\rangle. \end{aligned} \quad (16)$$

Отметим, что значение фазы θ неизвестно при всех преобразованиях выше – квантовое состояние не “портится”.

Введем обозначение $Q = U_\perp U_\pi$. Далее, с учетом (13)–(16), находим

$$\begin{aligned} Q^k(\sin(\theta)|OK, 1\rangle + \cos(\theta)|\neq OK, 0\rangle) &= \\ = \sin[(2k+1)\theta]|OK, 1\rangle + \cos([(2k+1)\theta])|\neq OK, 0\rangle. \end{aligned} \quad (17)$$

Исходное состояние (10) ($|\Psi\rangle = \sin(\theta)|OK, 1\rangle + \cos(\theta)|\neq OK, 0\rangle$) до фазовых преобразований удобно

записать через собственные состояния $|\Psi_\pm\rangle$ оператора Q с собственными числами $e^{\pm i2\theta}$,

$$\begin{aligned} |\Psi_-\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|OK, 1\rangle + i|OK, 0\rangle), \\ |\Psi_+\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|OK, 1\rangle - i|OK, 0\rangle), \end{aligned} \quad (18)$$

с учетом (10)–(16) находим

$$|\Psi\rangle = \frac{e^{i\theta}}{\sqrt{2}}|\Psi_+\rangle + \frac{e^{-i\theta}}{\sqrt{2}}|\Psi_-\rangle, \quad (19)$$

$$Q|\Psi_\pm\rangle = e^{\pm i2\theta}|\Psi_\pm\rangle. \quad (20)$$

5) *Вычисление квантового преобразования Фурье от состояния.* Следующий шаг квантового алгоритма состоит в реализации квантового преобразования Фурье от состояния (17). Для этого вводится дополнительный вспомогательный регистр из L кубитов, находящихся в однородной суперпозиции всех состояний, аналогичный суперпозиции (3), (4),

$$\begin{aligned} |\bar{\ell}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{|\mathcal{L}|}} \sum_{\ell \in \mathcal{L}} |\ell\rangle, \quad \ell = (\ell_1, \ell_2, \dots, \ell_L), \\ \ell_i &= 0, 1, \quad i = 1, \dots, L, \quad |\mathcal{L}| = 2^L. \end{aligned}$$

Длина регистра L будет определять точность оценки инварианта.

Введем, следуя [27] (см. также [32]), унитарный оператор $\Lambda(Q)$, действие которого на вспомогательный регистр и наше состояние (19), определим как

$$\Lambda(Q)(|\ell\rangle \otimes |\Psi\rangle) = |\ell\rangle \otimes Q^\ell |\Psi\rangle. \quad (21)$$

Для собственных функций (18) действие оператора сводится к

$$\Lambda(Q)(|\ell\rangle \otimes |\Psi_\pm\rangle) = e^{\pm i2\theta\ell}(|\ell\rangle \otimes |\Psi_\pm\rangle), \quad (22)$$

в формуле (22) в показателе экспоненты l равно целому числу, отвечающему бинарному представлению строки $\ell = (\ell_1, \dots, \ell_L)$.

С учетом (18)–(22) находим

$$\begin{aligned} \Lambda(Q)(|\bar{\ell}\rangle \otimes |\Psi\rangle) &= \\ = \frac{1}{\sqrt{|\mathcal{L}|}} \sum_{\ell \in \mathcal{L}} |\ell\rangle \left(e^{i2\theta\ell} \frac{e^{i\theta}}{\sqrt{2}} |\Psi_+\rangle + e^{-i2\theta\ell} \frac{e^{-i\theta}}{\sqrt{2}} |\Psi_-\rangle \right). \end{aligned} \quad (23)$$

Здесь, как и выше, ℓ в экспоненте – целое число, угол θ – вещественное число.

Как видно из (23), оператор $\Lambda(Q)$ выполняет условное (управляемое) квантовое преобразование Фурье, которое реализуется полиномиальными ресурсами (см. детали, например, в [32]).

Состояния $|\Psi_{\pm}\rangle$ “отвязаны” от регистра ℓ .

Далее выполняется обратное квантовое преобразование Фурье (QFT^{-1}) над вспомогательным регистром. Имеем

$$\begin{aligned} \frac{1}{\sqrt{|\mathcal{L}|}} \sum_{n \in \mathcal{L}} \varphi_n^{\pm} |n\rangle &= QFT^{-1} \left(\frac{1}{\sqrt{|\mathcal{L}|}} \sum_{\ell \in \mathcal{L}} \varphi_{\ell}^{\pm} |\ell\rangle \right) = \\ &= QFT^{-1} \left(\frac{1}{\sqrt{|\mathcal{L}|}} \sum_{\ell \in \mathcal{L}} e^{\pm i 2\theta \ell} |\ell\rangle \right), \end{aligned} \quad (24)$$

где $\varphi_{\ell}^{\pm} = e^{\pm i 2\theta \ell}$ и φ_n^{\pm} – амплитуды состояний в базе $\{|\ell\rangle\}$ и базе $\{|n\rangle\}$ после преобразования Фурье, $n = (n_1, \dots, n_L)$. Амплитуды φ_n^{\pm} состояния в базе $\{|n\rangle\}$ после фурье-преобразования имеют вид

$$\begin{aligned} \varphi_n^{\pm} &= \frac{1}{\sqrt{|\mathcal{L}|}} \sum_{\ell \in \mathcal{L}} \varphi_{\ell}^{\pm} \exp \left(i \frac{2\pi \ell n}{|\mathcal{L}|} \right) = \\ &= \frac{1}{\sqrt{|\mathcal{L}|}} \sum_{\ell \in \mathcal{L}} \exp \left(i \left(\frac{2\pi n}{|\mathcal{L}|} \pm 2\theta \right) \ell \right), \end{aligned} \quad (25)$$

здесь так же, как и в (22) n, ℓ в показателе экспоненты – целые числа, отвечающие бинарному представлению состояния $|n\rangle, |\ell\rangle$.

Отметим, что все предыдущие преобразования являются унитарными – не “портят” состояния и не требуют знания угла θ (соответственно, инварианта, см. формулы (1), (2)).

6) Измерение состояния – получение оценки инварианта. На заключительном этапе работы алгоритма производятся измерения в базе $\{|n\rangle\}$. Вероятность результата измерения равна квадрату модуля амплитуды $|\varphi_n^{\pm}|^2$ в (25).

Результатом измерения в базе $\{|n\rangle\}$ является бинарное представление целого числа n . Данное число входит в оценку угла θ .

На уровне физической интуиции ясно, что максимальная вероятность результата измерения возникает для тех фурье-компонент, у которых показатель экспоненты близок к нулю, при этом квадрат модуля амплитуды и вероятность соответствующего исхода n , близки к единице. Таким образом, для оценки фазы получаем

$$\frac{2\pi n}{|\mathcal{L}|} \approx 2\theta, \quad \theta \approx \frac{\pi n}{|\mathcal{L}|}. \quad (26)$$

Оценка угла дает оценку инварианта, с учетом (12), находим

$$|\neq 000\rangle \approx \sin^2 \left(\frac{\pi n}{|\mathcal{L}|} \right) |\mathcal{N}|. \quad (27)$$

7) Оценка точности инварианта. Фаза θ является вещественным числом, которое аппроксимируется конечным набором значений n $0 \leq \frac{\pi n}{|\mathcal{L}|} \leq 1$. Имеются две неточности в определении инварианта. Первая, связана с конечной разрядной сеткой n .

Вторая неточность связана с тем, что результат измерения n является случайной величиной, распределенной в окрестности значения $\frac{\theta |\mathcal{L}|}{\pi}$. Иначе говоря, в каждом прогоне алгоритма возникает оценка θ , диктуемая распределением n – квадратом модуля фурье-компонент в (25).

Определение точности – близости оценки параметра к истинному значению является задачей математической статистики. Здесь можно воспользоваться оценками точности, приведенными в работе [27].

Средняя ошибка зависит от числа прогонов (испытаний) алгоритма. При каждом прогоне используется два обращения к квантовой схеме, реализующей шифрование и одно обращение к квантовой схеме для булевой функции.

Применительно к нашему случаю, согласно [27] для точности определения параметра θ при числе испытаний (прогонов) $O(\sqrt{|\mathcal{N}|})$ (соответственно, $O(\sqrt{|\mathcal{N}|})$ обращений к функции шифрования и булевой функции), длине разрядной сетки $L = \log(|\mathcal{L}|) = \log(|\mathcal{N}|)$ вероятность получить оценку значения $|\neq 000\rangle$, которая находится в пределах нескольких квадратичных отклонений от точного значения $|\neq 000\rangle$, не менее

$$\Pr\{|\neq 000\rangle - |\neq 000\rangle| < 2\pi \sqrt{|\neq 000\rangle}\} > \frac{8}{\pi^2}. \quad (28)$$

5. Заключение. Предложен новый подход к определению близости блочного шифра к совершенному шифру – одноразовому блокноту. Предложенная мера близости является инвариантной – не зависит от конкретной реализации одноразового блокнота.

Квантовый алгоритм, основанный на определении собственного значения (фазы) квантового состояния, с высокой вероятностью и точностью позволяет оценить инварианты за $O(\sqrt{|\mathcal{N}|})$ прогонов алгоритма. Отметим, что эталонные инварианты для одноразового блокнота, с которыми производится сравнение инвариантов для блочного шифра, также могут быть вычислены квантовым алгоритмом.

В классическом случае определение близости является переборной задачей, но имеет существенные отличия от задачи поиска определенного значения, например, ключа.

Необходимые вычислительные ресурсы для вычисления инвариантов зависят от наличия большой памяти.

Если большая память масштаба $O(|\mathcal{N}|)$ отсутствует, а имеется только небольшая память для записи текущего результата – текущего значения ключа, сообщения и шифр-текста, то для сравнения

шифр-текстов требуется $O(|\mathcal{N}|^2)$ обращений к функции шифрования и сравнений. Действительно, всего пар $c(k, m)$ имеется $|\mathcal{N}|$. Берется первая пара из $|\mathcal{N}|$, вычисляется $c(k, m)$. Затем вычисляется значение $c(k, m)$ для одной из оставшихся из $|\mathcal{N}| - 1$ пар и значения сравниваются. Далее, поскольку большая память отсутствует, вычисляется $c(k, m)$ для следующей пары из $|\mathcal{N}| - 2$ оставшихся, значения сравниваются, т.д. Данная процедура, вычисления “на ходу” значений $c(k, m)$ и сравнения, требует $|\mathcal{N}| - 1 + |\mathcal{N}| - 2 + |\mathcal{N}| - 3 + \dots + |\mathcal{N}| - (|\mathcal{N}| - 1) \approx O(|\mathcal{N}|^2)$ вызовов функции шифрования и вызовов функции сравнения (булевой функции), т.е. сложность $O(|\mathcal{N}|^2)$.

Если имеется память размера $O(|\mathcal{N}|)$ то, можно за $O(|\mathcal{N}|)$ обращений к функции шифрования вычислить все значения $c(k, m)$ и записать их в таблицу для дальнейшего просмотра и сравнения шифр-текстов при разных (k, m) . В наихудшем варианте требуется $O(|\mathcal{N}|^2)$ сравнений в таблице. При этом число обращений к функции шифрования будет $O(|\mathcal{N}|)$, но при этом требуется большая память размера $O(|\mathcal{N}|)$.

Таким образом, сложность сильно зависит от наличия памяти, и имеет разную структуру вычислительных ресурсов: “нулевая память” (небольшая рабочая память, большая память (память достаточная для записи всех значений $c(k, m)$)). При любой промежуточной памяти ответ не известен.

В квантовом случае требуется $O(\sqrt{|\mathcal{N}|})$ прогонов алгоритма – обращений к функции шифрования и сравнения для вычисления инварианта с достаточной точностью и высокой вероятностью (см. формулу (28)).

Выражаю благодарность И. М. Арбекову, В. А. Кириюхину, С. П. Кулику, А. В. Уривскому за многочисленные обсуждения, а также коллегам из Инфотекс и Академии криптографии Российской Федерации за обсуждения и поддержку.

1. D. Deutsch and R. Jozsa, Proceedings of the Royal Society of London, Series A: Mathematical and Physical Sciences **439**(1907), 553 (1992).
2. P. W. Shor, SIAM J. Comput. **26**(5), 1484 (1997).
3. L. K. Grover, *A fast quantum mechanical algorithm for database search*, Proceedings of the twenty-eighth annual ACM symposium on Theory of computing – STOC '96. ACM Press, N. Y., USA (1996), p. 212.
4. D. R. Simon, SIAM J. Comput. **26**(5), 1474 (1997).
5. M. Kaplan, G. Leurent, A. Leverrier, and M. Naya-Plasencia, arXiv:1602.05973 [quant-ph], (2016).
6. A. Ambainis, *Quantum Walk Algorithm for Element Distinctness*, 45th Annual IEEE Symposium on

- Foundations of Computer Science. IEEE (2014), p. 22; <https://ieeexplore.ieee.org/document/1366221>.
7. A. W. Harrow, A. Hassidim, and S. Lloyd, Phys. Rev. Lett. **103**(15), 150502 (2009).
8. D. Dervovic, M. Herbster, P. Mountney, S. Severini, N. Usher1, and L. Wossnig, arXiv:0311001 [quant-ph], (2014).
9. M. Grassl, B. Langenberg, M. Roetteler, and R. Steinwand, arXiv:1512.04965 [quant-ph] (2015).
10. M. Almazrooie, A. Samsudin, R. Abdullah, and K. N. Mutter, SpringerPlus **5**(1), 1494 (2016).
11. M. Almazrooie, A. Samsudin, R. Abdullah, and K. N. Mutter, *Quantum Grover Attack on the Simplified-AES*, Proceedings of the 2018 7th International Conference on Software and Computer Applications, ACM, N.Y., NY, USA (2018), p. 204.
12. Д. В. Денисенко, Г. Б. Маршалко, М. В. Никитенкова, В. И. Рудской, В. А. Шишкин, ЖЭТФ **155**, 645 (2019).
13. V. Gheorghiu and M. Mosca, *A resource estimation framework for quantum attacks against cryptographic functions – recent developments*, (2021); <https://globalriskinstitute.org>.
14. M. Piani and M. Mosca, *Quantum threat timeline report*, (2020); <https://globalriskinstitute.org>.
15. M. Piani, M. Mosca, *Quantum threat timeline report* (2019); <https://globalriskinstitute.org>.
16. V. Gheorghiu and M. Mosca, *A resource estimation framework for quantum attacks against cryptographic functions*, Global Risk Institute quantum risk assessment report (2020); <https://globalriskinstitute.org>.
17. V. Gheorghiu and M. Mosca, *A resource estimation framework for quantum attacks against cryptographic functions*, part 4, Global Risk Institute quantum risk assessment report (2018); <https://globalriskinstitute.org>.
18. V. Gheorghiu and M. Mosca, *A resource estimation framework for quantum attacks against cryptographic functions*, part 3, Global Risk Institute quantum risk assessment report (2018); <https://globalriskinstitute.org>.
19. V. Gheorghiu and M. Mosca, *A resource estimation framework for quantum attacks against cryptographic functions*, part 2, Global Risk Institute quantum risk assessment report (2018); <https://globalriskinstitute.org>.
20. V. Gheorghiu and M. Mosca, *A resource estimation framework for quantum attacks against cryptographic functions*, part 1, Global Risk Institute quantum risk assessment report (2017); <https://globalriskinstitute.org>.
21. Y.-A. Chen and X.-S. Gao, arXiv:1712.06239 [quant-ph] (2018).
22. A. Ambainis, arXiv:1010.4458 [quant-ph] (2010).

23. A. M. Childs, R. Kothari, and R. D. Somma, *SIAM Journal on Computing*. **46**(6), 1920 (2017).
24. L. Wossnig, Z. Zhao, and A. Prakash, *Phys. Rev. Lett.* **120**(5), 050502 (2018).
25. G. Brassard, P. Hoyer, and A. Tapp, *ACM SIGACT News* **28**(2), 14 (1997).
26. A. Chailloux, M. Naya-Plasencia, and A. Schrottenloher, *An Efficient Quantum Collision Search Algorithm and Implications on Symmetric Cryptography*, preprint (2017); <https://eprint.iacr.org/2017/847>.
27. G. Brassard, P. Hoyer, and A. Tapp, arXiv:0005055 [quant-ph] (2000).
28. T. Häner and M. Soeken, arXiv:2006.03845 [quant-ph] (2020).
29. M. Roetteler and R. Steinwandt, *Inf. Process. Lett.* **115**(1), 40 (2015).
30. A. Hosoyamada and E. Aoki, *On Quantum Related-Key Attacks on Iterated Even-Mansour Ciphers*, ed. by S. Obana and K. Chida, Springer International Publishing AG, WSEC 2017, LNCS 10418, Springer Nature Switzerland AG, Geneva (2017)p. 3; https://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-319-64200-0_1.
31. X. Bonnetain, M. Naya-Plasencia, and A. Schrottenloher, *On Quantum Slide Attacks*, preprint (2018); <https://eprint.iacr.org/2018/1067.pdf>.
32. А. Китаев, А. Шень, М. Вялый, *Классические и квантовые вычисления*, МЦНМО-ЧеРо, М. (1999), 192 с.
33. G. Leander and A. May, *Grover Meets Simon – Quantumly Attacking the FX-construction*, Advances in Cryptology ? ASIACRYPT 2017 23rd International Conference on the Theory and Applications of Cryptology and Information Security Hong Kong, China, December 3–7, 2017 Proceedings, Part II, Springer (2017).
34. G. S. Vernam, *Journal of the IEEE* **55**, 109 (1926).
35. В. А. Котельников, Отчет (19 Июня, 1941); <https://cryptography-museum.ru>.
36. С. Е. Shannon, *A Mathematical Theory of Communication*, Bell System Technical Journal, July, 379 (1948); Oct., 623 (1948); The material in this paper appeared originally in a confidential report *A Mathematical Theory of Cryptography*, dated Sept. 1, (1945); <https://www.iacr.org> > shannon > shannon45.
37. М. А. Nielsen and I. L. Chuang, *Quantum Computation and Quantum Information*, 10th Anniversary Edition, Cambridge University Press, Cambridge, N.Y., Melbourne, Madrid, Cape Town, Singapore, Sao Paulo, Delhi, Dubai, Tokyo, Mexico City (2010).
38. S. N. Molotkov, *Laser Phys. Lett.* **19**, 045201 (2022).
39. S. N. Molotkov, *Laser Phys. Lett.* **19**, 075203 (2022).
40. И. М. Арбеков, С. Н. Молотков, *ЖЭТФ* **152**, 62 (2017).
41. С. Н. Молотков, *Письма в ЖЭТФ* **103**, 389 (2016).

Interconnected evolution of epidemic and public vaccination opinion

A. V. Leonidov, S. B. Vasilyev, E. E. Vasilyeva¹⁾

P. N. Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences, 119991 Moscow, Russia

Submitted 3 October 2022

Resubmitted 7 November 2022

Accepted 9 November 2022

DOI: 10.31857/S1234567823010111, EDN: nwfdtw

During the COVID-19 pandemic, humanity faced not only a problem of a spread of the pandemic itself, but also an unexpected phenomenon of formation of negative attitude towards vaccination in the society. Since this latter process does significantly affect development and resulting consequences of the pandemic, it is very important to build qualitative understanding of factors influencing formation of public opinion in the particular context of epidemic dynamics.

To develop a quantitative model describing interrelated evolution of epidemics and epidemics-related attitude it is natural to use a two-layered network with interconnected strata containing networks on which there takes place formation of epidemics and epidemics-related attitude/opinion respectively. The particular model we build combines an Ising-type mechanism of formation of binary yes/no-type opinion operating on the social contact network coupled to the SIRS (Susceptible–Infected–Recovered–Susceptible) epidemic mechanism (see [1, 2] and references therein) operating on the network of physical contacts in real space. The model does thus describe two interrelated spreading phenomena taking place in the two-layer network in which two networks are glued at nodes representing agents.

Behavioural motives behind epidemics were previously analysed in game-theoretic setting in the literature on vaccination decision formation (for detailed review see [3] and references therein). However, to the best of authors' knowledge, these models mostly analyse the vaccination-related free-rider type problems. The COVID 19 pandemic showed that at the early stages of viral spreading vaccination decisions are to a large extent based not on a proper factual analysis of contagion probability with or without vaccination, but mostly on subjective analysis of opinion of acquaintances, information from media, etc., as factual data on vaccination efficiency, virus spreading and its danger are not yet available or seem to be not enough reliable. One of pos-

sible ways of describing public opinion formation in the binary choice setting is to use an Ising-type model [4–11]. The present paper introduces an Ising-type model describing vaccination-related decisions.

The main results of the paper are the following.

First, we uncover a nontrivial dependence between the noise amplitude influencing the vaccination opinion formation and the fraction of recovered agents (i.e. people who caught the virus and later recovered from it). It turns out that an increase of the noise amplitude triggers two oppositely directed effects. On the one hand, public opinion formation on vaccination takes more time and, therefore, epidemics spreading is faster. On the other hand, the probability of reaching an equilibrium where almost all individuals are vaccinated and, therefore, epidemics terminates, is higher. A superposition of these oppositely directed trends leads, in principle, to an existence of some “optimal” noise amplitude. The position of this optimum is, however, strongly dependent on the values of model parameters.

Second, we uncover a new effect related to the external field influence. In the model under consideration the external field represents an intensity of the official information delivery. We show that if initial beliefs on vaccination and agents' attitude to official information sources are highly correlated and clusterized, growing intensity of the official information delivery intensity can lead to a decrease of probability of reaching a preferable equilibrium with respect to vaccination attitude and, consequently, to potential growth of epidemics – related risks.

This is an excerpt of the article “Interconnected evolution of epidemic and public vaccination opinion”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364022602172

1. H. W. Hethcote, *SIAM Rev.* **42**(4), 599 (2000).
2. M. Newman, *Networks*, Oxford university press, N.Y. (2018).
3. Zh. Wang, Ch. T. Bauch, S. Bhattacharyya, A. d'Onofrio, P. Manfredi, M. Perc, N. Perra,

¹⁾e-mail: serebryannikovae@lebedev.ru

- M. Salathé, and D. Zhao, Phys. Rep. **664**, 1 (2016).
4. W. A. Brock and S. N. Durlauf, Rev. Econ. Stud. **68**(2), 235 (2001).
5. L. Blume and S. Durlauf, Intern. Game Theory Rev. **5**(3), 193 (2003).
6. Y. M. Ioannides, Econ. Theory **28**(3), 559 (2006).
7. S. N. Durlauf and Y. M. Ioannides, Annu. Rev. Econ. **2**(1), 451 (2010).
8. J.-Ph. Bouchaud, J. Stat. Phys. **151**(3–4), 567 (2013).
9. A. Leonidov, A. Savvateev, and A. G. Semenov, arXiv 1912.09584 (2019).
10. A. Leonidov, A. Savvateev, and A. Semenov, *Qre in the ising game*, CEUR Workshop proc. (2020); <https://ceur-ws.org/Vol-2795/>.
11. A. Leonidov, A. Savvateev, and A. G. Semenov, arXiv 2108.00824 (2021).

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 117

Выпуск 2

25 января 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>

© Российская академия наук, 2023

© Редколлегия журнала “Письма в ЖЭТФ” (составитель), 2023

Систематические эффекты при измерении времени жизни нейтрона в магнитных ловушках ультрахолодных нейтронов

В. Ф. Ежов^{+*1)}, В. Л. Рябов⁺

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

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

Поступила в редакцию 16 ноября 2022 г.

После переработки 16 ноября 2022 г.

Принята к публикации 6 декабря 2022 г.

Обсуждаются возможные систематические эффекты в экспериментах по измерению времени жизни нейтрона с использованием хранения ультрахолодных нейтронов в магнито-гравитационных ловушках. Предлагаются методы регистрации возможных потерь, включая потери на деполяризацию и малый нагрев нейтронов в процессе их хранения в ловушке в режиме on-line.

DOI: 10.31857/S1234567823020015, EDN: odxbqg

1. Введение. Время жизни нейтрона τ_n , а также отношение аксиально-векторной и векторной констант слабого взаимодействия $\frac{G_A}{G_V}$, являются важнейшими параметрами слабого взаимодействия, используемыми в ядерной физике, физике частиц, астрофизике, космологии и в описании процесса первичного нуклеосинтеза. Они позволяют определить V_{ud} – матричный элемент матрицы Кабиббо–Кобаяши–Маскава без влияния ядерных поправок и получить ограничения на “новую физику”, выходящую за рамки Стандартной модели [1].

Эксперименты по измерению времени жизни нейтрона разделяются на 2 класса: пучковые и эксперименты с хранением ультрахолодных нейтронов (УХН) в материальных и магнитных ловушках. Наиболее подробно все эксперименты рассмотрены в обзоре [2]. В пучковых экспериментах одновременно измеряется абсолютное количество продуктов распада и число нейтронов в области распада. В экспериментах же с УХН нейтроны хранятся в ловушках, и измеряется количество УХН оставшихся в ловушке после определенного времени хранения. Важно отметить, что одновременно с увеличением точности экспериментов проявилось расхождение между результатами пучковых экспериментов и экспериментов с хранением УХН в ловушках. Среднее измеренное значение времени жизни нейтрона в пучковых экспериментах составляет $\tau_n = 887.3 \pm 2.8$ с, а в экспериментах с хранением УХН $\tau_n = 879.4 \pm 0.6$ с. Возможные причины этого расхождения широко об-

суждаются [3, 4]. В последнем выпуске Partical data group приводит данные только экспериментов с хранением УХН рис. 1.

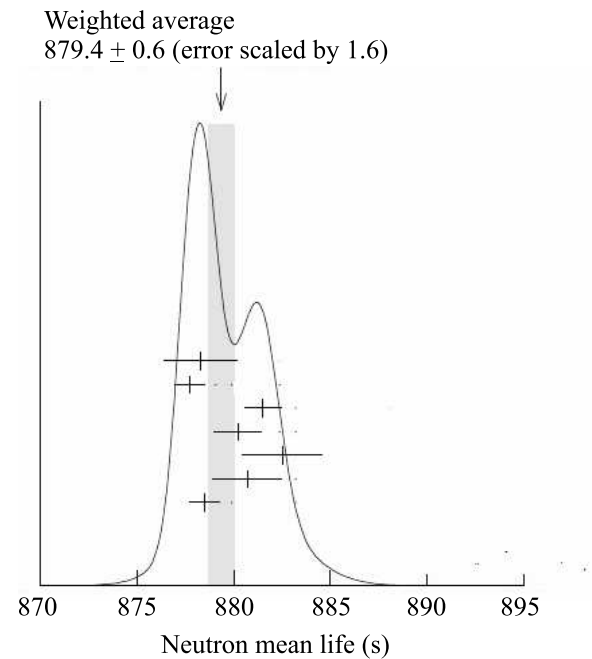


Рис. 1. Результаты последних наиболее точных экспериментов по измерению времени жизни нейтрона. Среднее измеренное значение времени жизни нейтрона в пучковых экспериментах составляет $\tau_n = 887.3 \pm 2.8$ с, а в экспериментах с хранением УХН $\tau_n = 879.4 \pm 0.6$ с (<https://pdglive.lbl.gov/>)

Итак, в экспериментах по измерению времени жизни нейтрона существуют две проблемы: устано-

¹⁾e-mail: Ezhov_VF@npfi.nrcki.ru

вить причины расхождения результатов экспериментов в пучковом варианте и в экспериментах с хранением УХН, а также необходимость довести экспериментальную точность до точности порядка 0.3 с, которая необходима для определения величины матричного элемента матрицы Кабаяши–Маскава V_{ud} и, соответственно, проверки Стандартной модели.

Важно отметить, что при измерении времени жизни нейтрона на пучке нейтронов необходимо собрать все продукты распада нейтрона и измерить абсолютное значение интенсивности нейтронного пучка. При этом неполный сбор продуктов распада будет приводить к увеличению измеренной величины времени жизни нейтрона. В экспериментах с хранением УХН нет абсолютных измерений, однако наличие неконтролируемых потерь во время хранения УХН в ловушке может приводить к занижению измеренной величины времени жизни нейтрона.

2. Магнитное хранение УХН. В экспериментах используют два типа ловушек для хранения УХН: материальные и магнитные. В первом случае при соударении нейтронов с материальными стенками ловушки возникают потери, которые сложно контролировать с необходимой точностью. Магнитные ловушки позволяют исключить соударение хранящихся УХН со стенкой. Основным потенциальным преимуществом магнитных ловушек по сравнению с материальными является, как будет показано ниже, возможность регистрации потерь УХН непосредственно во время их хранения в магнитном сосуде. Магнитное поле в таких ловушках сильно неоднородно, и основным источником потерь является деполяризация (переворот магнитного момента нейтрона относительно направления магнитного поля) хранящихся нейтронов. Полностью исключить деполяризацию невозможно, поскольку условие адиабатичности, которое описывает вероятность деполяризации в неоднородных магнитных полях, всегда выполняется с какой-то точностью, а значит, на этом уровне точности деполяризация будет присутствовать всегда. Например, выполнение условия адиабатичности с точностью 10^{-6} означает, что один нейтрон на миллион будет деполяризован. Таким образом, создание ловушки без потерь невозможно. Наибольший прогресс в создании магнитных ловушек достигнут в конструкциях из постоянных магнитов [5] и [6]. Впервые использование постоянных магнитов для создания ловушек УХН было предложено в работе [7] и реализовано в [8].

Магнитное хранение УХН имеет огромное преимущество по сравнению с материальными ловушками. Наличие в магнитной ловушке на выпуск-

ном нейтроноводе магнитного затвора, который прозрачен для деполяризованных нейтронов, позволяет проводить эксперименты по измерению времени жизни нейтрона с регистрацией возможных потерь УХН в процессе их хранения в ловушке (в режиме on-line). Дело в том, что деполяризованные нейтроны не погибают, а продолжают храниться в сосуде, если его магнитные стенки покрыты отражающим веществом, ядерный барьер которого превышает энергию деполяризованных нейтронов. В этом случае они, после нескольких соударений проходят в нейтроновод через прозрачный для них барьер и регистрируются детектором. Без использования этой уникальной возможности эксперименты с магнитным хранением практически не отличаются от экспериментов с хранением УХН в материальных ловушках. Таким образом, наличие магнитного затвора является принципиальным моментом для экспериментов по измерению времени жизни нейтрона в магнитной ловушке. Одна из возможных конструкций магнитного затвора реализована в [9].

Другим принципиальным моментом в экспериментах с хранением УХН является наполнение ловушки и выбор времени, необходимого для полной очистки нейтронного спектра от нейтронов, энергия которых превышает величину потенциального барьера стенок. Это время можно измерить, например, наполняя ловушку нейтронами, энергия которых заведомо превышает энергию барьера. Недостаточное время, выделенное для очистки спектра УХН будет занижать время жизни нейтрона.

Особое внимание следует обратить на возможность “малого” нагрева нейтронов. Потенциальным источником “малого” нагрева УХН могут быть тепловые и акустические флуктуации магнитного поля постоянных магнитов [10].

Возможные систематические эффекты. Рассмотрение возможных систематических эффектов в экспериментах с магнитным хранением УХН проведем на примере эксперимента по измерению времени жизни нейтрона [5]. На рисунке 2 приведена схема экспериментальной установки. Наполнение магнито-гравитационной ловушки осуществляется через ее верхнюю открытую часть с помощью своеобразного нейтронного лифта. При падении нейтрона с высоты h он приобретает энергию mgh (m – масса нейтрона, g – ускорение свободного падения). Такие нейтроны невозможно хранить в ловушке, поскольку при отражении от дна ловушки они взлетают выше ее верхнего края. Поэтому необходимо опустить нейтроны в ловушку без их нагрева. Это можно сделать с помощью лифта. При

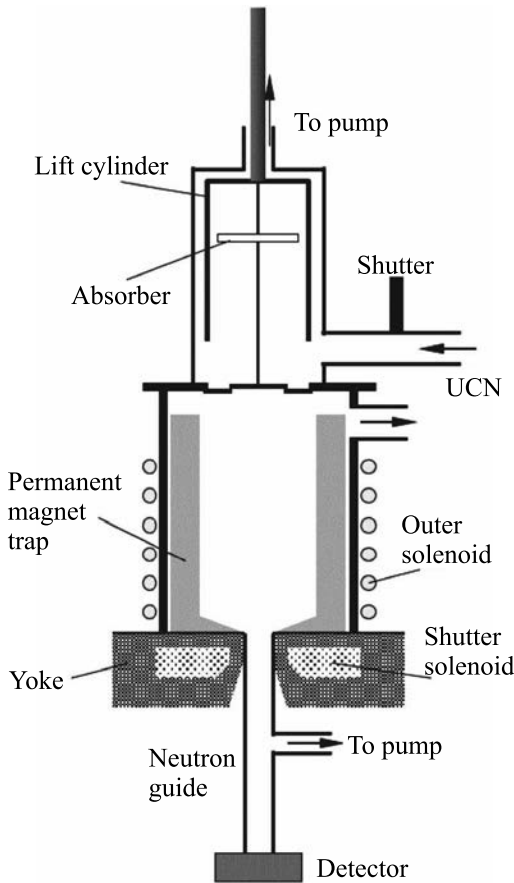


Рис. 2. Схема экспериментальной установки [5]. Основные части: лифт (момент заполнения), магнитогравитационная ловушка, соленоидальный магнитный затвор с его ярмом, внешняя обмотка соленоида для создания магнитного поля на оси ловушки и детектор УХН

этом должно быть выполнено условие адиабатичности: скорость нейтронов должна быть много больше скорости движения лифта. Иными словами, нейтрон должен испытать большое количество соударений с дном лифта при движении лифта вниз. Лифт представляет собой алюминиевый цилиндр диаметром 18.4 см, внутренняя поверхность которого покрыта фомблином. Цилиндр находится внутри вакуумной камеры, изготовленной из нержавеющей стали. Внутри цилиндра расположен поглотитель, позволяющий формировать спектр УХН при его наполнении. При открытии затвора нейтроновод лифт наполняется УХН в течение 50 с, затем цилиндр опускается, и часть нейтронов остается в цилиндре лифта. Лифт движется вниз со скоростью около 5 см/с, что в 50 раз меньше средней скорости УХН. В нижней точке дно лифта открывается и УХН заполняют ловушку, а лифт с открытым дном

поднимается в исходное состояние. Все перемещения осуществляются без нарушения вакуума посредством магнитных муфт. Вакуум в камере составлял 1.1×10^{-6} мбар.

Для успешного применения магнитного затвора боковые стенки ловушки должны отражать деполяризованные нейтроны. С этой целью в работе [5] стенки ловушки покрыты слоем фомблина, ядерный потенциал которого превышает магнитный и достаточен для отражения деполяризованных УХН. Магнитный барьер стенок прозрачен для деполяризованных нейтронов, более того, они ускоряются при прохождении этого барьера, но отражаются слоем фомблина, которым покрыта поверхность магнитов. Деполяризованные нейтроны после нескольких соударений со стенками ловушки проникают через магнитное поле магнитного затвора, перекрывающего выход в нейтроновод, и попадают на детектор.

До выхода из ловушки деполяризованные нейтроны испытывают некоторое количество соударений с материальной стенкой ловушки, и при этом могут быть захвачены или испытать неупругое рассеяние и покинуть ловушку. Для фомблина эти процессы маловероятны, поскольку фактор потерь при соударении УХН с фомблином составляет всего ($\eta = 2.2 \pm 0.1 \times 10^{-5}$) [11], а число соударений мало. Тем не менее вероятность потерь необходимо измерить. Это может быть легко осуществлено введением принудительной деполяризации УХН при их хранении в магнитной ловушке. Принудительная деполяризация может быть легко осуществлена, например, созданием нулей магнитного поля в ловушке путем включения дополнительного магнитного поля. При включении принудительной деполяризации количество УХН, вытекающих из ловушки во время хранения, возрастает. В результате меньшее количество нейтронов будет зарегистрировано при опорожнении ловушки в конце цикла. Сравнение количества вытекших и оставшихся в ловушке УХН с включенной деполяризацией и без нее позволяет измерить вероятность потерь деполяризованных нейтронов в ловушке при их соударениях со стенкой, покрытой фомблином. Обозначим число захваченных нейтронов в ловушке после достижения равновесия как $N_T(t)$, а число деполяризованных нейтронов, которые вытекают из ловушки и затем детектируются $N_L(t)$. В этом случае динамика процесса хранения УХН в ловушке описывается следующей системой дифференциальных уравнений:

$$\dot{N}_T(t) = -\lambda_n N_T(t) - \lambda_{SF} N_T(t), \quad (1)$$

$$\dot{N}_L(t) = \epsilon \lambda_{SF} N_T(t), \quad (2)$$

где λ_n и λ_{SF} – постоянная распада нейтрона и, соответственно, постоянная, характеризующая вытекание деполяризованных нейтронов, ϵ – вероятность для деполяризованного нейтрона покинуть ловушку. Эти уравнения предполагают, что время вытекания деполяризованных нейтронов во много раз меньше времени жизни нейтрона. Предполагая, что величина ϵ постоянная, постоянная распада нейтрона может быть записана в виде:

$$\lambda_n = \lambda_S - \lambda_{SF} = \lambda_S(1 - \alpha_{SF}), \quad (3)$$

где λ_S – постоянная хранения УХН в ловушке, а α_{SF} – поправка, связанная с наличием деполяризации в ловушке. При начальных условиях $N_T(0) = N_0$ и $N_L(0) = 0$ и при времени хранения УХН в ловушке T получаем:

$$\lambda_S = \frac{1}{T} \ln \left[\frac{N_0}{N_T(T)} \right] \quad (4)$$

и

$$\alpha_{SF} = \frac{1}{\epsilon} \frac{N_L(T)}{N_0 - N_T(T)}. \quad (5)$$

Уравнение (5) показывает, что зависимость поправки α_{SF} от эффективности сбора деполяризованных нейтронов ϵ подавлена соотношением $N_L(T) \ll \ll N_0 - N_T(T)$. Другими словами, когда утечки малы, требуемая точность измерения эффективности сбора деполяризованных нейтронов также уменьшается.

При планировании эксперимента по измерению времени жизни нейтрона в магнитных ловушках необходимо также учитывать систематический эффект, связанный с возможными потерями УХН из-за трансформации их энергетического спектра в процессе хранения, например, за счет малого нагрева УХН или вибраций. Рассмотрим малый нагрев УХН. Для того, чтобы учесть такой эффект, достаточно держать магнитный барьер магнитного затвора меньше величины магнитного барьера стенок ловушки. В этом случае, нагревающиеся УХН еще будут отражаться магнитным барьером стенок, но будут проникать через магнитный барьер затвора и регистрироваться детектором так же, как и деполяризованные нейтроны.

Наличие принудительной деполяризации и возможность измерения эффективности сбора деполяризованных нейтронов дают уникальную возможность измерения степени очистки энергетического спектра УХН от нейтронов с энергией, превышающей величину магнитного барьера. Мы рассматривали ϵ как вероятность потерь деполяризованных нейтронов при соударении со стенкой. Однако наличие

надбарьерных УХН в ловушке приводит к увеличению величины ϵ , так как быстрые нейтроны не отражаются магнитным барьером, и полная вероятность потерь при соударении УХН со стенкой возрастает. Таким образом, для определения времени, необходимого для полной очистки нейтронного спектра от быстрой компоненты достаточно измерить зависимость ϵ от времени очистки нейтронного спектра. Спектр будет полностью очищен, когда ϵ перестанет изменяться с увеличением времени чистки.

В ходе эксперимента необходимо контролировать величину наполнения ловушки. Она может флуктуировать в зависимости от стабильности работы источника УХН, от точности работы впускного шибера, одинаковости времени наполнения ловушки. В идеальном случае нужно измерять количество УХН непосредственно в ловушке при каждом наполнении. Такую возможность предоставляет наполнение магнитной ловушки неполяризованными нейтронами с включенным магнитным затвором. В этом случае половина нейтронов, поляризация которых не позволяет хранить их в магнитной ловушке, через магнитный затвор сразу попадет на детектор. В эксперименте [5] это осуществлялось путем наполнения ловушки с помощью лифта. На рисунке 3 приведена интенсивность УХН на детекторе в процессе наполнения ловушки неполяризованными нейтронами с включенным и выключенным магнитным затвором. До 50-й секунды происходит наполнение объема лифта, в процессе которого имеется небольшая утечка нейтронов через уплотнение дна лифта. При движении лифта вниз утечка слегка увеличивается. На 64-й секунде дно лифта открывается и нейтроны заполняют ловушку. Подъем лифта осуществляется с открытым дном лифта, а нейтроны остаются в ловушке.

При выключенном магнитном затворе в нижней части ловушки все нейтроны вытекают из нее (рис. 3, красная кривая). При включенном магнитном затворе вытекают УХН, поляризация которых не позволяет им храниться в ловушке (эти нейтроны ускоряются в градиенте магнитного поля), а также нейтроны, энергия которых превышает высоту магнитного барьера затвора (рис. 3, черная кривая). Разность этих кривых соответствует количеству нейтронов, оставшихся в ловушке. Таким образом, измерение количества нейтронов, вытекающих из ловушки при ее наполнении, является уникальным мониторингом, позволяющим измерять непосредственное количество УХН в ловушке при каждом ее наполнении.

Наконец, о вакууме. В идеальном случае вакуум в ловушке должен быть таким, что его вклад в погрешность измерений был бы незначительным. Как по-

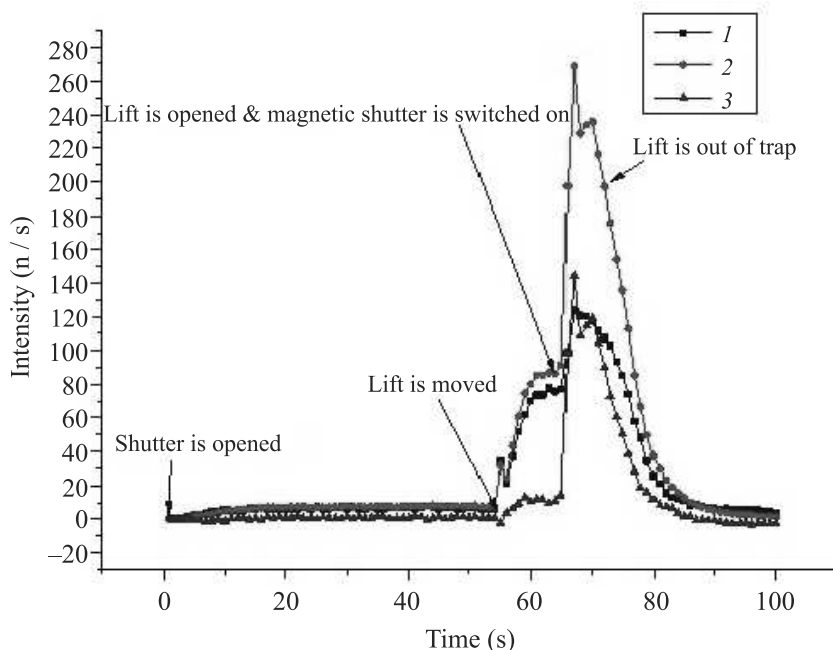


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость интенсивности УХН на детекторе от времени при наполнении неполяризованными УХН и последующим опускании лифта в магнито-гравитационную ловушку при различных состояниях магнитного затвора. 1 – Магнитный затвор выключен, и все УХН вытекают. 2 – Магнитный затвор включен, вытекают УХН одной поляризации и УХН, энергия которых превышает высоту магнитного барьера затвора. 3 – Разность кривых 1 и 2 дает количество УХН, оставшихся в ловушке

казывает опыт экспериментов по измерению времени жизни нейтрона [5], для достижения точности на уровне 0.3 с вакуум должен быть порядка 10^{-7} мбар.

4. Заключение. Основным преимуществом магнитного хранения УХН является возможность регистрации непосредственно в процессе хранения деполаризованных нейтронов и нейтронов, испытавших малый нагрев. Необходимым условием для этого является наличие в ловушке магнитного затвора. Именно затвор позволяет осуществить регистрацию как деполаризованных, так и нагретых нейтронов в режиме on-line. Конструкция затвора может быть различной, но его наличие дает возможность исключить основные систематические эффекты в экспериментах по измерению времени жизни нейтрона методом хранения УХН в магнитных ловушках.

Данная работа была выполнена в рамках тематического плана НИОКР НИЦ КИ «ПЯЯФ». Авторы благодарят за активное участие в создании магнитной ловушки сотрудников лаборатории Молекулярных и атомных пучков Н. Н. Дмитриева, А. Г. Глушкова, Б. А. Базарова, Г. Б. Крыгина.

1. D. Dubbers and M. G. Schmidt, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1111 (2011).
2. F. E. Wietfeld and G. L. Greene, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1173 (2011).
3. A. P. Serebrov, *J. Phys. Conf. Ser.* **139**, 012007 (2019).
4. A. Czarnecki, W. J. Marciano, and A. Sirlin, *Phys. Rev. Lett.* **120**(20), 202002 (2018).
5. V. F. Ezhov, A. Z. Andreev, G. Ban, B. A. Bazarov, P. Geltenbort, A. G. Glushkov, V. A. Knyazkov, N. A. Kovrizhnykh, G. B. Krygin, O. Naviliat-Cuncic, and V. L. Ryabov, *JETP Lett.* **107**(11), 671 (2018).
6. F. M. Gonzalez, E. M. Fries, C. Cude-Woods et al. (Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **127**, 162501, (2021).
7. V. F. Ezhov, B. A. Bazarov, P. Geltenbort, N. A. Kovrizhnykh, G. B. Krygin, V. L. Ryabov, and A. P. Serebrov, *Technical Physics Letters* **27**(12), 1055 (2001).
8. V. F. Ezhov, A. Z. Andreev, B. A. Bazarov et al. (Collaboration), *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* **110**(1), 345 (2005).
9. V. F. Ezhov, V. L. Ryabov, A. Z. Andreev, B. A. Bazarov, A. G. Glushkov, and V. A. Knyazkov, *Technical Physics Letters* **44**(7), 602 (2018).
10. L. Jinfangt, P. Shumingt, L. Heliet, H. Denglu, and N. Xiangfu, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **24**, 384 (1991).
11. J. C. Bates, *Phys. Lett. A* **88**, 427 (1982).

Дальнодействующие многочастичные взаимодействия, индуцируемые обменом нейтрино в веществе нейтронных звезд

М. И. Криворученко¹⁾

Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 31 октября 2022 г.

После переработки 2 декабря 2022 г.

Принята к публикации 5 декабря 2022 г.

Силы с большим радиусом действия могут оказывать значительное влияние на уравнение состояния вещества. Нейтрино малой массы генерируют дальнодействующий потенциал за счет обмена нейтринными парами. Обсуждается возможная взаимосвязь между массами нейтрино, определяющими радиус действия двух-нейтринного обменного потенциала, и уравнением состояния нейтронной материи. Показано, что вопреки предыдущим утверждениям термодинамический потенциал, будучи разложенным в ряд по числу взаимодействий нейтрино, обращается в нуль в любом порядке разложения, за исключением двух-частичного взаимодействия. В однопетлевом приближении дальнодействующие многочастичные нейтринные взаимодействия стабильны в инфракрасной области при любой массе нейтрино и не оказывают влияния на уравнение состояния нейтронной материи и стабильность нейтронных звезд.

DOI: 10.31857/S1234567823020027, EDN: odyfwi

Среди фермионов Стандартной модели нейтрино являются самыми легкими частицами. Их массы по меньшей мере на шесть порядков меньше массы любых других заряженных фермионов. Обмен частицами малой массы создает потенциал с большим радиусом действия. Обмен безмассовыми фотонами, например, приводит к кулоновскому потенциалу. Поскольку нейтрино являются фермионами, дальнодействующие двух-частичные силы с их участием могут возникать посредством обмена нейтринными парами [1–5]. Потенциал двух-нейтринного обмена аналогичен потенциалу ван-дер-Ваальса, возникающему при двух-фотонном обмене (см., например, [6]). Слабо взаимодействующие легкие бозоны отлично иллюстрируют возможность значительного влияния слабых сил с большими радиусами действия на уравнение состояния (EoS) нейтронной материи и структуру нейтронных звезд [7, 8].

Фишбах [4] рассмотрел влияние дальнодействующих многочастичных взаимодействий нейтрино на EoS нейтронной материи и пришел к выводу, что вклад нейтринных взаимодействий в EoS расходуется в инфракрасной области. Чтобы гарантировать конечность EoS и, в итоге, стабильность нейтронных звезд, он постулировал нижний предел для масс нейтрино в $m \gtrsim 0.4$ эВ. Космологические модели устанавливают ограничение на сумму масс нейтрино 0.13 эВ [9]. Согласно эксперименту КАТРИН по β -

распаду трития, верхний предел эффективной массы электронного нейтрино составляет 0.8 эВ [10]. Оценка Фишбаха близка к этим пределам и частично с ними пересекается, что требует более тщательного анализа многочастичных нейтринных взаимодействий в ядерной среде. В связи с экспериментом КАТРИН ограничение на массу нейтрино [4] обсуждается в недавней статье [11].

Абада, Гавела и Пайн [12] обсуждают влияние многочастичных взаимодействий нейтрино с использованием стандартных методов квантовой статистики (см., например, [13]). Авторы подтверждают инфракрасную нестабильность EoS в каждом порядке разложения по числу взаимодействий и, тем не менее, приходят к выводу о том, что общий вклад многочастичных нейтринных взаимодействий в EOS нейтронной материи равен нулю.

В этой статье мы покажем, что, вопреки предыдущим утверждениям [4, 12], многочастичные взаимодействия нейтрино стабильны в инфракрасной области и, более того, их вклады обращаются в нуль в каждом отдельном члене разложения EoS в степенной ряд по плотности нейтронов. Таким образом, структура нейтронных звезд нечувствительна к массе нейтрино.

Эффективный гамильтониан для низкоэнергетического взаимодействия нейтрино и нейтронов генерируется обменом Z-бозоном. Мы рассматриваем случай дираковских нейтрино. После усреднения нейтрального слабого тока кварков по нейтронной

¹⁾e-mail: mikhael.krivoruchenko@itep.ru

волновой функции эффективный гамильтониан принимает вид

$$H_I = -\frac{G_F}{2\sqrt{2}} \int d^3x [\bar{\nu}(x)\gamma_\mu(1-\gamma_5)\nu(x)] \times [\bar{n}(x)\gamma^\mu(1-g_A\gamma_5)n(x)], \quad (1)$$

где g_A – аксиальная константа связи нуклонов. Аксиальная составляющая слабого тока, которая указывает направление среднего спина нейтронов, обращается в нуль в неполяризованном веществе, поэтому среднее поле Z -бозона, U , является вектором. Массивное нейтрино взаимодействует с потенциалом U своей левой составляющей. В приближении среднего поля $\langle \bar{n}(x)\gamma^\mu(1-g_A\gamma_5)n(x) \rangle = g^{\mu 0}\rho$. Типичная плотность числа нейтронов равна $\rho \sim 0.4 \text{ fm}^{-3}$, типичный импульс Ферми для нейтронов несколько сотен МэВ, тогда как Z -бозонный потенциал среднего поля равен $U = -G_F\rho/\sqrt{2} \sim -20 \text{ эВ}$. Мы работаем в приближениях однородной нейтронной материи и плоского пространства Минковского. Эти приближения обоснованы для нейтрино с массами, превышающими обратный радиус нейтронных звезд, т.е. $m \gtrsim 1/R_s \sim 2 \times 10^{-11} \text{ эВ}$, где $R_s \sim 10 \text{ км}$.

В дальнейшем понадобятся проекционные операторы $L = (1-\gamma_5)/2$, $R = (1+\gamma_5)/2$ и $P_\pm = (1 \pm \boldsymbol{\alpha}\mathbf{n})/2$, где $\boldsymbol{\alpha} = \gamma_0\boldsymbol{\gamma}$ и $\mathbf{n} = \mathbf{q}/|\mathbf{q}|$ – единичный вектор, ориентированный в направлении импульса нейтрино.

Эффективный лагранжиан для нейтрино с массой m принимает вид

$$\mathcal{L}_{\text{eff}}(x) = \bar{\nu}(x)(i\hat{\nabla} - U\gamma_0L - m)\nu(x). \quad (2)$$

Функция Грина определяется квадратичной формой эффективного Лагранжиана. В импульсном представлении

$$\hat{S}_F(q, U) = \frac{1}{\hat{q} - U\gamma_0L - m}. \quad (3)$$

Изменение термодинамического потенциала, Ω , при включении взаимодействия задается хорошо известным выражением (см., например, [13])

$$\Omega - \Omega_0 = \int_0^1 \frac{d\lambda}{\lambda} \langle H_I^\lambda \rangle. \quad (4)$$

В рассматриваемом случае $H_I^\lambda = \lambda H_I$ – эффективный гамильтониан (1) с масштабированной константой связи. В терминах функции Грина

$$\Omega - \Omega_0 = V \int_0^1 \frac{d\lambda}{\lambda} \lim_{\tau \rightarrow -0} \int \frac{d^4q}{(2\pi)^4} \times e^{-iq_0\tau(-i)} \text{Tr} \left[\lambda U \gamma_0 L \hat{S}_F(q, \lambda U) \right], \quad (5)$$

где V – нормировочный объем. Это выражение подразумевает гладкий термодинамический предел $V \rightarrow \infty$, $\rho = \text{const}$. В реальной ситуации число частиц в звезде конечно, хотя велико. Строго говоря, пропагатор нейтрино следует разложить в ряд по степеням плотности, т.е., по параметру U , и обрезать ряд при $s \sim N \equiv M_\odot/m_n = 1.2 \times 10^{57}$, где M_\odot – масса Солнца и m_n – масса нейтрона. Каждое слагаемое, пропорциональное U^s , описывает последовательное рассеяние нейтрино s нейтронами. Если ряд сходится, предел $N \rightarrow \infty$ хорошо определен, и разложение в ряд не требуется.

В статьях [4, 12] утверждается, что для безмассовых нейтрино отдельные члены ряда пропорциональны $(UR_s)^s$. Если бы это было так, то бесконечный ряд расходился бы, потому что $UR_s \sim 10^{12} \gg 1$. Абада et al. обосновывают переход к пределу $N \rightarrow \infty$ возможностью для нейтрино рассеиваться несколько раз на одном и том же нейтроне. Многократное рассеяние с участием одного и того же нейтрона возможно в более высоких порядках петлевого разложения, тогда как авторы [12] работают в однопетлевом приближении. В этом приближении переход к пределу $N \rightarrow \infty$ не допускается, если ряд расходится.

Разложим выражение (5) в ряд по U . Интегрирование по λ дает

$$\Omega - \Omega_0 = V \lim_{\tau \rightarrow -0} \int \frac{d^4q}{(2\pi)^4} e^{-iq_0\tau(-i)} \times \text{Tr} \left[\sum_{s=1}^N \frac{1}{s} \left(U \gamma_0 L \frac{1}{\hat{q} - m} \right)^s \right]. \quad (6)$$

Соотношения $LR = 0$, $L\gamma_\mu = \gamma_\mu R$ приводят к тождеству

$$\text{Tr} \left[\left(\gamma_0 L \frac{1}{\hat{q} - m} \right)^s \right] = \text{Tr} \left[\left(\frac{\gamma_0 \hat{q}}{q^2 - m^2} \right)^s R \right]. \quad (7)$$

В терминах проекционных операторов, определенных выше, $\gamma_0 \hat{q} = (q_0 - |\mathbf{q}|)P_+ + (q_0 + |\mathbf{q}|)P_-$. Используя биномиальную формулу для $(\gamma_0 \hat{q})^s$ и соотношения $P_+P_- = 0$, $P_\pm^2 = P_\pm$, правая часть уравнения (7) существенно упрощается:

$$\text{Tr} \left[\frac{(q_0 - |\mathbf{q}|)^s P_+ + (q_0 + |\mathbf{q}|)^s P_-}{(q^2 - m^2)^s} R \right]. \quad (8)$$

Замыкая контур интегрирования по q_0 в верхней половине комплексной плоскости, мы обнаруживаем, что интеграл определяется вычетом в $q_0 = -\sqrt{\mathbf{q}^2 + m^2} + i0$. Использование программного пакета символьных вычислений Maple²⁾ позволяет

²⁾<https://www.maplesoft.com/>.

найти вычеты и соответствующие интегралы по импульсному пространству для достаточно больших значений s . Оказывается, что все члены $5 \leq s \leq 100$ ряда тождественно обращаются в нуль. После регуляризации нейтринной петли слагаемое $s = 2$ становится конечным, тогда как члены $s = 3, 4$ обращаются в нуль. Для $s = 1$ интеграл по бесконечно удаленному контуру в верхней половине q_0 -плоскости в точности сокращает вклад вычета при $q_0 = -\sqrt{\mathbf{q}^2 + m^2} + i0$.

После выполнения виковского поворота $q_0 \rightarrow i\omega$, предполагая, что предел $\tau \rightarrow -0$ перестановочен с интегралом по импульсам, можно дать более общее доказательство. Интеграл по ω проводится в пределах $-\infty < \omega < \infty$. Сферическая координатная система в евклидовом пространстве (ω, \mathbf{q}) определяется соотношениями $\omega = \eta \cos \alpha$, $q_x = \eta \sin \alpha \cos \beta$, $q_y = \eta \sin \alpha \sin \beta \cos \gamma$ и $q_z = \eta \sin \alpha \sin \beta \sin \gamma$. Углы изменяются в пределах $0 \leq \alpha, \beta \leq \pi$, $0 \leq \gamma \leq 2\pi$. Абсолютное значение импульса равно $|\mathbf{q}| = \eta \sin \alpha$. Элемент объема равен $d^4q = i\eta^3 d\eta \sin^2 \alpha d\alpha \sin \beta d\beta d\gamma$. Радиальная переменная η изменяется в интервале $(0, +\infty)$. После интегрирования по углам выражение (8) принимает вид

$$\begin{aligned} & \frac{(-i\eta)^s}{(\eta^2 + m^2)^s} \int 2 \cos(\alpha s) \times \sin^2 \alpha d\alpha \sin \beta d\beta d\gamma = \\ & = -\frac{16\pi(-i\eta)^s}{(\eta^2 + m^2)^s} \lim_{\xi \rightarrow s} \frac{\sin(\pi\xi)}{\xi(\xi^2 - 4)}. \end{aligned} \quad (9)$$

Все слагаемые в уравнении (6) обращаются в нуль для $5 \leq s < +\infty$, поскольку $\sin(\pi s) = 0$ для целых s , и интеграл по переменной η сходится. Существует неопределенность типа $\infty \times 0$ для значений $s = 1, 3, 4$. Расходимость радиального интеграла в ультрафиолетовой области устраняется регуляризацией, после чего слагаемые $s = 1, 3, 4$ обращаются в нуль аналогичным образом.

Слагаемое $s = 2$ стабильно в инфракрасной области, как следует из вида двух-нейтринного потенциала, генерируемого обменом безмассовыми нейтрино [1]:

$$U_{nn}(r) = \frac{G_F^2}{16\pi^3 r^5}. \quad (10)$$

Дополнительные вклады в потенциал (10) возникают из петель, содержащих заряженные фермионы Стандартной модели на расстояниях, меньших комптоновской длины волны электрона, и из петель, содержащих тяжелые бозоны Стандартной модели на расстояниях, меньших обратной массы Z -бозона.

Верхние границы масс нейтрино [9, 10] заметны ниже эффективного потенциала нейтрино $U = -G_F \rho / \sqrt{2} \sim -20$ эВ. В этих условиях потенциал

взаимодействия (10) изменяется в результате захвата нейтрино эффективным потенциалом U с образованием конденсата. В старых нейтронных звездах с температурой около 100 эВ лишь часть связанных уровней нейтрино занята в условиях теплового равновесия с нейтронами. Влияние конденсата нейтрино на EoS нейтронной материи незначительно [12, 14]. Экспериментальные перспективы обнаружения сил двух-нейтринного обмена в присутствии нейтринного фона обсуждаются в работе [15].

Мы рассмотрели многочастичный вклад нейтринных взаимодействий в термодинамический потенциал. Инфракрасные расходимости, обсуждавшиеся ранее в литературе, в действительности отсутствуют в каждом отдельном члене разложения (6) и, таким образом, в сумме. Как следствие, переход к пределу $N \rightarrow \infty$ не требуется, и для проведения доказательств достаточно сохранять число частиц большим, но конечным. Все слагаемые в уравнении (6) обращаются в нуль для безмассовых и массивных нейтрино, за исключением двух-частичного взаимодействия, которое пренебрежимо мало. Таким образом, в однопетлевом приближении дальнедействующие многочастичные взаимодействия нейтрино не оказывают влияния на структуру и стабильность нейтронных звезд.

Автор благодарит организаторов астрофизического семинара ИТЭФ, привлечших его внимание к работе [11], участников семинара за интересные обсуждения и Н. В. Лисицыну за помощь в подготовке рукописи.

Работа выполнена при поддержке гранта # 23-22-00307 Российского научного фонда.

1. G. Feinberg and J. Sucher, Phys. Rev. **166**, 1638 (1968).
2. S. D. H. Hsu and P. Sikivie, Phys. Rev. D **49**, 4951 (1994).
3. J. A. Grifols, E. Masso, and R. Toldra, Phys. Lett. B **389**, 563 (1996).
4. E. Fischbach, Ann. Phys. (N.Y.) **247**, 213 (1996).
5. A. Segarra and J. Bernabeu, Phys. Rev. D **101**, 093004 (2020).
6. C. Itzykson and J.-M. Zuber, McGraw-Hill, N.Y. (1980), p. 705.
7. M. I. Krivoruchenko, F. Simkovic, and A. Faessler, Phys. Rev. D **79**, 125023 (2009).
8. D.-H. Wen, B.-A. Li, and L.-W. Chen, Phys. Rev. Lett. **103**, 211102 (2009).
9. T. M. C. Abbott, M. Aguena, A. Alarcon et al. (DES Collaboration), Phys. Rev. D **105**, 023520 (2022).
10. M. Aker, A. Beglarian, J. Behrens et al. (KATRIN Collaboration), Nat. Phys. **18**, 160 (2022).

11. E. Fischbach, D. E. Krause, Q. L. Thien, and C. Scarlett, arXiv:2208.03790v1 [hep-ph] 7 Aug 2022.
12. As. Abada, M. B. Gavela, and O. Pineau, Phys. Lett. B **387**, 315 (1996).
13. Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Статистическая физика. Ч. 2. Теория конденсированного состояния*. Теоретическая физика, т. IX, Физматлит, М. (2004), 496 с.
14. A. Yu. Smirnov and F. Vissani, arXiv:9604443v2 [hep-ph] 23 May 1996.
15. M. Ghosh, Yu. Grossman, W. Tangarife, X.-J. Xu, and B. Yu, arXiv:2209.07082v2 [hep-ph] 8 Nov 2022.

Квазистационарные поляритонные состояния в мезорезонаторах¹⁾

А. В. Белоновский^{+ 2)}, В. В. Николаев*, Е. И. Гиршова*

⁺ Университет ИТМО, 197101 С.-Петербург, Россия

* Научно-технологический центр микроэлектроники РАН, 194021 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 5 октября 2022 г.

После переработки 24 ноября 2022 г.

Принята к публикации 8 декабря 2022 г.

В мезорезонаторах осуществляется взаимодействие экситонной моды одновременно с несколькими оптическими модами, критерием чего являются сравнимые величины силы взаимодействия света и вещества (расщепления Раби) и энергетического интервала между модами резонатора. Недавно было показано, что в мезорезонаторах возможна немонотонная зависимость населенности поляритонных состояний от накачки. Показано, что в области гистерезиса возможно появление дополнительного квазистационарного состояния и длительность нахождения системы в квазистационарном состоянии зависит от величины накачки.

DOI: 10.31857/S1234567823020039, EDN: oearpc

1. Введение. В объемных материалах спектр собственных мод электромагнитного поля является непрерывным, тогда как в мезорезонаторах возможно взаимодействие излучателя с одной оптической модой [1–3]. Взаимодействие экситона с локализованной оптической модой в резонаторах позволило наблюдать ряд интересных эффектов, таких как бозе-конденсация поляритонов [4, 5], бистабильность [6–8], формирование вихрей поляритонной жидкости [9] и ряд других [10–13]. При увеличении числа взаимодействующих экситонов и оптических мод резонатора картина наблюдаемых явлений становится существенно более богатой. В частности, в связанных мезорезонаторах с квантовыми ямами проявляется возможность наблюдения взаимодействия макроскопически разделенных экситонных состояний через оптические моды резонатора [14], появление оптически неактивных (“темных”) экситонных состояний [15].

Поляритонная бистабильность является следствием нелинейного взаимодействия (например, экситон-экситонного) и проявляется как гистерезис в зависимости населенности поляритонных уровней от накачки, при этом в случае взаимодействия одного экситонного состояния с одним фотонным, зависимость населенности от накачки является монотонной для обеих ветвей гистерезиса [6].

В мезорезонаторах – структурах, размеры кото-

рых обеспечивают межмодовый интервал, сравнимый с величиной расщепления Раби, возможна реализация ряда новых эффектов, таких, как ступенчатое увеличение экситонной населенности при непрерывной накачке, квантовые биения при импульсной накачке, а также немонотонная зависимость населенности поляритонных уровней от накачки в стационарном состоянии [16–18].

Для построения логических устройств и генераторов высокочастотных колебаний большое значение имеют устройства, характеризующиеся S-образной и N-образной зависимостью выходного сигнала от входного, поэтому поляритонная бистабильность рассматривается как базовый принцип построения будущих поляритонных систем обработки информации [19–21]. Продемонстрированная для мезорезонаторов N-образная зависимость населенности нижнего поляритонного уровня от накачки [18] позволяет рассматривать мезорезонаторы в качестве перспективного элемента для создания систем обработки информации.

Целью данной работы является подробное исследование поляритонной бистабильности в мезорезонаторах, а также исследование временной динамики населенности поляритонных уровней в особых точках в области гистерезиса в зависимости населенности поляритонных уровней от накачки.

2. Основные уравнения. Для теоретического описания взаимодействия одной экситонной моды с несколькими фотонными модами рассмотрим модельную систему, состоящую из одной экситонной

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

²⁾e-mail: leha.s92.92@gmail.com

моды с энергией $\hbar\omega_0$ и нескольких фотонных мод с энергией $\hbar\omega_k$. Гамильтониан, описывающий взаимодействие экситона в полости с оптическими модами резонатора и экситон-экситонное взаимодействие, имеет вид [22]:

$$\hat{H} = \hbar\omega_0 \hat{x}^+ \hat{x} + \sum_k \hbar\omega_k \hat{a}_k^+ \hat{a}_k + \sum_k \hbar g_k (\hat{a}_k^+ \hat{x} + \hat{a}_k \hat{x}^+) + \hbar U \hat{x}^+ \hat{x}^+ \hat{x} \hat{x}, \quad (1)$$

где \hat{x}^+ , \hat{a}_k^+ (\hat{x} , \hat{a}_k) – операторы рождения (уничтожения) экситона и фотона соответственно. Для операторов \hat{a}_k^+ , \hat{a}_k , \hat{x}^+ , \hat{x} , будут справедливы коммутационные соотношения для бозонов $[\hat{a}_k, \hat{a}_k^+] = 1$ и $[\hat{x}, \hat{x}^+] = 1$. Величина $\hbar g_k (\hat{a}_k^+ \hat{x} + \hat{a}_k \hat{x}^+)$ описывает экситон-фотонное взаимодействие. Константа связи g_k связана с дипольным моментом экситона d_{eg} и объемом фотонной моды V_k соотношением $g_k = \sqrt{\omega_k/2\epsilon_0\epsilon V} d_{eg}$ [11], где $\epsilon_0\epsilon$ – диэлектрическая константа. Величина $\hbar U \hat{x}^+ \hat{x}^+ \hat{x} \hat{x}$ описывает экситон-экситонное взаимодействие с энергией $\hbar U$.

Здесь рассмотрен случай квантовых ям или больших квантовых точек, поэтому мы будем рассматривать слабозадействующие экситоны, для которых справедливо коммутационное соотношение для бозонов [23] и $\hbar U \ll \hbar g_k$ [6].

При наличии диссипации поведение системы можно описать с помощью уравнения Лиувилля для матрицы плотности $\hat{\rho}$ с членами, отвечающими за диссипацию [24]:

$$\partial_t \hat{\rho} = \hat{\mathcal{L}} \hat{\rho}, \quad (2a)$$

где Лиувиллиан с членами Линдблада, описывающими диссипацию для экситона γ_0 и фотонов γ_k , определяется выражением [25]:

$$\hat{\mathcal{L}} \hat{\rho} = \frac{i}{\hbar} [\hat{\rho}, \hat{H}] + \frac{\gamma_0}{2} (2\hat{x} \hat{\rho} \hat{x}^+ - \hat{x}^+ \hat{x} \hat{\rho} - \hat{\rho} \hat{x}^+ \hat{x}) + \sum_k \frac{\gamma_k}{2} (2\hat{a}_k \hat{\rho} \hat{a}_k^+ - \hat{a}_k^+ \hat{a}_k \hat{\rho} - \hat{\rho} \hat{a}_k^+ \hat{a}_k). \quad (2b)$$

В данной работе мы рассматриваем систему при нулевой температуре и пренебрегаем взаимодействием с фононами и свободными электронами системы. При ненулевой температуре, вследствие взаимодействия фононных, экситонных и поляритонных мод, появляются дополнительные эффекты [26].

Уравнение (2) можно преобразовать в систему дифференциальных уравнений, описывающую динамику населенностей фотонных и экситонных мод:

$$\begin{cases} \partial_t n_{xx} = \sum_k i g_k (n_{kx} - n_{xk}) - \gamma_0 n_{xx} + I(n_{xx} + 1), \\ \partial_t n_{ij} = i(\omega_i - \omega_j) n_{ij} - i g_j n_{ix} + i g_i n_{xj} - \\ - \frac{1}{2}(\gamma_i + \gamma_j) n_{ij}, \\ \partial_t n_{xi} = i(\omega_0 - \omega_i) n_{xi} + \sum_k i g_k n_{ki} - i g_i n_{xx} - \\ - \frac{1}{2}(\gamma_0 + \gamma_i) n_{xi} + 2iU n_{xx} n_{xi}, \end{cases} \quad (3)$$

где $n_{xx} = \langle \hat{x}^+ \hat{x} \rangle$ – среднее значение числа экситонов, $n_{xi} = \langle \hat{x}^+ \hat{a}_i \rangle = n_{ix}^*$ и $n_{ij} = \langle \hat{a}_i^+ \hat{a}_j \rangle$ ($i \neq j$) – значения в смешанных состояниях. Количество фотонов в моде i описывается выражением $n_{ii} = \langle \hat{a}_i^+ \hat{a}_i \rangle$, слагаемое $I(n_{xx} + 1)$ – описывает накачку экситонов в систему [25–27]. В данной работе мы рассматриваем только экситонную накачку, основываясь на работах [6, 27–29]. Подробные исследования бистабильности с использованием такой же модели, но при фотонной внешней накачке, рассмотрены, например, в работе [30].

Экситоны и моды резонатора образуют связанные состояния (поляритоны), и систему иногда удобно описывать в поляритонном базисе. Количество частиц в поляритонной моде можно найти с помощью следующего выражения:

$$p_i = \langle \hat{p}_i^+ \hat{p}_i \rangle = |c_{0i}|^2 n_{xx} + \sum_k c_{0i} c_{ki}^* (n_{xk} + n_{kx}) + \sum_{k,k'} c_{ki} c_{k'i}^* n_{kk'}, \quad (4)$$

где p_i – среднее количество поляритонов в моде i , c_{ij} – элемент матрицы перехода в поляритонный базис. Величина $|c_{0i}|^2$ является экситонным вкладом в поляритонную моду (коэффициентом Хопфилда).

3. Результаты и обсуждение. Для анализа бистабильного поведения в мезорезонаторах следует рассмотреть взаимодействие экситона с большим количеством оптических мод (в данной статье рассмотрен случай, когда с экситоном взаимодействует 5 мод).

На рисунке 1a показаны комплексные частоты оптических мод мезорезонатора, поддерживающего 5 мод, интервал между которыми $\Delta = 14.3 \cdot 10^{-3} \omega_0$, а также частота экситонной моды. Кроме этого, на рисунке 1a приведены комплексные частоты поляритонных мод, полученные диагонализацией гамильтониана (1). Указанные частоты нормированы на частоту экситонной моды ω_0 . Мнимые части частот поляритонных мод, описывающие затухание поляритонов, определяются соотношением:

$$\gamma_{p_i} = \gamma_0 |c_{0i}|^2 + \sum_k \gamma_k |c_{ki}|^2. \quad (5)$$

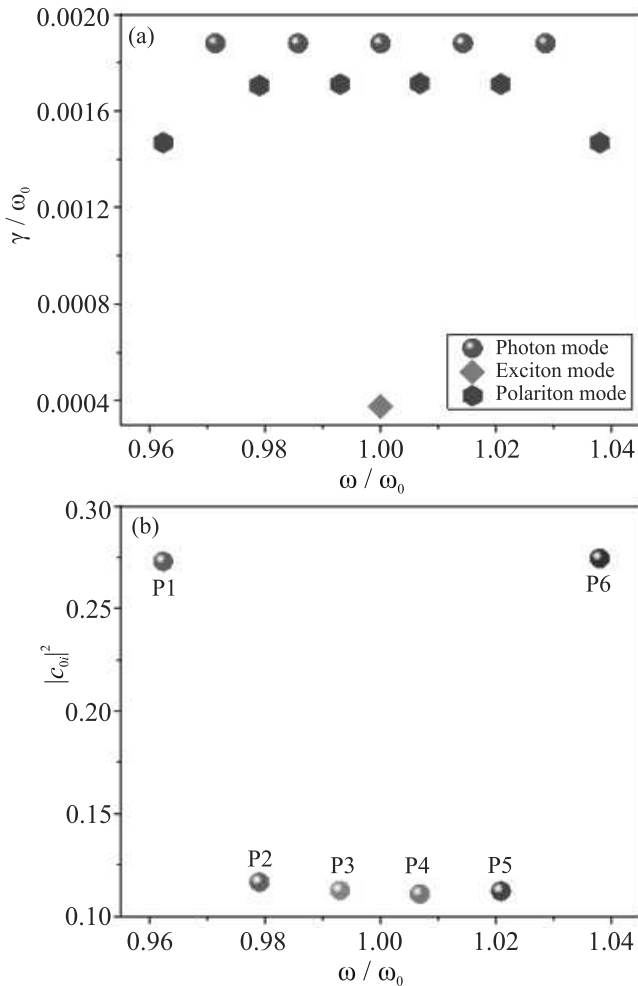


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Энергии и коэффициенты диссипации для оптических мод мезорезонатора (кружки), моды экситона (ромб) и поляритонных мод (шестиугольники). (б) – Коэффициенты Хопфилда, иллюстрирующие экситонный вклад в поляритонные моды для шести поляритонов

Рисунок 1б показывает коэффициенты Хопфилда для разных поляритонных мод.

В зависимости от соотношения частотного интервала между модами резонатора и расщеплением Раби экситонной и фотонной моды, распределение коэффициентов Хопфилда по поляритонным модам может иметь разную форму [18]: распределение может быть колоколообразным, коэффициенты Хопфилда могут иметь примерно одинаковую величину, коэффициенты для мод по краям распределения могут существенно превышать коэффициенты для мод в центре. В данной работе выбраны значения параметров, обеспечивающие выраженные N-образные особенности в зависимости населенности нижнего поляритонного уровня от накачки: затуха-

ние экситонной моды $\gamma_0 = 0.85 \cdot 10^{-3}\omega_0$, затухание фотонных мод $\gamma_i = 5 \cdot 10^{-3}\omega_0$, константа экситон-фотонного взаимодействия $g_k \approx 14.3 \cdot 10^{-3}\omega_0$, энергетический интервал между модами $\Delta = 14.3 \cdot 10^{-3}\omega_0$. Константа для экситон-экситонного взаимодействия $U = 12.86 \cdot 10^{-6}\omega_0$ (что соответствует типичным величинам для полупроводниковых структур: например, для микрорезонаторов на основе нитридов, энергия экситона $\omega_0 = 3.5$ эВ, тогда $U = 45$ мкэВ [6]).

На рисунке 2 показаны зависимости населенности поляритонных мод в мезорезонаторе от накачки для двух разных длительностей накачки: $t\omega_0 = 2 \cdot 10^4$ (рис. 2а) и $t\omega_0 = 5 \cdot 10^6$ (рис. 2б). Для обоих случаев в момент включения накачки заселенности всех поляритонных уровней были равны нулю и в конце периода наблюдения населенность уровней выходила на стабильные значения.

Для обеих длительностей накачки система демонстрирует гистерезис в зависимости населенности поляритонных мод от накачки, однако для случая, изображенного на рис. 2а, петля гистерезиса демонстрирует сложную структуру. Поскольку вид петли гистерезиса зависит от времени накачки, необходимо рассмотреть временную динамику населенности поляритонных уровней.

На рисунке 3 показана зависимость населенности поляритонных мод от времени при ступенчатом изменении накачки: накачка с интенсивностью $I/\omega_0 = 3.001$ включается в момент времени 0, и затем падает до $I/\omega_0 = 2.167$ в момент времени $t\omega_0 = 4 \cdot 10^5$.

В начальный момент времени населенности поляритонных уровней равны нулю. При включении накачки с интенсивностью $\frac{I}{\omega_0} = 3.001$ (что соответствует переходу с нижней на верхнюю ветку гистерезиса, см. рис. 2б), населенность устанавливается на квазистационарном уровне, соответствующем нижней ветке гистерезиса, в течение некоторого времени находится на этом уровне, после чего скачком переходит в стационарное состояние, соответствующее верхней ветке гистерезиса, где может находиться неограниченно долго. В момент времени $4 \cdot 10^5 t\omega_0$ накачка снижается до уровня $\frac{I}{\omega_0} = 2.167$, соответствующего переходу с верхней ветки гистерезиса на нижнюю. При этом видно, что населенность переходит со стационарного состояния, соответствующего накачке $\frac{I}{\omega_0} = 3.00$, в квазистационарное состояние и находится на этом уровне некоторое время. После чего населенность скачком переходит в стационарное состояние, соответствующее нижней ветке гистерезиса.

На рисунке 4 показана зависимость длительности пребывания системы в квазистационарном состоянии от интенсивности накачки. Можно видеть, когда ин-

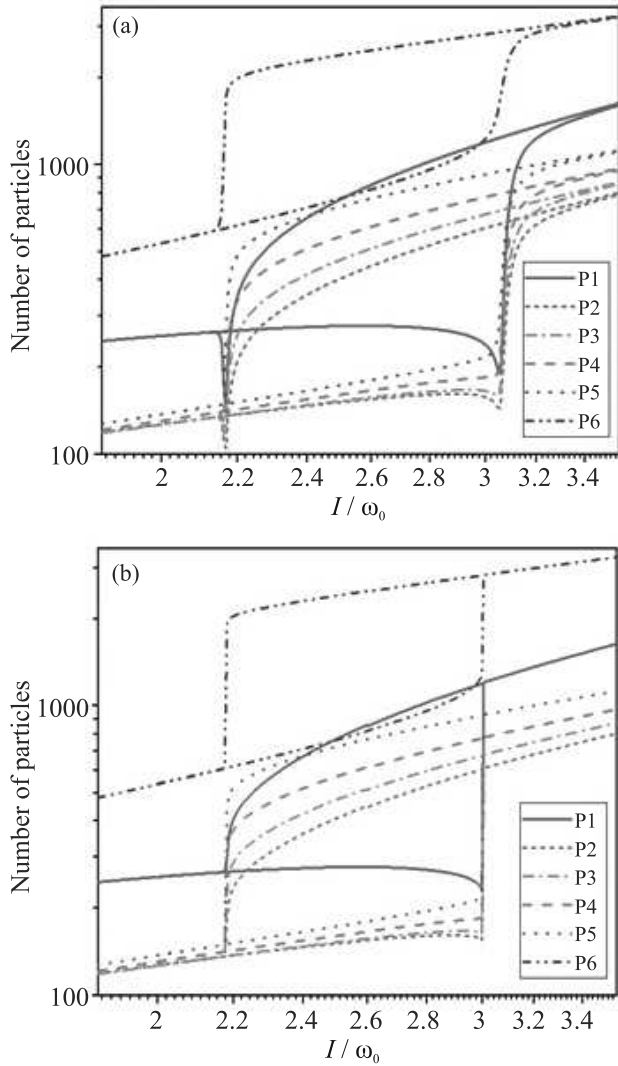


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимость населенности поляритонных мод от накачки. (a) – Длительность накачки $t\omega_0 = 2 \cdot 10^4$. (b) – Длительность накачки $t\omega_0 = 5 \cdot 10^6$ больше, чем время выхода населенности на постоянный уровень. Для поляритонных мод с энергией ниже энергии экситона наблюдаются аномальные петли гистерезиса с немонотонной зависимостью населенности от накачки

тенсивность накачки не превышает порогового значения $I/\omega_0 = 3.0$, система не переходит в верхнее стационарное состояние. При превышении порогового значения накачки, система переходит в верхнее состояние через квазистационарное состояние, причем длительность пребывания в квазистационарном состоянии стремится к бесконечности, когда накачка стремится к пороговому значению справа, и с дальнейшим увеличением накачки начинает быстро падать. С учетом того, что для полупроводниковых систем энергия экситона составляет единицы электрон-

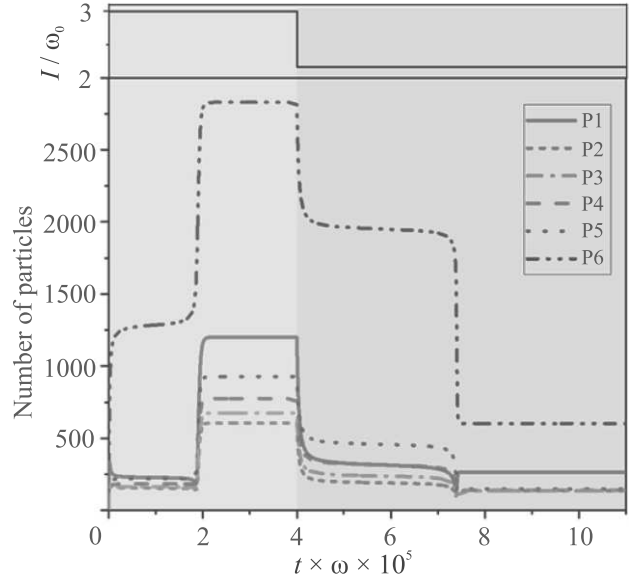


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость населенности поляритонных мод от времени при постоянной накачке $\frac{I}{\omega_0} = 3.001$ в период времени от 0 до $4 \cdot 10^5 t\omega_0$ и $\frac{I}{\omega_0} = 2.167$ в период времени от $4 \cdot 10^5 t\omega_0$ до $1.2 \cdot 10^6 t\omega_0$. Сверху вставка, показывающая зависимость накачки от времени

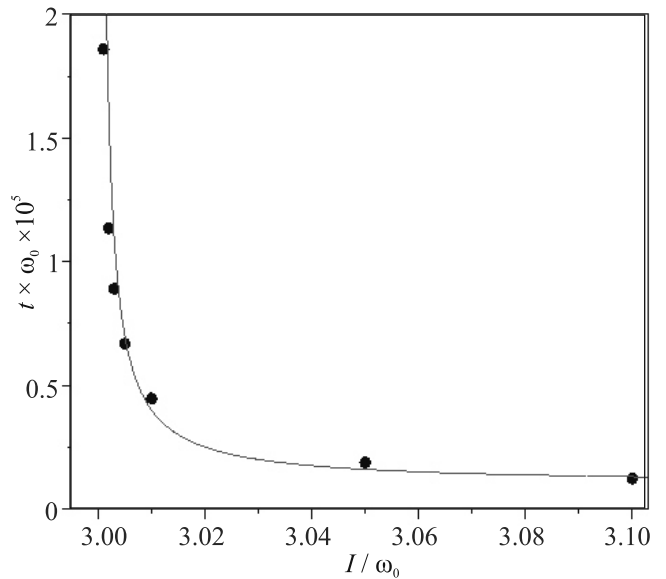


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость времени нахождения системы в квазистационарном состоянии от накачки для поляритонной моды P1. Сплошной линией показана зависимость $t\omega_0 = \frac{300}{\frac{I}{\omega_0} - 3} + 10^4$

Вольт, характерные времена переключения системы находятся в пикосекундном диапазоне. Зависимости населенности от времени и накачки, продемонстрированные на рис. 2 и 3, показывают, что при введе-

нии в систему обратной связи, мезорезонаторы могут быть использованы для создания логических элементов и генераторов импульсов и их последовательностей.

4. Заключение. Рассмотрено взаимодействие оптических мод мезорезонатора с экситоном. Выявлено, что в области гистерезиса возможно появление дополнительного квазистационарного состояния, длительность нахождения в котором для системы зависит от величины накачки. Переходы между стационарными состояниями через квазистационарное состояние могут использоваться для создания логических схем и генераторов высокой частоты на основе поляритонов.

Авторы выражают благодарность Российскому научному фонду (проект # 21-12-00304).

1. C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, and Y. Akarawa, *Phys. Rev. Lett.* **69**(23), 3314 (1992).
2. R. Houdré, C. Weisbuch, R.P. Stanley, U. Oesterle, P. Pellandini, and M. Ilegems, *Phys. Rev. Lett.* **73**(15), 2043 (1994).
3. J.D. Berger, O. Lynges, H.M. Gibbs, G. Khitrova, T.R. Nelson, E.K. Lindmark, A.V. Kavokine, M.A. Kaliteevski, and V.V. Zapasskii, *Phys. Rev. B* **54**(3), 1975 (1996).
4. J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J.M.J. Keeling, F.M. Marchetti, M.H. Szymanska, R. Andre, J.L. Staehli, V. Savona, P.B. Littlewood, B. Deveaud, and Le Si Dang, *Nature* **443**(7110), 409 (2006).
5. S. Christopoulos, G. Baldassarri Höger von Högersthal, A.J.D. Grundy, P.G. Lagoudakis, A.V. Kavokin, J.J. Baumberg, G. Christmann, R. Butté, E. Feltn, J.-F. Carlin, and N. Grandjean, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 126405 (2007).
6. A. Baas, J. Ph. Karr, H. Eleuch, and E. Giacobino, *Phys. Rev. A* **69**, 023809 (2004).
7. A. Tredicucci, Y. Chen, V. Pellegrini, M. Börger, and F. Bassani, *Phys. Rev. A* **54**, 3493 (1996).
8. I.G. Savenko, I.A. Shelykh, and M.A. Kaliteevski, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 027401 (2011).
9. H. Flayac, G. Pavlovic, M.A. Kaliteevski, and I.A. Shelykh, *Phys. Rev. B* **85**, 075312 (2012).
10. А. А. Деменев, С. С. Гаврилов, А. С. Бричкин, А. В. Ларионов, В. Д. Кулаковский, *Письма в ЖЭТФ* **100**(8), 583 (2014).
11. А. А. Деменев, С. С. Гаврилов, В. Д. Кулаковский, *Письма в ЖЭТФ* **95**(1), 42 (2012).
12. С. С. Гаврилов, А. С. Бричкин, А. А. Дородный, С. Г. Тиходеев, Н. А. Гиппиус, В. Д. Кулаковский, *Письма в ЖЭТФ* **92**(3), 194 (2010).
13. A. Kavokin, J.J. Baumberg, G. Malpuech, and F.P. Laussy, *Microcavities (Semiconductor Science and Technology)*, Oxford University, Oxford (2007).
14. E. K. Lindmark, T. R. Nelson, H. M. Gibbs, G. Khitrova, A. V. Kavokine, and M. A. Kaliteevski, *Opt. Lett.* **21**, 994 (1996).
15. A. Armitage, M.S. Skolnick, V.N. Astratov, D.M. Whittaker, G. Panzarini, L.C. Andreani, T.A. Fisher, J.S. Roberts, A.V. Kavokin, M.A. Kaliteevski, and M.R. Vladimirova, *Phys. Rev. B* **57**(23), 14877 (1998).
16. G. Pozina, C. Hemmingsson, A.V. Belonovski, I.V. Levitskii, M.I. Mitrofanov, E.I. Girshova, K.A. Ivanov, S.N. Rodin, K.M. Morozov, V.P. Evtikhiev, and M.A. Kaliteevski, *Phys. Status Solidi A* **217**, 1900894 (2019).
17. A.V. Belonovski, I.V. Levitskii, K.M. Morozov, G. Pozina, and M.A. Kaliteevski, *Opt. Express* **28**(9), 12688 (2020).
18. A.V. Belonovski, K.M. Morozov, E.I. Girshova, G. Pozina, and M.A. Kaliteevski, *Opt. Express* **29**(13), 20724 (2021).
19. T.C.H. Liew, A.V. Kavokin, T. Ostatnickiy, M. Kaliteevski, I.A. Shelykh, and R.A. Abram, *Phys. Rev. B* **82**, 033302 (2010).
20. E.B. Magnusson, I.G. Savenko, and I.A. Shelykh, *Phys. Rev. B* **84**, 195308 (2011).
21. W.J. Firth and A.J. Scroggie, *Semiconductor Science and Technology* **10**, 1623 (1996).
22. R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, Clarendon Press, Oxford (1973), p. 184.
23. F.P. Laussy, M.M. Glazov, A. Kavokin, D.M. Whittaker, and M. Guillaume, *Phys. Rev. B* **73**(11), 115343 (2006).
24. J.P. Reithmaier, *Semicond. Sci. Technol.* **23**(12), 123001 (2008).
25. F.P. Laussy, E. del Valle, and C. Tejedor, *Phys. Rev. B* **79**, 235325 (2009).
26. С. С. Гаврилов, *УФН* **190**(2), 137 (2020).
27. G. Savenko, I.A. Shelykh, and M.A. Kaliteevski, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 027401 (2011).
28. M. Amthor, T.C.H. Liew, C. Metzger, S. Brodbeck, L. Worschech, M. Kamp, I.A. Shelykh, A.V. Kavokin, C. Schneider, and S. Höfling, *Phys. Rev. B* **91**, 081404 (2015).
29. M.A. Kaliteevski, K.A. Ivanov, G. Pozina, and A.J. Gallant, *Sci. Rep.* **4**, 5444 (2014).
30. S.S. Demirchyan, T.A. Khudaiberganov, I.Y. Chestnov, and A.P. Alodzants, *Journal of Optical Technology* **84**(2), 75(2017).

Определение важнейших параметров металла, облученного ультракоротким лазерным импульсом

Н. А. Иногамов^{+*×1)}, В. А. Хохлов^{+×}, С. А. Ромашевский[×], Ю. В. Петров⁺, В. В. Жаховский^{*×},
С. И. Ашитков[×]

⁺Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау РАН, 142432 Черногловка, Россия

^{*}Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н. Л. Духова Росатом, 127055 Москва, Россия

[×]Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия

Поступила в редакцию 16 ноября 2022 г.

После переработки 26 ноября 2022 г.

Принята к публикации 1 декабря 2022 г.

Ультракороткие лазерные воздействия с длительностью от нескольких до порядка 1000 световых осцилляций имеют огромное значение в современной науке и технике. Такой импульс переводит металл в возбужденное состояние с горячими электронами: двухтемпературное состояние $T_e \gg T_i$, где T_e, T_i – это температуры электронной и ионной подсистем. При этом меняется коэффициент теплопроводности по сравнению с хорошо известными справочными значениями. Теплопроводность κ и темп обмена энергией между электронной и ионной подсистемами α – это ключевые параметры 2Т модели. До сих пор они остаются плохо изученными. Хотя работ, направленных на их исследование, особенно это касается α , много. В настоящей статье представлены новые теоретико-экспериментальные данные, позволяющие определить κ и α на примере с золотом.

DOI: 10.31857/S1234567823020040, EDN: oefbbu

1. Введение. Ультракороткие лазерные импульсы (УкЛИ) широко применяются в плазмонике [1, 2], микро-, нанообработке поверхности (структурирование [2–5], упрочнение [6]) и для производства коллоидных растворов наночастиц [7]. Этим объясняется большой интерес к физике воздействия УкЛИ на металлы. Изолированные атомы могут существовать в основном и возбужденном состояниях. При воздействии УкЛИ в конденсированной среде возникает аналог возбужденного состояния. Если в изолированном атоме за снятие возбуждения ответственны фотопроцессы, то в металле релаксация обусловлена черенковским излучением фононов сверхзвуковыми электронами [8, 9]. Коэффициент электрон-ионной релаксации α связан с этим процессом; в литературе вместо α часто используют эквивалентное обозначение g [10].

В металлах глубина проникновения электромагнитного поля световых лазеров ограничена тонким скин-слоем (толщина $d_{\text{skin}} = 10\text{--}20$ нм), поскольку плазменная частота больше лазерной. Поэтому в пленках толще, чем скин-слой, и в объемных мишенях важнейшую роль в кинетике релаксации (в направлении от неравновесного двухтемпературного к

равновесному однотемпературному $T_e = T_i$ состоянию) играет охлаждение слоя d_{skin} за счет электронной теплопроводности. Таким образом, параметры α (коэффициент обмена) и κ (теплопроводность) определяют физику лазерного воздействия в ситуациях с УкЛИ. Задача состоит в определении этих параметров.

2. Электрон-фононное взаимодействие. Важность релаксации электронного возбуждения посредством электрон-фононного взаимодействия была подчеркнута уже в первых работах [8, 9]. В статьях 1980–90-х гг. информация о релаксации электронов была получена в опытах по изменению отражения вследствие нагрева (термоотражение, далее TTR – *transient thermo reflectivity*) [11–14]. Нагревы электронной подсистемы в этих работах были небольшими – превышение электронной температуры T_e над комнатной температурой не более, чем на сотни градусов. Значения α для золота получались в пределах $(2 \div 4) \cdot 10^{16}$ Вт К⁻¹ м⁻³.

В более современных работах начала нынешнего тысячелетия, во-первых, для диагностики (probe) после основного фемтосекундного оптического воздействия (pump) использовался ультракороткий электронный или рентгеновский импульс [15–17]. По тепловому уширению линий ионов в решетке находилась

¹⁾e-mail: nailinogamov@gmail.com

текущая ионная температура T_i . Во-вторых, собиралось отраженное и прошедшее через пленку излучение и аккуратно определялась энергия, поглощенная пленкой. По коэффициентам отражения и пропускания выяснялись оптические характеристики золота [18–22] в двухтемпературном состоянии. Измерялось время начала плавления ультратонкой (толщина пленки $d_f \sim d_{\text{skin}}$) пленки [20], см. также описание плавления золота в статье [23].

Если в старых работах [11–14] энергии лазера и соответственно максимальные электронные температуры T_e были малы, то в работах [15–17, 24], наоборот, в ультратонкую пленку $d_f \sim d_{\text{skin}}$ вкладывалось много энергии, так что имели место процессы и плавления (см. [25–27]), и гидродинамического распада пленки [27–29].

Ситуация с расчетами и измерениями в опытах величины коэффициента α выглядела относительно благополучно. Так было до работ (а) Милова и Медведева [30–32], (б) до опытов с построением картин Лауэ при дифракции релятивистского электронного пучка на облученной фемтосекундным лазером ультратонкой (35 нм) пленке монокристалла золота [33, 34] и (с) интерпретации опытов [33] с помощью молекулярно-динамического (МД) моделирования [35, 36]. Мнение о существенном ослаблении коэффициента α было высказано в недавней работе (сентябрь 2022) [37].

Драматизм ситуации ясен из статьи [30]. Значения коэффициента $\alpha(T_e)$, например, при $T_e = 15$ кК, в разных теоретических работах, цитируемых на рис. 1б [30], отличаются в 7 раз. Часть работ по расчету зависимости $\alpha(T_e)$ из указанного перечня работ основана на обобщении [38, 10], предложенном в 1994 году в статье [38]. Это обобщение на многозонные металлы однозонного подхода Аллена [39]:

$$\alpha(T_e) = \frac{\pi \hbar k_B \lambda(\omega^2)}{g_\Sigma(\varepsilon_F)} \int (g_\Sigma(\varepsilon))^2 (-\partial f_F / \partial \varepsilon) d\varepsilon, \quad (1)$$

где $g_\Sigma(\varepsilon)$ – суммарная плотность электронных состояний, $f_F(\varepsilon; \mu(T_e), T_e)$ – распределение Ферми по энергии одноэлектронных состояний ε , $\mu(T_e)$ – химический потенциал, который определяется из условия нормировки на число электронов, для золота суммарное число электронов s- и d-зон равно 11 (см., например, [26]), ε_F – уровень Ферми.

Важно то, что множитель $\lambda(\omega^2)$ в формуле (1) берется из измерений при низких температурах [40]. Этот множитель характеризует силу электрон-фононного взаимодействия и используется в теории сверхпроводимости [39, 38, 10]. При таком обобщении нивелируется разница между зонами электрон-

ного спектра и в формулу (1) подставляется функция $g_\Sigma(\varepsilon)$ для суммарной (индекс Σ) плотности электронных состояний. Между тем d-зона золота лежит достаточно глубоко под уровнем Ферми (примерно 2 эВ) и никак себя не проявляет при криогенных температурах. Следовательно, нет вклада от d-зоны в множитель $\lambda(\omega^2)$ в формуле (1).

В другой части работ [30–32, 40, 41] из упомянутого выше перечня при расчете коэффициента α вклады зон разделяются, например, для золота $\alpha_\Sigma = \alpha_s + \alpha_d$, см. [40]. При этом значения α_Σ получаются меньше [30–32, 40, 42], чем по простой формуле (1), например, см. рис. 2 в статье [42]. Отметим также, что величина функции $\alpha_\Sigma(T_e)$ существенно зависит от выбранной экранировки [43]. Из четырех использованных нами экранировок (Thomas–Fermi, Lindhard, Hubbard, Singwi–Sjoelander) формулы моделей Thomas–Fermi и Lindhard дают близкие результаты, а наилучшей, видимо, является экранировка Singwi–Sjoelander, см. [43], с. 6.

На рисунке 1 представлены теоретические зависимости $\alpha_\Sigma(T_e)$. Красная кривая взята из работы

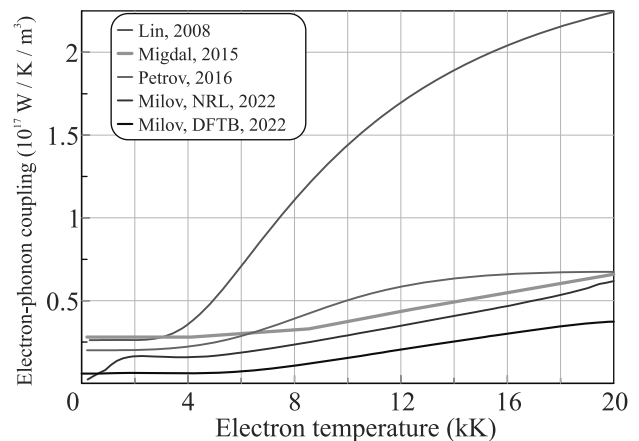


Рис. 1. (Цветной онлайн) Теоретические зависимости $\alpha_\Sigma(T_e)$, см. текст

[10], зеленая – из статьи [23], голубая взята с рис. 7а статьи [43], синяя и черная кривые соответствуют рис. 1(а) в статье [32]. Как видим, функция $\alpha(T_e)$ из статьи [10] начинает резко расти согласно формуле (1) после повышения температуры T_e и подключения электронов и дырок d-зоны к электрон-фононному взаимодействию. В наших двухтемпературных гидродинамических ($2T$ -гд) расчетах, представленных ниже, будет использоваться зависимость $\alpha_*(T_e)$ из статьи [23] (зеленая кривая на рис. 1). Мы будем варьировать амплитуду электрон-фононного взаимодействия с помощью фактора n :

$$\alpha_* \rightarrow \alpha_*/n. \quad (2)$$

Фактор n в (2) подбирается так, чтобы зависимость нормированной поправки к коэффициенту отражения

$$-\Delta R/R_0, \Delta R = R(t) - R_0, \quad (3)$$

найденная путем численного моделирования, наилучшим образом соответствовала нашим опытам по TTR, см. ниже; здесь R_0 – коэффициент отражения до лазерного воздействия, $R(t)$ – коэффициент отражения как функция времени до, во время и после лазерного воздействия.

3. Теплопроводность в двухтемпературных условиях. Теория теплопроводности κ в двухтемпературных состояниях оказывается сложнее, чем теория коэффициента электрон-фононного теплообмена α . Работ с расчетами κ меньше [40, 42, 44–47]. Между тем, как сказано выше, в золоте в случае объемной мишени тепло, запасенное в скин-слое за время действия ультракороткого импульса, выводится в основном именно за счет теплопроводности. Фактор теплопроводности – это основной фактор в законе снижения электронной температуры в скин-слое. В этом отношении канал охлаждения, связанный с электрон-фононным взаимодействием α , менее важен.

На рисунке 2 представлены зависимости $\kappa(T_e, T_i)$. Кривые “Smirnov” были приведены на рис. 9 в недав-

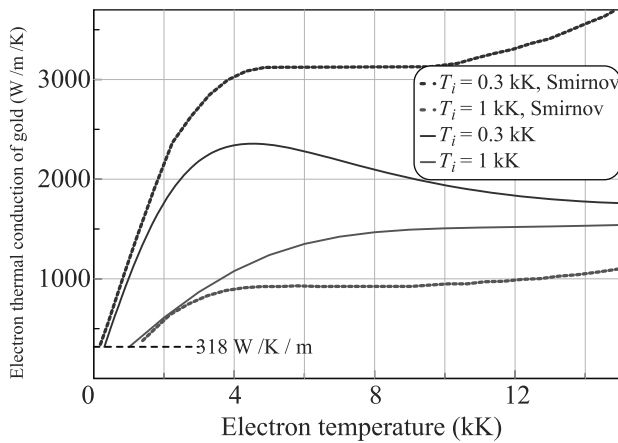


Рис. 2. (Цветной онлайн) Теоретические зависимости $\kappa(T_e, T_i)$. Кривые “Smirnov” взяты с рис. 9 в статье [47]. Две другие кривые вычислены по нашей модели теплопроводности [48], которая применена для 2T-гд расчетов в данной работе. Штриховая горизонтальная прямая относится к коэффициенту теплопроводности κ_0 при комнатной температуре

ней статье [47]. В наших 2T-гд расчетах мы будем пользоваться моделью, построенной в статье [48]. По этой модели вычислены две сплошные кривые,

представленные на рис. 2. В модели [48] вычисляются вклады в теплопроводность κ_{ee} и κ_{ei} , обусловленные электрон-электронными (ee) и электрон-ионными (ei) столкновениями.

Теплопроводность κ_{2T} определяется по парциальным вкладам по правилу Матиссена (сложение тепловых сопротивлений)

$$1/\kappa_{2T} = 1/(k_e \kappa_{ee}) + 1/\kappa_{ei}. \quad (4)$$

В гидродинамических расчетах мы с помощью дополнительного параметра k_e варьируем электрон-электронный вклад κ_{ee} в теплопроводность κ_{2T} . Это делается таким образом, чтобы наилучшим образом описать эксперимент; чем больше k_e , тем слабее роль κ_{ee} .

Рассмотрим однотемпературную ситуацию $T_e = T_i$ на интервале температур от температуры Дебая до температуры плавления. В этом интервале теплопроводность, вычисляемая по нашей модели [48], слабо зависит от температуры: $\kappa_{2T} \approx \kappa_0$, где κ_0 соответствует значению при комнатной температуре. Так и должно быть: при $T_e = T_i$ в указанном интервале температур рост электронной теплоемкости $c_e \propto T_e$ компенсируется ростом частоты электрон-фононных столкновений $\nu_{ei} \propto T_i$; $\nu_{ee} \ll \nu_{ei}$ при таких температурах.

Отметим, расчеты коэффициента теплопроводности κ в работе [47] выполнены без учета электрон-электронных столкновений (частота ν_{ee}). Поэтому кривые, показанные точками на рис. 2, пропорциональны друг другу с коэффициентом пропорциональности, равным отношению ионных температур T_i . В нашей модели частота ν_{ee} играет важную роль.

В теории в двухтемпературных условиях коэффициент теплопроводности κ сильно возрастает при увеличении температуры T_e , ср. кривые на рис. 2 и штриховую прямую. Это происходит вследствие увеличения теплоемкости электронов c_e из-за частичного снятия вырождения при нагреве электронной подсистемы. Темп роста коэффициента κ_{2T} из-за роста теплоемкости c_e вследствие увеличения T_e замедляется из-за увеличения частоты ν_{ee} . Причем частота ν_{ee} при повышенных T_e растет несколько медленнее, чем T_e^2 , см. рис. 8, 10 в [44].

4. Двухтемпературное гидродинамическое численное моделирование. Мы применяем наш проверенный на предыдущих задачах двухтемпературный гидрокод, см., например, [49]. Система уравнений двухтемпературной гидродинамики выписана в работе [49]. Для ее решения необходимо знать уравнение состояния (УрС) и коэффициенты α, κ . Ионная часть УрС золота описывается широкодиапазонным

многофазным УрС [50–52], а электронная часть УрС берется согласно [53]. Коэффициенты α и κ были представлены выше в п. 2 и 3 (4). Коэффициент поглощения золота для длины волны накачки (pump) 400 нм равен 0.7 при падении под углом 45 градусов, см. описание опыта в работе [54] и в п. 6 ниже. Длительность импульса накачки в опытах составляла 150 фс по уровню $1/e$ при аппроксимации временной зависимости функцией Гаусса.

На рисунке 3 проиллюстрированы результаты численного моделирования. Для согласования с

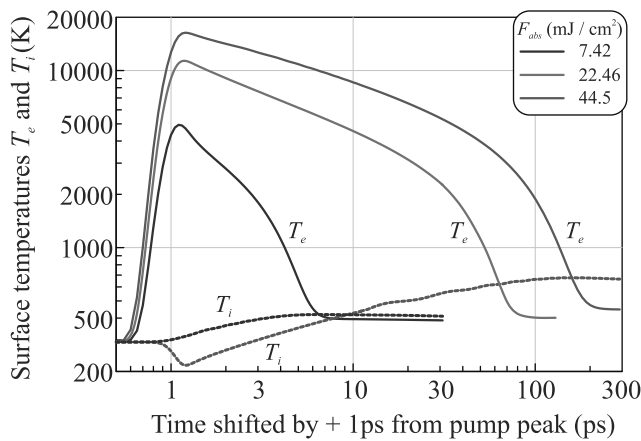


Рис. 3. (Цветной онлайн) Ход электронной температуры на поверхности в случае расчетов, согласующихся с измерениями коэффициента отражения (3). Как видим, даже для самого “сильного” воздействия максимум ионной температуры существенно ниже температуры плавления золота 1337 К

результатами опытов было проведено порядка ста $2T$ -гд расчетов. Подбирались такие значения параметров n (2) и k_e (см. (4)), чтобы обеспечить наилучшее согласие с экспериментальными измерениями TTR (3). Отметим, что квазиadiaбатическое снижение температуры T_i на поверхности в первые пикосекунды обусловлено растяжением тонкого поверхностного слоя под действием электронного давления. Нагрев ионов в этом слое за счет электрон-ионного взаимодействия α на этих малых временах меньше адиабатического охлаждения.

Расчеты на рис. 3 охватывают широкий диапазон поглощенных флюенсов F_{abs} : 7.42, 22.6 и 44.52 мДж см⁻². Значения пар параметров n (2) и k_e (4) оказались равными (0.5, 0.25), (9, 4.5) и (15, 7.5) для перечисленных “слабого”, “среднего” и “сильного” лазерных воздействий соответственно. Выбор параметров n (2) и k_e (4), корректирующих зависимости $\alpha(T_e)$ и $\kappa(T_e, T_i)$, осуществляется на основании сравнения расчетов с экспериментом. Как показано

в следующем разделе, пропорциональная вариация параметров n и k_e не меняет температуру на одно-температурной стадии (т.е. на больших временах).

Зависимости (3) в наших опытах измерены на объемной мишени (толщина 1 мм) до времен 340 пс. Длина расчетного отрезка 4 мкм является достаточной для численного моделирования объемной мишени на временном интервале до 350 пс.

5. Двухтемпературная тепловая задача. Оценки. Важнейшими характеристиками течения, порожденного ультракратким лазерным воздействием, являются глубина прогрева (в нм)

$$d_T \sim 90 \frac{\gamma_{100}^{1/5} \chi_{10}^{2/5}}{\alpha_{17}^{2/5}} F_{100}^{1/5} \quad \text{или} \quad 65 \frac{\gamma_{100}^{1/6} \chi_{10}^{1/3}}{\alpha_{17}^{1/3}} F_{100}^{1/6} \quad (5)$$

на двухтемпературной стадии и продолжительность (в пс)

$$t_{eq} \sim 8 \frac{\gamma_{100}^{2/5}}{\chi_{10}^{1/5} \alpha_{17}^{4/5}} F_{100}^{2/5} \quad \text{или} \quad 4 \frac{\gamma_{100}^{1/3}}{\chi_{10}^{1/3} \alpha_{17}^{2/3}} F_{100}^{1/3} \quad (6)$$

этой стадии [49]. Здесь числовые нормировки имеют вид: $\gamma_{100} = \gamma/100$ Дж м⁻³ К⁻² – электронная теплоемкость $c_e = \gamma T_e$; $\alpha_{17} = \alpha/10^{17}$ Вт м⁻³ К⁻¹; $\chi_{10} = \chi_{2T}/10$ см² с⁻¹ – электронная температуропроводность $\chi = \kappa/c_e$; $F_{100} = F_{abs}/100$ мДж см⁻². Левое и правое выражения в формулах (5), (6) получаются в двух несколько различных аппроксимациях решений двухтемпературной задачи теплопроводности с потерями [49].

Как видим (5), (6), при фиксированных γ и F_{abs} значения d_T и t_{eq} определяются коэффициентами α и κ_{2T} . Важно то, что если изменять коэффициенты α и κ_{2T} пропорционально друг другу, то значение d_T не меняется! Если не меняется значение d_T , то не меняется и значение температуры на одностепенной ($T_e = T_i$) стадии; разумеется, при фиксированном значении поглощенной энергии F_{abs} (закон сохранения энергии), поскольку температура определяется объемной плотностью энергии F_{abs}/d_T .

При этом в двух аппроксимациях (5), (6) длительность двухтемпературной стадии возрастает

$$t_{eq} \propto n^{4/5} k_e^{1/5} \quad \text{или} \quad n^{2/3} k_e^{1/3}, \quad (7)$$

если увеличивать коэффициенты n (2) и k_e (4), ослабляющие электрон-фононную релаксацию и электронную теплопроводность. Длительность t_{eq} и прогрев d_T медленно растут также при увеличении поглощенной энергии F_{abs} , см. (5), (6).

6. Эксперимент. Источником излучения являлась Ti:S лазерная система (Legend, Coherent),

генерирующая импульсы длительностью 60 фс с частотой следования до 1 кГц. Для измерения временной динамики TTR применялась схема “накачка–зондирование” с использованием методики фазочувствительного детектирования с помощью синхронного усилителя Stanford research systems SR830.

В работе был реализован особый режим измерения сигнала TTR при низкой частоте следования нагревающих импульсов 31.5 Гц, усиленных в регенеративном усилителе. Выбор такого режима позволил минимизировать эффекты накопления и дал возможность получить новые данные при более высоких интенсивностях излучения и температурах без разрушения или деградации мишени, по сравнению со стандартно применяемыми режимами измерения TTR с частотой следования импульсов 80–100 МГц и температурой нагрева решетки на несколько градусов [55–60].

Нагревающие импульсы длительностью 150 фс на длине волны второй гармоники 400 нм фокусировались на поликристаллический массивный образец золота под углом 45 градусов в эллиптическое пятно размером 130 на 93 мкм по уровню $1/e$. Измеренное значение интегрального коэффициента отражения нагревающего импульса от мишени составило 0.3. Зондирующие импульсы длительностью 60 фс на длине волны 800 нм фокусировались по нормали в центр области нагрева в пятно диаметром 15 мкм. Пространственное распределение нагревающего и зондирующего импульсов соответствовало Гауссову.

Для варьирования временной задержки между нагревающим и зондирующим импульсами использовалась оптическая линия задержки. Шаг сканирования составлял 100 фс в интервале от -2 до $+5$ пс, 1 пс в интервале от $+5$ до 105 и 3.5 пс на временах, больших 105 пс, см. рис. 4 и 5. Каждая вертикальная черточка на этих рисунках соответствует одному шагу сканирования.

Регистрация изменения термоотражения (3) от времени проводилась для трех значений поглощенного флюенса F_{abs} , равных 7.4, 22.1 и 44.3 мДж см $^{-2}$. Для каждого из этих значений записывались два-три скана с последующим усреднением полученных временных зависимостей. Погрешность определялась среднеквадратичным отклонением по данным этих измерений. На рисунках 4 и 5 указанные погрешности представлены цепочкой вертикальных черточек. Все измерения проводились в одном месте на мишени.

7. Анализ и обсуждение результатов. На рисунках 4 и 5 приведены результаты сравнения

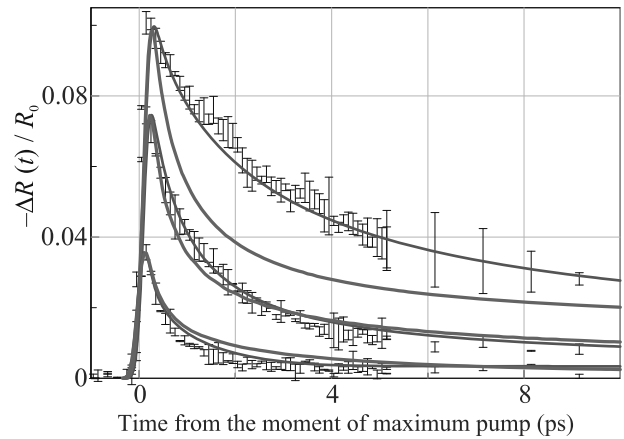


Рис. 4. (Цветной онлайн) Сравнение расчетов и опытов по TTR. Верхняя, средняя и нижняя последовательности погрешностей экспериментального измерения TTR (вертикальные черточки) относятся к сильному, среднему и слабому воздействиям соответственно. Красные кривые представляют наилучшие аппроксимации опытов. Зеленые кривые получены при значениях параметров α , κ , близких к теоретическим зависимостям на рис. 1, 2, см. объяснения в тексте

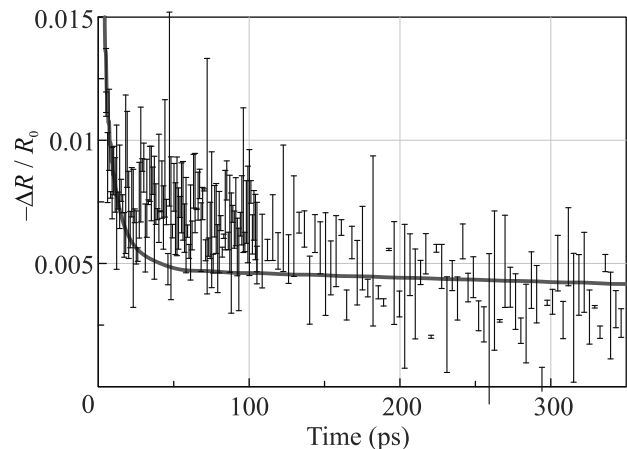


Рис. 5. (Цветной онлайн) Сравнение расчета с экспериментом на далеких временах в случае среднего по амплитуде воздействия $F_{abs} = 22.6$ мДж/см 2

теоретико-численного моделирования и опытов. Оказалось, что если отношение параметров n и k_e равно $(1/2):1$, то с хорошей точностью воспроизводится температура в опыте на далеких временах ~ 100 пс для всех трех воздействий с перечисленными флюенсами, см. пример на рис. 5. Поэтому мы фиксировали указанное отношение параметров n и k_e и варьировали параметр n так, чтобы воспроизводить спад коэффициента отражения (3) на двухтемпературной стадии. Результаты показаны на рис. 4.

На основании данных, представленных на рис. 4, выбраны значения (0.5, 0.25), (9, 4.5) и (15, 7.5) пар параметров n и k_e для слабого, среднего и сильного воздействий соответственно. Этим значениям соответствуют красные кривые на рис. 4, наилучшим образом аппроксимирующие опыты. Как видим, в случае сильного воздействия имеет место большая поправка в сторону уменьшения для теоретических зависимостей α и κ , которые были показаны выше на рис. 1 и 2. При этом в случае слабого воздействия значения α и κ оказываются несколько выше теоретических значений.

Зеленая кривая для сильного воздействия получена при значениях $(n, k_e) = (2, 1)$, близких к теории на рис. 1 и 2. На рисунке 4 имеется существенное отличие между красной и зеленой кривыми в случае сильного воздействия. Отметим, что в случае среднего воздействия такое отличие гораздо меньше. Зеленая кривая $(n, k_e) = (2, 1)$ на рис. 4 в случае среднего воздействия идет по нижнему краю разброса экспериментальных погрешностей, сравните с сильным воздействием. Для слабого воздействия красная и зеленая кривые на рис. 4 получены при значениях (n, k_e) , равных (0.5, 0.25) и (2, 1) соответственно.

На основе этих результатов построен рис. 6. Оцен-

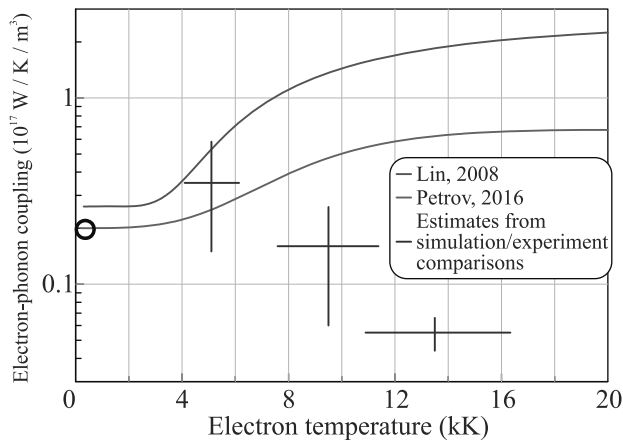


Рис. 6. (Цветной онлайн) Оценки вариации α (кресты) для слабого, среднего и сильного лазерных воздействий (см. текст) по сравнению с теоретическими зависимостями с рис. 1. Пустой кружок – значение α из старых TTR опытов [11–14] при “слабых” нагревах

ки коэффициента α , показанные на рис. 6 крестами, получены из сопоставления численного моделирования и опытов (см. рис. 4, 5). Для определения разброса температур T_e (горизонтальный отрезок креста) брали максимальное значение температуры T_e с рис. 3 и $2/3$ от этого значения.

Для определения нижней и верхней точек верти-

кального отрезка креста брали значение $\alpha(T_e|_{\max})$ согласно зависимости “Петров 2016” [23] (см. зеленые кривые на рис. 1, 6); $T_e|_{\max}$ – это максимальное значение T_e с рис. 3. Этим значениям $\alpha(T_e|_{\max})$ на рис. 6 три – для слабого, среднего и сильного воздействий. Указанное значение $\alpha(T_e|_{\max})$ делили на число n по правилу (2). Верхнюю и нижнюю точки вертикального отрезка получали делением на число n для красной и зеленой кривых на рис. 4.

8. Заключение. В работе подведены итоги большого количества двухтемпературных численных расчетов и опытов в pump-probe схеме измерений TTR с применением синхронного детектирования в диапазоне поглощенной плотности энергии от 7 до 45 мДж см⁻². Применение нового, ранее не реализованного в подобных экспериментах режима лазерного воздействия с низкой частотой следования усиленных фемтосекундных импульсов, позволило существенно повысить поглощенный флюенс по сравнению с предыдущими работами, использующими мегагерцовые цуги импульсов низкой интенсивности. Максимальные значения температуры на однотемпературной стадии превысили 50% от температуры плавления, см. зависимость ионной температуры от времени $T_i(t)$ на рис. 3 – красная штриховая кривая.

Обнаружено существенное снижение важнейших параметров двухтемпературной физики α и κ при высоких температурах, см. рис. 6. Такое снижение коррелирует с данными по зависимости $\alpha(T_e)$, недавно полученными в работе [37] (см. рис. 9 в этой статье) при флюенсах F_{abs} выше порога плавления. Работы по термодинамике и кинетике плавления [33–37] относятся к ультратонким пленкам (толщина порядка толщины скин-слоя). При этом важный вопрос о теплопроводности выпадает из поля зрения. В нашей работе определяются оба важнейших параметра двухтемпературной физики. Причем оказывается, что снижение параметра α в случае сильного воздействия происходит вместе со снижением двухтемпературного вклада (κ_{ee}) в теплопроводность κ_{2T} , см. п. 3.

Тогда снимается скрытое возражение относительно снижения параметра α . Дело в том, что при малых α и стандартных (т.е. больших κ , см. рис. 2) поглощенное тепло F_{abs} рассеивается глубоко в толще мишени. Соответственно сильно повышаются порог термомеханической (откольной) абляции $F_{abs|abl}$ и глубина кратера $d_{crat|abl}$ на этом пороге для золота по сравнению с известными теоретико-экспериментальными значениями $F_{abs|abl} \simeq 0.2$ Дж см⁻² и $d_{crat|abl} \simeq 0.1$ мкм, см.

[61, 62]. Если же параметры α и κ_{2T} уменьшаются пропорционально, то пороговые значения сохраняются вместе с максимальной температурой T_i и плотностью энергии на единицу объема F_{abs}/dT на однотемпературной стадии.

Авторы благодарят Российский научный фонд (грант # 19-19-00697-П, продленный) за поддержку.

1. V. V. Temnov, C. Klieber, K. A. Nelson, T. Thomay, V. Knittel, A. Leitenstorfer, D. Makarov, M. Albrecht, and R. Bratschitsch, *Nat. Commun.* **4**, 1468 (2013).
2. X. W. Wang, A. A. Kuchmizhak, X. Li, S. Juodkazis, O. B. Vitrik, Yu. N. Kulchin, V. V. Zhakhovsky, P. A. Danilov, A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, A. A. Rudenko, and N. A. Inogamov, *Phys. Rev. Appl.* **8**(4), 044016 (2017).
3. R. Fang, A. Vorobyev, and Ch. Guo, *Light Sci. Appl.* **6**, e16256 (2017).
4. I. N. Saraeva, S. I. Kudryashov, A. A. Rudenko, M. I. Zhilnikova, D. S. Ivanov, D. A. Zayarny, A. V. Simakin, A. A. Ionin, and M. E. Garcia, *Appl. Surf. Sci.* **470**, 1018 (2019).
5. N. A. Smirnov, S. I. Kudryashov, A. A. Rudenko, A. A. Nastulyavichus, and A. A. Ionin, *Laser Phys. Lett.* **19**(2), 026001 (2022).
6. V. V. Shepelev, Yu. V. Petrov, N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, E. A. Perov, and S. V. Fortova, *Optics and Laser Technology* **152**, 108100 (2022).
7. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, and V. A. Khokhlov, *JETP* **127**(1), 79 (2018).
8. M. I. Kaganov, I. M. Lifshitz, and L. V. Tanatarov, *Sov. Phys. JETP* **4**(2), 173 (1957).
9. S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, and T. L. Perel'man, *Sov. Phys. JETP* **39**(2), 375 (1974).
10. Zh. Lin, L. V. Zhigilei, and V. Celli, *Phys. Rev. B* **77**, 075133 (2008).
11. S. D. Brorson, J. G. Fujimoto, and E. P. Ippen, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1962 (1987).
12. S. D. Brorson, A. Kazeroonian, J. S. Moodera, D. W. Face, T. K. Cheng, E. P. Ippen, M. S. Dresselhaus, and G. Dresselhaus, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2172 (1990).
13. T. Juhasz, H. E. Elsayed-Ali, G. O. Smith, C. Suárez, and W. E. Bron, *Phys. Rev. B* **48**, 15488 (1993).
14. S.-S. Wellershoff, J. Hohlfeld, J. Guedde, and E. Matthias, *Appl. Phys. A* **69** (Suppl 1), S99 (1999).
15. B. J. Siwick, J. R. Dwyer, R. E. Jordan, and R. J. D. Miller, *Science* **302**(5649), 1382 (2003).
16. R. Ernstorfer, M. Harb, Ch. T. Hebeisen, G. Sciaini, Th. Dartigalongue, and R. J. D. Miller, *Science* **323**(5917), 1033 (2009).
17. J. Chen, W.-K. Chen, J. Tang, and P. M. Rentzepis, *Proceedings of the National Academy of Sciences* **108**(47), 18887 (2011).
18. K. Widmann, T. Ao, M. E. Foord, D. F. Price, A. D. Ellis, P. T. Springer, and A. Ng, *Phys. Rev. Lett.* **92**(12), 125002 (2004).
19. Y. Ping, D. Hanson, I. Koslow, T. Ogitsu, D. Prendergast, E. Schwegler, G. Collins, and A. Ng, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 255003 (2006).
20. T. Ao, Y. Ping, K. Widmann, D. F. Price, E. Lee, H. Tam, P. T. Springer, and A. Ng, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 055001 (2006).
21. Y. Ping, D. Hanson, I. Koslow, T. Ogitsu, D. Prendergast, E. Schwegler, G. Collins, and A. Ng, *Phys. Plasmas* **15**, 056303 (2008).
22. Z. Chen, B. Holst, S. E. Kirkwood, V. Sametoglu, M. Reid, Y. Y. Tsui, V. Recoules, and A. Ng, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 135001 (2013).
23. S. I. Ashitkov, P. S. Komarov, V. V. Zhakhovsky, Yu. V. Petrov, V. A. Khokhlov, A. A. Yurkevich, D. K. Ilnitsky, N. A. Inogamov, and M. B. Agranat, *J. Phys.: Conf. Ser.* **774**(1), 012097 (2016).
24. K. Sokolowski-Tinten, Ch. Blome, J. Blums, A. Cavalleri, C. Dietrich, A. Tarasevitch, I. Uschmann, E. Foerster, M. Kammler, M. H. von Hoegen, and D. von der Linde, *Nature* **422**, 287 (2003).
25. D. S. Ivanov and L. V. Zhigilei, *Phys. Rev. B* **68**, 064114 (2003).
26. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, S. I. Ashitkov, V. A. Khokhlov, Yu. V. Petrov, P. S. Komarov, M. B. Agranat, S. I. Anisimov, and K. Nishihara, *Appl. Surf. Sci.* **255**, 9712 (2009).
27. L. V. Zhigilei, Zh. Lin, and D. S. Ivanov, *J. Phys. Chem. C* **113**(27), 11892 (2009).
28. V. V. Zhakhovskii, K. Nishihara, S. I. Anisimov, and N. A. Inogamov, *JETP Lett.* **71**(4), 167 (2000).
29. A. K. Upadhyay, N. A. Inogamov, B. Rethfeld, and H. M. Urbassek, *Phys. Rev. B* **78**, 045437 (2008).
30. N. Medvedev and I. Milov, *Phys. Rev. B* **102**, 064302 (2020).
31. N. Medvedev and I. Milov, *Eur. Phys. J. D* **75**, 212 (2021).
32. F. Akhmetov, N. Medvedev, I. Makhotkin, M. Ackermann, and I. Milov, *Materials* **15**(15), 5193 (2022).
33. M. Z. Mo, Z. Chen, R. K. Li et al. (Collaboration), *Science* **360**(6396), 1451 (2018).
34. Mianzhen Mo, Zhijiang Chen, and Siegfried Glenzer, *MRS Bulletin* **46**(08) (2021).
35. J. M. Molina and Th. G. White, Inclusion of energy loss in models of laser-irradiated gold films via classical molecular dynamics, in *2021 IEEE International Conference on Plasma Science (ICOPS)* (2021), p. 1; 10.1109/ICOPS36761.2021.9588426.
36. J. M. Molina and T. G. White, *Matter and Radiation at Extremes* **7**(3), 036901 (2022).
37. M. Arefev, M. Shugaev, and L. Zhigilei, *Sci. Adv.* **8**, eabo2621 (2022).

38. X. Y. Wang, D. M. Riffe, Y. S. Lee, and M. C. Downer, *Phys. Rev. B* **50**, 8016 (1994).
39. P. B. Allen, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1460 (1987).
40. Yu. V. Petrov, N. A. Inogamov, and K. P. Migdal, *JETP Lett.* **97**(1), 20 (2013).
41. K. P. Migdal, Y. V. Petrov, and N. A. Inogamov, *SPIE Proceedings* **9065**, 906503 (2013).
42. K. P. Migdal, Yu. V. Petrov, D. K. Il'nitsky, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov, K. V. Khishchenko, D. V. Knyazev, and P. R. Levashov, *Appl. Phys. A* **122**, 408 (2016).
43. K. P. Migdal, D. K. Il'nitsky, Yu. V. Petrov, and N. A. Inogamov, *J. Phys.: Conf. Ser.* **653**, 012086 (2015).
44. N. A. Inogamov and Yu. V. Petrov, *JETP* **110**(3), 446 (2010).
45. D. V. Knyazev and P. R. Levashov, *Comput. Mater. Sci.* **79**, 817 (2013).
46. Yu. V. Petrov, K. P. Migdal, D. V. Knyazev, N. A. Inogamov, and P. R. Levashov, *J. Phys.: Conf. Ser.* **774**(1), 012103 (2016).
47. N. A. Smirnov, *Phys. Rev. B* **106**, 024109 (2022).
48. Yu. V. Petrov, N. A. Inogamov, S. I. Anisimov, K. P. Migdal, V. A. Khokhlov, and K. V. Khishchenko, *J. Phys. Conf. Ser.* **653**, 012087 (2015).
49. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, and V. A. Khokhlov, *JETP* **120**(1), 15 (2015).
50. A. V. Bushman, G. I. Kanel', A. L. Ni, and V. E. Fortov, *Intense dynamic loading of condensed matter*, Taylor & Francis, Washington, D.C. (1993).
51. K. V. Khishchenko, S. I. Tkachenko, P. R. Levashov, I. V. Lomonosov, and V. S. Vorobev, *Int. J. Thermophys.* **23**(5), 1359 (2002).
52. I. V. Lomonosov, *Laser and Particle Beams* **25**, 567 (2007).
53. Yu. V. Petrov, K. P. Migdal, N. A. Inogamov, and V. V. Zhakhovsky, *Appl. Phys. B* **119**(3), 401 (2015).
54. С. И. Ашитков, Н. А. Иногамов, П. С. Комаров, Ю. В. Петров, С. А. Ромашевский, Д. С. Ситников, Е. В. Струлёва, В. А. Хохлов, *Теплофизика высоких температур* **60**, 218 (2022).
55. A. Block, M. Liebel, R. Yu, M. Spector, Y. Sivan, F. J. García de Abajo, and N. F. van Hulst, *Sci. Adv.* **5**(5), eaav8965 (2019).
56. P. M. Norris, A. P. Caffrey, R. J. Stevens, J. M. Klopff, J. T. McLeskey, and A. N. Smith, *Rev. Sci. Instrum.* **74**(1), 400 (2003).
57. E. L. Radue, J. A. Tomko, A. Giri, J. L. Braun, X. Zhou, O. V. Prezhdo, E. L. Runnerstrom, J.-P. Maria, and P. E. Hopkins, *ACS Photonics* **5**(12), 4880 (2018).
58. P. E. Hopkins, J. M. Klopff, and P. M. Norris, *Appl. Opt.* **46**(11), 2076 (2007).
59. P. E. Hopkins and P. M. Norris, *Appl. Surf. Sci.* **253**(15), 6289 (2007).
60. P. Jiang, X. Qian, and R. Yang, *J. Appl. Phys.* **124**(16), 161103 (2018).
61. N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovskii, S. I. Ashitkov, Yu. V. Petrov, M. B. Agranat, S. I. Anisimov, K. Nishihara, and V. E. Fortov, *JETP* **107**(1), 1 (2008).
62. B. J. Demaske, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov, and I. I. Oleynik, *Phys. Rev. B* **82**, 064113 (2010).

Оптические свойства кремниевых нанонитей, полученных методом металл-стимулированного химического травления с использованием золотых наночастиц

К. А. Гончар⁺¹⁾, И. В. Божьев⁺, О. А. Шальгина⁺, Л. А. Осминкина^{+*}

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

^{*} Институт биологического приборостроения РАН, 142290 Пущино, Россия

Поступила в редакцию 1 декабря 2022 г.

После переработки 1 декабря 2022 г.

Принята к публикации 2 декабря 2022 г.

Кремниевые нанонити (КНН), благодаря их уникальным структурным и физическим свойствам, являются перспективным материалом для использования в электронике, фотовольтаике, фотонике, сенсорике и биомедицине. Несмотря на множество методов, доступных для синтеза КНН, металл-стимулированное химическое травление (МСХТ) сегодня является одним из наиболее перспективных для их экономически эффективного производства. В большинстве работ в качестве катализатора химической реакции травления кристаллического кремния используют наночастицы серебра. Однако использование золотых наночастиц в МСХТ может существенно повлиять на морфологию и оптические характеристики получаемых образцов. В представленной работе КНН синтезированы методом МСХТ кристаллического кремния с использованием золотых наночастиц. Показано с помощью методов растровой и просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения, что полученные нанонити имеют диаметр ~ 100 нм и представляют собой ~ 50 нм кристаллический стержень, покрытый ~ 25 нм слоем SiO_2 , на границе которых присутствуют кремниевые нанокристаллы. Пористость массивов КНН оценивалась из их спектров зеркального отражения, и рассчитывалась с помощью модели эффективной среды Бруггемана, и составляет 70 %. При этом образцы демонстрируют крайне низкое (3–7 %) полное отражение в спектральной области 250–1000 нм, увеличение интенсивностей межзонной фотолюминесценции и комбинационного рассеяния света по сравнению с исходной подложкой кристаллического кремния, за счет эффекта локализации света. Кроме того, обнаружена фотолюминесценция нанонитей в области 500–1000 нм с максимумом на 700 нм, что объясняется излучательной рекомбинацией экситонов в кремниевых нанокристаллах с размером 3–5 нм.

DOI: 10.31857/S1234567823020052, EDN: oefuvy

1. Введение. Кремниевые нитевидные наноструктуры являются в настоящее время объектом исследований многих научных групп. Такой интерес обусловлен легким и доступным способом получения данного материала, а также его уникальными электронными и оптическими свойствами [1]. Первоначально кремниевые нанонити (КНН) получили методом пар-жидкость-кристалл, который был предложен Вагнером и Эллісом в 1964 г. [2]. Однако такой метод является достаточно трудоемким. Вместе с тем было установлено, что полученные таким методом КНН содержат примесь золота во всем объеме, что негативно влияет на их электронные свойства [3]. Наиболее широко используемым в настоящее время методом производства КНН является металл-стимулированное химическое травление

(МСХТ). В МСХТ жидкостное травление пластин кристаллического кремния (c-Si) в растворах, содержащих плавиковую кислоту (HF) и перекись водорода (H_2O_2), катализируется металлическими частицами при комнатной температуре [4–6]. Металлические частицы могут быть легко удалены химическим травлением после окончания процесса формирования КНН, что обеспечивает чистоту поверхности КНН от примеси металла-катализатора. Другими преимуществами метода МСХТ является простота, дешевизна и возможность воспроизводимо получать ансамбли КНН на большой площади. Показано, что КНН, полученные методом МСХТ, обладают такими замечательными оптическими свойствами, как видимая фотолюминесценция (ФЛ) [7], чрезвычайно низкое полное отражение [8], усиление комбинационного рассеяния (КР) света, когерентного антистоксова рассеяния света [9] и межзонной ФЛ

¹⁾e-mail: k.a.gonchar@gmail.com

[10]. При этом, выбирая разные подложки и варьируя толщину слоя КНН, можно модифицировать оптические свойства КНН. Так в работе [11] показано, что, выбирая уровень легирования исходной подложки c -Si, можно получить либо полностью пористые КНН, либо непористые КНН, что будет влиять на интенсивность видимой ФЛ. А в работе [8] показано влияние толщины слоя КНН на величину полного отражения (минимум полного отражения приходится на толщину слоя КНН в 1–2 мкм), а также нелинейную зависимость усиления интенсивностей КР света и генерации третьей гармоники при росте толщины слоя КНН. Кроме того, КНН можно дополнительно легировать и тем самым управлять их электронными свойствами [12, 13].

Впервые метод МСХТ был применен для формирования слоев пористого кремния [14–16]. В дальнейшем он был детально изучен, и показана возможность его использования для формирования КНН [4–6]. Металлы, которые обычно используют в качестве катализатора для реакций травления – это серебро [17], золото [15, 18] или платина [14]. Однако в подавляющем большинстве работ используются серебряные наночастицы, нанесенные на поверхность c -Si из раствора нитрата серебра ($AgNO_3$) и HF. Что касается нанесения золотых наночастиц для дальнейшего формирования КНН, то чаще всего используются плохо воспроизводимые методы напыления золота на подложку c -Si [15, 18] и дорогостоящие методы литографии [19–23].

Недавно нами был предложен новый способ осаждения золотых наночастиц на подложку c -Si путем их восстановления из соли $AuCl_3$ в присутствии HF, которые затем использовали в МСХТ для получения КНН [24]. Этот метод намного проще, дешевле и быстрее по сравнению с предложенными ранее методами напыления и литографии. Он позволяет получать КНН на больших площадях в рекордно короткие сроки. Однако в представленной работе не были исследованы структурные и оптические характеристики получаемых образцов, что представляет значительный интерес для дальнейшего их использования в фотовольтаике, фотонике, сенсорике и биомедицине.

Целью настоящей работы является исследование структурных и оптических свойств КНН, полученных методом МСХТ, где в качестве катализатора реакций химического травления c -Si используются наночастицы золота.

2. Исследуемые образцы и методика эксперимента. КНН были получены методом МСХТ пластины c -Si p -типа проводимости с кристаллографи-

ческой ориентацией (100) и удельным сопротивлением 10–20 Ом·см. Перед процедурой МСХТ пластину c -Si промывали в ацетоне и изопропанол в течение 5 мин в ультразвуковой ванне (Elmasonic S15H) для удаления органических и неорганических загрязнений, а затем промывали в 5 М HF в течение 1 мин для удаления естественного оксида. На первом этапе МСХТ пластину c -Si погружали в раствор 0.01 М $AuCl_3$ и 5 М HF, взятых в соотношении 1 : 1 по объему, на 15 с, в результате чего поверхность c -Si покрывалась золотыми наночастицами. На втором этапе пластину c -Si, покрытую золотом, помещали на 8 мин в раствор 5 М HF и 30 % перекиси водорода (H_2O_2), взятых в соотношении 10 : 1 по объему. Травление происходило в местах, покрытых золотыми наночастицами. Затем для удаления золотых наночастиц образец помещали в царскую водку (раствор азотной (HNO_3) и соляной (HCl) кислот в соотношении 3 : 1 по объему) на 15 мин. Получение КНН происходило при комнатной температуре.

Структурные свойства полученных КНН изучали с помощью растрового электронного микроскопа (РЭМ) Carl Zeiss SUPRA 40 и просвечивающего электронного микроскопа высокого разрешения (ПЭМ) Zeiss Libra 200FE. Спектры полного отражения КНН в спектральной области от 250 до 1500 нм измеряли на спектрометре Perkin Elmer Lambda 950, оборудованном интегрирующей сферой. Спектры зеркального отражения в ближнем и среднем инфракрасных (ИК) диапазонах спектра измеряли на ИК Фурье-спектрометре Bruker IFS 66v/S, а спектры межзонной ФЛ и КР при возбуждении непрерывным Nd : YAG-лазером на длине волны 1.064 мкм измеряли в геометрии обратного рассеяния на приставке FRA-106 того же ИК фурье-спектрометра Bruker IFS 66v/S. Для исследования ФЛ в спектральном диапазоне 500–1000 нм использовалось возбуждение от гелий-кадмиевого лазера с длиной волны 325 нм. Спектры регистрировались на монохроматоре SOLAR ТП с ПЗС-камерой, работающей в видимом диапазоне спектра.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение. Микрофотография РЭМ массивов КНН (вид сбоку) представлена на рис. 1. Видно, что КНН выглядят как квазиупорядоченные массивы с преимущественной ориентацией вдоль кристаллографического направления [100]. Для получения представленного изображения золотые наночастицы не удалялись, и видны как светлые точки на границе нить-подложка. На вставке к рис. 1 четко видно, что золотые наночастицы находятся у основания КНН, и, следовательно, являются инициаторами МСХТ пла-

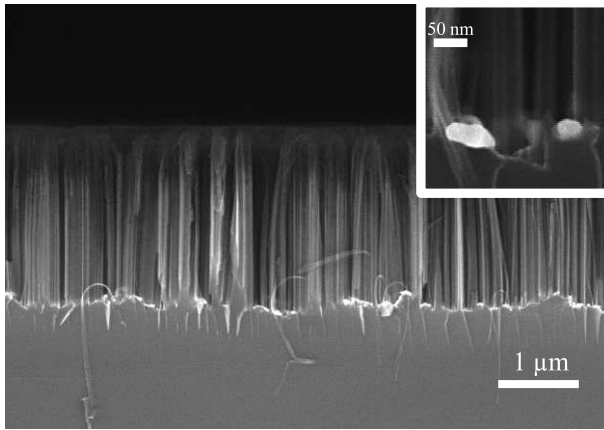


Рис. 1. Микрофотография РЭМ массивов КНН (вид сбоку) с золотыми наночастицами – инициаторами МСХТ. На вставке представлен увеличенный фрагмент КНН с золотыми наночастицами

стины c-Si. Толщина слоя КНН после 8 мин травления составляет около 2 мкм, диаметр нанонитей ~ 100 нм, а расстояние между ними 50–100 нм.

Микрофотография ПЭМ единичной КНН представлена на рис. 2. Видно, что получаемая нано-

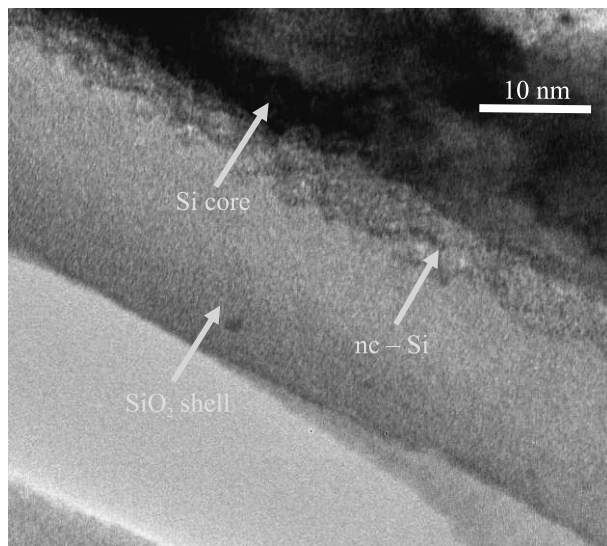


Рис. 2. (Цветной онлайн) Микрофотография ПЭМ кремниевой нанонити

нить состоит из ~ 50 нм кристаллической сердцевинны (Si core), на которой наблюдается слой нанокристаллов кремния (nc-Si) размером 2–5 нм, и ~ 25 нм слоя поверхностного оксида (SiO₂ shell). Формирование оксидного слоя на поверхности КНН происходит как в процессе их синтеза, так и при обработке получаемых массивов в растворе соляной и серной кислот (процедуре удаления золотых наночастиц), а

nc-Si являются результатом неоднородного окисления КНН в процессе МСХТ.

На спектрах зеркального отражения в ближнем и среднем ИК диапазонах обнаружены интерференционные пики, связанные с интерференцией в тонких пленках при отражении двух лучей от границы воздух-КНН и КНН-cSi (рис. 3).

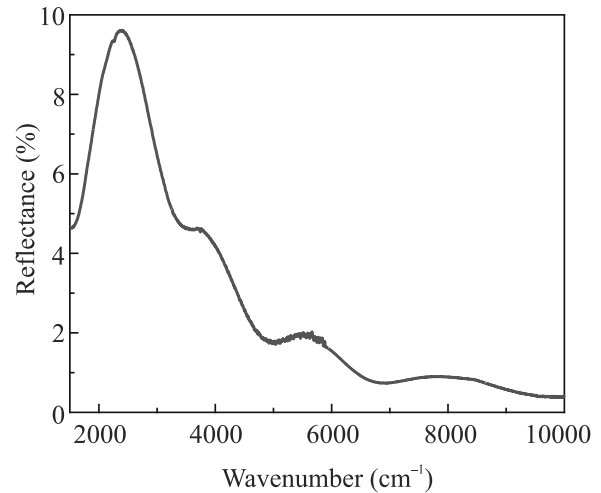


Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектр зеркального отражения массивов КНН в ближнем и среднем ИК диапазонах спектра

Эффективный показатель преломления массивов КНН (n_{eff}) рассчитывался согласно формуле (1) [25], где L – толщина слоя КНН, и Δk – расстояние между интерференционными пиками на рис. 3. Эффективную диэлектрическую проницаемость образцов (ϵ_{eff}) определяли по формуле (2). Для расчета пористости полученных массивов КНН использовали модель эффективной среды Бруггемана [26], формула (3):

$$n_{\text{eff}} = \frac{1}{2L\Delta k}, \quad (1)$$

$$\epsilon_{\text{eff}} = n_{\text{eff}}^2, \quad (2)$$

$$f_{\text{air}} \frac{\epsilon_{\text{eff}} - \epsilon_{\text{air}}}{\epsilon_{\text{eff}} + l(\epsilon_{\text{air}} - \epsilon_{\text{eff}})} + f_{\text{Si}} \frac{\epsilon_{\text{eff}} - \epsilon_{\text{Si}}}{\epsilon_{\text{eff}} + l(\epsilon_{\text{Si}} - \epsilon_{\text{eff}})} = 0, \quad (3)$$

где $\epsilon_{\text{air}} = 1$ – диэлектрическая проницаемость воздуха, $\epsilon_{\text{Si}} = 11.8$ – диэлектрическая проницаемость кремния, $l = 0.5$ – фактор деполяризации для цилиндра (КНН выглядят как продолговатые объекты, по форме наиболее близкие к цилиндру, чем к шару или плоскости), f_{air} – фактор заполнения воздуха (пористость массивов КНН), а f_{Si} – фактор заполнения кремния, при этом выполняется соотношение $f_{\text{air}} + f_{\text{Si}} = 1$. Рассчитанная согласно представленной модели пористость массивов КНН составила 70%.

На рисунке 4 показаны спектры полного отражения исходной подложки c-Si и массивов КНН. На-

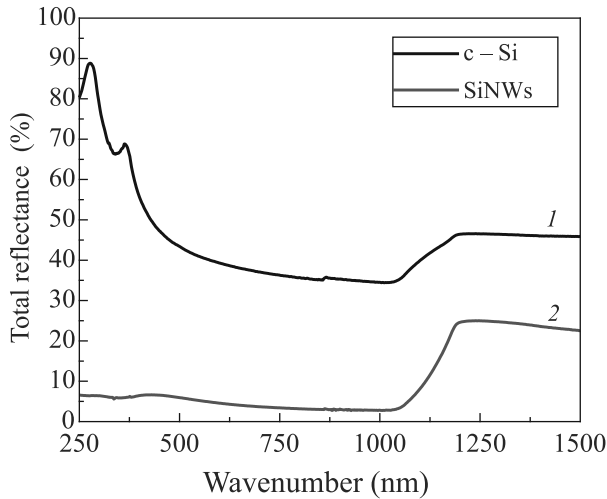


Рис. 4. (Цветной онлайн) Спектры полного отражения исходной подложки c-Si (1) и массивов КНН (2)

блюдается характерный спектр от кремниевой подложки, где в области сильного поглощения ($\lambda < 1$ мкм) полное отражение составляет около 30 %, а в области прозрачности ($\lambda > 1$ мкм) около 50 %, так как в отражении участвуют передняя и задняя сторона подложки. Однако для массивов КНН в области сильного поглощения наблюдается крайне низкое полное отражение (3–7 %). Таким образом, полученные массивы КНН можно использовать при создании антиотражающего покрытия в фотовольтаике (“черный кремний”). Данный эффект наблюдался ранее для образцов с КНН, изготовленных МСХТ с использованием наночастиц серебра [8], и объясняется сильным рассеянием и поглощением света, что приводит к его частичной локализации в массивах КНН.

Эффект локализации света в КНН можно подтвердить также, сравнивая спектры межзонной ФЛ (широкая полоса) и КР (острый пик при 520 см^{-1}) исходной подложки c-Si и массивов КНН (рис. 5). Положение и форма пиков КР для КНН аналогичны подложке c-Si, что говорит о том, что сохраняется кристаллическая структура образца, а также отсутствует проявление квантового размерного эффекта для КР, поскольку диаметр нанонитей достаточно большой (~ 100 нм). Интенсивности ФЛ и КР для КНН возрастают в 3 и 4 раза, соответственно, по сравнению с подложкой c-Si. Такие же результаты наблюдались для КНН, полученных МСХТ с использованием наночастиц серебра [10], и могут быть объяснены сильным рассеянием и частичной локализацией света в неоднородной оптической среде.

Наряду с межзонной ФЛ, в массивах КНН обнаружена также ФЛ в спектральной области

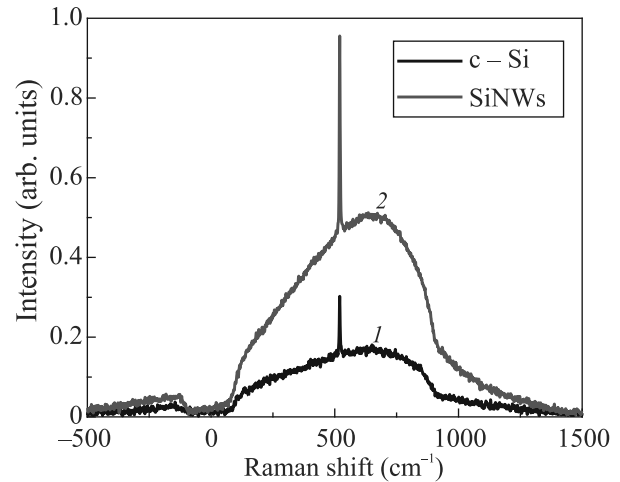


Рис. 5. (Цветной онлайн) Спектры межзонной ФЛ и КР исходной подложки c-Si (1) и массивов КНН (2)

500–1000 нм с максимумом на 700 нм (энергия фотона 1.77 эВ), спектр ФЛ представлен на рис. 6.

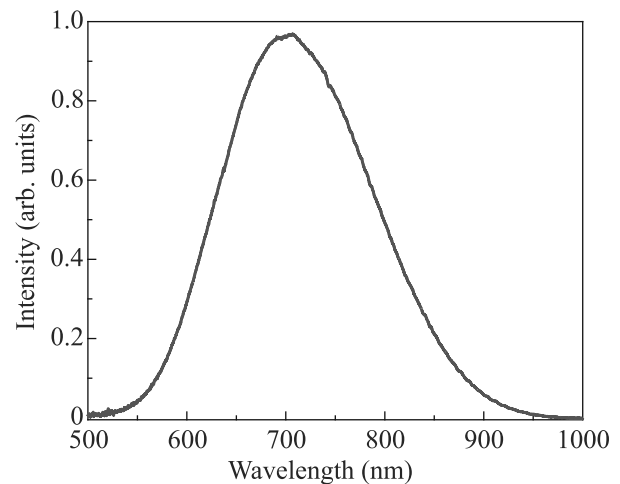


Рис. 6. (Цветной онлайн) Спектр видимой ФЛ массивов КНН

Такая ФЛ массивов КНН в видимой и ближней ИК области спектра может быть объяснена излучательной рекомбинацией экситонов в мелких nc-Si [7]. Действительно, такие nc-Si четко видны на границе кремниевый стержень–оксидная оболочка на изображениях ПЭМ (рис. 2). Средний размер nc-Si может быть вычислен по формуле (4) [27]:

$$h\nu = E_g + \frac{3.73}{d_{\text{nc-Si}}^{1.39}}, \quad (4)$$

где $h\nu$ – положение максимума ФЛ в эВ, E_g – ширина запрещенной зоны c-Si (1.12 эВ), $d_{\text{nc-Si}}$ – размер кремниевых нанокристаллов в нм. В результате для энергии фотона 1.77 эВ средний размер nc-Si составляет около 3.5 нм. Отметим, что наличие ФЛ в

спектральной области 500–1000 нм позволит использовать КНН в качестве оптических сенсоров и люминесцентных меток в биомедицине.

4. Выводы. Исследованы структурные и оптические свойства КНН, полученных методом МСХТ с использованием золотых наночастиц в качестве катализатора химических реакций травления кремния.

Показано, что толщина слоя КНН составляет около 2 мкм после 8 мин травления, а диаметр нитей равен ~ 100 нм. При этом сами нанонити состоят из ~ 50 нм кристаллической сердцевины, на которой наблюдается слой нанокристаллов кремния (nc-Si) размером 2–5 нм, и ~ 25 нм слоя поверхностного оксида. Пористость образца составляет 70 %.

Массивы КНН демонстрируют крайне низкое полное отражение (3–7%) в спектральной области 250–1000 нм, что может быть объяснено эффектом локализации света. Интенсивности межзонной ФЛ и КР для КНН возрастают в 3 и 4 раза соответственно, по сравнению с подложкой c-Si, что также объясняется сильным рассеянием и частичной локализацией света в неоднородной оптической среде. Кроме того, обнаружена ФЛ в спектральной области 500–1000 нм с максимумом на длине волны 700 нм, что можно объяснить излучательной рекомбинацией экситонов в кремниевых нанокристаллах на поверхности КНН со средними размерами около 3.5 нм.

Полученные результаты перспективны для разработки на основе КНН антиотражающих покрытий для использования в фотовольтаике, а также для создания оптических сенсоров и люминесцентных меток.

Исследование выполнено в рамках Программы развития Междисциплинарной научно-образовательной школы Московского университета “Фотонные и квантовые технологии. Цифровая медицина”. Исследование проводилось с использованием оборудования ЦКП МГУ “Технологии получения новых наноструктурированных материалов и их комплексное исследование”, приобретенного МГУ по программе обновления приборной базы в рамках национального проекта “Наука и университеты” и в рамках Программы развития МГУ. Использовалось оборудование Учебно-методического центра литографии и микроскопии МГУ имени М.В. Ломоносова. Авторы выражают благодарность А. А. Елисееву за измерения на просвечивающем электронном микроскопе.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 20-12-00297.

1. A. S. Kalyuzhnaya, A. I. Efimova, L. A. Golovan, K. A. Gonchar, V. Y. Timoshenko, *Silicon nanomaterials sourcebook: Volume II: Arrays, functional materials, and industrial nanosilicon*, CRC Press-Taylor & Francis Group, London (2017), p. 3.
2. R. S. Wagner and W. C. Ellis, *Appl. Phys. Lett.* **4**, 89 (1964).
3. J. E. Allen, E. R. Hemesath, D. E. Perea, J. L. Lensch-Falk, Z. Y. Li, F. Yin, M. H. Gass, P. Wang, A. L. Bleloch, R. E. Palmer, and L. J. Lauhon, *Nat. Nanotechnol* **3**, 168 (2008).
4. K. Q. Peng, Y. J. Yan, S. P. Gao, and J. Zhu, *Adv. Mater.* **14**(16), 1164 (2002).
5. K. Q. Peng, J. J. Hu, Y. J. Yan, Y. Wu, H. Fang, Y. Xu, S. T. Lee, and J. Zhu, *Adv. Funct. Mater.* **16**(3), 387 (2006).
6. K. Q. Peng, A. J. Lu, R. Q. Zhang, and S. T. Lee, *Adv. Funct. Mater.* **18**(19), 3026 (2008).
7. V. A. Sivakov, F. Voigt, A. Berger, G. Bauer, and S. H. Christiansen, *Phys. Rev. B* **82**(12), 125446 (2010).
8. A. Efimova, A. Eliseev, V. Georgobiani, M. Kholodov, A. Kolchin, D. Presnov, N. Tkachenko, S. Zaboltnov, L. Golovan, and P. Kashkarov, *Opt. Quantum Electron.* **48**, 232 (2016).
9. L. A. Golovan, K. A. Gonchar, L. A. Osminkina, V. Yu. Timoshenko, G. I. Petrov, and V. V. Yakovlev, *Laser Phys. Lett.* **9**(2), 145 (2012).
10. К. А. Гончар, Л. А. Головань, В. Ю. Тимошенко, В. А. Сиваков, С. Кристиансен, *Изв. РАН. Серия физическая* **74**(12), 1782 (2010) [K. A. Gonchar, L. A. Golovan, V. Y. Timoshenko, V. A. Sivakov, and S. Christiansen, *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.* **74**(12), 1712 (2010)].
11. В. А. Георгобiani, К. А. Гончар, Л. А. Осминкина, В. Ю. Тимошенко, *ФТП* **49**(8), 1050 (2015) [V. A. Georgobiani, K. A. Gonchar, L. A. Osminkina, and V. Yu. Timoshenko, *Semicond.* **49**(8), 1025 (2015)].
12. S. S. Bubenov, S. G. Dorofeev, A. A. Eliseev, N. N. Kononov, A. V. Garshev, N. E. Mordvinova, and O. I. Lebedev, *RSC Adv.* **8**(34), 18896 (2018).
13. A. I. Efimova, E. A. Lipkova, K. A. Gonchar, D. E. Presnov, A. A. Eliseev, A. V. Pavlikov, and V. Yu. Timoshenko, *J. Raman Spectrosc.* **51**(11), 2146 (2020).
14. P. Gorostiza, R. Diaz, M. A. Kulandainathan, F. Sanz, and J. R. Morante, *J. Electroanal. Chem.* **469**(1), 48 (1999).
15. X. Li and P. W. Bohn, *Appl. Phys. Lett.* **77**(16), 2572 (2000).
16. S. Chattopadhyay, X. Li, and P. W. Bohn, *J. Appl. Phys.* **91**(9), 6134 (2002).
17. V. A. Sivakov, G. Bronstrup, B. Pecz, A. Berger, G. Z. Radnoczi, M. Krause, and S. H. Christiansen, *J. Phys. Chem. C* **114**(9), 3798 (2010).
18. M. K. Dawood, S. Tripathy, S. B. Dolmanan, T. H. Ng, H. Tan, and J. Lam, *Appl. Phys.* **112**, 073509 (2012).

19. I. V. Bagal, M. A. Johar, M. A. Hassan, A. Waseem, and S.-W. Ryu, *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.* **29**, 18167 (2018).
20. F. J. Wendisch, M. Rey, N. Vogel, and G. R. Bourret, *Chem. Mater.* **32**(21), 9425 (2020).
21. S. Wang, H. Liu, and J. Han, *Coatings* **9**, 149 (2019).
22. B. Li, G. Niu, L. Sun, L. Yao, C. Wang, and Y. Zhang, *Mater. Sci. Semicond. Proc.* **82**, 1 (2018).
23. M. Bechelany, E. Berodier, X. Maeder, S. Schmitt, J. Michler, and L. Philippe, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **3**(10), 3866 (2011).
24. A. D. Kartashova, K. A. Gonchar, D. A. Chermoshentsev, E. A. Alekseeva, M. B. Gongalsky, I. V. Bozhev, A. A. Eliseev, S. A. Dyakov, J. V. Samsonova, and L. A. Osminkina, *ACS Biomater. Sci. Eng.* **8**(10), 4175 (2021).
25. B. Rossi, *Optics*, Addison-Wesley, Reading, MA (1957).
26. D. A. G. Bruggeman, *Ann. Phys. (Leipzig)* **416**(7), 636 (1935).
27. G. Ledoux, O. Guillois, D. Porterat, C. Reynaud, F. Huisken, B. Kohn, and V. Paillard, *Phys. Rev. B* **62**(23), 15942 (2000).

Влияние магнитного поля на формирование ультрахолодной плазмы

С. Я. Бронин, Е. В. Вихров, Б. Б. Зеленер, Б. В. Зеленер¹⁾

*Объединенный институт высоких температур РАН, 127412 Москва, Россия

Поступила в редакцию 24 октября 2022 г.

После переработки 18 ноября 2022 г.

Принята к публикации 1 декабря 2022 г.

Методом молекулярной динамики выполнены расчеты формирования ультрахолодной плазмы под действием постоянного ионизирующего излучения в квадрупольном магнитном поле с градиентом индукции вдоль оси симметрии, равном 0, 30, 150, 500 Гс/см. Увеличение величины магнитной индукции способствует росту плотности плазмы за счет удержания части быстрых электронов квадрупольным магнитным полем.

DOI: 10.31857/S1234567823020064, EDN: oehfuy

Введение. Квадрупольная конфигурация магнитного поля, образованная катушками в конфигурации анти-гелмгольца [1, 2], может удерживать нейтральную плазму вблизи центральной области нулевого поля за счет эффекта магнитного зеркала [3]. Эта схема удержания долгое время вызывала интерес, первоначально для термоядерного синтеза с магнитным удержанием [1, 2, 4–6], а в последнее время для источников ионов для таких приложений, как обработка материалов и ионные двигатели [7–9]. Сложная геометрия расширяющейся нейтральной плазмы в квадрупольном магнитном поле имеет сходство с солнечным ветром, взаимодействующим с магнитосферой Земли [2, 10]. Новый режим для изучения намагниченных и удерживаемых магнитным полем частиц плазмы предлагает ультрахолодную плазму (УХП). УХП получается путем фотоионизации лазерно-охлажденных атомов (обычно щелочного или щелочно-земельного металла) вблизи порога ионизации, находящегося в магнитооптической ловушке в глубоком вакууме, при помощи импульсного или непрерывного лазера. В случае использования импульсного лазера [11, 12] УХП является короткоживущей с максимальной плотностью 10^{10} см^{-3} , а время жизни составляет ~ 100 мкс. При использовании непрерывного лазера [13, 14] возникает стационарная УХП с максимальной плотностью 10^6 см^{-3} и временем жизни порядка десятка минут. И та, и другая плазма имеет ионные температуры $T_{i0} \sim 1 \text{ К}$ и перестраиваемые температуры электронов $T_{e0} = 1\text{--}1000 \text{ К}$. В связи с этим УХП дает возможность изучать комбинированное влияние намагниченности и неидеальности на столкновительные

и транспортные явления, поскольку электроны могут быть сильно связаны в УХП. При этом отношение кулоновской энергии к кинетической энергии, известное как параметр неидеальности [15], может достигать для электронов единицы, а для ионов десяти [16–18]. Короткоживущая УХП в магнитном поле экспериментально изучалась в работах [16–18]. В эксперименте [19] изучалась амбиполярная диффузия в поперечном однородном поле, достаточно сильном, чтобы намагнитить электроны, но не ионы. Те же авторы [20] выявили высокочастотную дрейфовую неустойчивость электронов в слабых скрещенных магнитном и электрическом полях. Не нейтральную плазму обычно удерживают в комбинированных электрических и магнитных полях в ловушках Пеннинга–Мальмберга [21], и эти методы были расширены для удержания частично перекрывающихся облаков положительных и отрицательных зарядов при сверхнизких температурах во вложенных ловушках, например, для производства антиводорода [22, 23]. В работе [24] изучалась короткоживущая УХП Sr в квадрупольном магнитном поле с магнитной индукцией $B = 150 \text{ Гс/см}$. Было показано, что в таком поле электроны и ионы захватываются при помощи магнитного зеркального отражения. При этом время удержания УХП приближается к 0.5 миллисекунды, в то время как не намагниченная плазма рассеивается за время в несколько десятков микросекунд.

Экспериментальное изучение стационарной УХП в сильном неоднородном магнитном поле до сих пор не проводилось. При создании стационарной плазмы [13, 14] атомы, непрерывно поступающие и охлаждаемые в магнитооптической ловушке, постоянно ионизируются. Так как заряды не удерживаются

¹⁾e-mail: bzelener@mail.ru

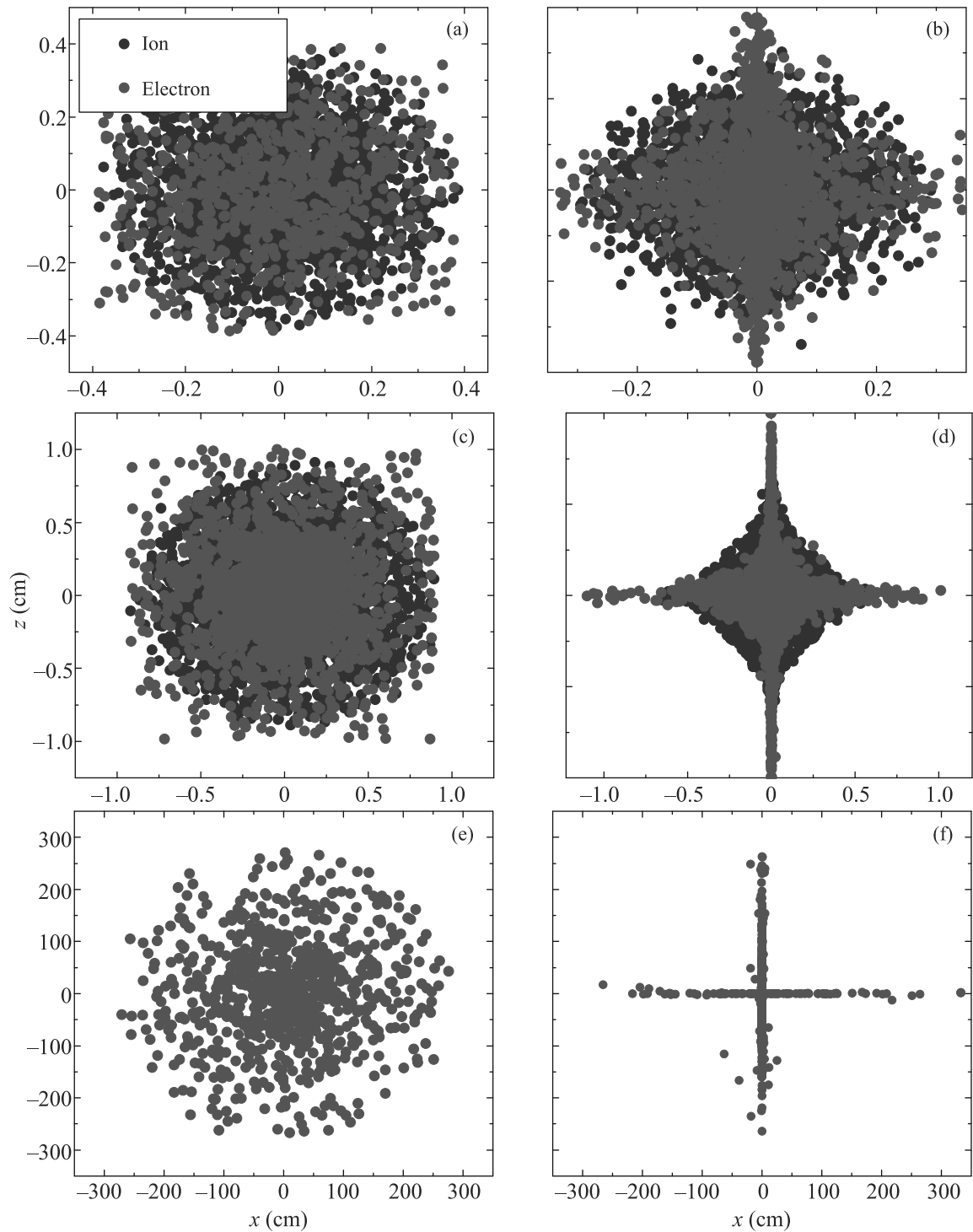


Рис. 1. (Цветной онлайн) Результаты расчетов распределения заряженных частиц для разных моментов времени и разных значений градиента индукции при $T_{e0} = 5$ К. Распределение электронов (красные точки) и ионов (синие) в области плазмы: (a) – $B = 0$ Гс/см, $t = 100$ мкс; (b) – $B = 500$ Гс/см, $t = 100$ мкс; (c) – $B = 0$ Гс/см, $t = 200$ мкс; (d) – $B = 500$ Гс/см, $t = 200$ мкс. Распределение электронов, покинувших область плазмы: (e) – $B = 0$ Гс/см, $t = 200$ мкс; (f) – $B = 500$ Гс/см, $t = 200$ мкс

в ловушке, то они ее покидают с течением времени. Но за счет непрерывной ионизации в определенный момент времени, зависящий от начальной энергии электронов и ионов, а также от плотности плазмы, достаточно быстро устанавливается стационарное распределение частиц плазмы по плотности и температуре частиц, которое может существовать в течение длительного времени. Важным отличием УХП, возникающей при использовании непрерывного ионизирующего лазера, от УХП, получаемой при помощи импульсного лазера, являются существенно более низкие значения плотности ($\sim 10^6 \text{ см}^{-3}$). Учитывая результаты, полученные для короткоживущей плазмы [24], можно предположить, что возможен рост плотности стационарной УХП при увеличении значения градиента индукции квадрупольного магнитного поля ловушки, которое обычно составляет 30 Гс/см. Проверке этого предположения и определения необходимых параметров посвящена данная работа. В настоящей работе мы сообщаем некоторые результаты, полученные методом молекулярной динамики, формирования УХП, происходящего при ее создании непрерывным лазером, с учетом наличия магнитного поля ловушки. Показано существенное влияние магнитной индукции квадрупольного магнитного поля на процесс формирования плазмы. Оно связано с уменьшением числа электронов, покидающих облако плазмы. При увеличении величины магнитной индукции плотность зарядов в плазме увеличивается, а дисбаланс заряда уменьшается.

Физическая модель. Для моделирования методом молекулярной динамики образования УХП, возникающей при использовании непрерывного ионизирующего лазера, была использована следующая физическая модель. Возникновение заряженных частиц в области $\sim 10^{-1}$ см осуществлялось равномерно по две пары зарядов (электрон и ион ^{40}Ca) каждые 10^{-7} с. Координаты возникающих частиц имеют распределение с дисперсией $\sim 10^{-1}$ см. Кинетическая энергия рождающихся частиц определялась превышением энергии ионизирующего излучения над энергией ионизации. Использовались реальные массы частиц. При решении уравнений движения учитывалось кулоновское взаимодействие между всеми частицами, а также квадрупольное магнитное поле. Для магнитного поля было выбрано близкое к реализуемому в экспериментах распределение магнитного поля двух кольцевых и противоположно направленных токов одинакового радиуса, между которыми находится исследуемая плазма. Для решения уравнений движения использовалась схема Верле:

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{r}_{e,i}(t + \Delta t) = \mathbf{r}_{e,i}(t) + \Delta t \mathbf{v}_{e,i}(t) + \\ + \frac{\Delta t^2}{2} \frac{q_{e,i}}{m_{e,i}} \left(\mathbf{E}(\mathbf{r}_{e,i}(t)) + \frac{1}{c} [\mathbf{v}_{e,i}(t), \mathbf{B}(\mathbf{r}_{e,i}(t))] \right), \\ \mathbf{v}_{e,i}(t + \Delta t) = \\ = \frac{\mathbf{u}_{e,i} + \Delta t [\mathbf{u}_{e,i}, \boldsymbol{\omega}_{e,i}] + \Delta t^2 \boldsymbol{\omega}_{e,i}(\mathbf{u}_{e,i}, \boldsymbol{\omega}_{e,i})}{1 + \Delta t^2 \omega_{e,i}^2} \\ \mathbf{u}_{e,i} = \mathbf{v}_{e,i}(t) + \frac{\Delta t}{2} \frac{q_{e,i}}{m_{e,i}} \left(\mathbf{E}(\mathbf{r}_{e,i}(t)) \right. \\ \left. + \mathbf{E}(\mathbf{r}_{e,i}(t + \Delta t)) + \frac{1}{c} [\mathbf{v}_{e,i}(t), \mathbf{B}(\mathbf{r}_{e,i}(t + \Delta t))] \right) \\ \boldsymbol{\omega}_{e,i} = \frac{q_{e,i}}{2m_{e,i}c} \mathbf{B}(\mathbf{r}_{e,i}(t + \Delta t)). \end{array} \right. \quad (1)$$

Величина шага по времени была выбрана равной 10^{-11} с. Начальные условия для координат и скоростей генерировались в соответствии с гауссовым пространственным распределением и фиксированными значениями кинетических энергий. Так как число частиц в расчетах при $t = 200$ мкс достигает порядка 10000, то для уменьшения времени счета используется специально разработанный для настоящих расчетов алгоритм распараллеливания (*parallelization techniques*). В процессе расчетов обеспечивалось сохранение энергии с точностью до 1%. Расчеты проводились на МСЦ РАН. Расчеты проводились для начальных температур электронов 1 и 5 К. Начальная температура ионов составляла $3.5 \cdot 10^{-3}$ К, а значения магнитной индукции B равнялись 0, 30, 150, 500 Гс/см.

Распределения заряженных частиц в магнитном поле. Свободный разлет ионизованного газа начинается с того, что плазму покидают самые быстрые электроны, создавая возрастающий дисбаланс заряда. Возникающее электрическое поле удерживает оставшиеся электроны в области плазмы. В присутствии магнитного поля сферическая симметрия сменяется цилиндрической. На рисунке 1 представлены распределения частиц в проекции $z-x$ (z -ось симметрии магнитного поля) для разных моментов времени и градиента индукции. Расчеты показывают, что наличие квадрупольного магнитного поля тормозит разлет плазмы, что приводит к увеличению ее плотности. Отметим, что, как видно на рис. 1, электроны, покинувшие область плазмы сосредоточены в областях, где магнитное поле близко к нулю. Такими областями являются ось z и плоскость $z = 0$. Последняя представлена на рис. 1 проекцией на ось x .

Основные характеристики УХП в зависимости от времени. Включение магнитного поля оказывает непосредственное влияние на электрон-

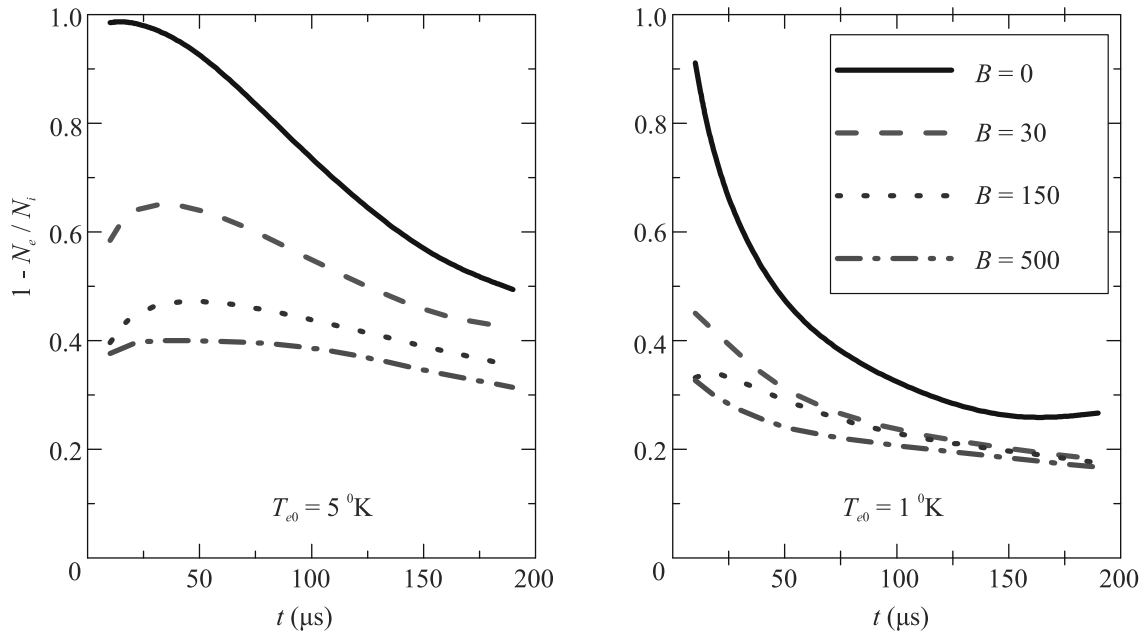


Рис. 2. (Цветной онлайн) Дисбаланс зарядов в зависимости от времени, индукции магнитного поля B (Гс/см) и начальной температуры электронов

ную компоненту и опосредованное, обусловленное изменением распределения электронов, на ионную компоненту. Присутствие магнитного поля тормозит быстрые электроны, которые в его отсутствие легко покидали область плазмы, создавая в ней значительный дисбаланс заряда. На рисунке 2 приведены результаты расчета зависимости дисбаланса зарядов от времени и величины магнитной индукции для $T_{e0} = 1$ К и $T_{e0} = 5$ К. С течением времени растет число частиц в связи с постоянной скоростью рождения и при $t = 200$ мкс оно достигает 4000 зарядов одного знака. Заметим, что значение магнитной индукции $B = 30$ Гс/см является стандартным в экспериментах. При дальнейшем росте B дисбаланс уменьшается незначительно.

Уменьшение дисбаланса уменьшает электрическое поле, которое, наряду с электрон-ионными столкновениями и нагревом, обусловленным неидеальностью плазмы, обеспечивало передачу кинетической энергии от электронов к более холодным ионам. На серии рис. 3 представлены средние значения на одну частицу кинетической энергии электронов плазмы $E_{кеп}$, электронов, покинувших плазму, E_{kout} , ионов E_{kip} и потенциальной энергии U в зависимости от времени для различных значений B и начальной температуры электронов 5 К. Отметим, что приведенные на рис. 3 средние значения кинетических энергий представлены в основном энергиями поступательного движения, а не их температурой, так как движение частиц плазмы в основном сверх-

звуковое. Если при временах, меньших $t = 50$ мкс, эти величины равны трем вторым от соответствующей температуры, то при больших временах разлет ионов и заблокированных электрическим полем электронов становится сверхзвуковым с общей для электронов и ионов радиальной скоростью.

Ослабление энергообмена между электронами и ионами уменьшает скорость разлета ионов и увеличивает их концентрацию. Радиальная компонента ионной скорости v_{ri} , определяющая скорость разлета плазмы, линейно зависит от радиуса. На рисунке 4 представлены значения производной dv_{ri}/dr от времени для $T_{e0} = 5$ К (красный) и $T_{e0} = 1$ К (синий) при $B = 0$ (сплошная) и $B = 500$ (пунктир).

Наряду с ионной увеличивается и концентрация электронов, разлету которых препятствует приложенное магнитное поле. На рисунке 5 для $T_{e0} = 5$ К представлены концентрации электронов n_e (красные кривые) и ионов n_i в центральной точке (синие) для $B = 0$ Гс/см (сплошная) и $B = 500$ Гс/см (пунктир).

Заключение. Результаты моделирования формирования УХП при ее создании непрерывным лазером с учетом наличия магнитного поля ловушки свидетельствуют о сильном влиянии магнитного поля на основные характеристики УХП. Уменьшается дисбаланс заряда, сокращается энергообмен между электронами и ионами, растет концентрация электронов и ионов. Все эти процессы усиливаются при понижении начальной температуры электронов. Полученные результаты моделирования дают возмож-

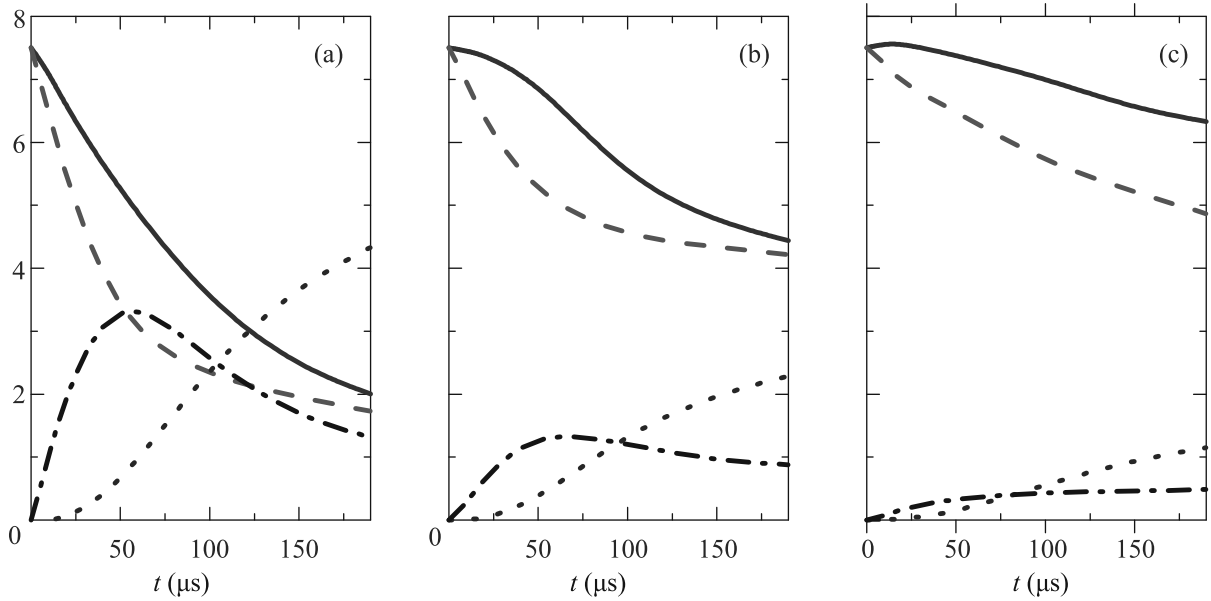


Рис. 3. (Цветной онлайн) Средние значения (в градусах Кельвина) на одну частицу кинетической энергии электронов и ионов плазмы $E_{\text{кеп}}$ (синие сплошные), $E_{\text{кир}}$ (коричневые точечные), кинетической энергии улетевших электронов E_{kout} (красный пунктир) и полной потенциальной энергии U : (a) – $B = 0 \text{ Гс/см}$; (b) – $B = 30 \text{ Гс/см}$ и (c) – $B = 500 \text{ Гс/см}$. $T_{e0} = 5 \text{ К}$

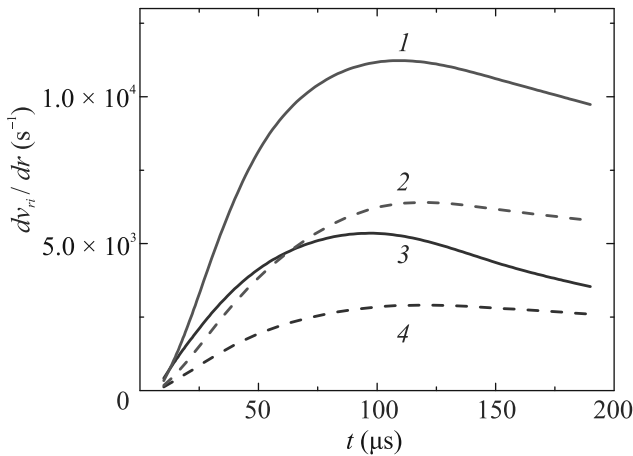


Рис. 4. (Цветной онлайн) $\frac{dv_{ri}}{dr}(t)$ для $T_{e0} = 5 \text{ К}$ – кривые 1 и 2 (красные) и $T_{e0} = 1 \text{ К}$ – кривые 3 и 4 (синие) при $B = 0$ (сплошная) и $B = 500 \text{ Гс/см}$ (пунктир)

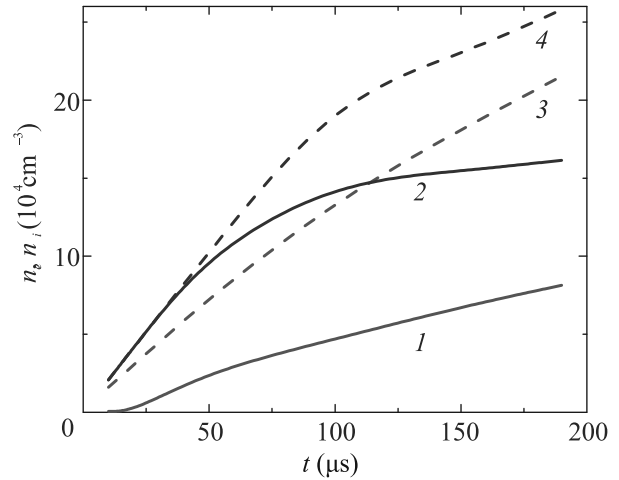


Рис. 5. (Цветной онлайн) Значения n_e и n_i для $T_{e0} = 5 \text{ К}$. Электроны (красные): 1 – $B = 0 \text{ Гс/см}$ (сплошная); 3 – $B = 500 \text{ Гс/см}$ (пунктир). Ионы (синие): 2 – $B = 0 \text{ Гс/см}$ (сплошная); 4 – $B = 500 \text{ Гс/см}$ (пунктир)

ность увеличить в эксперименте плотность заряженных частиц, а также параметр неидеальности.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант # 18-12-00424). Работа также поддержана Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (Государственное задание # 075-01056-22-00) в части разработки программы с использованием алгоритмов параллельных вычислений для проведения

расчетов в Объединенном суперкомпьютерном центре РАН.

Авторы выражают благодарность Межведомственному суперкомпьютерному центру РАН за предоставленные вычислительные ресурсы.

1. J. Berkowitz, K. O. Friedrichs, H. Goertzel, H. Grad, J. Killeen, and E. Rubin, in *Proceedings of the Second*

- International Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, Switzerland, United Nations, Geneva (1958), v. 1, p. 177.*
2. I. Spalding, in *Advances in Plasma Physics*, ed. by A. Simon and W.B. Thompson, Interscience, N.Y. (1971), p. 79.
 3. R. F. Post, R. E. Ellis, F. C. Ford, and M. N. Rosenbluth, *Phys. Rev. Lett.* **4**, 166 (1960).
 4. M. G. Haines, *Nucl. Fusion* **17**, 811 (1977).
 5. A. Kitsunezaki, M. Tanimoto, and T. Sekiguchi, *Phys. Fluids* **17**, 1895 (1974).
 6. K. N. Leung, N. Hershkowitz, and K. R. MacKenzie, *Phys. Fluids* **19**, 1045 (1976).
 7. M. Carr, D. Gummersall, S. Cornish, and J. Khachan, *Phys. Plasmas* **18**, 112501 (2011).
 8. C. M. Cooper, D. B. Weisberg, I. Khalzov, J. Milhone, K. Flanagan, E. Peterson, C. Wahl, and C. B. Forest, *Phys. Plasmas* **23**, 102505 (2016).
 9. A. A. Hubble, E. V. Barnat, B. R. Weatherford, and J. E. Foster, *Plasma Sources Sci. Technol.* **23**, 022001 (2014).
 10. C. T. Russell, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **28**, 1818 (2000).
 11. T. S. Killian, T. Pattard, T. Pohl and J. M. Rost, *Phys. Rep.* **449**, 7 (2007).
 12. M. Lyon and S. L. Rolston, *Rep. Prog. Phys.* **80**, 017001 (2017).
 13. Б. Б. Зеленер, Е. В. Вильшанская, С. А. Саакян, В. А. Саутенков, Б. В. Зеленер, В. Е. Фортов, *Письма в ЖЭТФ* **113**, 92 (2021).
 14. С. Я. Бронин, Е. В. Вихров, Б. Б. Зеленер, Б. В. Зеленер, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 643 (2021).
 15. S. Ichimaru, *Rev. Mod. Phys.* **54**, 1017 (1982).
 16. C. E. Simien, Y. C. Chen, P. Gupta, S. Laha, Y. N. Martinez, P. G. Mickelson, S. B. Nagel, and T. C. Killian, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 143001 (2004).
 17. M. Lyon, S. D. Bergeson, and M. S. Murillo, *Phys. Rev. E* **87**, 033101 (2013).
 18. T. K. Langin, G. M. Gorman, and T. C. Killian, *Science* **363**, 61 (2019).
 19. X. L. Zhang, R. S. Fletcher, S. L. Rolston, P. N. Guzdar, and M. Swisdak, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 235002 (2008).
 20. X. L. Zhang, R. S. Fletcher, and S. L. Rolston, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 195002 (2008).
 21. D. H. E. Dubin and T. M. O'Neil, *Rev. Mod. Phys.* **71**, 87 (1999).
 22. M. Amoretti, C. Amsler, G. Bonomi et al. (Collaboration), *Nature (London)* **419**, 456 (2002).
 23. G. Gabrielse, N. S. Bowden, P. Oxley et al. (Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **89**, 213401 (2002).
 24. G. M. Gorman, M. K. Warrens, S. J. Bradshaw, and T. C. Killian, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 085002 (2021).

Парная корреляционная функция завихренности внутри когерентного вихря

И. В. Колоколов^{+*1)}, В. В. Лебедев^{+*}, М. М. Тумакова^{+×}

⁺ Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау, РАН

142432 Черноголовка, Россия

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

× Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 190008 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 8 ноября 2022 г.

После переработки 24 ноября 2022 г.

Принята к публикации 2 декабря 2022 г.

Мы изучаем корреляции флуктуаций завихренности внутри когерентного вихря, возникающего вследствие обратного каскада энергии в двумерной турбулентности. Наличие когерентного течения, которое является дифференциальным вращением, подавляет мелкомасштабные флуктуации потока, которые создаются внешней силой, и приводят к тому, что эти флуктуации могут считаться не взаимодействующими и, следовательно, изучаться в линейном приближении. Мы вычисляем парную корреляционную функцию завихренности и демонстрируем, что она обладает степенным поведением как в пространстве, так и по времени. Полученные результаты позволяют приступить к систематическому изучению эффектов, связанных с нелинейным взаимодействием флуктуаций, которые играют существенную роль на периферии когерентного вихря. Наши результаты применимы также к статистике пассивного скаляра в сильном сдвиговом потоке.

DOI: 10.31857/S1234567823020076, EDN: oerbul

Как показано в работах [1–3], основной особенностью двумерного турбулентного течения, возбуждаемого внешней силой (накачкой), является наличие обратного каскада энергии, который формируется наряду с прямым каскадом, каскадом энтропии. Описание причин возникновения обратного каскада и его свойств содержится в работе [4]. Обзор современного состояния исследований двумерной турбулентности можно найти в работе [5]).

После включения накачки (внешней силы, возбуждающей турбулентность) за счет обратного каскада пространственный масштаб флуктуаций скорости растет со временем, пока этот рост не остановится либо трением о дно, либо размером системы. В последнем случае финальной стадией эволюции может стать система когерентных вихрей. Экспериментально когерентные вихри наблюдались в работах [6, 7], в численном моделировании они наблюдались в работах [8–10]. В последней работе установлен плоский профиль скорости когерентного вихря и приведены аргументы, объясняющие его возникновение. Дальнейшие аналитические исследования [11–15] подтвердили универсальность плоского профиля и связали

его существование с пассивным (квазилинейным) характером флуктуаций внутри когерентного вихря. В работе [16] было показано, что когерентные вихри не могут формироваться при значении коэффициента трения о дно, превышающего некоторый порог, в работе [17] это предсказание проверено прямым численным моделированием.

С точки зрения энергетического баланса, когерентные крупномасштабные вихри, возникающие в двумерных турбулентных системах, поддерживаются мелкомасштабными флуктуациями, возбуждаемыми внешней силой. Эти флуктуации, в свою очередь, эволюционируют в крупномасштабном поле скорости. Их амплитуды оказываются подавленными внутри когерентного вихря и в ведущем приближении нелинейным взаимодействием мелкомасштабных флуктуаций можно пренебречь. Корреляционные функции таких флуктуаций являются сильно анизотропными. В данной работе мы вычисляем парную корреляционную функцию флуктуационной составляющей поля завихренности внутри когерентного вихря в пассивном режиме. Такая функция непосредственно измерима в натуральных и численных экспериментах и сравнение ее с теоретическим предсказанием может служить индикатором применимо-

¹⁾e-mail: igor.kolokolov@gmail.com

сти всего подхода. Кроме того, проведенный анализ является первым необходимым шагом в исследовании роли нелинейных флуктуационных эффектов, определяющих статистические свойства потока вне когерентного вихря и его размеры.

В системе отсчета, связанной с центром когерентного вихря, он в среднем изотропен, т.е. средняя скорость вихря \mathbf{V} имеет только полярную компоненту $U(r)$, где r – расстояние до точки наблюдения от центра вихря. Полная скорость потока жидкости внутри вихря может быть представлена в виде суммы $\mathbf{V} + \mathbf{v}$, где \mathbf{v} – флуктуационная составляющая скорости. Аналогичное разложение $\Omega + \varpi$, где $\Omega = \partial_r U + U/r$, $\varpi = \nabla \times \mathbf{v}$, справедливо для завихренности. Флуктуационные компоненты \mathbf{v} , ϖ зависят от времени t , от расстояния r и от полярного угла φ .

Мы исходим из двумерного уравнения Навье–Стокса, которым мы наряду с вязким членом учитываем трение о дно. Производя декомпозицию течения на когерентную и флуктуационную составляющую, мы находим из уравнения Навье–Стокса следующее уравнение на флуктуационную завихренность ϖ

$$\partial_t \varpi + (U/r) \partial_\varphi \varpi + v_r \partial_r \Omega + \nabla (\mathbf{v} \varpi - \langle \mathbf{v} \varpi \rangle) = \phi - \alpha \varpi + \nu \nabla^2 \varpi. \quad (1)$$

Здесь $\phi = \nabla \times \mathbf{f}$ – ротор внешней силы \mathbf{f} (на единицу массы), v_r – радиальная компонента флуктуационной скорости \mathbf{v} , α – коэффициент трения о дно и ν – коэффициент кинематической вязкости.

В нашей работе внешняя сила \mathbf{f} , возбуждающая турбулентность, предполагается хаотически меняющейся со временем и имеющей конечную длину корреляции в пространстве. Мы используем модель силы \mathbf{f} , коротко коррелированной по времени. В этом случае ее статистические свойства однозначно характеризуются парной корреляционной функцией. Нам удобно работать в терминах корреляционной функции ротора внешней силы

$$\langle \phi(t_1, \mathbf{x}) \phi(t_2, \mathbf{y}) \rangle = -\epsilon \delta(t_1 - t_2) \nabla^2 \Xi(\mathbf{x} - \mathbf{y}), \quad (2)$$

где мы предположили, что статистика накачки однородна во времени и в пространстве. Лапласиан ∇^2 в правой части (2) связан с тем, что ϕ является ротором внешней силы, ϵ – мощность накачки на единицу массы, а $\Xi(\mathbf{x})$ – безразмерная функция, удовлетворяющая условию $\Xi(0) = 1$. Мы полагаем, что $\Xi(\mathbf{x})$ быстро убывает при росте своего аргумента на масштабах больше некоторой длины k_f^{-1} , которая является длиной корреляции накачки. Мы будем полагать, что длина k_f^{-1} мала по сравнению с расстоянием r от точки наблюдения до центра вихря, $k_f r \gg 1$.

Вне кора когерентного вихря (где главную роль играет вязкость и реализуется твердотельное вращение) его средняя полярная скорость U имеет плоский профиль [10, 15], что соответствует дифференциальному вращению. Локально (на масштабах меньше расстояния до центра вихря) мы имеем дело со сдвиговым течением. Как показано в работах [12, 13], в когерентном вихре темп сдвига $\Sigma = r \partial_r (U/r)$ является много большим, чем Колмогоровская нелинейная частота взаимодействия флуктуаций на масштабе накачки $(\epsilon k_f^2)^{2/3}$, поэтому нелинейными по флуктуационной скорости слагаемыми в (1) в ведущем приближении можно пренебречь. Таким образом, флуктуации на фоне когерентного вихря можно анализировать в пассивном (квазилинейном) приближении.

Отметим, что для образования двумерного турбулентного состояния и когерентного вихря диссипативные параметры должны быть достаточно малы. В частности, если сформировался когерентный вихрь, то внутри него выполняется неравенство

$$\Sigma \gg \nu k_f^2. \quad (3)$$

Неравенство (3) справедливо везде внутри вихря за исключением узкой области вблизи центра вихря, где $\Sigma \rightarrow 0$. Несмотря на относительную слабость диссипативных членов, пренебречь ими при анализе когерентного вихря нельзя, поскольку именно вязкость и трение о дно определяют амплитуды средней (когерентной) скорости вихря и флуктуаций на ее фоне.

Рассмотрим малую окрестность окружности радиуса R с центром в центре вихря. Изотропия его среднего течения позволяет исключить однородное вращение с угловой частотой $U(R)/R$, перейдя в систему отсчета, вращающуюся с этой угловой скоростью. При решении уравнения (1) мы ограничиваемся значениями r , близкими к R . Тогда $x_1 = R\varphi$ и $x_2 = r - R$ можно рассматривать, как локальные декартовы координаты. Неравенство $k_f R \gg 1$ означает, что можно пренебречь членом $v_r \partial_r \Omega$ в уравнении (1) и, следовательно, использовать сдвиговую аппроксимацию. Уравнение эволюции флуктуационной завихренности, таким образом, принимает вид:

$$\hat{\mathcal{L}} \varpi = \phi, \quad \hat{\mathcal{L}} = \partial_t + \Sigma x_2 \frac{\partial}{\partial x_1} + \alpha - \nu \nabla^2. \quad (4)$$

Здесь Σ – темп сдвига, $\Sigma = r \partial_r (U/r)$, взятый при $r = R$.

Решение уравнения (4) записывается в виде

$$\varpi(t, \mathbf{x}) = \int dt_1 d^2 y G(t - t_1, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \phi(t_1, \mathbf{y}). \quad (5)$$

Здесь $G(t, \mathbf{x}, \mathbf{z})$ – функция Грина эволюционного оператора $\hat{\mathcal{L}}(4)$, удовлетворяющая уравнению

$$\hat{\mathcal{L}}G(t, \mathbf{x}, \mathbf{z}) = \delta(t)\delta(\mathbf{x} - \mathbf{z}). \quad (6)$$

В силу причинности функция Грина $G(t)$ равна нулю при $t < 0$.

Для пространственной Фурье-компоненты функции Грина мы получаем из (6) дифференциальное уравнение первого порядка, которое легко решается методом характеристик. После этого обратное преобразование Фурье дает

$$G(t, \mathbf{x}, \mathbf{y}) = \theta(t) \frac{\sqrt{3} \exp(-\alpha t)}{2\pi\nu\Sigma t^2} \exp\left\{-\frac{3\Delta(t, \mathbf{x}, \mathbf{y})}{\nu\Sigma^2 t^3}\right\}, \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \Delta(t, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &= (x_1 - y_1 - \Sigma t y_2)^2 \\ &- \Sigma t (x_1 - y_1 - \Sigma t y_2)(x_2 - y_2) + \frac{1}{3}\Sigma^2 t^2 (x_2 - y_2)^2, \end{aligned} \quad (8)$$

где $\theta(t)$ – ступенчатая функция Хэвисайда. Отметим, что трение о дно входит в выражение (7) только через фактор $\exp(-\alpha t)$.

Выражение (7) показывает, что эволюция пятна завихренности размером k_f^{-1} , производимого накачкой ϕ , характеризуется разными временами для разных направлений. Поперек сдвигового течения характерное время эволюции определяется вязкостью, оно равно $\tau_\nu = (\nu k_f^2)^{-1}$. Вдоль же сдвигового течения характерное время эволюции равно

$$\tau_* = (\Sigma^2 \nu k_f^2)^{-1/3}. \quad (9)$$

В силу условия (3) справедливы неравенства $\Sigma\tau_* \gg 1$, $\tau_\nu \gg \tau_*$. Как показано в работах [16, 17], условием возникновения когерентного вихря является $\alpha \lesssim \nu k_f^2$. Отсюда получаем $\alpha\tau_* \ll 1$, как следствие того же условия (3).

Время τ_* имеет следующее происхождение: Ланжевеновские силы, обеспечивающие вязкую диффузию, приводят к тому, что Лагранжевы траектории имеют угловой разброс $\theta_* \sim (\nu k_f^2 / \Sigma)^{1/3}$. Подобный угол возникает, например, в задаче о растяжении полимера в сдвиговом потоке с малой случайной составляющей [18]. В результате сдвиговое течение порождает на масштабе накачки разброс скоростей $\Delta v \sim \theta_* k_f^{-1} \Sigma$, что и дает эффективное время деформации пятна (9). Такая интерпретация согласуется с результатами исследования распада начального пятна пассивного скаляра, приведенными в работе [19], где было показано, что характерное время распада

оценивается как $(D\Sigma^2)^{-1/3} l^{2/3}$, где l – размер этого пятна и D – коэффициент диффузии скаляра.

Изучим парную корреляционную функцию F завихренности ϖ в условиях статистического равновесия. Она зависит только от разности времен (в силу предполагаемой однородности по времени), но при ненулевой разности времен зависит не только от разности координат, поскольку сдвиговое течение нарушает пространственную однородность системы. Поэтому мы имеем дело с функцией

$$F(t, \mathbf{x}, \mathbf{y}) = \langle \varpi(t, \mathbf{x}) \varpi(0, \mathbf{y}) \rangle, \quad (10)$$

где угловые скобки означают усреднение по статистике накачки. Накачка имеет корреляционную длину k_f^{-1} , в то время как корреляционная функция (10) имеет сложное пространственно-временное поведение.

Используя представление (5) и усредняя произведение $\varpi(t, \mathbf{x})\varpi(0, \mathbf{y})$ с помощью соотношения (2), находим следующее выражение

$$\begin{aligned} F(t, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &= -\epsilon \int_0^\infty dt_2 \times \\ &\times \int d^2 s d^2 z G(t + t_2, \mathbf{x}, \mathbf{s}) G(t_2, \mathbf{y}, \mathbf{z}) \nabla^2 \Xi(\mathbf{s} - \mathbf{z}). \end{aligned} \quad (11)$$

Выражение (11) позволяет детально проанализировать парную корреляционную функцию завихренности. Нас будут интересовать степенные асимптотики корреляционной функции завихренности (10). Эти асимптотики определяются оператором эволюции (4) и являются вследствие этого универсальными, т.е. не зависят от деталей накачки.

Мы начнем с анализа второго момента $\langle \varpi^2 \rangle = F(0, \mathbf{0}, \mathbf{0})$. В этом случае характерное значение $s_1 - z_1 \sim k_f^{-1}$ в интеграле (11) определяется накачкой. Остальные характерные значения величин в интеграле (11) определяются структурой функции Грина (7). При этом оказывается, что

$$t_2 \sim \tau_*, \quad s_1, z_1 \sim k_f^{-1}, \quad s_2, z_2 \sim \sqrt{\nu\tau_*} \ll k_f^{-1}.$$

С использованием этих характерных значений мы находим из представления (11)

$$\langle \varpi^2 \rangle = F(0, \mathbf{0}, \mathbf{0}) \sim \epsilon k_f^2 \tau_*. \quad (12)$$

Можно сказать, что τ_* имеет смысл эффективного времени работы накачки. Отметим, что при получении (12) мы пренебрегли фактором $\exp(\alpha t)$ в (7), что возможно в силу $\alpha\tau_* \ll 1$.

Рассмотрим одноточечную разновременную корреляционную функцию $F(t, \mathbf{0}, \mathbf{0})$ при $t/\tau_* \gg 1$. В

этом случае характерное время в интеграле (11) определяется $t_2 \sim t$. Для величин же s, z имеют место оценки

$$s_1 - z_1 \sim k_f^{-1}, \quad s_1 + z_1 \sim \sqrt{\nu \Sigma^2 t^3}, \quad s_2 \sim z_2 \sim \sqrt{\nu t}.$$

С использованием этих характерных значений мы находим из представления (11)

$$F(t, \mathbf{0}, \mathbf{0}) \sim \epsilon k_f^2 \tau_* \sqrt{\tau_* / t}. \quad (13)$$

Оценка (13) предполагает выполнение неравенства $k_f s_2 \ll 1$, что дает $t \ll \tau_\nu = (\nu k_f^2)^{-1}$. В противном случае, при $t \gg \tau_\nu$, становятся существенными ограничения в интегрировании по s_2, z_2 , связанные с накачкой, и значение $F(t, \mathbf{0}, \mathbf{0})$ быстро падает с ростом t . При вычислении (13) мы пренебрегли фактором $\exp(\alpha t)$ в (7), что дает ограничение $\alpha t \ll 1$. Отметим, что в силу $\alpha \lesssim \nu k_f^2$ ограничение $t \gg \tau_\nu$ сильнее, чем ограничение, связанное с α .

Пространственные корреляции поля ϖ оказываются существенно анизотропными, что является следствием наличия сильного сдвигового течения. Поэтому мы отдельно исследуем поведение корреляционной функции F для координат, отсчитываемых вдоль и поперек сдвиговой скорости. Чтобы установить характер пространственных корреляций, мы исследуем выражение для одновременной корреляционной функции $F(0, \mathbf{x}, \mathbf{y})$, которая зависит только от разности $\mathbf{x} - \mathbf{y}$.

Проанализируем выражение для одновременной корреляционной функции F для конфигурации, когда точки наблюдения разнесены вдоль направления сдвигового потока, $F(0, x_1, 0, y_1, 0)$. Ее значение существенно отличается от второго момента $\langle \varpi^2 \rangle$, если точки разнесены на расстояние, превышающее длину корреляции накачки, $k_f |x_1 - y_1| \gg 1$. В этом случае имеют место оценки

$$s_1 - z_1 \sim k_f^{-1}, \quad s_1 + z_1 \sim |x_1 - y_1|, \\ t_2 \sim \tau_* (k_f |x_1 - y_1|)^{2/3}, \quad s_2 \sim z_2 \sim \sqrt{\nu t_2}.$$

С использованием приведенных характерных значений мы находим из представления (11)

$$F(0, x_1, 0, y_1, 0) \sim \frac{\epsilon k_f^2 \tau_*}{(k_f |x_1 - y_1|)^{1/3}}. \quad (14)$$

Оценка (14) предполагает выполнение неравенства $k_f s_2 \ll 1$, что дает ограничение $t_2 \ll \tau_\nu$. Оно переписывается в виде неравенства $k_f |x_1 - y_1| \ll (\tau_\nu / \tau_*)^{3/2}$, которое определяет область применимости асимптотики (14). При обратном условии корреляционная

функция быстро падает с ростом $|x_1 - y_1|$. При вычислении (14) мы пренебрегли фактором $\exp(\alpha t)$ в (7), что дает ограничение $\alpha t_2 \ll 1$. Отметим, что в силу $\alpha \lesssim \nu k_f^2$ ограничение $t_2 \ll \tau_\nu$ сильнее, чем ограничение, связанное с α .

Проанализируем выражение для одновременной корреляционной функции F для конфигурации, когда точки наблюдения разнесены поперек направления сдвигового потока, $F(0, 0, x_2, 0, y_2)$. Ее значение существенно отличается от второго момента $\langle \varpi^2 \rangle$, если точки разнесены на расстояние, которое удовлетворяет $k_f |x_2 - y_2| \gg (\nu k_f^2 / \Sigma)^{1/3}$. В этом случае имеют место оценки

$$s_2 \sim z_2 \sim |x_2 - y_2| \sim \sqrt{\nu t_2}, \\ s_1 - z_1 \sim k_f^{-1}, \quad s_1 + z_1 \sim (\nu \Sigma^2 t_2^3)^{1/2} \sim (\Sigma / \nu) |x_2 - y_2|^3.$$

Функция F выходит на рассматриваемую асимптотику, когда $s_1 + z_1$ становится больше k_f^{-1} , что и дает критерий $k_f |x_2 - y_2| \gg (\nu k_f^2 / \Sigma)^{1/3}$. С использованием приведенных характерных значений мы находим из представления (11)

$$F(0, 0, x_2, 0, y_2) \sim \frac{\epsilon k_f}{\Sigma |x_2 - y_2|}. \quad (15)$$

Асимптотика (15) реализуется при $k_f |x_2 - y_2| \ll 1$, в противном случае интегрирование по $s_2 - z_2$ ограничивается корреляционной функцией накачки, и F быстро падает с ростом $|x_2 - y_2|$. Отметим, что наибольшее значение t_2 , реализуемое при $k_f |x_2 - y_2| \sim 1$, равно τ_* . Поэтому при вычислении (15) мы пренебрегли фактором $\exp(\alpha t)$ в (7) в силу $\alpha t_* \ll 1$.

Мы установили, что парная корреляционная функция завихренности внутри когерентного вихря, который возникает вследствие обратного каскада в двумерной турбулентности, имеет степенное поведение в некоторой области пространственных длин и времен. Это степенное поведение означает сильную корреляцию флуктуаций завихренности в области степенного поведения, которая может существенно сказаться на нелинейных эффектах. Наш подход имеет более широкую область применимости, поскольку он определяет корреляции пассивного скаляра в сильном сдвиговом потоке. Наши результаты могут напрямую сравниваться с результатами лабораторных экспериментов и численного моделирования.

Мы благодарны С. С. Вергелесу за многочисленные обсуждения.

Работа И. В. Колоколова и В. В. Лебедева поддержана в рамках научной программы Национального центра физики и математики

ки, работа М. М. Тумаковой поддержана грантом Российского фонда фундаментальных исследований # 19-32-60065 и фондом “Базис”. В. В. Лебедев благодарит также за поддержку грант Министерства Образования и Науки РФ, проект # 075-15-2022-1099.

1. R. H. Kraichnan, *Phys. Fluids* **10**, 1417 (1967).
2. C. E. Leith, *Phys. Fluids* **11**, 671 (1968).
3. G. K. Batchelor, *Phys. Fluids* **12**, 233 (1969).
4. R. H. Kraichnan and D. Montgomery, *Rep. Prog. Phys.* **43**, 547 (1980).
5. G. Boffetta and R. E. Ecke, *Annu. Rev. Fluid Mech.* **44**, 427 (2012).
6. H. Xia, M. Shats, and G. Falkovich, *Phys. Fluids* **21**, 125101 (2009).
7. A. V. Orlov, M. Yu. Brazhnikov, and A. A. Levchenko, *Pis'ma v ZhETF* **107**, 166 (2018) [*JETP Lett.* **107**, 157 (2018)].
8. L. M. Smith and V. Yakhot, *J. Fluid Mech.* **274**, 115 (1994).
9. M. Chertkov, C. Connaughton, I. Kolokolov, and V. Lebedev, *Phys. Rev. Lett.* **99**(8), 084501 (2007).
10. J. Laurie, G. Boffetta, G. Falkovich, I. Kolokolov, and V. Lebedev, *Phys. Rev. Lett.* **113**(25), 254503 (2014).
11. I. V. Kolokolov and V. V. Lebedev, *Pis'ma v ZhETF* **101**, 181 (2015) [*JETP Lett.* **101**, 164 (2015)].
12. I. V. Kolokolov and V. V. Lebedev, *Phys. Rev. E* **93**, 033104 (2016).
13. I. V. Kolokolov and V. V. Lebedev, *J. Fluid Mech.* **809**, R2 (2016).
14. A. Frishman, J. Laurie, and G. Falkovich, *Phys. Rev. Fluids* **2**, 032602 (2017).
15. И. В. Колоколов, В. В. Лебедев, *Письма в ЖЭТФ* **106**, 633 (2017) [I. V. Kolokolov and V. V. Lebedev, *JETP Lett.* **106**, 659 (2017)].
16. I. Kolokolov and V. Lebedev, *Phys. Rev. E* **102**, 023108 (2020).
17. A. N. Doludenko, S. V. Fortova, I. V. Kolokolov, and V. V. Lebedev, *Ann. Phys.* **447**, 169072 (2022).
18. M. Chertkov, I. Kolokolov, V. Lebedev, and K. Turitsyn, *J. Fluid Mech.* **531**, 251 (2005).
19. M. Souzy, I. Zaier, H. Lhuissier, T. Le Borgne, and B. Metzger, *J. Fluid Mech.* **838**, R3 (2018).

Электронные и магнитные свойства фазы железа ε -Fe при высоких давлениях до 241 ГПа в области температур 4–300 К

А. Г. Гаврилюк^{+×○1}, В. В. Стружкин*, С. Н. Аксенов⁺, А. А. Миронович⁺, И. А. Троян^{+×○}, А. Г. Иванова^{+×},
И. С. Любутин[×]

⁺ Институт ядерных исследований РАН, 108840 Троицк, Москва, Россия

* Center for High Pressure Science and Technology Advanced Research (HPSTAR),
1690 Cailun Rd, Bldg 6, Pudong, 201203 Shanghai, China

[×] Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова,
Федеральный научно-исследовательский центр “Кристаллография и фотоника” РАН, 119333 Москва, Россия

[○] Балтийский федеральный университет имени Иммануила Канта, 236041 Калининград, Россия

Поступила в редакцию 2 ноября 2022 г.

После переработки 20 ноября 2022 г.

Принята к публикации 24 ноября 2022 г.

Магнитное и электронные состояния железа в гексагональной плотноупакованной ε -Fe фазе исследованы методом синхротронной мессбауэровской спектроскопии на ядрах Fe-57 (методика NFS – *nuclear forward scattering* или ядерное рассеяние вперед). Измерения выполнены при высоких давлениях $P \approx 55$ –241 ГПа в диапазоне температур T от 4 до 300 К, а также во внешних магнитных полях до 5 Тл. Установлено, что во всей P – T области атомы Fe находятся в немагнитном состоянии. Предполагаемая теорией магнитная неустойчивость и квантовые спиновые флуктуации, которые могут быть стабилизированы магнитным возмущением (например, внешним магнитным полем) не подтверждается нашими измерениями NFS спектров во внешнем магнитном поле. Установлено, что зависимость изомерного сдвига от давления $IS(P)$ носит нелинейный характер, и при максимальном давлении 241 ГПа значение IS достигает колоссальной величины ≈ -0.8 мм/с, указывая на очень высокую электронную плотность на ядре железа. Резкое изменение электронной плотности на ядре железа при температурах 100–200 К указывает на фазовый переход с изменением электронной структуры, что может быть связано с резким увеличением проводимости или даже с возникновением сверхпроводимости.

DOI: 10.31857/S1234567823020088, EDN: oesdwp

1. Введение. Железо – один из самых распространенных элементов на нашей планете. Фундаментальные электронные, магнитные и структурные свойства железа чрезвычайно важны как для понимания строения сильно коррелированных электронных систем, так и для исследований свойств внутренних слоев Земли. В коре и мантийных слоях Земли железо распространено в форме простых и сложных оксидов, у которых магнитный момент испытывает коллапс при давлениях выше ~ 50 ГПа [1, 2], при этом у оксидов наблюдается тенденция к металлизации под давлением [2–4]. Ядро Земли, по современным представлениям, в большой степени состоит из железа [5]. Железо также является одним из важнейших технологических материалов и, в то же время, одним из самых сложных элементов для современной теории. Кроме того, железо при высоких давлениях

является прекурсором для синтеза полигидридов FeH_x [6–8], которые в свою очередь являются возможными составляющими внутренних слоев Земли, а также могут быть высокотемпературными сверхпроводниками [7, 9]. В связи с этим изучение железа и соединений на его основе были в центре внимания экспериментальных и теоретических исследований последних десятилетий. В гексагональной плотноупакованной фазе железа (ГПУ- ε -Fe) обнаружена сверхпроводимость в диапазоне давлений 15–30 ГПа и при температурах ниже 2 К [10]. В то время как структурные свойства железа при давлениях ниже 100 ГПа хорошо известны [5], их электронные и магнитные свойства все еще обсуждаются.

При атмосферном давлении исходная фаза α -Fe имеет объемно-центрированную кубическую кристаллическую структуру (ОЦК) с пространственной группой $Im\bar{3}m$; параметр элементарной ячейки при нормальных условиях составляет $a_0 = 2.8665 \text{ \AA}$ [11].

¹)e-mail: gavriiliuk@mail.ru

Эта структура сохраняется до высокой температуры около 1185 К [12–14]. Атомы железа занимают позиции в центре и в узлах кубической решетки и образуют две магнитные подрешетки, которые упорядочиваются ферромагнитно. Величина магнитного момента на атом железа составляет $2.22 \mu_B$ [13, 15], а температура Кюри около 1043 К [16].

При комнатной температуре и давлении около 13 ГПа происходит структурный переход железа из фазы α -Fe в гексагональную плотноупакованную фазу ε -Fe (ГПУ = hcp -структура Г12) с пространственной группой $P6_3/mmc$ [17–19].

Ранее при высоких давлениях в ε -Fe были исследованы кристаллическая структура [17, 19, 20], электронные [17] и магнитные [21, 22] свойства. По результатам исследования мессбауэровских спектров в фазе ε -Fe наблюдался коллапс магнитного момента [21, 22], который является результатом перехода железа из ферромагнитного в немагнитное состояние. Установлено, что $\alpha \rightarrow \varepsilon$ переход в железе является резким переходом первого рода, но с большим гистерезисом. Даже в такой гидростатической среде как гелий (He) прямой переход идет при давлении 15 ГПа, а обратный при 10.6 ГПа [17]. В негидростатических средах ширины прямого и обратного переходов существенно увеличиваются [17, 22].

Природа магнетизма в ε -Fe до сих пор неясна. Из мессбауэровского эксперимента установлено, что при давлении 21.5 ГПа в фазе ε -Fe не наблюдается сверхтонкое магнитное поле при любой низкой температуре вплоть до 0.03 К [21]. Однако природа этого эффекта остается неизвестной. Теоретические работы [23–25] предсказывают, что коллинеарное антиферромагнитное состояние (AFM-II) или более сложное AFM-состояние [26] имеют энергии меньше, чем немагнитное состояние. Тем не менее, фаза AFM-II не была обнаружена в мессбауэровских экспериментах. Более того, теоретические оценки температуры Нееля T_N дают максимальное значение 69 К для ε -Fe при давлении перехода (12 ГПа) с последующим снижением T_N с ростом давления [27]. Однако в мессбауэровском NFS эксперименте со сплавом ε -Fe_{0.9}Ni_{0.1} [25] было показано, что при давлении 21 ГПа на ядрах Fe-57 нет сверхтонкого магнитного поля, по крайней мере, до температуры 11 К, хотя атомы никеля должны увеличивать магнитные моменты на соседних атомах железа. Тут наблюдается явное противоречие между *ab initio* расчетами для AFM фаз ε -Fe и экспериментом. Следует отметить, что фаза ε -Fe становится сверхпроводящей в том же диапазоне давлений, что и предсказанная AFM ε -Fe фаза [10]. В этом случае теория предсказывает “неконвенцио-

нальный” механизм сверхпроводимости [28], в котором спаривание осуществляется не за счет фононов, а за счет магнитных корреляций. Все эти неясности и противоречия показали, что физическое поведение ГПУ фазы ε -Fe при давлениях выше 13 ГПа имеет сложную картину, и роль корреляционных эффектов за пределами стандартной модели теории функционала плотности (DFT) в физике этого материала изучена недостаточно.

В дальнейших исследованиях синхротронными методами неупругого ядерного рассеяния NIS и NFS, проведенных до давлений ~ 70 ГПа, было обнаружено, что фазы ε -Fe и ε -Fe_{0.9}Ni_{0.1} претерпевают электронный топологический переход при давлении около 40 ГПа [29]. Это топологическое изменение поверхности Ферми проявляется через аномальное поведение дебаевской скорости звука V_D , отношения параметров решетки c/a и особенности на барической зависимости изомерного сдвига (IS) в NFS эксперименте [29]. Моделирование из первых принципов в рамках модели динамического среднего поля (DMFT – *dynamic mean field theory*) показало, что этот топологический переход вызван многоэлектронными эффектами, отсутствует в одноэлектронных расчетах и представляет собой четкое свидетельство корреляционных эффектов в ГПУ фазе ε -Fe [29].

В данной работе представлены результаты исследований фазы ε -Fe с помощью синхротронной мессбауэровской спектроскопии (*nuclear forward scattering* – NFS) на ядрах Fe-57 в области температур от 4 до 300 К при высоких давлениях до 241 ГПа, создаваемых в камерах с алмазными наковальнями, а также во внешних магнитных полях до 5 Тл.

2. Методика эксперимента. В экспериментах использовался порошок железа, обогащенного изотопом Fe-57 до $\sim 96\%$. Для NFS исследований из исходного порошка прессовались пластинки с характерными размерами от $8 \times 5 \times 0.5$ мкм³ до $17 \times 12 \times 1$ мкм³. Исследования при высоких давлениях проводились в камерах с алмазными наковальнями, в основу конструкции которых положены идеи из работы [30]. Были проведены две серии измерений в двух камерах, экспериментальные сборки которых показаны на рис. 1.

Были использованы алмазные наковальни с исходным диаметром рабочей плоскости 300 мкм. После шлифовки бевелов (скосов) под углом 8.5 градусов на алмазах были сформированы плоские рабочие площадки диаметрами ~ 30 и 50 мкм для первой и второй камеры соответственно. В прокладке (гаскете) из вольфрама (W) с помощью

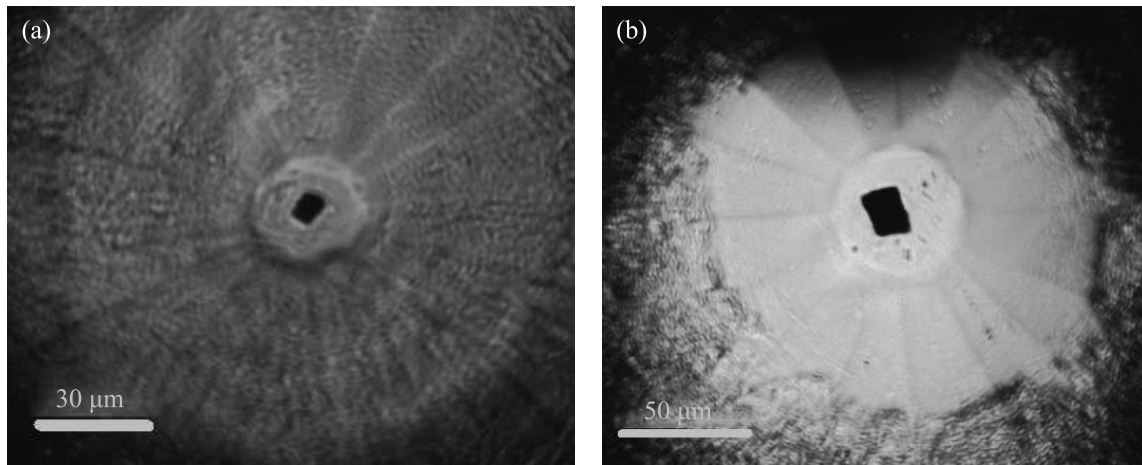


Рис. 1. (Цветной онлайн) Фотографии экспериментальных сборок в двух камерах высокого давления. (a) – Камера “LX-6”, образец Fe-57 размером $8 \times 5 \times 0.5 \text{ мкм}^3$, гаскета Al_2O_3 , среда Al_2O_3 , диапазон давлений $P = 54\text{--}241 \text{ ГПа}$, диапазон температур $T = 10\text{--}300 \text{ К}$, без внешнего магнитного поля ($H_{\text{ext}} = 0 \text{ Тл}$). (b) – Камера “Cell-3”, образец Fe-57 размером $17 \times 12 \times 1 \text{ мкм}^3$, гаскета Al_2O_3 , среда NH_3BH_3 , давление $P = 110 \text{ ГПа}$, диапазон температур $T = 4\text{--}300 \text{ К}$, диапазон внешних магнитных полей $H_{\text{ext}} = 0\text{--}5 \text{ Тл}$

лазера высверливалось отверстие диаметром около 400 мкм, в которое запрессовывалась вставка из ультрадисперсного порошка Al_2O_3 с небольшой примесью эпоксидной смолы. В первой камере (LX-6) прямо в Al_2O_3 гаскету впредсывался образец Fe-57 фольги (см. рис. 1a). Во второй камере (Cell-3) в Al_2O_3 гаскете прожигалось отверстие размером около 40 мкм, которое служило рабочим объемом. В рабочий объем второй камеры помещался образец Fe-57 фольги. Затем рабочий объем заполнялся средой, передающей давление. Для этого использовался боран аммиака NH_3BH_3 .

Величина давления измерялась по алмазной шкале [31] с помощью рамановского спектрометра на базе монохроматора Shamrock SR-500i-A и CCD-детектора DU940N-BV. Для этого использовался зеленый лазер длиной волны 532 нм в эксперименте с первой камерой (LX-6) и красный лазер с длиной волны 660 нм в эксперименте со второй камерой (Cell-3). Установлено, что градиент давления на образце в первой камере даже при максимальном давлении (241 ГПа) был не более 10 ГПа, а во второй камере со средой NH_3BH_3 не более 5 ГПа. Это свидетельствует об удовлетворительной степени гидростатичности среды.

Синхротронные мессбауэровские NFS спектры от ядер Fe-57 образцов ϵ -Fe снимались на станции P01 синхротрона PETRA-III (DESY, Германия), работающем в 40-банчевом режиме. В эксперименте с первой камерой (LX-6) использовался гелиевый криостат с рабочим диапазоном температур от 7–10 К до

300 К. В эксперименте со второй камерой (Cell-3) использовалась гелиевая криомагнитная система, в которой камеры высокого давления охлаждались до температур 3.8–4.3 К. В этой же камере были выполнены NFS эксперименты с приложением внешнего магнитного поля в диапазоне $H_{\text{ext}} = 1\text{--}5 \text{ Тл}$. Система КВ-зеркал обеспечивает фокусировку синхротронного пучка на образце в пятно с размерами $4 \times 7 \text{ мкм}$ при энергии мессбауэровского излучения 14.41 кэВ.

Давление в камерах менялось снаружи криостата при комнатной температуре. Затем первая камера (LX-6) помещалась в криостат, и в процессе охлаждения при нескольких фиксированных температурах проводилось накопление NFS спектров от Fe образца. Также выполнялись измерения от пары образцов, представленных в виде “сэндвича” Fe + SS, где SS (*stainless steel*) – это фольга нержавеющей стали толщиной 25 мкм. Фольга SS находилась снаружи камеры и вводилась в синхротронный пучок вблизи входного окна в криостат во время измерения. Такая методика позволяет измерять изомерные сдвиги (IS) в образце Fe. Исследуемый образец охлаждался до температуры $\sim 10 \text{ К}$. При отогреве процедура повторялась в обратном порядке.

С камерой (LX-6) были проведены измерения в диапазоне давлений 54–241 ГПа, и в диапазоне температур 10–300 К. По окончании температурного цикла давление в камере (LX-6) дополнительно контролировалось при комнатной температуре. Стабильность давления при температурном цикле

неоднократно проверялась и составляет величину не хуже 5 ГПа.

Во второй серии экспериментов камера Cell-3 помещалась в криостат и охлаждалась до температуры ~ 4 К. Затем проводилось несколько измерений в разных магнитных полях в диапазоне от 0 до 5 Тл. После этого камера (Cell-3) отогревалась до комнатной температуры и в ней контролировалось давление. Перед охлаждением давление в камере (Cell-3) было порядка 99 ГПа, после цикла охлаждение-отогрев ~ 114 ГПа. Таким образом, давление в камере (Cell-3) при $T \sim 4$ К мы оцениваем $P \sim 110$ ГПа. Полученные NFS спектры обрабатывались с помощью программы MOTIF, разработанной Ю. Швьидько [32].

3. Результаты экспериментов. Поскольку NFS спектры при давлениях до 40 ГПа уже были изучены ранее [33], мы начали измерения с более высокого давления 54 ГПа, при котором железо уже заведомо находится в фазе ϵ -Fe. На рисунке 2 приведены для сравнения NFS спектры образца α -Fe при давлении 3 ГПа из работы [33] и спектр образца ϵ -Fe при давлении 54.6 ГПа, полученный в нашей работе. Высоочастотные биения в NFS спектре α -Fe обусловлены наличием сверхтонкого магнитного поля на ядрах Fe-57, величина которого при комнатной температуре составляет 33.3 Тл. Прямолинейный вид NFS спектра в образце ϵ -Fe указывает на отсутствие магнитного поля.

С теорией и методикой NFS эксперимента можно детально ознакомиться в работах [32–34]. В том случае, когда мессбауэровские ядра Fe-57 не подвержены воздействию электрических квадрупольных и/или магнитных дипольных сверхтонких взаимодействий, NFS спектры представляют собой распад ядерного возбуждения (вызванного синхротронным импульсом), который происходит во времени по экспоненциальному закону. В этом случае NFS спектры в логарифмическом масштабе имеют вид прямых линий. При наличии магнитных и/или неоднородных электрических полей на ядрах железа в спектрах NFS возникают осцилляции (квантовые биения).

На рисунке 3 показаны наши экспериментальные NFS спектры чистого железа ϵ -Fe (т.е. без репера SS), полученные в камере LX-6 при давлениях в области 54.6–241.3 ГПа и температурах от ~ 10 до 298 К. Именно из прямолинейного характера NFS спектров следует, что фаза железа ϵ -Fe в указанной P – T области находится в немагнитном состоянии.

Для исследования электронных свойств фазы ϵ -Fe дополнительно были измерены NFS спектры железа с репером из нержавеющей стали (Fe + SS), по которым можно проследить динамику изменения

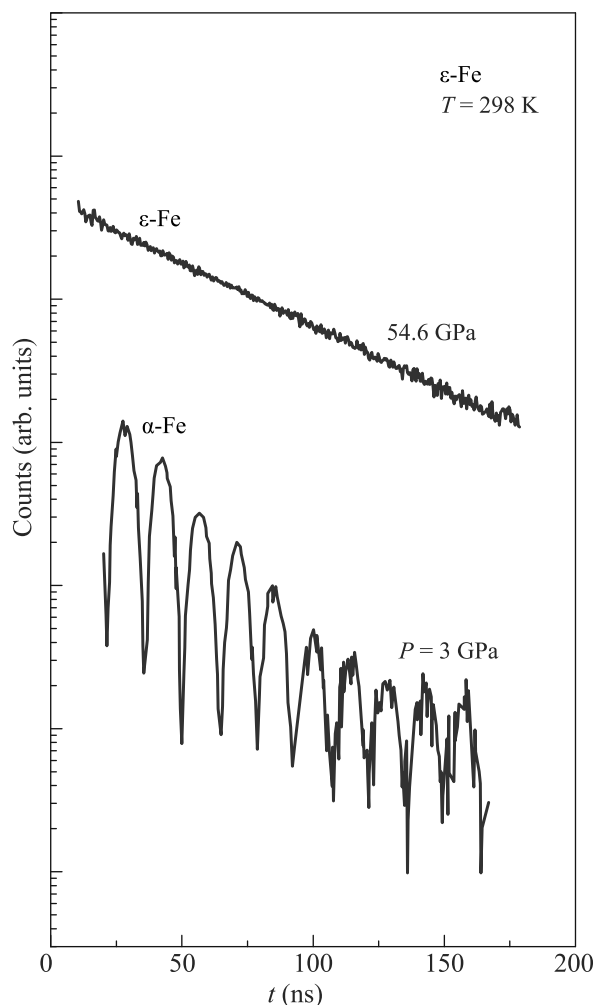


Рис. 2. (Цветной онлайн) Сравнение NFS спектров чистого железа (Fe-57) в магнитной α -Fe фазе и немагнитной ϵ -Fe фазе. В магнитной α -Fe фазе наблюдаются высоочастотные квантовые биения, обусловленные сверхтонким магнитным полем на ядрах Fe-57. В немагнитной ϵ -Fe фазе экспоненциальное падение интенсивности

изомерных сдвигов в ϵ -Fe при вариациях давления и температуры (рис. 4). При комнатной температуре и атмосферном давлении мессбауэровский спектр нержавеющей стали SS в энергетическом представлении состоит из одиночной линии. При этих условиях изомерный сдвиг α -Fe относительно SS составляет $(IS) = +0.1019(3)$ мм/с.

Поскольку при высоком давлении в ϵ -Fe фазе мессбауэровский спектр представлен одиночной линией, то спектр “сэндвича” Fe + SS должен иметь форму дублета. В NFS спектре это проявляется в появлении низкочастотных квантовых биений (рис. 4).

Как видно из рис. 4, при давлениях в области 98–241.3 ГПа и температурах от ~ 10 до 298 К на NFS спектрах “сэндвича” Fe + SS, наблюдаются низкоча-

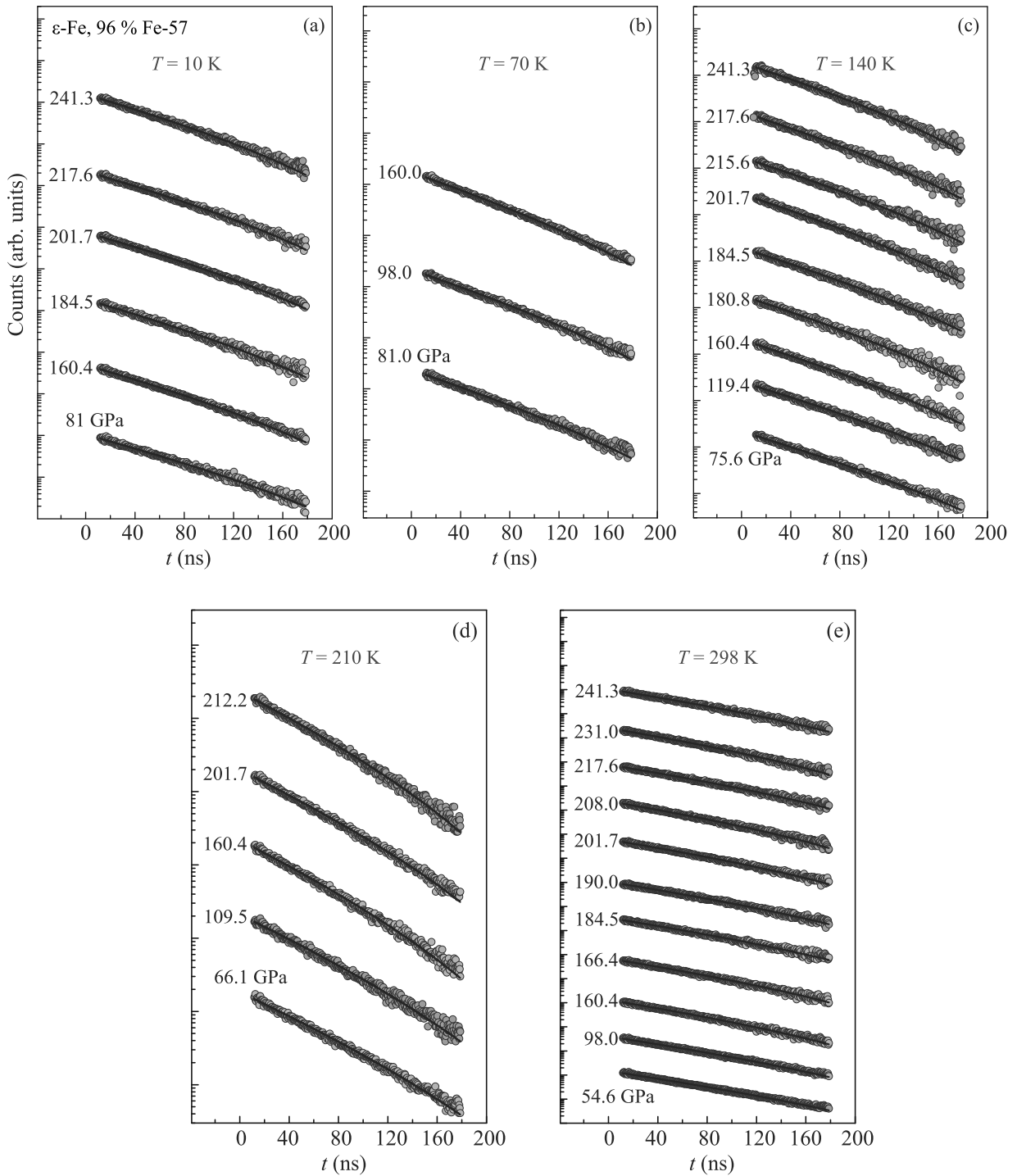


Рис. 3. (Цветной онлайн) Эволюция мессбауэровских NFS спектров железа Fe-57 в фазе ϵ -Fe с ростом давления для различных значений температур (размер образца $\sim 8 \times 5 \times 0.5$ мкм): (a) – при $T = 10$ K; (b) – при $T = 70$ K; (c) – при $T = 140$ K; (d) – при $T = 210$ K; (e) – при $T = 298$ K. Символы – экспериментальные точки, сплошные линии – подгонка по программе MOTIF [32]

стотные квантовые биения, характерные для дублетной формы мессбауэровских спектров в энергетическом представлении. Таким образом, из двух спосо-

бов измерения NFS спектров установлено, что фаза железа ϵ -Fe в указанной P – T области находится в немагнитном состоянии.

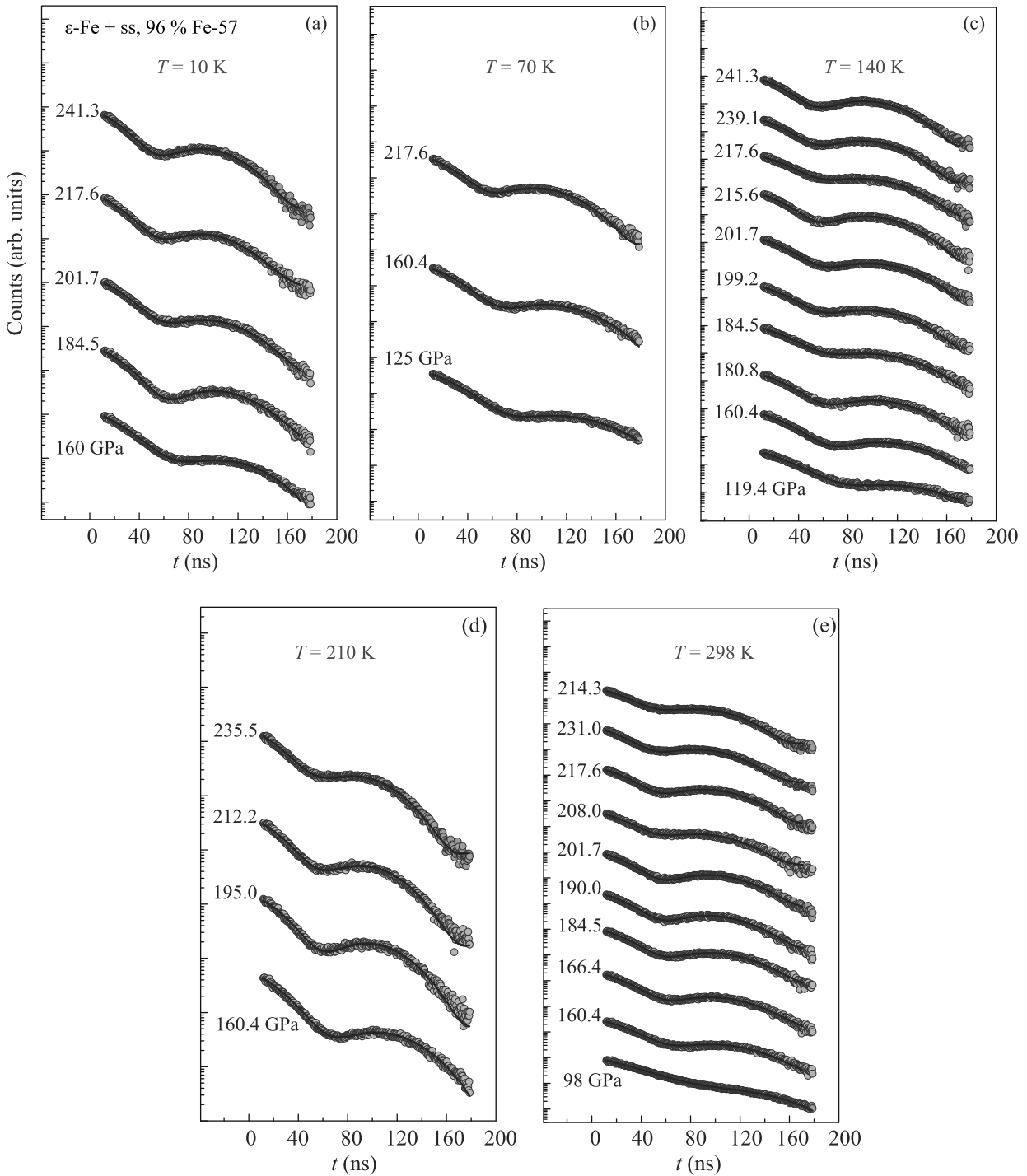


Рис. 4. (Цветной онлайн) Эволюция мессбауэровских NFS спектров железа с внешним репером (Fe + SS) с ростом давления для различных температур. В качестве репера использовалась фольга из нержавеющей стали (SS) толщиной 25 мкм

Во второй серии измерений в камере Cell-3 было изучено поведение фазы железа ϵ -Fe во внешнем магнитном поле H_{ext} до 5 Тл при давлении ~ 110 ГПа и температуре ~ 4 К. Магнитное поле H_{ext} было на-

правлено вдоль синхротронного пучка, перпендикулярно плоскости образца. По спектрам NFS определялась величина сверхтонкого магнитного поля (B_{hf}) на ядрах Fe-57. Эволюция спектров NFS в чистом

железе ε -Fe с ростом внешнего поля приведена на рис. 5. На вставке в рис. 5 приведена зависимость

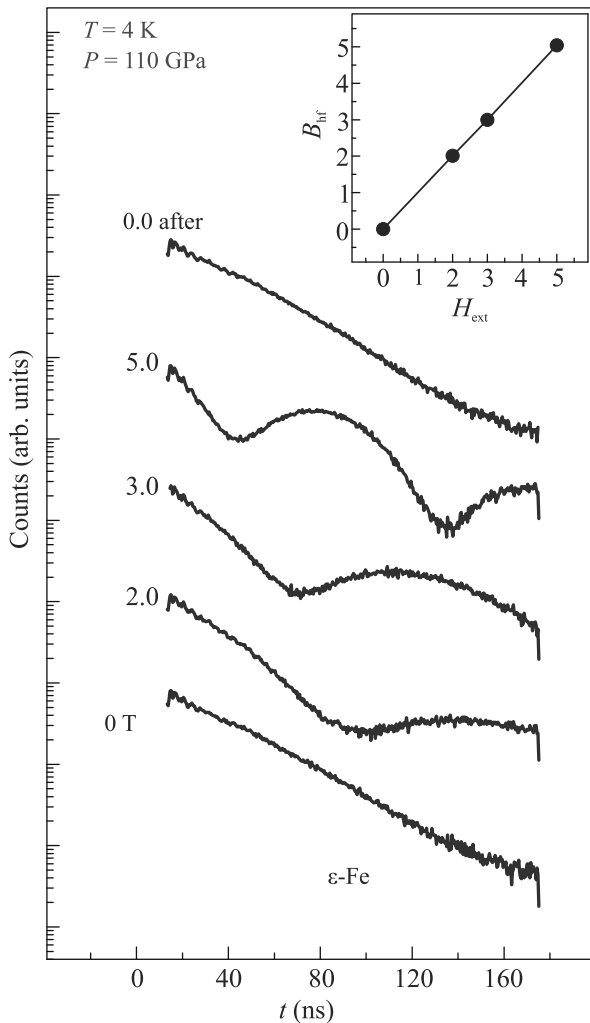


Рис. 5. (Цветной онлайн) Эволюция мессбауэровских NFS спектров в железе ε -Fe при давлении $P = 110$ ГПа и температуре $T = 4$ К с ростом внешнего магнитного поля H_{ext} . На вставке показана рассчитанная по программе MOTIF [32] зависимость сверхтонкого магнитного поля B_{hf} на ядрах Fe-57 от величины внешнего магнитного поля H_{ext} . Значения полей H_{ext} и B_{hf} практически совпадают, что свидетельствует об отсутствии сверхтонкого магнитного поля на ядрах железа в фазе ε -Fe

сверхтонкого магнитного поля B_{hf} на ядрах Fe-57 от величины внешнего магнитного поля H_{ext} . Очевидно, что вся величина поля B_{hf} в пределах экспериментальной ошибки обусловлена приложенным внешним магнитным полем H_{ext} . Это, во-первых, указывает на то, что ε -железо при этих P - T условиях является немагнитным, и, во-вторых, внешнее магнитное поле до 5 Тл не создает подмагничивание

электронной системы железа, достаточное для спиновой поляризации s -электронов. Это важно, так как главным источником магнитного поля B_{hf} является спиновая поляризация s -электронов, обусловленная некомпенсированными спинами $3d$ электронов, ответственными за магнетизм (так называемое “контактное взаимодействие Ферми” [35]).

По результатам измерения NFS спектров “сэндвича” ε -Fe + SS (см. рис. 4) нами было тщательно исследовано значение параметра изомерного сдвига (IS) в области давлений 54.6–241.3 ГПа и температур от ~ 10 до 298 К. Установлено, что в фазе ε -Fe значение IS постепенно уменьшается с увеличением давления и с ростом температуры (рис. 6), а его изменение при максимальном давлении в эксперименте (241.3 ГПа) примерно равно -0.8 мм/с по отношению к IS железа в α -Fe фазе при атмосферном давлении и комнатной температуре.

Экспериментальные спектры были обработаны для всех измеренных значений P - T , и в результате были получены зависимости IS от давления и температуры. На рисунке 6а приведены наши данные для температур 10 и 298 К в сравнении с данными из работы [29]. Также по результатам этих измерений можно реконструировать P - T фазовую диаграмму, которая приведена на рис. 6б.

Очевидно, что непрерывное падение изомерного сдвига при росте давления (рис. 6) обусловлено увеличением плотности s -электронов на ядре Fe-57, что является следствием сжатия образца. Зависимости $IS(P)$ носят нелинейный характер, и для их аппроксимации необходимо использовать квадратичные и более высокие степени в разложении по малому параметру (P) давления. Наиболее точно измерена зависимость $IS(P)$ для комнатной температуры. Мы установили, что экспериментальные точки можно хорошо описать (аппроксимировать) кубическим полиномом вида:

$$IS(P) = IS_0 + k \cdot P + b \cdot P^2 + c \cdot P^3. \quad (1)$$

Результат подгонки экспериментальных точек IS при комнатной температуре к функции вида (1) дает следующие значения параметров: $IS_0 = -0.22645$ мм/с, $k = -0.00386$ мм/с \cdot ГПа, $b = 7.66279 \cdot 10^{-6}$ мм/с \cdot ГПа², $c = -6.34349 \cdot 10^{-9}$ мм/с \cdot ГПа³.

В общем случае изомерный сдвиг включает два вклада:

1. “Температурный сдвиг” (δT) или доплеровский сдвиг второго порядка. Для дебаевской модели тепловых колебаний относительное изменение кинетической энергии ядра при температуре $T > 0$ вызы-

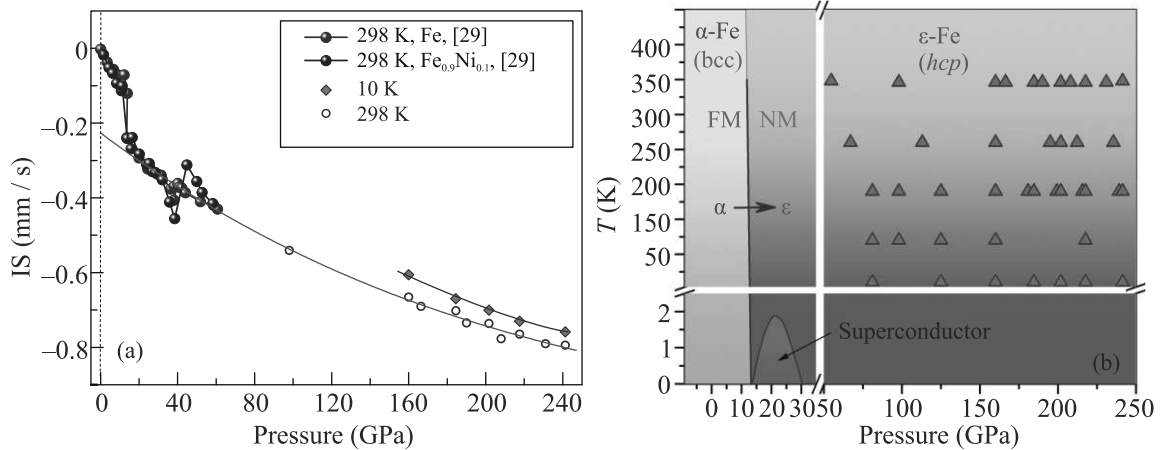


Рис. 6. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость от давления изомерного сдвига в железе для различных температур. Изомерные сдвиг приведены относительно α -Fe, находящегося при комнатной температуре и атмосферном давлении. Объемные символы – данные из работы [29]. Сплошные линии – подгонка по формуле (1). (б) – Фазовая P – T диаграмма железа: треугольными символами отмечены экспериментальные P – T точки, в которых измерялись NFS спектры в нашем эксперименте. Во всех измеренных точках железо находится в немагнитном состоянии (NM)

вает смещение мессбауэровского спектра на величину (Δv) [36]:

$$\Delta v = -3kT/2Mc(1 - 3\Theta_D/8T), \quad (2)$$

где M – масса ядра, Θ_D – температура Дебая и c – скорость света. В случае мессбауэровского изотопа ^{57}Fe , увеличение температуры на 1 К вызывает смещение линии на -7.0×10^{-4} мм/с.

2. Изомерный сдвиг (или “химический сдвиг” δ) обусловлен электростатическим взаимодействием ядра с окружающими электронами в результате кулоновского взаимодействия ядерного заряда с плотностью электронного заряда $-e|\Psi(0)|^2$. Энергия этого взаимодействия различна для двух ядерных изомеров (основного и возбужденного состояний, так как у них различные радиусы R), поэтому сдвиг называется *изомерным*. Для ядер ^{57}Fe зависимость изомерного сдвига от плотности заряда $3d$ - и $4s$ -электронов для различных конфигураций электронной оболочки была впервые проанализирована в работе [37] с помощью расчетов по методу Хартри–Фока. Поскольку только атомные ns -орбитали $\varphi_{ns}(r)$ имеют отличную от нуля плотность в области ядра, то плотность электронного заряда $|\Psi(0)|^2$ в основном создается электронами, находящимися на различных s -орбиталях $|\Psi_{ns}(0)|^2$ мессбауэровского атома, т.е. $|\Psi(0)|^2 = \sum_n |\Psi_{ns}(0)|^2$.

Однако p - и d -электроны, не создающие прямого вклада в значение $|\Psi(0)|^2$, могут, тем не менее, экранировать s -электроны и таким образом влиять на величину сдвига δ . Например, добавление $3d$ -электрона

уменьшает кулоновский потенциал, притягивающий $3s$ -электроны к ядру, и вызывает размазывание волновой функции $3s$ -электронов, уменьшая плотность их заряда $|\Psi_s(0)|^2$ на ядре. Это приводит к существенному увеличению химического сдвига (напомним, что для ^{57}Fe $\Delta R/R < 0$, где $\Delta R = R_{ex} - R_g$).

Нестандартное поведение изомерного сдвига в зависимости от давления и температуры обсуждается в следующем разделе.

Кроме того, нами были проведены расчеты IS в зависимости от давления для следующих фиксированных температур: 10, 70, 140, 210 и 298 К (см. рис. 7а). Для каждой барической зависимости были сделаны подгонки к аналитической функции (1) (аналогично подгонке барической функции для комнатной температуры на рис. 6а) и затем построены зависимости $IS(T)$ для различных давлений (см. рис. 7б).

Было установлено, что в температурном диапазоне от 10 до 140 К изомерный сдвиг практически не зависит от температуры, однако в диапазоне 210–300 К происходит его падение примерно на 0.05 мм/с. В результате на температурной зависимости $IS(T)$ наблюдается аномальный перегиб (“кинк”), положение которого смещается с давлением от ~ 250 К при $P = 100$ ГПа до ~ 200 К при $P = 240$ ГПа. Это свидетельствует об аномалии в электронных свойствах ϵ -железа при этих температурах. Для демонстрации этого эффекта на рис. 8 показана эволюция вероятностных распределений изомерного сдвига с изменением температуры для двух давлений 160 и 217 ГПа.

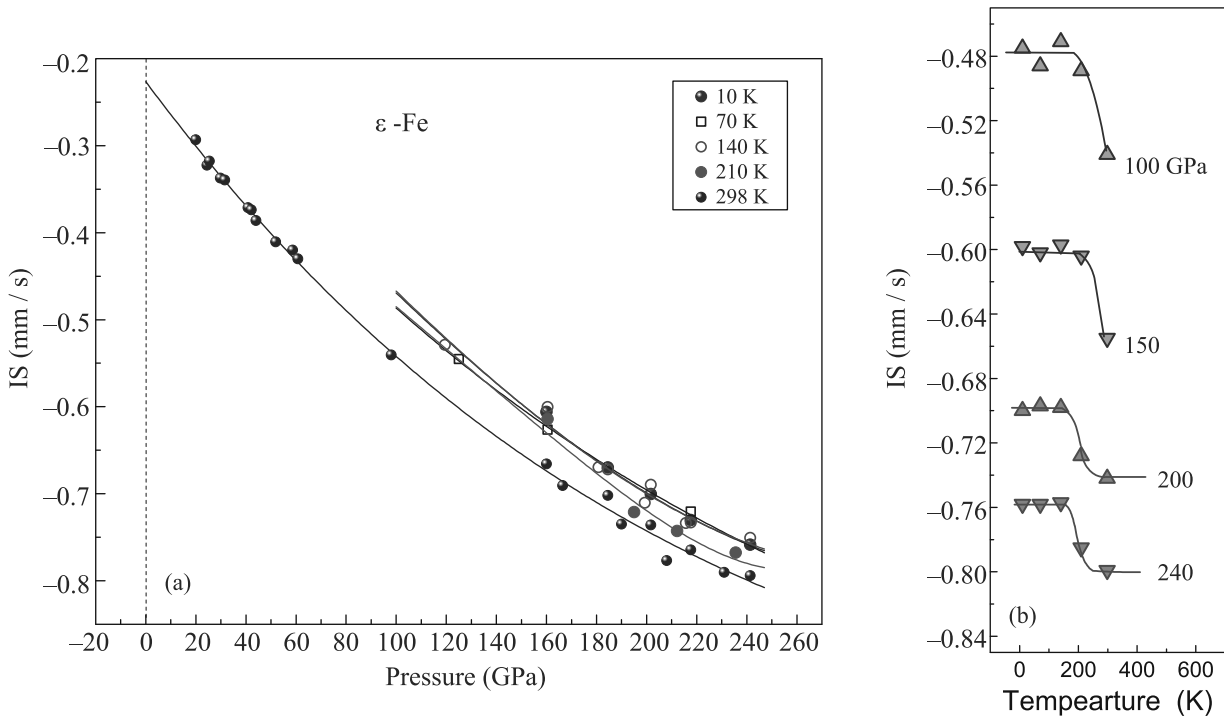


Рис. 7. (Цветной онлайн) (а) – Зависимость изомерного сдвига в железе от давления для различных температур. Сплошные линии – аппроксимация полиномом по формуле (1). (б) – Температурные зависимости изомерного сдвига для разных давлений (из аппроксимаций на рис. (а)). Значения изомерных сдвигов даны относительно α -Fe, находящегося при комнатной температуре и атмосферном давлении

Для прояснения этого эффекта необходимы дополнительные эксперименты, расчеты и теоретические подходы.

4. Обсуждение результатов. По предположению Гуденафа [15], в переходных $3d$ металлах внешние s - и p -электроны занимают частично заполненные, перекрывающиеся s - и p -зоны. При этом $3d$ -электроны могут быть как локализованными, так и коллективизированными. Параметр R_{crit} является критическим межатомным расстоянием, при котором происходит переход от локализованного состояния к коллективизированному. Поскольку p - и d -электроны имеют анизотропное распределение спиновой (электронной) плотности, то характер обменного взаимодействия зависит от кристаллической симметрии и от расстояния между магнитными атомами в определенных узлах кристаллической решетки, а также от степени заполнения $3d$ -орбиталей с определенными квантовыми числами.

Правило обменного взаимодействия между катионами (ферро- или антиферромагнитное взаимодействие), которое применяется для локализованных d -электронов, остается главным взаимодействием, определяющим электронную корреляцию среди коллективизированных d -электронов

при условии, когда расстояние между ними близко к критическому $R \rightarrow R_{\text{crit}}$.

Согласно Гуденафу [15], в ОЦК-структуре переходного металла две магнитные подрешетки должны упорядочиваться антипараллельно (антиферромагнетик), если t_{2g} -орбитали заполнены наполовину или менее ($n_{2g} \leq 3$), и параллельно (ферромагнетик), если t_{2g} -орбитали заполнены более, чем наполовину ($n_{2g} > 3$). α -Железо имеет более 6 внешних электронов, а именно, восемь ($\text{Fe}^0 - 3d^6 4s^2$ или $\text{Fe}^{1+} - 3d^7 4s^1$) и является ферромагнетиком [15]. Если выполняется условие $n_{2g} \leq 3$, и при этом e_g -уровни не заполнены ($n_g = 0$), то переходный металл является парамагнетиком типа Паули [38]. Это так называется спиновый парамагнетизм коллективизированных электронов (электронов проводимости) в металлах. Такими свойствами, например, обладают ОЦК-Ti ($d^2 s^2$) и ОЦК-V ($d^3 s^2, d^4 s^1$).

В плотноупакованных структурах, к которым относится гексагональная hcp фаза ϵ -Fe (структура Г12), критерием ферромагнетизма или парамагнетизма Паули является существование частично заполненных состояний локализованных электронов. В фазе ϵ -Fe d_{z^2} -электроны должны быть локализованы, а связывающая зона ($p_z d^5$) не образуется.

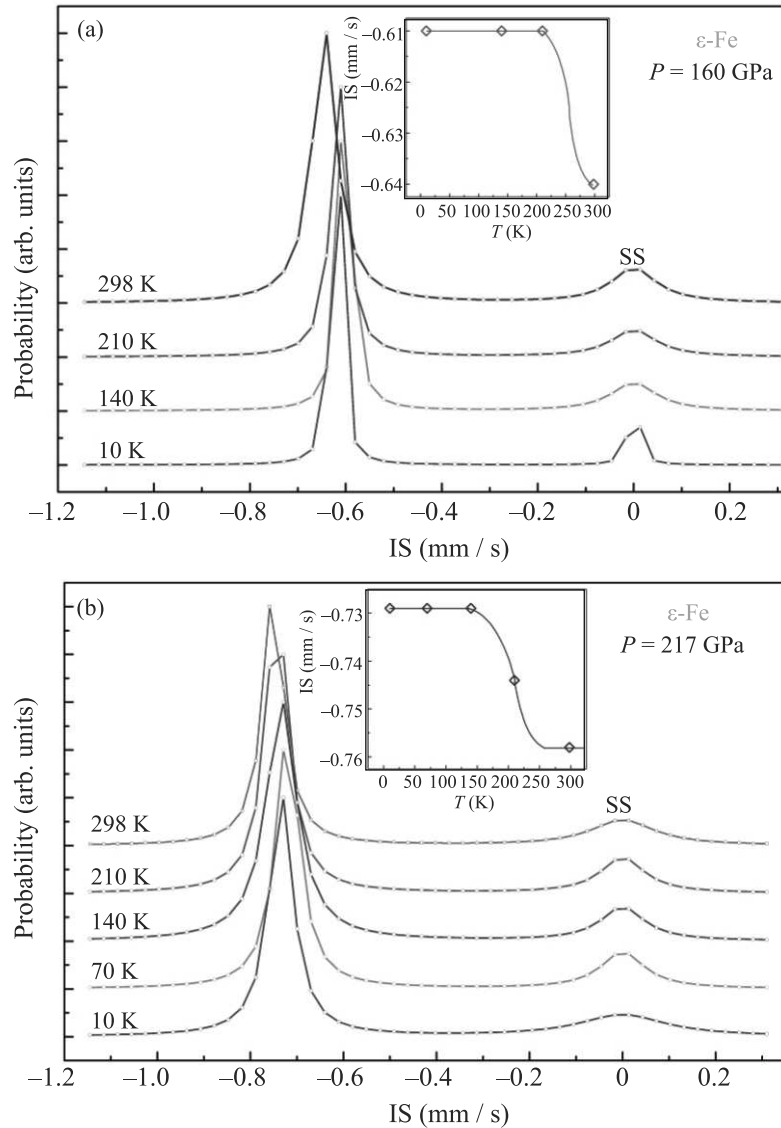


Рис. 8. (Цветной онлайн) Эволюции вероятностных распределений изомерного сдвига с температурой для двух давлений (a) – $P \approx 160$ ГПа и (b) – $P \approx 217$ ГПа, рассчитанных по программе [32] из экспериментальных NFS спектров для Fe + SS образца. На вставках показаны температурные зависимости изомерного сдвига для разных давлений. Изомерные сдвиги даны относительно нержавеющей стали при комнатной температуре и атмосферном давлении

Коллективизированные электроны находятся в металлическом состоянии, и при $n_{z2} < 2$ фаза ϵ -Fe должна быть ферромагнитной, а при $n_{z2} \geq 2$ и $n_{z2} = 2$ – это парамагнетик Паули [15]. В плотноупакованной структуре магнитный момент равен: $\mu = 1/2[q(n_g + 2)]\mu_B = 0$, где $(n_g + 2)$ – число дырок в d -зоне. Поскольку все локализованные электроны имеют спаренные спины, соединение является парамагнетиком [39].

В наших многочисленных исследованиях оксидов железа при высоких давлениях [1] было установлено, что с увеличением давления рост кристаллического поля приводит значительному расщеплению t_{2g} и e_g

уровней. При достаточно высоком давлении энергия кристаллического поля становится больше энергии внутриатомного обмена Хунда и все $3d$ -электроны переходят на нижние уровни. При этом спаривание спинов приводит к низкоспиновому состоянию, которое при четном количестве $3d$ -электронов является диамагнитным.

По-видимому, аналогичный эффект можно ожидать и в фазе ϵ -Fe. В этом случае при высоких давлениях локализованные d -электроны образуют диамагнитное состояние, а коллективизированные s -, p - и d -электроны находятся в парамагнитном состоянии типа Паули. Такой качественный анализ позволяет

объяснить немагнитное состояние фазы ε -железа, наблюдаемое экспериментально.

В литературе имеется много попыток применить различные методы теоретических исследований для изучения магнитных свойств фазы ε -Fe, особенно в связи с обнаружением сверхпроводимости в этом материале [28, 40]. Ранее расчеты зонной структуры [41] предсказали отсутствие магнитного упорядочения в ε -Fe. Современные расчеты функционала плотности с использованием приближения обобщенного градиента (GGA), которые обычно считаются надежными для $3d$ -металлов, четко показывают антиферромагнитное основное состояние [40] или неколлинеарное магнитное состояние, но не парамагнитное [28, 40]. Антиферромагнитное основное состояние неоднократно предсказывалось для ГПУ-фазы железа ε -Fe [24, 27, 42–47], но данные мессбауэровской спектроскопии указывают на отсутствие статических магнитных моментов.

В работе [25] была проверена идея о том, что ε -железо является антиферромагнитным, но не проявляет сверхтонкого магнитного поля на ядре железа из-за компенсации вкладов от плотности электронов с противоположной ориентацией спинов. Для этого были выполнены расчеты полного потенциала DFT с линеаризованными присоединенными плоскими волнами (LAPW) в приближении обобщенного градиента (GGA). В результате авторы пришли к заключению, что функционал GGA переоценивает обменную связь в фазе ГПУ-Fe и неверно предсказывает магнитный порядок. Однако существует вероятность, что квантовые спиновые флуктуации [28, 40] в ε -железе могут быть слишком быстрыми для мессбауэровского временного окна в несколько наносекунд, и поэтому сверхтонкое магнитное поле не обнаруживается. Авторы [28] пришли к выводу, что вопрос о магнетизме в ГПУ-железе остается открытым. Если даже ГПУ-железо действительно немагнитно, оно должно быть очень близко к магнитной неустойчивости. В этом случае магнитное возмущение (например, внешнее поле) должно стабилизировать магнитное состояние. При этом возникновение поляризации электронов проводимости должно создавать измеримые сверхтонкие магнитные поля на ядрах железа. Однако наши измерения NFS спектров во внешнем магнитном поле отвергают это предположение. Во внешних полях до 5 Тл сверхтонкие магнитные поля не возникают.

Далее необходимо отметить обнаруженное в нашей работе нерегулярное поведение изомерного сдвига IS в зависимости от давления и температуры (рис. 6а, 7а, 7б).

В исходном состоянии атом железа α -Fe имеет электронную конфигурацию $3d^6 4s^2$. Значения изомерных сдвигов зависят от заселенности не только ns -состояний, но и $3d$ -орбиталей, которые меняются под воздействием высоких давлений. Для фазы ε -Fe, исследованной в нашей работе, по-видимому, следует рассмотреть отдельно эффекты влияния температуры при фиксированном давлении и влияние давления при фиксированной температуре.

Наиболее подробные данные по изменению величины IS с увеличением давления нами получены для комнатной температуры (рис. 6а). В фазе ε -Fe значение $IS_0 = -0.22645$ мм/с относительно α -Fe при нормальных условиях (экстраполированное к нулевому давлению) указывает, что электронная плотность на ядрах железа в фазе ε -Fe значительно выше, чем в фазе α -Fe. Зависимость $IS(P)$ носит нелинейный характер. С увеличением давления электронная плотность на ядрах железа продолжает увеличиваться и при максимальном давлении 241 ГПа значение IS достигает колоссальной величины ≈ -0.8 мм/с относительно α -Fe при нормальных условиях (рис. 6а и 7а).

Весьма удивительно, что с понижением температуры до 10 К уменьшение абсолютного значения IS указывает на уменьшение электронной плотности на ядрах железа по сравнению с ее значением при 298 К (рис. 6а и 7а).

Измерения изомерных сдвигов в фазе ε -Fe при различных температурах обнаруживают “нестандартный” характер зависимости $IS(T)$ при фиксированных высоких давлениях (рис. 7б). Например, при давлениях в области 100–240 ГПа значение IS остается постоянным с ростом температуры примерно от 4 до 200 К. Это не соответствует дебаевской модели тепловых колебаний атомов железа. Более того, на температурной зависимости $IS(T)$ наблюдается резкое падение IS , указывающее на скачкообразное увеличение электронной плотности на ядрах железа при определенной температуре. Положение “скачка” смещается с давлением от ~ 250 К при $P = 100$ ГПа до ~ 200 К при $P = 240$ ГПа. Это свидетельствует о новом (дополнительном) электронном переходе в этой P – T области. Можно предположить, что резкое увеличение электронной плотности при давлениях в области 100–240 ГПа может быть связано с резким увеличением проводимости или даже с возникновением сверхпроводимости.

В заключение отметим, что полученные в данной работе экспериментальные данные о магнитном состоянии и электронных свойствах железа фазы ε -Fe очень важны как с фундаментальной точки зрения

физики металлов и их магнетизма, так и с точки зрения физики Земли и земного магнетизма.

Следует также отметить, что немагнитное состояние железа в широком диапазоне сверхвысоких давлений и низких температур позволяет использовать его в качестве “мессбауэровского” сенсора магнитного поля в экспериментах по вытеснению магнитного поля из сверхпроводника. Это особенно важно при исследовании свойств сверхпроводника методами на основе эффекта Мейснера. Такая методика была предложена и реализована в наших экспериментах при использовании фольги из олова (мессбауэровский изотоп Sn-119) в экспериментах по вытеснению магнитного поля из сверхпроводящего полигидрида серы (SH₃) [48].

Авторы благодарят Олафа Леопольда, Илью Сергеева и Ганса-Кристиана Вилля за подготовку эксперимента на линии P01 и помощь с измерением NFS спектров. Авторы благодарят Питера Лиермана и Константина Глазырина за помощь с измерением давления в процессе эксперимента на линии P02. Авторы также благодарят С. Г. Овчинникова за продуктивное обсуждение работы и комментарии.

Работа была выполнена главным образом при поддержке гранта Российского научного фонда # 21-12-00344. Юстировочная система рамановской установки, используемой при подготовке экспериментальныхборок, была создана при поддержке Министерства науки и высшего образования в рамках выполнения работ по гранту # 075-15-2021-1362. При подготовке зарядки образцов для эксперимента использовалось оборудование ЦКП “Ускорительный центр нейтронных исследований структуры вещества и ядерной медицины” Института ядерных исследований РАН. Предварительные рентгеноструктурные исследования проведены при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках выполнения работ по Государственному заданию ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” с использованием оборудования ЦКП (проект RFMEFI62119X0035).

1. I. S. Lyubutin and A. G. Gavriliuk, *Phys.-Uspekhi* **52**, 989 (2009).
2. S. G. Ovchinnikov, *JETP Lett.* **94**, 192 (2011).
3. S. G. Ovchinnikov, T. M. Ovchinnikova, P. G. Dyad'kov, V. V. Plotkin, and K. D. Litasov, *JETP Lett.* **96**, 129 (2012).
4. S. N. Aksenov, A. A. Mironovich, I. S. Lyubutin, A. G. Ivanova, I. A. Troyan, R. A. Sadykov, Siddharth S. Saxena (Montu), and A. G. Gavriliuk, *JETP Lett.* **114**, 742 (2021).

5. R. Boehler, *Rev. Geophys.* **38**, 221 (2000).
6. D. N. Sagatova, P. N. Gavryushkin, N. E. Sagatov, I. V. Medrish, and K. D. Litasov, *JETP Lett.* **111**, 145 (2020).
7. A. G. Kvashnin, I. A. Kruglov, D. V. Semenov, and A. R. Oganov, *J. Phys. Chem. C* **122**, 4731 (2018).
8. A. G. Gavriliuk, V. V. Struzhkin, S. N. Aksenov, A. G. Ivanova, A. A. Mironovich, I. A. Troyan, and I. S. Lyubutin, *JETP Lett.* **116** (2022), в печати.
9. I. A. Troyan, D. V. Semenov, A. G. Ivanova, A. G. Kvashnin, D. Zhou, A. V. Sadakov, O. A. Sobolevskiy, V. M. Pudalov, I. S. Lyubutin, and A. R. Oganov, *Phys.-Uspekhi* **65**, 748 (2022).
10. K. Shimizu, T. Kimura, S. Furomoto, K. Takeda, K. Kontani, Y. Onuki, and K. Amaya, *Nature* **412**, 316 (2001).
11. E. R. Jette and F. Foote, *J. Chem. Phys.* **3**, 605 (1935).
12. Z. S. Basinski, W. Hume-Rothery, and A. L. Sutton, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* **229**, 459 (1955).
13. R. W. G. Wyckoff, *Crystal Structures*, 2 ed., Interscience Publishers, N.Y. (1963).
14. I. Leonov, A. I. Poteryaev, V. I. Anisimov, and D. Vollhardt, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 106405 (2011).
15. J. B. Goodenough, *Magnetism and the chemical bond*, Interscience publishers, a division of John Wiley & Sons, N.Y.–London (1963).
16. V. Y. Irkhin, M. I. Katsnelson, and A. V. Trefilov, *J. Phys.: Condens. Matter* **5**, 8763 (1993).
17. N. V. Barge and R. Boehler, *High Pressure Research* **6**, 133 (1990).
18. R. Boehler, N. von Bargen, and A. Chopelas, *J. Geophys. Res.* **95**, 21731 (1990).
19. H.-K. Mao, W. A. Bassett, and T. Takahashi, *J. Appl. Phys.* **38**, 272 (1967).
20. H. K. Mao, Y. Wu, L. C. Chen, J. F. Shu, and A. P. Jephcoat, *J. Geophys. Res.* **95**, 21737 (1990).
21. G. Cort, R. D. Taylor, and J. O. Willis, *J. Appl. Phys.* **53**, 2064 (1982).
22. R. D. Taylor, M. P. Pasternak, and R. Jeanloz, *J. Appl. Phys.* **69**, 6126 (1991).
23. G. Steinle-Neumann, L. Stixrude, and R. E. Cohen, *Phys. Rev. B* **60**, 791 (1999).
24. G. Steinle-Neumann, R. E. Cohen, and L. Stixrude, *J. Phys. Condens. Matter* **16**, S1109 (2004).
25. A. B. Papandrew, M. S. Lucas, R. Stevens, I. Halevy, B. Fultz, M. Y. Hu, P. Chow, R. E. Cohen, and M. Somayazulu, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 087202 (2006).
26. R. Lizárraga, Nordström, O. Eriksson, and J. Wills, *Phys. Rev. B* **78**, 064410 (2008).
27. V. Thakor, J. B. Staunton, J. Poulter, S. Ostanin, B. Ginatempo, and E. Bruno, *Phys. Rev. B* **67**, 180405(R) (2003).
28. I. I. Mazin, D. A. Papaconstantopoulos, and M. J. Mehl, *Phys. Rev. B* **65**, 100511(R) (2002).

29. K. Glazyrin, L. V. Pourovskii, L. Dubrovinsky et al. (Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **110**, 117206 (2013).
30. A. G. Gavriiliuk, A. A. Mironovich, and V. V. Struzhkin, *Rev. Sci. Instrum.* **80**, 043906 (2009).
31. Y. Akahama and H. Kawamura, *J. Appl. Phys.* **100**, 043516 (2006).
32. Y. V. Shvyd'ko, *Phys. Rev. B* **59**, 9132 (1999).
33. R. Rüffer, *C. R. Physique* **9**, 595 (2008).
34. Y. V. Shvyd'ko, *Hyperfine Interactions* **125**, 173 (2000).
35. R. E. Watson and A. J. Freeman, *Phys. Rev.* **123**, 2027 (1961).
36. A. A. Maradudin, P. A. Flinn, and S. L. Ruby, *Phys. Rev.* **126**, 9 (1962).
37. L. R. Walker, G. K. Wertheim, and V. Jaccarino, *Phys. Rev. Lett.* **6**, 98 (1961).
38. J. B. Goodenough, *Phys. Rev.* **120**, 67 (1960).
39. J. B. Goodenough, A. Wold, and R. J. Arnett, *J. Appl. Phys.* **31**, S342 (1960).
40. A. G. Petukhov, I. I. Mazin, L. Chioncel, and A. I. Lichtenstein, *Phys. Rev. B* **67**, 153106 (2003).
41. G. C. Fletcher and R. P. Addis, *J. Phys. F: Met. Phys.* **4**, 1951 (1974).
42. R. E. Cohen and S. Mukherjee, *Phys. Earth Planet. Inter.* **143–144**, 445 (2004).
43. J. Goniakowski and M. Podgórný, *Phys. Rev. B* **44**, 12348 (1991).
44. H. Ohno and M. Mekata, *J. Phys. Soc. Jpn.* **31**, 102 (1971).
45. H. Ohno, *J. Phys. Soc. Jpn.* **31**, 92 (1971).
46. G. Steinle-Neumann, L. Stixrude, and R. E. Cohen, *PNAS* **101**, 33 (2004).
47. L. Stixrude, R. E. Cohen, and D. J. Singh, *Phys. Rev. B* **50**, 6442 (1994).
48. I. Troyan, A. Gavriiliuk, R. Rüffer, A. Chumakov, A. Mironovich, I. Lyubutin, D. Perekalin, A. P. Drozdov, and M. I. Erements, *Science* **351**, 1303 (2016).

Adsorption of Na monolayer on graphene covered Pt(111) substrate¹⁾

A. A. Gogina⁺²⁾, A. V. Tarasov⁺, A. V. Eryzhenkov⁺, A. G. Rybkin⁺, A. M. Shikin⁺, M. Filianina^{*},
I. I. Klimovskikh^{+×}

⁺St. Petersburg State University, 198504 St. Petersburg, Russia

^{*}Department of Physics, AlbaNova University Center, Stockholm University, S-106 91 Stockholm, Sweden

[×]Center for Advanced Mesoscience and Nanotechnology,
Moscow Institute of Physics and Technology, 141700 Dolgoprudny, Russia

Submitted 10 November 2022
Resubmitted 21 November 2022
Accepted 24 November 2022

DOI: 10.31857/S123456782302009X, EDN: oesewc

Currently graphene continues to attract significant research interest due to its great potential for practical application in electronics and spintronics [1–4] due to the linear dispersion of electronic π states near the \bar{K} -point of the Brillouin zone (BZ), the so-called Dirac cone [5, 6]. This feature is responsible for a number of unique phenomena, for example, non-dissipative electronic transport [5]. Furthermore, modification of graphene electronic properties via contact with atoms of different kind allows for designing a number of functional post-silicon electronic devices. Specifically, 2D metallic layer formation over graphene is a promising approach to improving the electronic properties of graphene-based systems.

Here we study the electronic structure of “sandwich” system Na/graphene/Pt(111) experimentally by means of angle-resolved photoemission spectroscopy and theoretically via *ab initio* calculations. As we expected, adsorption of the sodium layer leads to a charge transfer from Na both to graphene atoms and to atoms of the first Pt layer which causes a *n*-doping graphene. Since the prime problem of the *p*-doped graphene on Pt has been solved it is possible to experimentally observe the graphene gap-like feature, that is most probably related to hybridization with Pt states, required for spin-dependent effects. On the other hand, experimental data show the appearance of new additional Dirac cone-like state in the band structure of the system related with sodium monolayer formation. The ARPES band maps of the Na/Gr/Pt(111) system after Na adsorption in the direction orthogonal to $\bar{\Gamma}\bar{K}$ are shown

in Fig. 1a, where Pt 5*d* states and the graphene Dirac cone can be observed. In Figure 1a the lower part of the Dirac cone is seen, but at higher binding energies, the strong hybridization with Pt states results in a complicated picture. One can resolve π^* state dispersing from the Fermi level to ~ 0.9 eV; note the absence of the visible intersection of the upper and the lower parts of the cone, so there may be a Dirac gap in the range 0.9–1.6 eV. Two new branches with less intensity appear inside the region enclosed by the π^* branches just below the Fermi level, see Fig. 1a, b (new branches are marked with green dashed lines). Two weak peaks related to graphene Dirac cone (2) and new Na-related (1) branches can be seen in the energy distribution curves (EDC) spectrum in Fig. 1c taken along the momentum cut indicated in Fig. 1b by the dashed line. To explain this experimental feature of the Na/Gr/Pt(111) electronic structure, we show the calculation results in Fig. 1d overlaid onto the dispersion map of this system after taking second derivative of intensity with respect to energy. Here red markers correspond to unfolded graphene states and green markers correspond to folded sodium states which resemble the Kanji symbol 𑖇.

Careful theoretical analysis demonstrate that the Na/Gr/Pt system is characterized by the strong coupling between Na and spin-polarized Pt 5*d* states. Such a graphene-mediated interaction results in formation of partially spin-polarized Dirac-like state that consists of Na bands, folded into the 2 supercell, which can also participate in electronic transport. The emergence of such extremely rare superstructure effect in Na/Gr/Pt bands is explained exactly by the graphene supporting role which provides formation of the Na monolayer.

We present a combined study of the effects of Na adsorption on the electronic properties of Gr/Pt(111) by

¹⁾Supplementary materials are available for this article at DOI: 10.1134/S0021364022602706 and are accessible for authorized users.

²⁾e-mail: alevtina_gogina@mail.ru

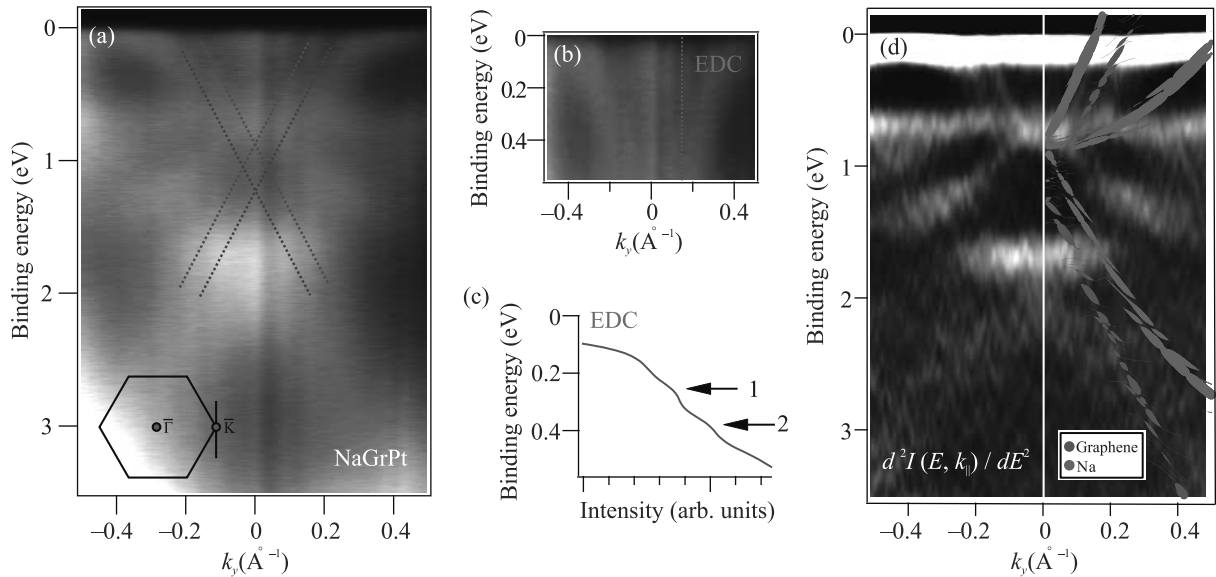


Fig. 1. (Color online) (a) – Experimental ARPES dispersion maps of Gr/Pt(111) electronic states after Na deposition (2.6 ML). The red dashed lines are a schematic representation of the graphene Dirac cone and the green dashed lines are that of sodium states. Panel (b) presents the expanded region of the dispersion map from (a). Panel (c) shows the energy distribution curves (EDC) for the k_y momentum value along the cut indicated in (b). In panel (c) two peaks with numbers (1) and (2) indicate states related to graphene Dirac cone and new Na-related branches, respectively. Panel (d) shows the dispersion map from (a) after taking second derivative of intensity with respect to energy with superimposed unfolded carbon (red) and Kanji symbol-like (2×2) folded sodium (green) calculated bands for *short bridge* configuration. All dispersion maps are taken along the direction orthogonal to $\bar{\Gamma}\bar{K}$

ARPES and *ab initio* DFT (density functional theory) calculations. The results obtained allows us to state that adsorbing sodium atoms forms the dense short bridge configuration on top of the Gr/Pt(111) system due to the supporting interaction with the substrate. Adsorption of the dense sodium layer leads to a charge transfer from Na both to graphene atoms and atoms of the first Pt layer which causes a shift of the graphene Dirac point to the binding energy of 1.2 eV, rendering *n*-doped graphene. Hence, this allowed us to experimentally observe the gap-like feature in the Dirac point.

The system with adsorbed Na can be characterized by the strong coupling between Na and spin-polarized Pt 5*d* states. The ARPES map demonstrates the emergence of the Kanji symbol-like states with two additional graphene-like branches just below the Fermi level. This feature is explained within the DFT framework by the formation of the Na layer 2×2 superstructure that leads to emergence of the partially spin-polarized Na folded bands in the electronic structure of Na/Gr/Pt(111). This superstructure effect takes place thanks to the graphene supporting role, which via the charge transfer with the platinum substrate, facilitates the *short bridge* structure for the sodium layer.

The work was supported by Saint-Petersburg State University (project ID # 90383050), Russian Science

Foundation (grant # 18-12-00062). I. I. Klimovskikh acknowledge support from the strategic academic leadership program “Priority 2030” (Agreement 075-02-2021-1316, 30.09.2021).

This is an excerpt of the article “Adsorption of Na monolayer on graphene covered Pt(111) substrate”. Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364022602706

1. A. A. Rybkina, A. G. Rybkin, I. I. Klimovskikh, P. N. Skirdkov, K. A. Zvezdin, A. K. Zvezdin, and A. M. Shikin, *Nanotechnology* **31**, 165201 (2020).
2. A. M. Shikin, A. A. Rybkina, A. G. Rybkin, I. I. Klimovskikh, P. N. Skirdkov, K. A. Zvezdin, and A. K. Zvezdin, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 042407 (2014).
3. A. G. Rybkin, A. A. Rybkina, M. M. Otrokov, O. Yu. Vilkov, I. I. Klimovskikh, A. E. Petukhov, M. V. Filianina, V. Yu. Voroshnin, I. P. Rusinov, A. Ernst, A. Arnau, E. V. Chulkov, and A. M. Shikin, *Nano Lett.* **18**, 1564 (2018).
4. A. Manchon, H. C. Koo, J. Nitta, S. Frolov, and R. Duine, *Nat. Mater* **14**, 871 (2015).
5. K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, and A. A. Firsov, *Science* **306**, 666 (2004).
6. K. S. Novoselov, D. Jiang, F. Schedin, T. J. Booth, V. V. Khotkevich, S. V. Morozov, and A. K. Geim, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **102**, 10451 (2005).

Особенности электронного спектра при переходе из фазы аксионного изолятора в фазу квантового аномального эффекта Холла в тонкой пленке собственного антиферромагнитного топологического изолятора

В. Н. Меньшов^{+*×1)}, Е. В. Чулков^{+*°}

⁺Томский государственный университет, 634050 Томск, Россия

^{*}Санкт-Петербургский государственный университет, 199034 С.-Петербург, Россия

[×]Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

[°]Departamento de Polimeros y Materiales Avanzados: Física, Química y Tecnología, Facultad de Ciencias Químicas, Universidad del País Vasco UPV/EHU, 20080 San Sebastián/Donostia, Basque Country, Spain

Поступила в редакцию 11 ноября 2022 г.

После переработки 24 ноября 2022 г.

Принята к публикации 25 ноября 2022 г.

В данной работе мы исследуем топологические состояния электронов в тонкой пленке собственного антиферромагнитного топологического изолятора, акцентируя внимание на их взаимосвязи с магнитной текстурой. Мы рассматриваем модель пленки с четным числом семислойных блоков, которая подвержена переходу из фазы аксионного изолятора в фазу квантованной холловской проводимости во внешнем магнитном поле. В континуальном подходе мы моделируем эффективный двумерный гамильтониан тонкой пленки топологического изолятора с неколлинеарной намагниченностью, на основе которого получаем энергетический спектр и кривизну Берри. Анализ топологических индексов позволяет построить топологическую фазовую диаграмму в зависимости от параметров системы и степени неколлинеарности. Для топологически различных областей диаграммы мы описываем краевые электронные состояния на боковой грани пленки. Кроме того, мы исследуем спектр одномерных состояний на доменной стенке, разделяющей домены с противоположным углом неколлинеарности. Мы также обсуждаем полученные результаты и экспериментальную ситуацию в тонких пленках соединения MnBi_2Te_4 .

DOI: 10.31857/S1234567823020106, EDN: oetpsg

Введение. В последние годы исследование взаимосвязи между топологической электронной зонной структурой и магнитным порядком стало одним из приоритетных в квантовой физике твердого тела [1]. Такая взаимосвязь является основой для ряда уникальных явлений, например, квантового аномального эффекта Холла (КАЭХ) [2–5] и состояния аксионного изолятора (АИ) [6–8]. Недавнее открытие ван-дер-вальсовского соединения MnBi_2Te_4 , как трехмерного топологического изолятора (ТИ), обладающего одновременно собственным антиферромагнитным (АФМ) порядком А-типа, и его производных значительно продвинуло исследования квантованной спин-зависимой проводимости [9–18]. Действительно, тонкие пленки MnBi_2Te_4 проявляют себя как весьма привлекательная платформа для реализации различных магнитных и топологических состояний

благодаря богатой фазовой диаграмме в параметрическом пространстве “число структурных семислойных блоков (СБ) – внешнее магнитное поле – температура” [19]. В тонких пленках MnBi_2Te_4 , содержащих нечетное число СБ Te-Bi-Te-Mn-Bi-Te , наблюдается КАЭХ при температуре $T = 1.4\text{ K}$ [11]. Поместив такие пленки во внешнее магнитное поле умеренной величины (не создающее уровней Ландау), нормальное к базисной плоскости, удается надежно поддержать плато поперечной проводимости $\cong e^2/h$ до $T = 6.5\text{ K}$ [11]. С другой стороны, образцы MnBi_2Te_4 с четным числом СБ в основном состоянии являются АИ, но с ростом внешнего поля они показывают переход из АИ в режим КАЭХ [12]. Вместе с тем, в пленках MnBi_2Te_4 во внешнем поле наблюдается последовательность метамагнитных переходов между состояниями с различными коллинеарными и неколлинеарными текстурами намагниченности, которые коррелируют с изменением спектральной

¹⁾e-mail: vnmenshov@mail.ru

ных и транспортных характеристик [11, 20–23]. Комплексные экспериментальные исследования установили соответствие между зонной структурой, магнитной текстурой и топологической фазой в пленках MnBi_2Te_4 толщиной от 4 до 8 СБ [24]. Было показано, что в процессе перемагничивания образцов в области неколлинеарной фазы происходит топологический переход, сопровождающийся инвертированием энергетических зон [24]. Следует заметить, что только недавно экспериментаторы проявили непосредственный интерес к теме краевых состояний электронов, реализующих квантованную проводимость в пленках MnBi_2Te_4 [25].

Введение АФМ порядка нарушает симметрию по отношению к обращению времени Θ и удваивает элементарную ячейку кристалла, но сохраняет комбинированную симметрию $S = \Theta T_{1/2}$, где $T_{1/2}$ – оператор трансляции на вектор кристаллической решетки без учета магнитного порядка. Монг и др. показали, что наличие симметрии S позволяет топологически классифицировать систему в духе Z_2 инварианта [26]. Нарушение комбинированной симметрии S вблизи поверхности АФМ ТИ с одноосной анизотропией ведет к возникновению энергетической щели в дираковском спектре поверхностных топологических состояний [26, 27], что подтверждают спектроскопические измерения на поверхности (0001) MnBi_2Te_4 [9]. Нарушение симметрии вблизи поверхности (0001) планарных АФМ ТИ, предсказанных в [28] для материалов типа $\text{V}(\text{Bi},\text{Sb})_2(\text{Se},\text{Te})_4$, должно приводить к смещению дираковского конуса поверхностных состояний из точки Γ зоны Бриллюэна. Наложение внешнего магнитного поля может индуцировать более сложные конфигурации магнитного порядка в АФМ ТИ [29]. Спектральные свойства поверхностных состояний в собственных АФМ ТИ с неколлинеарной текстурой намагниченности исследовались теоретически в недавних работах [30, 31].

На сегодняшний день теоретическое исследование изменения топологических свойств тонкой пленки собственного АФМ ТИ при трансформации АФМ порядка в ферромагнитный (ФМ) через метамагнитный переход отсутствует. В настоящей работе в континуальной модели для пленки АФМ ТИ с четным числом СБ аналитически изучается поведение электронных состояний, когда реализуется неколлинеарная текстура намагниченности. Мы выводим эффективный двумерный гамильтониан модели. На его основе описано изменение кривизны Берри и энергетического спектра двумерных электронных состояний системы при вариации угла наклона намагниченности АФМ подрешеток по отношению к легкой оси и

получена фазовая диаграмма системы в параметрической плоскости “угол наклона как мера неколлинеарности – толщина пленки“, которая содержит области с различными топологическими индексами. Мы анализируем краевые электронные состояния, возникающие на боковой грани пленки. Подразумевая, что в реальной пленке АФМ ТИ при метамагнитном переходе возможно формирование магнитной доменной структуры в плоскости пленки, показано существование особых одномерных состояний, индуцированных доменными стенками (ДС).

Модель для тонкой пленки собственного АФМ ТИ. Тройные соединения семейства MnBi_2Te_4 имеют тетрадимитную кристаллическую структуру, построенную из СБ, между которыми действуют слабые ван-дер-ваальсовские силы. СБ можно представить как последовательность ковалентно связанных атомных слоев $\text{Te1-Bi1-Te2-Mn-Te3-Bi2-Te4}$ вдоль направления роста кристалла \mathbf{e}_z . Топологическая природа этих соединений определяется четырьмя низкоэнергетическими состояниями вблизи уровня Ферми: связывающими состояниями, сформированными из p_z -орбиталей атомов в слоях Bi1 и Bi2 , $|\text{Bi}, \sigma\rangle$, и антисвязывающими состояниями, сформированными из p_z -орбиталей атомов в слоях Te1 и Te4 , $|\text{Te}, \sigma\rangle$, где индекс $\sigma = \uparrow, \downarrow$ обозначает проекцию спина на ось квантования \mathbf{e}_z . Матричный элемент оператора скорости, A , перемешивает состояния с противоположной четностью и проекцией спина, инвертируя энергетические уровни состояний $|\text{Bi}, \sigma\rangle$ и $|\text{Te}, \sigma\rangle$ благодаря сильной спин-орбитальной связи. Длинноволновое поведение электронов в объеме материала может быть описано в рамках $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ подхода. Соответствующий 4×4 гамильтониан в базисе $u_\Gamma = \{|\text{Bi}, \uparrow\rangle, |\text{Te}, \uparrow\rangle, |\text{Bi}, \downarrow\rangle, |\text{Te}, \downarrow\rangle\}$ имеет в окрестности Γ точки зоны Бриллюэна вид [32]:

$$H_t(\mathbf{k}) = (\Xi - Bk^2)\tau_z \otimes \sigma_0 + A\tau_x \otimes (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{k}), \quad (1)$$

где удержаны члены до второго порядка по волновому вектору $\mathbf{k} = (k_x, k_y, k_z)$, σ_α и τ_β ($\alpha, \beta = 0, x, y, z$) суть матрицы Паули в спиновом и орбитальном пространстве, соответственно. Условие $\Xi B > 0$ определяет инвертированный порядок зон вблизи $\mathbf{k} = 0$, отражающий нетривиальную топологию блоховских состояний в импульсном пространстве. Чтобы не усложнять в дальнейшем анализ, рассматриваем изотропную по \mathbf{k} версию гамильтониана, сохраняющую симметрию частица-дырка.

Суперобменная Te2-Mn-Te3 -связь между магнитными моментами на соседних ионах $3d$ -металла, в которой участвуют ионы халькогена из внутренних слоев СБ, ведет к формированию ФМ поряд-

ка внутри каждого СБ. Между соседними СБ доминирует АФМ связь [33]. Таким образом, в основном состоянии слоистого АФМ ТИ обменный потенциал регулярно осциллирует вдоль направления \mathbf{e}_z , ортогонального базисной плоскости. Установлено, что в материале MnBi_2Te_4 с одноосной анизотропией ниже температуры Нееля $T_N \approx 24$ К спонтанно возникает дальний АФМ порядок с намагниченностью $\mathbf{m} = (0, 0, m_z)$, период которой равен удвоенной толщине СБ [9]. Учитывая только главную пространственную гармонику, можно записать распределение намагниченности как $m_z(z) \sim \sin(\pi z/c)$. В планарных АФМ ТИ [28] магнитные моменты на $3d$ -ионах лежат в базисной плоскости, формируя намагниченность $\mathbf{m} = (m_x, m_y, 0)$, где $m_{x,y}(z) \sim \sin(\pi z/c)$. Энергия магнито-кристаллической анизотропии в известных АФМ ТИ столь невелика, что внешнее магнитное поле умеренной величины способно переориентировать намагниченность \mathbf{m} относительно легкой оси, провоцируя подчас формирование сложных неколлинеарных текстур [29]. Чтобы иметь возможность рассматривать различные конфигурации магнитного порядка, мы феноменологически добавляем к гамильтониану (1) обменный потенциал H_{ex} , который имеет в базисе u_{Γ} следующий вид:

$$H_{ex}(\mathbf{r}) = \begin{pmatrix} J_1 m_z & 0 & J_3 m_- & 0 \\ 0 & J_2 m_z & 0 & J_4 m_- \\ J_3 m_+ & 0 & -J_1 m_z & 0 \\ 0 & J_4 m_+ & 0 & -J_2 m_z \end{pmatrix}, \quad (2)$$

где $m_{\pm}(\mathbf{r}) = m_x(\mathbf{r}) \pm i m_y(\mathbf{r})$ и $m_z(\mathbf{r})$ – продольная и поперечная компоненты намагниченности $\mathbf{m} = (m_x, m_y, m_z)$ по отношению к базисной плоскости (x, y) , соответственно, $\mathbf{r} = (x, y, z)$, $J_{1,2,3,4}$ – матричные элементы обменных интегралов.

Мы рассматриваем пленку трехмерного АФМ ТИ, ограниченную вдоль направления \mathbf{e}_z и бесконечную, и однородную в плоскости (x, y) (пока в дальнейшем не будут рассмотрены специальные ситуации). Ее поверхности, расположенные при $z = \pm l$, считаем идеально плоскими. В пределах пленки $|z| < l$ топологические электроны, определенные гамильтонианом (1), помимо обменного поля подвержены действию электростатического поверхностного потенциала (ПП) $U(\mathbf{r})$, локализованного на границах пленки [34–37]. Полный функционал электронной энергии пленки запишем в виде:

$$\Omega = \int d\mathbf{r} \Theta^+(\mathbf{r}) [H_t(-i\nabla) + U(\mathbf{r}) + H_{ex}(\mathbf{r})] h(l - |z|) \Theta(\mathbf{r}), \quad (3)$$

где спинорные огибающие функции $\Theta(\mathbf{r})$ описывают электронные состояния с низкой энергией, $h(z)$ – функция Хевисайда. Мы применяем процедуру теории возмущений на редуцированном базисе [34–36], которая позволяет исходную трехмерную модель пленки АФМ ТИ, представленную функционалом (3), свести к эффективному двумерному гамильтониану $h(\boldsymbol{\kappa})$. В качестве базиса используем четыре низкоэнергетических собственных состояния гамильтониана $H_t(\boldsymbol{\kappa} = 0, k_z \rightarrow -i\partial/\partial z) + U(z)$, $\varphi^\sigma(z)$ и $\chi^\sigma(z)$, с собственными значениями E_φ и E_χ , соответственно. Эти состояния вырождены по спину σ , их спинорные функции $\varphi^\sigma(z)$ и $\chi^\sigma(z)$ имеют различную четность, а энергии сравнительно малы $|E_{\varphi,\chi}| \ll \Xi$. Зависящие от продольного импульса $\boldsymbol{\kappa} = (k_x, k_y)$ поправки к гамильтониану $H_t(0, -i\partial/\partial z)$ и обменный член $H_{ex}(z)$ рассматриваем как возмущение. Результирующий гамильтониан можно записать в аддитивном виде: $h(\boldsymbol{\kappa}, \mathbf{m}) = h_0(\boldsymbol{\kappa}) + h_{ex}(\mathbf{m})$, где $h_0(\boldsymbol{\kappa})$ и $h_{ex}(\mathbf{m})$ – матрицы ранга 4×4 , элементы которых отвечают переходам между базисными состояниями. Предполагаем, что ПП $U(\mathbf{r})$ однородный в плоскости (x, y) , $U(\mathbf{r}) = U(z)$, и не нарушает структурную симметрию пленки, т.е. $U(z) = U(-z)$. Тогда матрица $h_0(\boldsymbol{\kappa})$ принимает блочно-диагональную форму $h_0(\boldsymbol{\kappa}) = \text{diag}\{(\mathbf{f}^\uparrow(\boldsymbol{\kappa}) \cdot \boldsymbol{\sigma}), (\mathbf{f}^\downarrow(\boldsymbol{\kappa}) \cdot \boldsymbol{\sigma})\}$ с вектором $\mathbf{f}^\Sigma(\boldsymbol{\kappa}) = (\mathcal{A}k_y, -\mathcal{A}k_x, \Sigma\Delta(\boldsymbol{\kappa}))$, где подразумевается, что верхнему индексу $\Sigma = \uparrow$ или $\Sigma = \downarrow$ отвечает множитель Σ , принимающий значения $+1$ или -1 , соответственно. Здесь введены обозначения: $\Delta(\boldsymbol{\kappa}) = \Delta_0 - b\kappa^2$, $2\Delta_0 = E_\varphi - E_\chi$, $2b = V_\varphi - V_\chi$, $V_\varphi = V \int_{|z|<l} dz (\varphi^\sigma)^\dagger \sigma_z \varphi^\sigma$, $V_\chi = V \int_{|z|<l} dz (\chi^\sigma)^\dagger \sigma_z \chi^\sigma$. А $\int_{|z|<l} dz (\varphi^\sigma)^\dagger \sigma_x \chi^{-\sigma} = i\sigma\mathcal{A}$, \mathcal{A} – действительная величина, $k_{\pm} = k_x \pm ik_y$ [34–36]. Мы моделируем матрицу ПП в виде $U = U \text{diag}\{1, -1, 1, -1\}$, сохраняя электрон-дырочную симметрию системы. Соответственно, имеем: $\Delta_0 = E_\varphi = -E_\chi$ и $b = V_\varphi = -V_\chi$.

Матричная структура обменного члена $h_{ex}(\mathbf{m})$ связана с конкретным распределением намагниченности $\mathbf{m}(z)$ в пленке и зависит от числа СБ. Мы концентрируемся на случае пленки АФМ ТИ с четным числом СБ. В основном состоянии электроны на противоположных поверхностях пленки испытывают противоположные по знаку обменные поля, то есть система находится в фазе АИ [12]. Полагаем, что магнитный порядок, присущий объемному АФМ ТИ, сохраняется в тонкой пленке материала, несмотря на наличие границ. Такое допуще-

ние можно подкрепить экспериментальными фактами для MnBi_2Te_4 [29, 38]. Поэтому опишем распределение намагниченности нечетной относительно середины пленки $z = 0$ периодической с периодом $2c$ функцией $m_z(z) = m_0 f(z)$, определенной при $|z| < l$, где $f(z) = -f(-z)$, $m_{\pm} = 0$. Величина m_0 ассоциируется с амплитудой магнитных моментов в СБ. Кроме того, чтобы избежать громоздких вычислений, мы положим $J_1 = J_2$ и $J_3 = -J_4$ и ограничимся первым неисчезающим порядком по m_0 . Таким образом, находим электронный спектр пленки АФМ ТИ в состоянии АИ: $E_{\text{AI}}(\boldsymbol{\kappa}) = \pm \sqrt{\Delta^2(\boldsymbol{\kappa}) + \mathcal{A}^2 \kappa^2 + M_0^2 m_0^2}$, где $M_0 = J_1 \int_{|z|<l} dz f(z) (\varphi^\sigma)^+ \chi^\sigma$.

Чтобы получить в пленке MnBi_2Te_4 с четным числом СБ режим КАЭХ, ее помещают во внешнее магнитное поле $\mathbf{H} = \mathbf{e}_z H$, направленное перпендикулярно базисной плоскости (x, y) . В сравнительно слабом поле ($H < H_1$) коллинеарная АФМ текстура, характерная для основного состояния при $H = 0$, почти не меняется. Однако дальнейший рост поля ведет к существенной перестройке магнитной текстуры пленки с довольно резким переходом в неколлинеарную фазу при спин-флоп поле $H = H_1$, которое равно $H_1 \approx 1.8\text{--}2.5$ Тл согласно [24]. Наконец, в полях выше $H \approx H_2$ (это поле имеет умеренную величину $H_2 \approx 6\text{--}7$ Тл [24]) в пленке реализуется коллинеарная ФМ фаза. Таким образом, прежде чем намагниченность пленки полностью насыщается, в интервале $H_1 < H < H_2$ наблюдается промежуточная неколлинеарная (“скошенная”) конфигурация, где магнитные моменты в соседних СБ направлены под некоторым углом друг к другу. Такую магнитную текстуру \mathbf{m}_z можно представить следующим образом:

$$\begin{aligned} m_x(z) &= m_1 f(z), \\ m_y(z) &= m_2 f(z), \\ m_z(z) &= m_3 |f(z)|. \end{aligned} \quad (4)$$

Здесь магнитный порядок имеет ФМ компоненту вдоль направления \mathbf{e}_z и АФМ компоненту в плоскости (x, y) . Для удобства рассуждений полагаем, что функция $f(z)$ не меняет знак в пределах отдельного СБ, а также является симметричной относительно середины СБ. С ростом внешнего поля величина m_3 растет, в свою очередь, $m_{1,2}$ падает. При этом амплитуда намагниченности в каждом СБ не меняется, $m_1^2 + m_2^2 + m_3^2 = m_0^2$. Соответственно, в ФМ фазе (при $H > H_2$) имеем $m_3 = m_0$ и $m_1 = m_2 = 0$. Предлагаемая в (4) модельная текстура $\mathbf{m}(z)$ для неколлинеарной фазы неоднократно использовалась для интерпретации экспериментальных данных в [22–24, 39]

и в целом согласуется с равновесной конфигурацией, полученной из микромагнитных симуляций [22, 40].

В случае неколлинеарной текстуры намагниченности (4) матрица $\mathbf{h}_{ex}(\mathbf{m})$ принимает форму: $\mathbf{h}_{ex}(\mathbf{m}) = \text{diag}\{(\mathbf{g}(\mathbf{m}) \cdot \boldsymbol{\sigma}), (\mathbf{g}(\mathbf{m}) \cdot \boldsymbol{\sigma})\}$ с вектором $\mathbf{g}(\mathbf{m}) = (M_{\parallel} m_1, M_{\parallel} m_2, M_{\perp} m_3)$, где

$$\begin{aligned} M_{\perp} &= J_1 \int_{|z|<l} dz |f(z)| (\varphi^\sigma)^+ \varphi^\sigma = \\ &= J_1 \int_{|z|<l} dz |f(z)| (\chi^\sigma)^+ \chi^\sigma \end{aligned}$$

и

$$\begin{aligned} M_{\parallel} &= J_3 \int_{|z|<l} dz f(z) (\varphi^\sigma)^+ \sigma_z \varphi^\sigma = \\ &= J_3 \int_{|z|<l} dz f(z) (\chi^\sigma)^+ \sigma_z \chi^\sigma. \end{aligned}$$

Таким образом, полный эффективный гамильтониан пленки распадается на два независимых блока ранга 2×2 : $\mathbf{h}(\boldsymbol{\kappa}, \mathbf{m}) = \text{diag}\{(\mathbf{d}^{\uparrow}(\boldsymbol{\kappa}, \mathbf{m}) \cdot \boldsymbol{\sigma}), (\mathbf{d}^{\downarrow}(\boldsymbol{\kappa}, \mathbf{m}) \cdot \boldsymbol{\sigma})\}$, где $\mathbf{d}^{\Sigma}(\boldsymbol{\kappa}, \mathbf{m}) = \mathbf{f}^{\Sigma}(\boldsymbol{\kappa}) + \mathbf{g}(\mathbf{m})$. Для лучшего восприятия запишем блоки в явном виде:

$$\begin{aligned} &(\mathbf{d}^{\Sigma}(\boldsymbol{\kappa}, \mathbf{m}) \cdot \boldsymbol{\sigma}) = \\ &= \begin{pmatrix} \Sigma \Delta(\boldsymbol{\kappa}) + M_{\perp} m_3 & i A \kappa_{-} + M_{\parallel} m_{-} \\ -i A \kappa_{+} + M_{\parallel} m_{+} & -\Sigma \Delta(\boldsymbol{\kappa}) - M_{\perp} m_3 \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (5)$$

где $m_{\pm} = m_1 \pm i m_2$. Отметим, что обменное поле текстуры (4) модифицирует не только диагональные члены в блоке (5) (как в случае ФМ ТИ [1, 3–5]), но также недиагональные. При этом полный гамильтониан $\mathbf{h}(\boldsymbol{\kappa}, \mathbf{m})$ сохраняет блочно-диагональную форму. Подчеркнем, что обменные энергии $M_0 m_0$, $M_{\parallel} m_{1,2}$, $M_{\perp} m_3$ и гибридизационная энергия $\Delta(\boldsymbol{\kappa}) = \Delta_0 - b \kappa^2$, формирующие гамильтониан $\mathbf{h}(\boldsymbol{\kappa}, \mathbf{m})$, зависят не только от объемных параметров материала, Ξ , V и A , но также от толщины пленки $2l$ и силы ПП U [33–36].

Кривизна Берри и топологический фазовый переход. В неколлинеарной фазе с магнитной текстурой (4) блоки гамильтониана $\mathbf{h}(\boldsymbol{\kappa}, \mathbf{m})$, обладающие противоположными псевдо-спиновыми степенями свободы $\Sigma = \uparrow / \downarrow$ [41], неэквивалентны друг другу из-за потери симметрии по отношению обращения времени. Это означает возможность реализации КАЭХ [3–5]. В рамках топологической зонной теории эффекты квантованной проводимости связаны с концепцией кривизны Берри блоховской волновой функции [42]. Чтобы описать топологические

фазовые переходы в пленке АФМ ТИ под воздействием внешнего поля $\mathbf{H} = \mathbf{e}_z H$, исследуем поведение кривизны Берри в импульсном пространстве при вариации текстуры намагниченности (4). Определим кривизну Берри $\Omega^\Sigma(\boldsymbol{\kappa})$ через единичный вектор $\mathbf{D}^\Sigma = \mathbf{d}^\Sigma/|\mathbf{d}^\Sigma|$ как $\Omega^\Sigma(\boldsymbol{\kappa}) = \frac{\mathbf{D}^\Sigma}{2} \cdot \left(\frac{\partial \mathbf{D}^\Sigma}{\partial k_x} \times \frac{\partial \mathbf{D}^\Sigma}{\partial k_y} \right)$ [43]. Непосредственные вычисления приводят к выражению

$$\Omega^\Sigma(\boldsymbol{\kappa}) = \Sigma \frac{\mathcal{A}^2(\Delta^\Sigma + b\kappa^2) + 2\mathcal{A}b(k_y M_\parallel m_1 - k_x M_\parallel m_2)}{2|\mathbf{d}^\Sigma|^3}. \quad (6)$$

Норма $|\mathbf{d}^\Sigma(k_x, k_y)|$ определяет четыре ветви двумерного спектра пленки АФМ ТИ

$$E_\pm^\Sigma(\boldsymbol{\kappa}) = \pm |\mathbf{d}^\Sigma(k_x, k_y)| = \quad (7)$$

$$= \pm \sqrt{(\Delta^\Sigma - b\kappa^2)^2 + (\mathcal{A}k_y + M_\parallel m_1)^2 + (\mathcal{A}k_x - M_\parallel m_2)^2},$$

где $\Delta^\Sigma = \Delta_0 + \Sigma M_\perp m_3$. В отсутствие продольной компоненты намагниченности, $m_1 = m_2 = 0$ выражения (6) и (7) принимают вид, характерный для пленки ФМ ТИ [3–5]. Когда формально отсутствует поперечная компонента, $m_3 = 0$, спектр (7) является бесщелевым благодаря зеркальной симметрии относительно плоскости, перпендикулярной обменному полю $\sim (\mathbf{e}_x m_1 + \mathbf{e}_y m_2) M_\parallel$, которое сдвигает точку Дирака из середины зоны Бриллюэна.

Полагая без потери общности $m_2 = 0$, трактуем $m_1/m_0 = \sqrt{1 - (m_3/m_0)^2} = \sin \alpha$ ($0 \leq \alpha < \pi/2$) как варьируемый параметр, отражающий степень неколлинеарности магнитной текстуры, в которой моменты соседних СБ направлены под углом 2α друг к другу. Как видно из (7), энергетическая щель размером $2|\Delta^\Sigma - b\kappa_0^2|$ располагается в стороне от $\bar{\Gamma}$ точки при $\boldsymbol{\kappa} = \boldsymbol{\kappa}_0 = (0, -M_\parallel m_1/\mathcal{A})$. Таким образом, когда выполняется условие $bM_\parallel^2 m_1^2 = \mathcal{A}^2 \Delta^\Sigma$ (для определенности считаем $b > 0$ и $M_\perp > 0$), спектральные ветви $E_\pm^\Sigma(\boldsymbol{\kappa})$ (7) инвертируются, и система проходит через бесщелевое состояние при критическом угле α^Σ . Этот переход между изолирующими фазами сопровождается резкой трансформацией распределения $\Omega^\Sigma(\boldsymbol{\kappa})$ в импульсном пространстве. Если уровень Ферми ε_F находится внутри щели, $|\varepsilon_F| < |\Delta^\Sigma - b\kappa_0^2|$, поток кривизны Берри (5) через двумерную зону Бриллюэна квантуется:

$$\frac{1}{2\pi} \int d\boldsymbol{\kappa} \Omega^\Sigma(\boldsymbol{\kappa}) = \Sigma h(\mathcal{A}^2 \Delta^\Sigma - bM_\parallel^2 m_1^2) = \Sigma C^\Sigma. \quad (8)$$

Таким образом, вариация соотношения между поперечной и продольной компонентами обменной энергии ($\sim M_\perp m_0$ и $\sim M_\parallel m_0$) или энергии гибридизации ($\sim \Delta_0$) ведет к резкому переходу при $\alpha = \alpha^\Sigma$

из тривиальной фазы с числом Черна $C^\Sigma = 0$ в топологическую фазу с $C^\Sigma = 1$ или, наоборот, путем зонной инверсии в блоке \mathbf{d}^Σ . Критерий реализации режима КАЭХ [3–5], когда один из блоков пребывает в топологической фазе, а другой – в тривиальной фазе, можно выразить через угол α с помощью неравенства

$$M_\perp m_0 \cos \alpha > |\Delta_0 - bM_\parallel^2 m_0^2 \sin^2 \alpha / \mathcal{A}^2|. \quad (9)$$

В случае $\alpha = 0$ условие (9) переходит в известную формулу для КАЭХ в модели тонкой пленки ФМ ТИ, $M_\perp m_0 > |\Delta_0|$, отражающую конкуренцию обменной связи топологических электронов с намагниченностью, с одной стороны, и гибридизации между топологическими состояниями на противоположных поверхностях пленки, с другой, [3–5]. В случае неколлинеарной магнитной текстуры возникает дополнительный фактор $\alpha \neq 0$. Рисунок 1 представ-

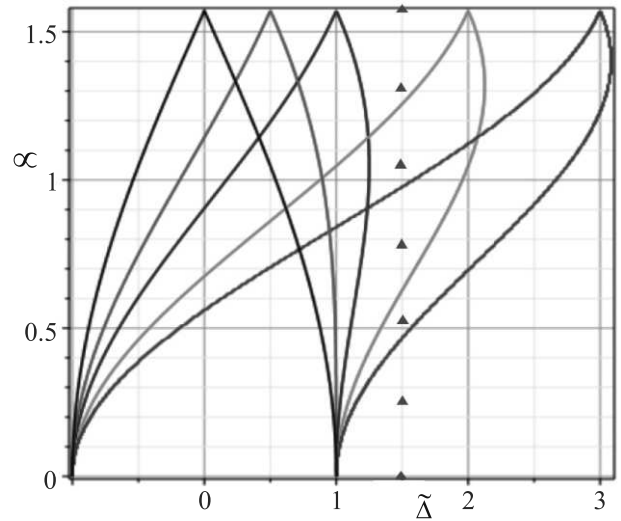


Рис. 1. (Цветной онлайн) Фазовая диаграмма пленки АФМ ТИ в зависимости от параметров модели. Вдоль вертикальной оси отложен угол неколлинеарности α , вдоль горизонтальной – безразмерная энергия гибридизации $\tilde{\Delta} = \frac{\Delta_0}{M_\perp m_0}$. Кривые линии ограничивают область КАЭХ. Справа от области КАЭХ располагается область КСЭХ, слева – область тривиального изолятора. Безразмерный параметр $\gamma = \frac{M_\parallel^2}{M_\perp^2} \frac{bM_\perp m_0}{\mathcal{A}^2}$ принимает значения: 0 (черная кривая), 0,5 (красная), 1 (синяя), 2 (зеленая), 3 (коричневая)

ляет эволюцию топологически различных изолирующих фаз в пленке АФМ ТИ посредством фазовой диаграммы в координатах $(\Delta_0/M_\perp m_0, \alpha)$ при фиксированном параметре $\gamma = \tilde{m}^2/\Pi$, где $\tilde{m} = M_\parallel/M_\perp$, $\Pi = \mathcal{A}^2/bM_\perp m_0$. В экспериментальной ситуации угол α можно изменять, меняя величину поля H , а энер-

гия Δ_0 связана с толщиной пленки $2l$ [35], в то время как значения обменных энергий $M_{\perp}m_0$ и $M_{\parallel}m_0$ определяются материалом и поверхностью образца. Как видно из рис. 1, КАЭХ может реализоваться не только строго в ФМ фазе, но также в неколлинеарной фазе, хотя область существования эффекта заметно сокращается при увеличении угла α . Интересно, что с ростом параметра η область, занимаемая КАЭХ на параметрической плоскости, смещается в целом в сторону более сильной гибридизации Δ_0 . При этом, когда $\eta > 1/2$ и $\Delta_0 > M_{\perp}m_0$, режим КАЭХ существует только в неколлинеарной фазе в интервале $0 < \alpha_1 < \alpha < \alpha_2 < \pi/2$. КАЭХ может возникать путем квантового перехода либо из тривиального режима с $C^{\uparrow} = C^{\downarrow} = 0$, либо из режима квантового спинового эффекта Холла (КСЭХ) с $|C^{\uparrow}| = |C^{\downarrow}| = 1$.

Краевые электронные состояния. В континуальной модели топологический инвариант C^{Σ} формально определен как интеграл по всему пространству импульсов (8) в предположении, что система является неограниченной и однородной в плоскости (x, y) . Однако в реальных транспортных измерениях холловский отклик формируется через квазиодномерные проводящие каналы, образованные краевыми электронными состояниями, локализованными на боковых гранях вдоль периметра образца конечных размеров [3–5, 35, 36]. Чтобы исследовать краевые состояния в случае АФМ ТИ, рассмотрим модель ограниченной пленки, занимающей полуплоскость $(x > 0, y)$. Спинорная огибающая функция $\eta^{\Sigma}(x, k_y)$ искомого состояния удовлетворяет уравнению $(\mathbf{d}^{\Sigma} \cdot \boldsymbol{\sigma})(-i\partial_x, k_y)\eta^{\Sigma}(x, k_y) = \varepsilon^{\Sigma}(k_y)\eta^{\Sigma}(x, k_y)$ и граничным условиям при $x = 0$. Используем свободные граничные условия: $\eta^{\Sigma}(x = 0, k_y) = 0$. Такая задача может быть решена аналитически. Пространственный профиль краевых состояний следует зависимости $\eta^{\Sigma}(x, k_y) \sim \exp[-q_1^{\Sigma}(k_y)x] - \exp[-q_2^{\Sigma}(k_y)x]$ с затуханием внутрь пленки, которое определяется характеристическими импульсами $q_{1,2}^{\Sigma}(k_y) = [\mathcal{A} \pm \sqrt{\mathcal{A}^2 - 4b\Delta^{\Sigma}(k_y)}]/2b$. Спектр состояний описывается линейным соотношением $\varepsilon^{\Sigma}(k_y) = \Sigma(\mathcal{A}k_y + M_{\parallel}m_1)$. Состояние $\eta^{\Sigma}(x, k_y)$, ассоциированное с блоком Σ , существует только в конечном интервале импульсов $|k_y| < k^{\Sigma}$, другими словами, пока линейный ход $\varepsilon^{\Sigma}(k_y)$ не встретится с проекцией двумерных зон $E_{\pm}^{\Sigma}(k_x = 0, k_y)$ (7) в точках $k_y = \pm k^{\Sigma}$. Эффективный гамильтониан краевых состояний можно представить в виде $h_{edge}^{\Sigma}(k_y) = \Sigma(\mathcal{A}k_y + M_{\parallel}m_1)$.

На рисунке 2 изображена картина эволюции спектра одномерного краевого состояния $\varepsilon^{\Sigma}(k_y)$ при вариации угла α на фоне проекции двумерного спектра $E_{\pm}^{\Sigma}(k_x = 0, k_y)$. В области $0 < \alpha < \alpha^{\downarrow}$

($\alpha^{\downarrow} \approx 0.63$ при выбранных параметрах), где $\Delta^{\uparrow} > 0$ и $\Delta^{\downarrow} > 0$, имеет место режим КСЭХ. В этом случае (панели при $\alpha = 0, \pi/12, \pi/6$), на боковой грани присутствует пара краевых киральных состояний, спектральные ветви которых пересекают соответствующие инвертированные запрещенные зоны: одно с псевдо-спином \uparrow имеет положительную групповую скорость и соединяет точки $E_{-}^{\uparrow}(0, -k^{\uparrow})$ и $E_{+}^{\uparrow}(0, k^{\uparrow})$, другое с \downarrow – отрицательную скорость и соединяет точки $E_{-}^{\downarrow}(0, k^{\downarrow})$ и $E_{+}^{\downarrow}(0, -k^{\downarrow})$. Согласно парадигме топологической зонной теории [44], каждое из таких электронных состояний следует классифицировать как топологическое состояние (ТС) в том смысле, что оно не может исчезнуть, пока не изменится знак энергетической щели. В области $\alpha^{\downarrow} < \alpha < \alpha^{\uparrow}$ ($\alpha^{\uparrow} \approx 1.36$), где $\Delta^{\uparrow}\Delta^{\downarrow} < 0$, реализуется режим КАЭХ. В этом режиме (панели при $\alpha = \pi/4, \pi/3$) на боковой грани пленки, помимо ТС, возникает другая линейная ветвь, которая не пересекает щель нижнего блока, а соединяет точки $E_{-}^{\downarrow}(0, k^{\downarrow})$ и $E_{-}^{\downarrow}(0, -k^{\downarrow})$, принадлежащие одной двумерной ветви. Такое краевое состояние естественно классифицировать как топологически тривиальное или ординарное состояние (ОС). Область $\alpha^{\uparrow} < \alpha \leq \pi/2$ принадлежит режиму тривиального изолятора (панели с $\alpha = 5\pi/12, \pi/2$), где $\Delta^{\uparrow} < 0$ и $\Delta^{\downarrow} < 0$. Здесь присутствуют две ветви ОС, одна из которых соединяет точки $E_{-}^{\downarrow}(0, k^{\downarrow})$ и $E_{-}^{\downarrow}(0, -k^{\downarrow})$, другая – точки $E_{+}^{\uparrow}(0, k^{\uparrow})$ и $E_{+}^{\uparrow}(0, -k^{\uparrow})$. При прохождении критического угла $\alpha = \alpha^{\Sigma}$, когда в блоке Σ происходит квантовый переход между топологической и тривиальной фазами, краевое ТС плавно трансформируется в краевое ОС (или наоборот) в контексте спектра $\varepsilon^{\Sigma}(k_y)$ и профиля $\eta^{\Sigma}(x, k_y)$. В этом смысле, краевое ОС также следует считать топологически обусловленным. Отметим, что ОС существует только при условии, что спектральная зависимость $E_{\pm}^{\Sigma}(\boldsymbol{\kappa})$ в тривиальной фазе с $\Delta^{\Sigma} > 0$ имеет вогнутый участок, края которого соединяются прямой $\varepsilon^{\Sigma}(k_y)$. Мы намеренно выделили эту особенность на рис. 2, выбрав определенные значения параметров модели. Заметим, что с удалением от точки α^{Σ} в сторону тривиальной фазы вогнутость функции $E_{\pm}^{\Sigma}(\boldsymbol{\kappa})$, и, следовательно, краевое ОС могут исчезнуть. Заметим, что похожая ситуация с парадоксальным присутствием тривиальных краевых состояний фермионов была обнаружена в [31, 45].

Связанные электронные состояния на магнитных доменных стенках неколлинеарной текстуры. Выше речь шла об однодоменной магнитной конфигурации с пространственно однород-

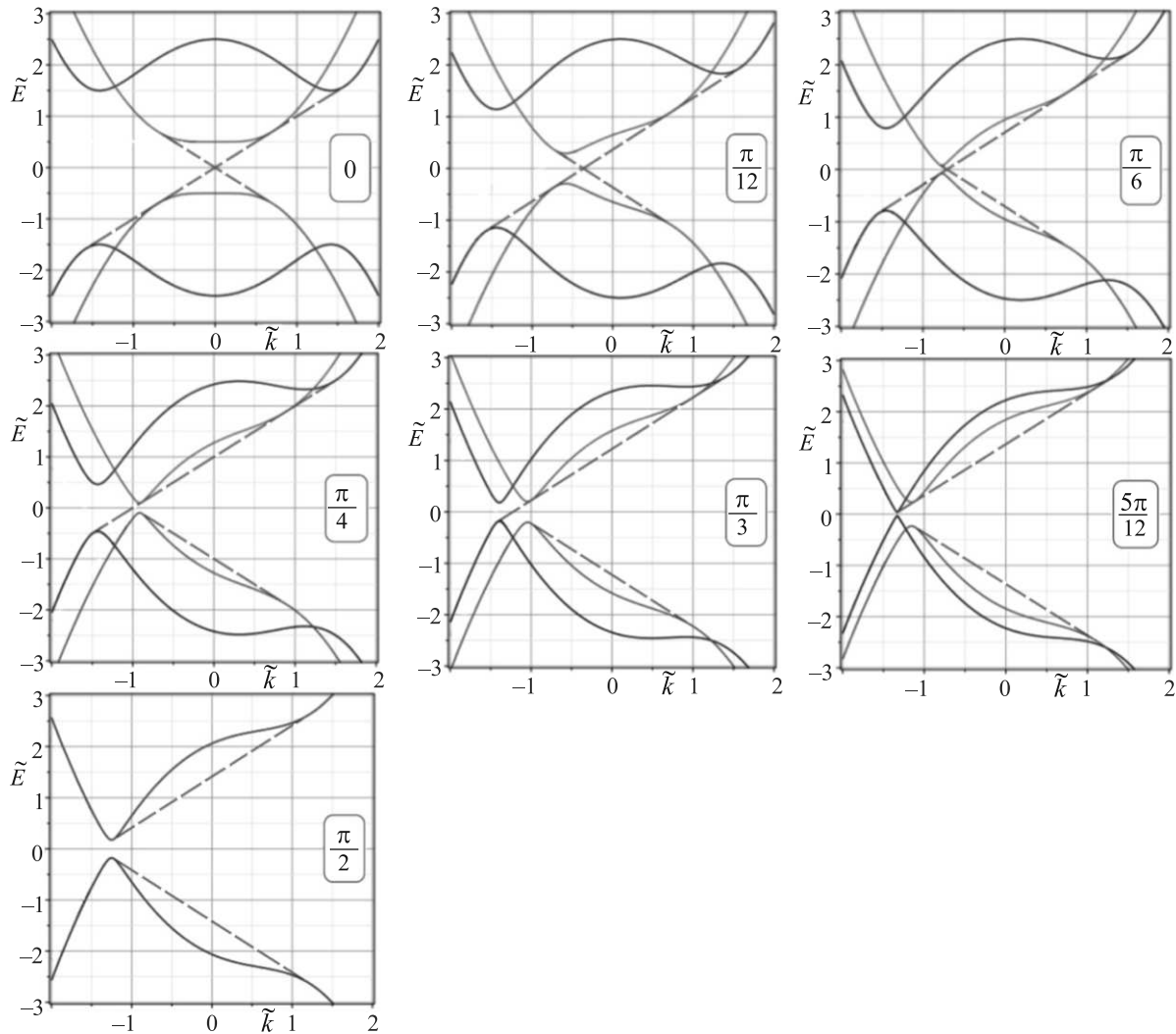


Рис. 2. (Цветной онлайн) Эволюция электронных состояний в тонкой пленке АФМ ТИ при вариации однодоменной неколлинеарной текстуры намагниченности от полностью насыщенной ФМ до планарной АФМ. Угол неколлинеарности принимает значения $\alpha = 0, \frac{\pi}{12}, \frac{\pi}{6}, \frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{3}, \frac{5\pi}{12}, \frac{\pi}{2}$ при определенном выборе параметров: $\Pi = 1, \tilde{\Delta} = \frac{\Delta_0}{M_{\perp} m_0} = 1.5, \tilde{m} = \sqrt{2}$. Набор панелей соответствует тем точкам на фазовой диаграмме системы, что обозначены фиолетовыми треугольниками на рис. 1. Синим и коричневым цветом представлены проекции двумерных состояний для верхнего блока, голубым и зеленым – для нижнего. Красными пунктирными линиями изображены ветви одномерных краевых состояний. Вдоль вертикальной оси отложена безразмерная энергия $\tilde{E} = \frac{(E, \epsilon)}{M_{\perp} m_0}$, вдоль горизонтальной – безразмерный импульс $\tilde{k} = \left(\frac{b}{M_{\perp} m_0}\right)^{1/2} k_y$

ной намагниченностью внутри пленки. Помимо ограниченности реальной пленки в плоскости, потеря трансляционной инвариантности может быть вызвана неоднородностью магнитного порядка, например, разбиением образца на магнитные домены, которые обычно возникают из-за структурных дефектов образца в процессе его перемагничивания. Магнитные доменные стенки в магнитных ТИ могут одновременно являться топологическими доменными стенками, разделяющими в пространстве фазы с различными

топологическими индексами [1, 46–48]. На таких доменных стенках неизбежно должны формироваться топологически защищенные связанные электронные состояния, которые наряду с краевыми состояниями, рассмотренными выше, могут вносить свой вклад в холловский отклик магнитного ТИ [1, 46, 47]. Недавно в рамках сравнительно простой модели [28, 30, 31] был исследован вопрос о связанных состояниях, которые могли бы формироваться на антифазных и неколлинеарных ДС на поверхности ФМ ТИ и АФМ

ТИ при различных ориентациях магнитной анизотропии. Ниже мы изучаем возможность возникновения и спектральные особенности одномерных электронных состояний на неколлинеарных ДС в пленках АФМ ТИ конечной толщины.

Рассмотрим пленку АФМ ТИ с четным числом СБ, магнитная текстура которой разделена на два домена в плоскости (x, y) , что описывается формулой

$$\begin{aligned} m_x(x, z) &= m_1 f(z) \operatorname{sgn}(x), \quad m_y(x, z) = 0, \\ m_z(x, z) &= m_3 |f(z)|. \end{aligned} \quad (10)$$

Это значит, что при пересечении ДС, расположенной вдоль линии $(x = 0, y)$, планарная компонента намагниченности резко меняет знак на противоположный, при этом поперечная компонента не меняется вдоль всей плоскости, как не меняется амплитуда, $m_1^2 + m_3^2 = m_0^2$. Магнитные текстуры правого и левого доменов, сдвинутые относительно друг друга на один СБ, вырождены по энергии. Поэтому такие домены должны возникать с равной вероятностью при метамагнитном переходе в пленках MnBi_2Te_4 . Аппроксимация (10) допустима в пределе низкой плотности ДС.

Мы ищем локализованные на ДС электронные состояния, которые описываются уравнением $(\mathbf{d}^\Sigma \cdot \boldsymbol{\sigma})(-i\partial_x, k_y)\eta^\Sigma(x, k_y) = \varepsilon^\Sigma(k_y)\eta^\Sigma(x, k_y)$. Компоненты спинорной огибающей волновой функции $\eta^\Sigma(x, k_y)$ и ее производной $\partial_x \eta^\Sigma(x, k_y)$ сшиваются на границе $x = 0$. Эта граница разделяет области правого и левого магнитных доменов, которые согласно (8) можно охарактеризовать локальными топологическими индексами: C_R^Σ при $x > 0$ и C_L^Σ при $x < 0$. Поэтому следует ожидать появление нетривиальных одномерных состояний, локализованных на ДС (10). Действительно, при $\alpha \neq 0$ такая граничная задача для блока Σ имеет пару решений с собственными функциями $\eta_\pm^\Sigma(x, k_y)$ и соответствующими собственными значениями $\varepsilon_\pm^\Sigma(k_y)$. Функции $\eta_+^\Sigma(x, k_y)$ и $\eta_-^\Sigma(x, k_y)$ обладают различной пространственной симметрией. Дисперсионные зависимости удовлетворяют условию $\varepsilon_+^\Sigma(k_y) = -\varepsilon_-^\Sigma(-k_y)$. Эволюция спектров $\varepsilon_\pm^\Sigma(k_y)$ на фоне проекции спектров двумерных состояний правого и левого доменов при вариации угла α представлена на рис. 3. Всегда присутствуют две восходящих и две нисходящих ветви, $\varepsilon_\pm^\uparrow(k_y)$ и $\varepsilon_\pm^\downarrow(k_y)$, отвечающие состояниям с различной киральностью. Эти одномерные ветви соединяют точки на проекциях зон двумерных состояний, происходящих от соседних доменов. Состояния, индуцированные ДС, могут быть как ТС, так и ОС. На панели с $\alpha = \pi/6$, отвечающей режиму КСХЭ, мы видим четыре ТС. В режиме

КАХЭ пара ТС сосуществует с парой ОС, как видно на панелях при $\alpha = \pi/4, \pi/3$. В тривиальном режиме, представленном панелями при $\alpha = 5\pi/12, \pi/2$, имеют место четыре ОС. При переходе из одного режима в другой пара ТС плавно трансформируется в пару ОС, или наоборот.

Заключение. Мы показали, что электронная структура и топологические фазы в пленках АФМ ТИ чувствительны к изменению магнитной текстуры. Наши результаты качественно согласуются с экспериментальными данными [24]. Когда под влиянием внешнего поля величиной $H_1 < H < H_2$ магнитные моменты в пленке MnBi_2Te_4 выстраиваются в неколлинеарную текстуру, авторы этой работы наблюдали закрытие и открытие щели в зонном спектре системы, сопровождающееся топологическим фазовым переходом. Так при температуре $T = 2$ К в пленке толщиной 6 СБ поперечное сопротивление выходило на плато $0.98 \cdot h/e^2$ в поле $H_Q \approx 6$ Тл, т.е. еще на подходе к ФМ насыщению при $H_2 \approx 7$ Тл [24]. Аналогичное поведение поперечного сопротивления в пленке MnBi_2Te_4 толщиной 8 СБ с $H_Q \approx 5$ Тл и $H_2 \approx 7$ Тл было зарегистрировано в [49].

С формальной точки зрения наш подход годится также для описания электронных состояний в пленке планарного АФМ ТИ, помещенной в поле $\mathbf{H} = \mathbf{e}_z H$. Следует отметить, что в АФМ ТИ с легкой осью \mathbf{e}_z могут возникать неколлинеарные текстуры со сравнительно малыми углами $\alpha < \alpha_1$, которые соответствуют значениям внешнего поля, превышающим спин-флоп поле H_1 . В пленке АФМ ТИ с легкой плоскостью, например, $\text{V}(\text{Bi}, \text{Sb})_2\text{Te}_4$ (у которого $T_N \approx 80-90$ К [28]), появление неколлинеарной текстуры с некомпенсированной поперечной намагниченностью, и, как следствие, КАЭХ, можно спровоцировать сравнительно слабым полем $\mathbf{H} = \mathbf{e}_z H$ при значительно более высокой температуре, чем в пленке MnBi_2Te_4 .

Предметом теоретического исследования [50] была тонкая пленка немагнитного ТИ, помещенная во внешнее магнитное поле, параллельное плоскости пленки. Был предсказан топологический переход с ростом величины поля из изолирующей фазы с диамагнитным откликом в полуметаллическую фазу с нулевым откликом. Принимая во внимание выводы работы [50], можно предположить, что в основном состоянии пленка планарного АФМ ТИ с нечетным числом СБ в зависимости от соотношения между обменной энергией и энергией гибридизации является либо изолятором с диамагнитным откликом, либо вейлевским полуметаллом, который невосприимчив к слабому продольному полю. Это предположение

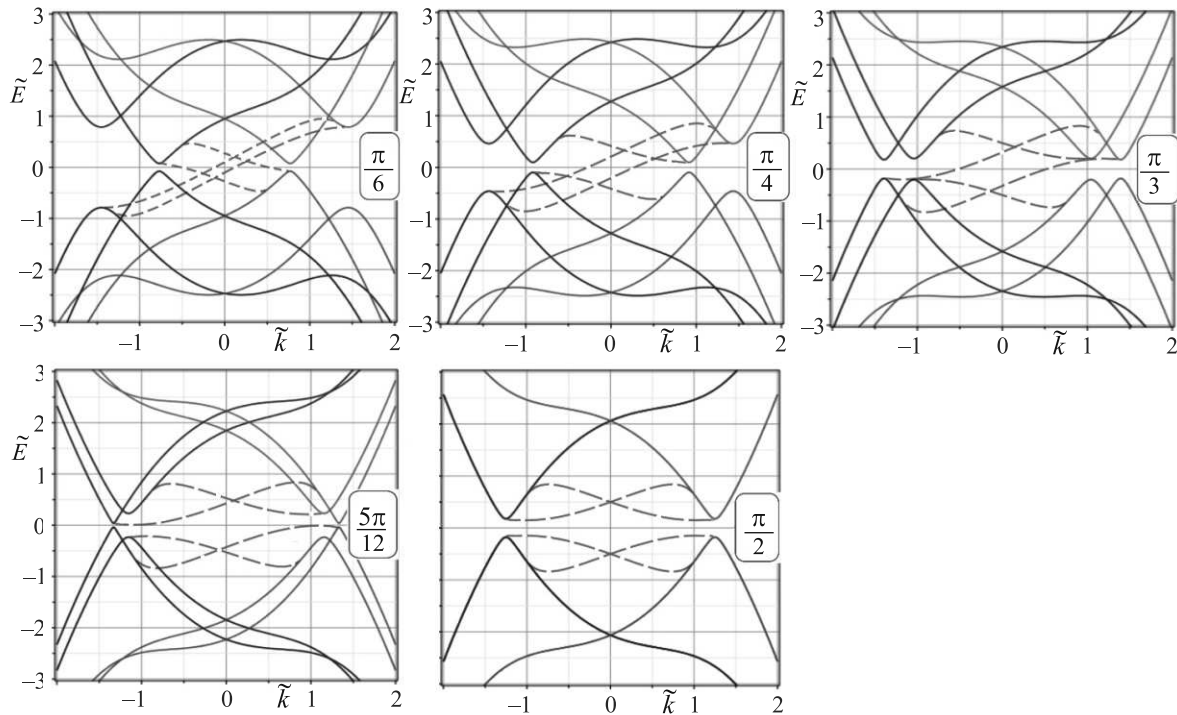


Рис. 3. (Цветной онлайн) Эволюция электронных состояний в тонкой пленке АФМ ТИ при вариации неколлинеарной текстуры намагниченности, содержащей ДС. Угол неколлинеарности проходит значения $\alpha = \frac{\pi}{6}, \frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{3}, \frac{5\pi}{12}, \frac{\pi}{2}$. Используются те же значения параметров, что на рис. 2. Красными пунктирными линиями изображены ветви состояний, индуцированных ДС. Синим, голубым, коричневым и зеленым цветами представлены проекции двумерных состояний

требует детального анализа, особенно в аспекте краевых состояний, формирующих отклик.

Авторы работы [51] вывели \mathbf{kr} модель для пленки ТИ с коллинеарным АФМ порядком А-типа вдоль легкой оси \mathbf{e}_z и показали осцилляции числа Черна при изменении числа СВ с четного на нечетное. Коэффициенты модели [51] связаны только с параметрами объемной зонной структуры ТИ и толщиной пленки. Предложенный нами аналитический подход позволяет анализировать топологические состояния пленки АФМ ТИ в обменном поле неколлинеарных и пространственно неоднородных текстур намагниченности, а также включить в рассмотрение условия на поверхности пленки через ПП. Эти условия определяют величину и знак обменной щели поверхностного состояния [37] и поэтому могут существенно влиять на топологический режим в тонкой пленке [35, 47].

Распространив изучение электронных состояний на случай сложных неколлинеарных текстур намагниченности в тонких пленках собственных АФМ ТИ, мы получили новые результаты, значительно углубляющие понимание взаимосвязи зонной топологии и магнитного упорядочения. Предсказанные нами топологически обусловленные спин-поляризованные

безмассовые состояния различного типа, возникающие на боковых гранях и ДС образцов АФМ ТИ, должны проявляться на макроскопическом уровне в магнето-транспортных измерениях, например, экспериментах по КАЭХ, а также могут быть обнаружены, используя сканирующую туннельную спектроскопию. Одномерные баллистические киральные каналы с квантованной в единицах e^2/h проводимостью, которые формируются в пленках АФМ ТИ и контролируются внешними полями, могут стать ключевыми элементами при разработке перспективных методов хранения, обработки и передачи информации.

Настоящая работа выполнена при финансовой поддержке Санкт-Петербургского государственного университета (проект # 90383050) и Российского научного фонда (грант # 18-12-00169-п).

1. Y. Tokura, K. Yasuda, and A. Tsukazaki, Nat. Rev. Phys. **1**, 126 (2019).
2. C.-Z. Chang, J. Zhang, X. Feng et al., Science **340**, 167 (2013).
3. C.-Z. Chang and M. Li, J. Phys. Condens. Matter **28**, 123002 (2016).

4. X. Kou, Y. Fan, M. Lang, P. Upadhyaya, and K. L. Wang, *Solid State Commun.* **215–216**, 34 (2015).
5. H. Weng, R. Yu, X. Hu, X. Dai, and Z. Fang, *Adv. Phys.* **64**, 227 (2015).
6. A. Sekine and K. Nomura, *J. Appl. Phys.* **129**, 141101 (2021).
7. D. M. Nenko, C. A. C. Garcia, J. Gooth, C. Felser, and P. Narang, *Nat. Rev. Phys.* **2**, 682 (2020).
8. Y. Zhao and Q. Liu, *Appl. Phys. Lett.* **119**, 060502 (2021).
9. M. M. Otrokov, I. I. Klimovskikh, H. Bentmann et al. (Collaboration), *Nature* **576**, 416 (2019).
10. Y. Gong, J. Guo, J. Li et al. (Collaboration), *Chin. Phys. Lett.* **36**, 076801 (2019).
11. Y. Deng, Y. Yu, M. Z. Shi, Z. Guo, Z. Xu, J. Wang, X. H. Chen, and Y. Zhang, *Science* **367**, 895 (2020).
12. C. Liu, Y. Wang, H. Li, Y. Wu, Y. Li, J. Li, K. He, Y. Xu, J. Zhang, and Y. Wang, *Nat. Mater.* **19**, 522 (2020).
13. А. М. Шикин, Д. А. Естюнин, Д. А. Глазкова, С. О. Фильнов, И. И. Климовских, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 241 (2022).
14. А. М. Шикин, Н. Л. Зайцев, А. В. Тарасов, Т. П. Макарова, Д. А. Глазкова, Д. А. Естюнин, И. И. Климовских, *Письма в ЖЭТФ* **116**, 544 (2022).
15. Н. А. Абдуллаев, И. Р. Амирасланов, З. С. Алиев, З. А. Джахангирли, И. Ю. Скляднева, Е. Г. Ализаде, Е. Н. Алиева, М. М. Отроков, В. Н. Зверев, Н. Т. Мамедов, Е. В. Чулков, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 801 (2022).
16. Д. А. Глазкова, Д. А. Естюнин, И. И. Климовских, Т. П. Макарова, О. Е. Терещенко, К. А. Кох, В. А. Голяшов, А. В. Королева, А. М. Шикин, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 315 (2022).
17. А. М. Шикин, Д. А. Естюнин, Н. Л. Зайцев, Д. А. Глазкова, И. И. Климовских, С. О. Фильнов, А. Г. Рыбкин, К. А. Кох, О. Е. Терещенко, К. А. Звездин, А. К. Звездин, *ЖЭТФ* **161**, 126 (2022).
18. I. I. Klimovskikh, M. M. Otrokov, D. Estyunin et al. (Collaboration), *npj Quantum Mater.* **5**, 54 (2020).
19. M. M. Otrokov, I. P. Rusinov, M. Blanco-Rey, M. Hoffmann, A. Y. Vyazovskaya, S. V. Ereemeev, A. Ernst, P. M. Echenique, A. Arnau, and E. V. Chulkov, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 107202 (2019).
20. S. H. Lee, Y. Zhu, Y. Wang et al. (Collaboration), *Phys. Rev. Research* **1**, 012011 (2019).
21. C. Lei, O. Heinonen, A. H. MacDonald, and R. J. McQueeney, *Phys. Rev. Mater.* **5**, 064201 (2021).
22. S. Yang, X. Xu, Y. Zhu, R. Niu, C. Xu, Y. Peng, X. Cheng, X. Jia, Y. Huang, X. Xu, J. Lu, and Y. Ye, *Phys. Rev. X* **11**, 011003 (2021).
23. J. Cai, D. Ovchinnikov, Z. Fei, M. He, T. Song, Z. Lin, C. Wang, D. Cobden, J.-H. Chu, Y.-T. Cui, C.-Z. Chang, D. Xiao, J. Yan, and X. Xu, *Nat. Commun.* **13**, 1668 (2022).
24. D. Ovchinnikov, X. Huang, Z. Lin, Z. Fei, J. Cai, T. Song, M. He, Q. Jiang, C. Wang, H. Li, Y. Wang, Y. Wu, D. Xiao, J.-H. Chu, J. Yan, C.-Z. Chang, Y.-T. Cui, and X. Xu, *Nano Lett.* **21**, 2544 (2021).
25. Y. Feng, J. Zhu, W. Lin, Z. Lian, Y. Wang, H. Li, H. Yao, Q. He, Y. Pan, Y. Wu, J. Zhang, Y. Wang, X. Zhou, J. Shen, and Y. Wang, *Nano Lett.* **22**, 7606 (2022).
26. R. S. K. Mong, A. M. Essin, and J. E. Moore, *Phys. Rev. B* **81**, 245209 (2010).
27. D. Zhang, M. Shi, T. Zhu, D. Xing, H. Zhang, and J. Wang, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 206401 (2019).
28. E. K. Petrov, V. N. Men'shov, I. P. Rusinov, M. Hoffmann, A. Ernst, M. M. Otrokov, V. K. Dugaev, T. V. Menshchikova, and E. V. Chulkov, *Phys. Rev. B* **103**, 235142 (2021).
29. P. M. Sass, J. Kim, D. Vanderbilt, J. Yan, and W. Wu, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 037201 (2020).
30. I. P. Rusinov, V. N. Men'shov, and E. V. Chulkov, *Phys. Rev. B* **104**, 035411 (2021).
31. В. Н. Меньшов, И. П. Русинов, Е. В. Чулков, *Письма в ЖЭТФ* **114**, 768 (2021) [V. N. Men'shov, I. P. Rusinov, and E. V. Chulkov, *JETP Lett.* **114**, 699 (2021)].
32. C.-X. Liu, X.-L. Qi, H. J. Zhang, X. Dai, Z. Fang, and S.-C. Zhang, *Phys. Rev. B* **82**, 045122 (2010).
33. D. Zhang, M. Shi, T. Zhu, D. Xing, H. Zhang, and J. Wang, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 206401 (2019).
34. В. Н. Меньшов, В. В. Тугушев, Е. В. Чулков, *Письма в ЖЭТФ* **104**, 480 (2016) [V. N. Men'shov, V. V. Tugushev, and E. V. Chulkov, *JETP Lett.* **104**, 453 (2016)].
35. V. N. Men'shov, I. A. Shvets, V. V. Tugushev, and E. V. Chulkov, *Phys. Rev. B* **96**, 075302 (2017).
36. В. Н. Меньшов, И. А. Швец, Е. В. Чулков, *Письма в ЖЭТФ* **110**, 777 (2019) [V. N. Men'shov, I. A. Shvets, and E. V. Chulkov, *JETP Lett.* **110**, 771 (2019)].
37. V. N. Men'shov, I. A. Shvets, and E. V. Chulkov, *Phys. Rev. B* **106**, 205301 (2022).
38. P. Swatek, Y. Wu, L.-L. Wang, K. Lee, B. Schruck, J. Yan, and A. Kaminski, *Phys. Rev. B* **101**, 161109(R) (2020).
39. J. Ge, Y. Liu, P. Wang, Z. Xu, J. Li, H. Li, Z. Yan, Y. Wu, Y. Xu, and J. Wang, *Phys. Rev. B* **105**, L201404 (2022).
40. Y.-H. Li and R. Cheng, *Phys. Rev. Research* **4**, L022067 (2022).
41. H.-Z. Lu, W.-Y. Shan, W. Yao, Q. Niu, and S.-Q. Shen, *Phys. Rev. B* **81**, 115407 (2010).
42. R. Takahashi, *Topological States on Interfaces Protected by Symmetry*, Springer, Tokyo, Japan (2015).

43. B. A. Bernevig, T. L. Hughes, and S.-C. Zhang, *Science* **314**(5806), 1757 (2006).
44. X. L. Qi and S. C. Zhang, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1057 (2011).
45. D. R. Candido, M. Kharitonov, J. C. Egues, and E. M. Hankiewicz, *Phys. Rev. B* **98**, 161111(R) (2018).
46. K. Yasuda, M. Mogi, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, F. Kagawa, and Y. Tokura, *Science* **358**, 1311 (2017).
47. V. N. Men'shov, I. A. Shvets, and E. V. Chulkov, *Phys. Rev. B* **99**, 115301 (2019).
48. J. G. Checkelsky, J. Ye, Y. Onose, Y. Iwasa, and Y. Tokura, *Nat. Phys.* **8**, 729 (2012).
49. S. K. Chong, C. Lei, S. H. Lee, J. Jaroszynski, Z. Mao, A. H. MacDonald, and K. L. Wang, <https://arxiv.org/ftp/arxiv/papers/2208/2208.13332.pdf>.
50. A. A. Zyuzin, M. D. Hook, and A. A. Burkov, *Phys. Rev. B* **83**, 245428 (2011).
51. H.-P. Sun, C. M. Wang, S.-B. Zhang, R. Chen, Y. Zhao, C. Liu, Q. Liu, C. Chen, H.-Z. Lu, and X. C. Xie, *Phys. Rev. B* **102**, 241406(R) (2020).

Плотность заряда и подвижность волн зарядовой плотности в квазиодномерном проводнике NbS₃

С. Г. Зыбцев⁺, В. Я. Покровский⁺¹⁾, С. А. Никонов⁺, А. А. Майзлах⁺, С. В. Зайцев-Зотов^{+*}

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

^{*}Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, факультет физики, 105066 Москва, Россия

Поступила в редакцию 11 ноября 2022 г.

После переработки 26 ноября 2022 г.

Принята к публикации 29 ноября 2022 г.

В моноклинной фазе NbS₃ (NbS₃-II) наблюдаются три волны зарядовой плотности (ВЗП), две из которых формируются при температурах выше комнатной. В данной работе, с использованием эффекта синхронизации скольжения ВЗП в высокочастотных полях, для каждой из трех ВЗП определена плотность заряда, а также подвижность в пределе больших полей. Установлено, что подвижность каждой из ВЗП в этом пределе приблизительно равна подвижности сконденсированных в ней квазичастиц в нормальном состоянии. Более того, наблюдается корреляция между температурными зависимостями подвижностей волн зарядовой плотности и квазичастиц. Результаты работы актуализуют вопросы о механизме предельной проводимости волн зарядовой плотности и о распределении волн зарядовой плотности между атомными цепочками в элементарной ячейке.

DOI: 10.31857/S1234567823020118, EDN: oewgze

Фрелиховская мода переноса заряда была предложена в качестве объяснения сверхпроводимости [1]. Несмотря на ошибочность этой гипотезы, оказалось, что описанный коллективный механизм проводимости, действительно, реализуется в квазиодномерных [2] (и даже в некоторых квазидвумерных [3]) соединениях с волнами зарядовой плотности (ВЗП). При этом, однако, проводимость ВЗП ограничена, как минимум, в связи с двумя обстоятельствами. Во-первых, пиннинг ВЗП на примесях и дефектах приводит к тому, что ВЗП начинает движение лишь в поле E , превышающем пороговое значение E_t . Во-вторых, при $E \gg E_t$ рост проводимости ВЗП насыщается, и в пределе больших полей ее скорость $v(E)$ пропорциональна E . Это наблюдение позволяет нам формально ввести подвижность ВЗП $\mu_{\text{CDW}} \equiv v(\infty)/E$.

Давно замечено для разных соединений, что в пределе сильного поля проводимость ВЗП, $\sigma_{\text{CDW}}(\infty) \equiv \sigma(\infty) - \sigma(0)$, приближается к проводимости составляющих ее квазичастиц в нормальном (металлическом) состоянии [4] (ниже проводимость в слабых полях, $\sigma(0)$, мы будем обозначать как σ , а под $\sigma(E)$ будем подразумевать дифференциальную проводимость). Это означает, что при повышении температуры в области T_P наблюдается ступенька

σ , величина которой $\delta\sigma$ примерно равна предельной проводимости ВЗП ниже T_P . Связь величин $\sigma_{\text{CDW}}(\infty)$ и $\delta\sigma$ была обоснована для некоторых частных случаев [5, 6]. Тем не менее, общей теории, связывающей проводимость электронов в одночастичном и коллективном состояниях, пока не существует. Поэтому одним из актуальных вопросов является исследование скольжения ВЗП в предельно больших полях в новых материалах.

В этом плане интересно соединение NbS₃. В низкоомной “подфазе” моноклинной фазы NbS₃ (NbS₃-II) формируются три ВЗП: ВЗП-0, ВЗП-1 и ВЗП-2. Соответствующие температуры пайерлсовских переходов: $T_{P0} \approx 470$ К, $T_{P1} \approx 360$ К и $T_{P2} = 150$ К [7] (см. рис. 1). Очевидно, такое многообразие волн зарядовой плотности определяется относительной сложностью элементарной ячейки NbS₃-II, которая содержит 4 пары эквивалентных цепочек Nb [2, 8, 9]. Известны волновые вектора, характеризующие ВЗП-0 и ВЗП-1: в относительных единицах $\mathbf{q}_0 = (0, 0.298, 0)$ и $\mathbf{q}_1 = (0, 0.352, 0)$ [8, 9], соответственно. Сверхструктура, связанная с образованием ВЗП-2, пока не наблюдалась, поэтому величина \mathbf{q}_2 неизвестна.

Каждая из ВЗП может скользить при $E > E_t$. Значения E_t различаются для трех ВЗП в NbS₃, причем, в согласии с давно замеченной тенденцией [10], чем ниже T_P , тем ниже E_t . Это позволяет наблюдать скольжение каждой из ВЗП ниже температуры со-

¹⁾e-mail: vadim.pokrovskiy@mail.ru

ответствующего перехода при отсутствии вклада от волн, сформировавшихся при более высоких температурах. Таким образом, открывается возможность оценить значение $\sigma_{CDW}(\infty)$ для каждой из трех ВЗП и сравнить с величиной $\delta\sigma$ на соответствующем переходе.

Помимо проводимости, мы можем экспериментально определить и плотность заряда, переносимого каждой из ВЗП. Для этого удобно использовать эффект синхронизации скольжения ВЗП в высокочастотном (ВЧ) поле [2]. В режиме синхронизации на ВАХ образца возникают так называемые ступеньки Шапиро – интервалы напряжения, в которых v постоянна или почти постоянна. На первой ступеньке Шапиро частота ВЧ поля, f , совпадает с фундаментальной частотой скольжения ВЗП, f_f . В этом режиме за каждый период ВЧ поля каждая цепочка, участвующая во фрелиховской проводимости, переносит 2 электрона (заряд $2e$). Поэтому, зная плотность тока ВЗП j_{CDW} и частоту f , легко найти плотность цепочек в поперечном сечении образца, участвующих в переносе:

$$n_{ch} = (j_{CDW}/f)/(2e). \quad (1)$$

Введем площадь элементарной ячейки s_c в плоскости перпендикулярной цепочкам (для NbS_3 -II - в плоскости ac). Тогда число цепочек в ячейке, дающих вклад в ток ВЗП,

$$N_{ch} = n_{ch}s_c. \quad (2)$$

Мы также можем найти концентрацию электронов в ВЗП, используя формулу

$$n = 2n_{ch}/\lambda, \quad (3)$$

где λ – период ВЗП. Рассчитанную таким способом плотность заряда en , переносимого каждой из ВЗП, интересно будет сопоставить с известными моделями формирования ВЗП на восьми цепочках в элементарной ячейке.

Зная $\sigma_{CDW}(\infty)$, мы можем найти μ_{CDW} в пределе больших полей. Значение μ_{CDW} удобно оценивать как $\sigma_s/\sigma_{CDW}(\infty)/en$. Учитывая, что $v = \lambda f_f$, а $n = 2/(\lambda s_c)$, несложно убедиться, что $\sigma_s/\sigma_{CDW}(\infty)/en \equiv v(\infty)/E$. Здесь и ниже индекс “s” означает, что имеется в виду *удельная* проводимость. Кроме того, зная $\delta\sigma$, мы сможем найти подвижность тех же электронов в нормальном состоянии: $\mu = \delta\sigma_s/en = \lambda\delta\sigma_s/(j_{CDW}/f) = L\lambda\delta\sigma/(I_{CDW}/f)$ [7], где I_{CDW} – ток ВЗП, L – длина образца. Последнее соотношение удобно для расчета μ на основе непосредственно

измеренных величин. Полученные значения μ интересно будет сопоставить с подвижностями соответствующих ВЗП.

В данной работе для каждой из трех ВЗП, формирующихся в NbS_3 -II, мы определяем концентрацию электронов, участвующих во фрелиховской моде проводимости, соответствующую величину N_{ch} , а также подвижность тех же электронов в ВЗП и в нормальном состоянии. Сопоставив проводимость ВЗП в пределе больших полей с проводимостью сконденсированных в ней электронов в нормальном состоянии, мы приходим к выводу, что для каждой из ВЗП эти значения близки по величине. Оказалось, что значения N_{ch} для ВЗП-0,1 и 2 соотносятся как $(1.3-2.3) : 1 : (1/3-1/1000)$, в то время как подвижности этих ВЗП (и соответствующих электронов в нормальном состоянии) соотносятся примерно как $0.045 : 0.6 : 3$, где значения приведены в cm^2/Vs . Полученные значения согласуются с предварительными результатами, приведенными в [7]. Аномально низкое значение μ_{CDW} для ВЗП-0 свидетельствует о прыжковом характере проводимости квазичастиц при $T > T_{P0}$, что может объяснить диэлектрический температурный ход проводимости в этой области. Более того, согласно нашим предварительным данным, диэлектрический ход проводимости (и подвижности) наблюдается и для самой ВЗП-0, в то время как для ВЗП-1 эти величины гораздо слабее зависят от T , в согласии с большей величиной подвижности.

Начнем с определения основных характеристик каждой из ВЗП. Для ВЗП-1 в NbS_3 -II $j_{CDW}/f = 18 A/MГц/cm^2$ [11], что, с учетом $s_c = 180 \text{ \AA}^2$ [2], соответствует $N_{ch1} = 1$ [11] (1), (2). Период ВЗП-1 $\lambda_1 = b/\mathbf{q}_b = 1.12 \text{ нм}$, где $b = 0.335 \text{ нм}$ [2, 9] – постоянная решетки вдоль цепочек, $\mathbf{q}_b = 0.298$ – b -компонента \mathbf{q} -вектора. Используя соотношение (3), получаем для ВЗП-1 $n_1 = 1.0 \times 10^{21} \text{ см}^{-3}$.

ВАХ, на которых нелинейная проводимость связана со скольжением ВЗП-0, приведены в [7]. При воздействии ВЧ поля на них наблюдались ступеньки Шапиро. Установлено, что для ВЗП-0 отношение j_{CDW}/f в 1.3–2.3 раза больше, чем для ВЗП-1, т.е. $N_{ch0} = 1.3-2.3$, а $n_0 = (\lambda_1/\lambda_0)(1.3-2.3)n_1 = (1.5-2.7) \times 10^{21} \text{ см}^{-3}$, т.е. в 1.5–2.7 раза больше, чем для ВЗП-1.

Для ВЗП-2 величина j_{CDW}/f варьируется в широких пределах: диапазон ее изменений превышает два порядка [12]. Соответственно, величина N_{ch2} оказывается в диапазоне $1/3-10^{-3}$, т.е. во всех случаях на элементарную ячейку приходится существенно менее одной цепочки. Величина λ_2 в настоящее

время неизвестна. Однако, вероятнее всего, ее период близок к периодам ВЗП-1 и ВЗП-0. На это указывает расчет функции Линдхарда для NbS₃-II [13]: функция имеет максимум отклика при трех значениях \mathbf{q} -вектора; b^* -компоненты всех трех векторов близки к $1/3$, причем два из них близки к экспериментальным значениям \mathbf{q}_1 и \mathbf{q}_0 , а третье имеет b^* -компоненту 0.339. Можно предположить, что это и есть ВЗП-2. Взяв $\lambda_2 = \lambda_1$,²⁾ получаем $n_2 = (1/3 - 10^{-3}) \times 10^{21} \text{ см}^{-3}$, что можно считать оценкой n_2 при любых разумных значениях λ_2 . Столь малая плотность ВЗП-0, величина которой сильно зависит от образца, объясняются, скорее всего, формированием этой ВЗП на структурных дефектах NbS₃. В [9, 14, 15, 16] приведены аргументы в пользу того, что ВЗП-2 формируется на дефектах упаковки, которые образуют плоскости, параллельные ab , толщиной в атомный слой. В этом слое ячейки содержат, как правило, лишнюю пару цепочек. В пользу такой возможности говорит и недавнее наблюдение ВЗП на монослоях дихалькогенидов (см., например, [17]). Наличие значительной концентрации дефектов упаковки в NbS₃-II подтверждается данными исследований в ПЭМ и СТМ [9, 15]. Тем не менее, предположение о формировании 2D ВЗП на дефектах упаковки требует прямого доказательства.

Перейдем к оценке подвижности электронов, сконденсированных в ВЗП, в нормальном состоянии. Для этого необходимо определить величину $\delta\sigma$ на соответствующем переходе. На рисунке 1 приведены зависимости $\sigma(T)$, характерные для NbS₃-II. Поскольку для высокотемпературных измерений (до 500 К и выше) требовался специальный монтаж образцов, для представления $\sigma(T)$ во всем диапазоне температур приведены данные для двух вискерсов, имеющих схожие свойства. Для сшивки кривых проводимость вискера, исследованного при высоких температурах, поделена на 1.67. Для всех образцов, исследованных выше T_{P0} , в этой области наблюдается диэлектрический температурный ход сопротивления [7]: сопротивление падает с ростом T , несмотря на то, что волны зарядовой плотности при этих температурах, по всей видимости, отсутствуют.

Пунктирные линии на рис. 1 иллюстрируют методику определения скачка проводимости $\delta\sigma_i$, $i = 0, 1, 2$, в области каждого из трех переходов. Ниже T_{P1}

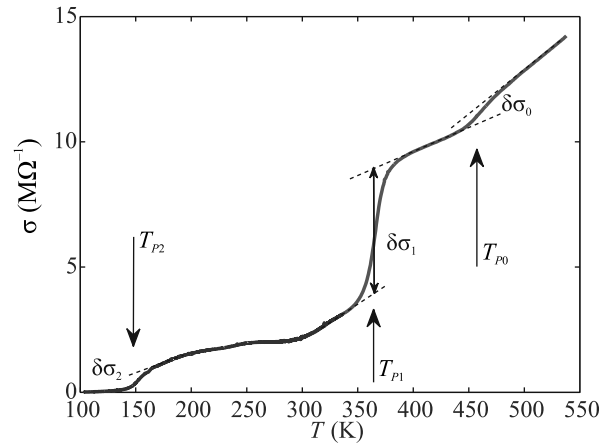


Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость $\sigma(T)$ для двух образцов NbS₃-II с близкими свойствами: $126 \text{ мкм} \times 0.06 \text{ мкм}^2$ ($T = 100\text{--}335 \text{ К}$, синяя кривая) и $160 \text{ мкм} \times 0.1 \text{ мкм}^2$ ($T = 298\text{--}537 \text{ К}$, красная кривая, проводимость поделена на 1.67). Стрелочками отмечены температуры трех пайерлсовских переходов. Пунктирными линиями показаны экстраполированные зависимости $\sigma(T)$, используемые для оценки величин $\delta\sigma_i$, $i = 0, 1, 2$. Показана величина $\delta\sigma_i$ для $i = 1$; для $i = 0, 2$ величины $\delta\sigma_i$ определялись аналогично

ход $\sigma(T)$ сильно варьируется от образца к образцу [11]. Слабая зависимость σ от T и выраженная особенность в области $T_{P2} = 150 \text{ К}$ означают, что образец, представленный на рис. 1, относится к низкоомной “подфазе” [12].

С учетом значений $\delta\sigma_s$ для ВЗП-1 и ВЗП-0 получаем следующие оценки подвижности квазичастиц: $\mu_1 = 0.6 \text{ см}^2/\text{Вс}$ и $\mu_0 = 0.04\text{--}0.05 \text{ см}^2/\text{Вс}$. Что касается ВЗП-2, хотя величина j_{CDW}/f варьируется в широких пределах, отношение j_{CDW}/f оказывается пропорциональным скачку удельной проводимости $\delta\sigma_{s2}$ (рис. 1) [12]. Как можно установить из рис. 15 в [12], коэффициент пропорциональности $\delta\sigma_{s2}/(j_{\text{CDW}}/f)$ равен $30 (\Omega \text{ см})^{-1}/(\text{А}/\text{МГц}/\text{см}^2)$. Если это отношение умножить на λ_2 , получим подвижность в нормальном состоянии электронов, сконденсированных в ВЗП-2. Взяв $\lambda_2 = \lambda_1$, получаем оценку подвижности квазичастиц $\mu_2 = 3.4 \text{ см}^2/\text{Вс}$.

Перейдем к центральной части работы – к характеристике динамики волн зарядовой плотности в больших полях. Для всех трех ВЗП очевидна тенденция к насыщению роста $\sigma(E)$. На рисунке 2 справа приведены примеры кривых $\sigma(E)$ для каждой из трех ВЗП. Приведены кривые без облучения и при воздействии ВЧ полей. На всех зависимостях заметна тенденция к насыщению роста $\sigma(E)$, более выраженная на кривых, снятых при ВЧ облучении. Сле-

²⁾В [14] сообщается о наблюдении с помощью СТМ сверхструктуры на дефекте упаковки [8, 15] с периодом $2.1b$ ниже 150 К. Вероятно, это и есть ВЗП-2, однако доказательств формирования этой структуры при 150 К не получено. Если взять $\lambda_2 = 2.1b$ вместо $\lambda_2 = \lambda_1$, это не повлияет на качественные выводы статьи.

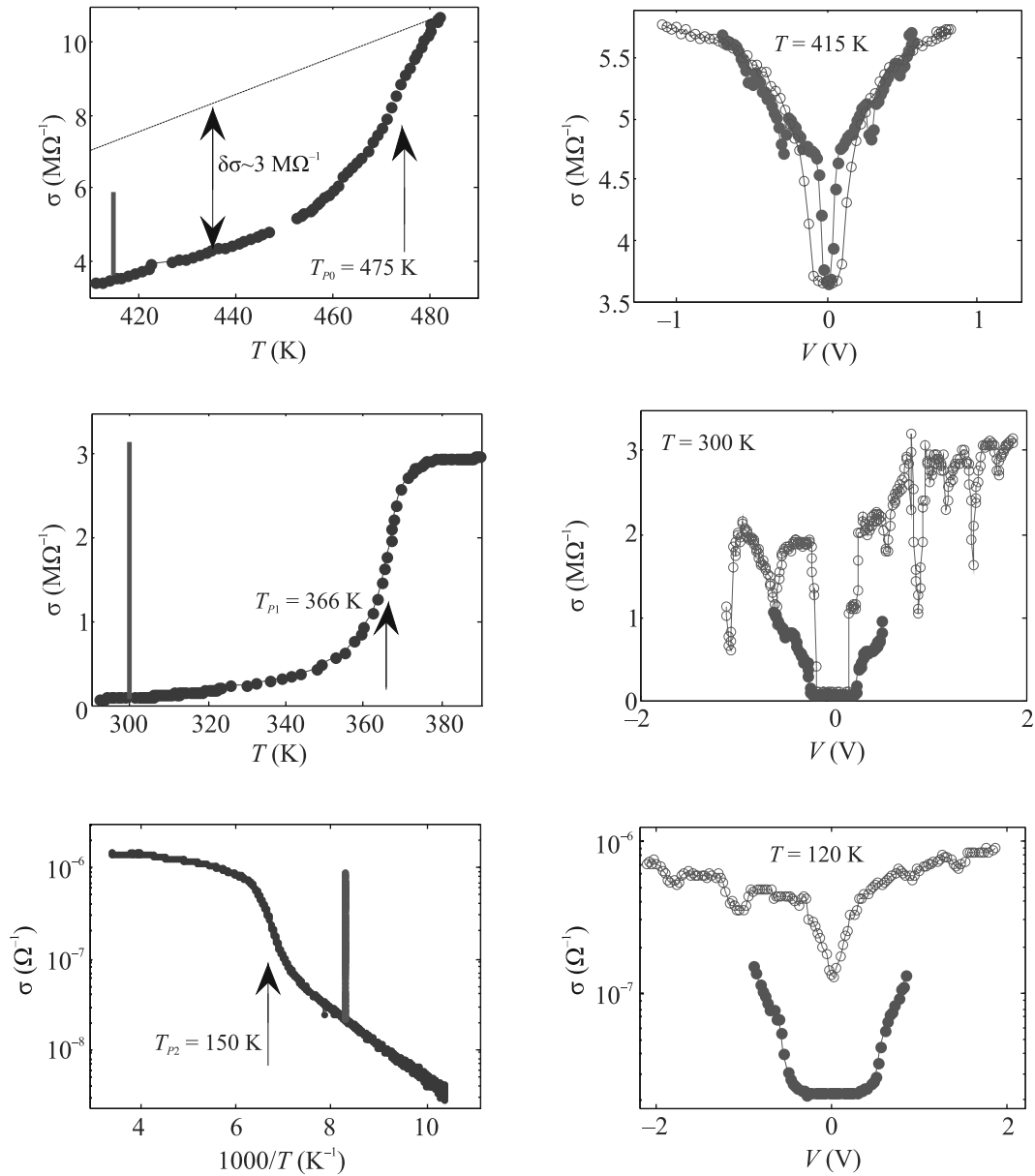


Рис. 2. (Цветной онлайн) Сверху: фрагмент кривой $\sigma(T)$ в окрестности T_{P0} (слева) и $\sigma(V)$ при 415 K (справа). Зависимости $\sigma(V)$ измерены без ВЧ поля (\bullet) и при облучении на частоте 10 МГц (\circ). Размеры образца $58 \text{ мкм} \times 0.12 \text{ мкм}^2$. В середине: Фрагмент кривой $\sigma(T)$ в окрестности T_{P1} (слева) и $\sigma(V)$ при комнатной температуре (справа). Зависимости $\sigma(V)$ измеряли без ВЧ поля и при облучении на частоте 800 МГц. Размеры образца: $38 \text{ мкм} \times 0.01 \text{ мкм}^2$. Снизу: фрагмент кривой $\sigma(T)$ в окрестности T_{P2} (слева) и $\sigma(V)$ при 120 K (справа). Зависимости $\sigma(V)$ измеряли без ВЧ поля и при облучении на частоте 400 МГц. Размеры образца $266 \text{ мкм} \times 0.015 \text{ мкм}^2$. Вертикальные линии на левых панелях – проекции соответствующих ВАХ справа

ва от ВАХ приведены фрагменты зависимостей $\sigma(T)$ в области соответствующих переходов и ниже. На этих же панелях показан диапазон изменения $\sigma(V)$ при соответствующих температурах, т.е. “дифференциальные ВАХ” справа как бы спроецированы на левые панели. Видно, что для всех трех ВЗП величина $\sigma_{CDW}(\infty)$ близка по величине к $\delta\sigma$ в области со-

ответствующего перехода. Таким образом, полученные выше оценки проводимости и подвижности можно отнести и к электронам в соответствующих *коллективных* состояниях. Так, наиболее подвижная из трех волн зарядовой плотности, ВЗП-2, образуется в результате конденсации наиболее подвижных квази-частиц.

Наименьшая подвижность наблюдается для “сверхвысокотемпературной” ВЗП-0, которая образуется при конденсации квазичастиц с подвижностью $0.04\text{--}0.05\text{ см}^2/\text{Вс}$. Столь малая подвижность характерна для прыжкового механизма проводимости. Этим естественно объяснить диэлектрический ход проводимости $\text{NbS}_3\text{-II}$ выше T_{P0} , т.е. в нормальном состоянии (рис. 1). Однако тогда возникает вопрос: не является ли механизм коллективной проводимости ВЗП-0 в больших полях также прыжковым? Поскольку универсальной модели, объясняющей сходство механизмов рассеяния электронов, сконденсированных в ВЗП и в нормальном состоянии, пока не существует, мы не можем однозначно ответить на этот вопрос. Тем не менее, мы попытались исследовать температурный ход $\sigma_{\text{CDW}}(\infty)$ и μ_{CDW} для ВЗП-0 и ВЗП-1.

Для исследования подвижности ВЗП-0 был отобран один из образцов II фазы, в котором отсутствует ВЗП-1. В [7, 15] было показано, что в выращенных партиях $\text{NbS}_3\text{-II}$ встречаются необычные образцы, в которых ВЗП-1 не наблюдается, либо она слабо выражена. При этом T_{P0} , период ВЗП-0 и ее подвижность в больших полях такие же, как и в обычных образцах. Это подтвердили транспортные [7, 15] и структурные исследования [15]. Преимущество таких образцов в том, что динамику ВЗП-0 на них можно исследовать в широком диапазоне температур, а не только выше T_{P1} : в обычных образцах ниже T_{P1} практически невозможно определить вклад ВЗП-0 в проводимость на фоне скольжения ВЗП-1. Кроме того, флуктуации ВЗП-1 существенно снижают значение σ и выше T_{P1} . В результате значение $\sigma_{\text{CDW}}(\infty)$, определенное как $\sigma(\infty) - \sigma$, оказывается завышенным. В [7] приведен набор ВАХ одного из таких образцов в диапазоне температур от комнатной до 480 К, т.е. до T_{P0} и даже чуть выше. На всех ВАХ при ВЧ облучении на частоте 10 МГц можно наблюдать ступеньки Шапиро. Такие ВАХ, как видно из рис. 2, во многих случаях позволяют точнее оценить $\sigma_{\text{CDW}}(\infty)$ при ограниченных значениях напряжения.

Во многих случаях асимптотическое поведение проводимости при $V \rightarrow \infty$ можно описать, используя, например, формулу для зенеровского туннелирования [18]: $\sigma_{\text{CDW}} = A + B \exp(-V_0/V)$, где A , B и V_0 – константы. В качестве примера приведем ВАХ образца без ВЗП-1 при $T = 321\text{ К}$, с ВЧ облучением и без, перестроенные как $\sigma - \sigma(0)$ от $1/|V|$ в полупологарифмическом масштабе (вставка к рис. 3). Экстраполируя $1/|V|$ к 0, можно оценить $\sigma_{\text{CDW}}(\infty) = 1.2 \times 10^{-6}\text{ }\Omega^{-1}$ ($\sigma_{\text{s CDW}}(\infty) = 5.8\text{ (}\Omega\text{ см)}^{-1}$). Полу-

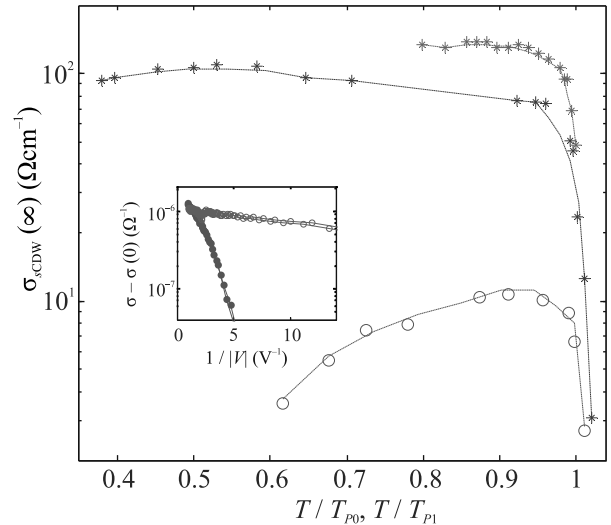


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости $\sigma_{\text{s CDW}}(\infty)$ для ВЗП-0 (o) и ВЗП-1 (*) от температуры, нормированной на T_{P0} и T_{P1} соответственно. Размеры образцов $58\text{ мкм} \times 0.12\text{ мкм}^2$ (o, см. рис. 2 сверху), $18\text{ мкм} \times 0.008\text{ мкм}^2$ (*, синий цвет) и $38\text{ мкм} \times 0.01\text{ мкм}^2$ (*, зеленый). На вставке: ВАХ образца (без ВЗП-1) при $T = 321\text{ К}$ в координатах $\ln[\sigma - \sigma(0)]$ от $1/V$

ченные значения $\sigma_{\text{s CDW}}(\infty)$ в зависимости от температуры, нормированной на T_{P0} , показаны на рис. 3. Другие способы определения $\sigma_{\text{CDW}}(\infty)$ дали близкие значения.

Аналогичным образом были определены величины $\sigma_{\text{s CDW}}(\infty)$ для ВЗП-1. Эти результаты, полученные на двух высокоомных образцах, также приведены на рис. 3. Для ВЗП-0 ниже примерно $0.95T_{P0}$ наблюдается спад $\sigma_{\text{s CDW}}(\infty)$ с понижением температуры, т.е. диэлектрический ход $\sigma_{\text{s CDW}}(\infty)$. В то же время, проводимость ВЗП-1 ниже $0.95T_{P1}$ слабо зависит от T .

На всех кривых (рис. 3) виден резкий спад $\sigma_{\text{s CDW}}(\infty)$ при $T \rightarrow T_{P1}$ (или $T \rightarrow T_{P0}$) снизу, связанный с разрушением ВЗП, т.е. с падением плотности заряда ВЗП. Для образцов, исследованных при воздействии ВЧ поля, наблюдались ступеньки Шапиро, поэтому нам известна плотность ne заряда ВЗП при каждой температуре. Разделив $\sigma_{\text{s CDW}}(\infty)$ на ne , получаем подвижность ВЗП-0, а также ВЗП-1 для одного из образцов (рис. 3), на котором была исследована синхронизация ВЗП-1 (рис. 4).

Как видно из рис. 4, значения подвижностей близки к полученным ранее оценкам подвижности квазичастиц в области T_{P0} . Рост подвижности ВЗП-0 с температурой наблюдается во всем диапазоне темпе-

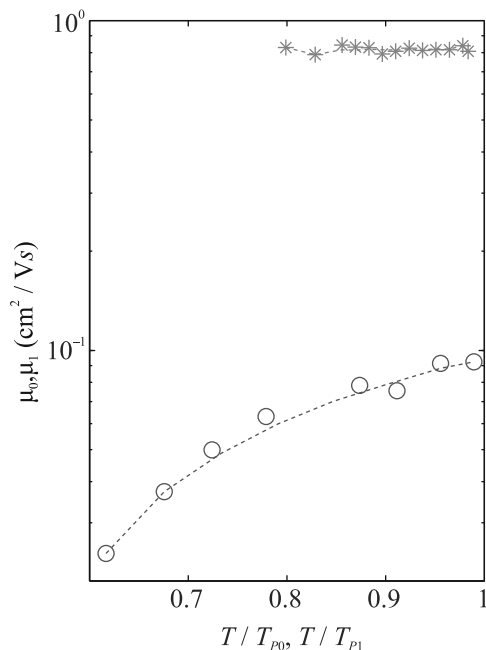


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимости подвижностей ВЗП-0 (○) и ВЗП-1 (*) от температуры, нормированной на T_{P0} и T_{P1} , соответственно. Размеры образцов $58 \text{ мкм} \times 0.12 \text{ мкм}^2$ (○) и $38 \text{ мкм} \times 0.01 \text{ мкм}^2$ (см. рис. 3). На образце $18 \text{ мкм} \times 0.008 \text{ мкм}^2$ (рис. 3) синхронизация в широком диапазоне температур не исследовалась

ратур. Это означает, что подвижность ВЗП-0 в больших полях не только приблизительно равна подвижности сконденсированных в ней квазичастиц в нормальном состоянии, но и имеет аналогичную, диэлектрическую, температурную зависимость.

Подвижность ВЗП-1 гораздо слабее зависит от температуры. Это соответствует слабой температурной зависимости проводимости выше T_{P1} [7, 12] (из нее, для корректного сравнения с $\sigma_{CDW}(\infty)$, надо вычесть вклад квазичастиц, связанных с ВЗП-0, который имеет диэлектрическую температурную зависимость).

Итак, экспериментально показано, что подвижности каждой из трех ВЗП в NbS_3 -II в больших полях примерно равны подвижностям составляющих их квазичастиц. Температурный ход проводимости (и подвижности) ВЗП-0 оказывается диэлектрическим, повторяя ход проводимости выше T_{P0} , в то время как проводимость ВЗП-1 слабо зависит от температуры. При этом различие подвижностей разных ВЗП достигает почти двух порядков. Этот результат вновь ставит вопрос об актуальности создания обобщающей теории, связывающей подвижности электронов в ВЗП и в свободном состоянии, а также об образовании ВЗП из состояний, имеющих прыж-

ковую проводимость. В случае вязкого трения, некоторой аналогией можно считать модель Бардина–Стефана, описывающую сопротивление 2D сверхпроводника в режиме вязкого течения абрикосовских вихрей [19].

Несмотря на отсутствие общей теории, естественно связать ход проводимости ВЗП-0 с диэлектрической зависимостью одночастичной проводимости NbS_3 выше T_{P0} [7]. Подвижность квазичастиц, образующих ВЗП-0, выше T_{P0} , $0.04\text{--}0.05 \text{ см}^2/\text{Vs}$, характерна для прыжковой проводимости. Подвижность ВЗП-0 того же порядка. Таким образом, мы приходим к неожиданному выводу: проводимость ВЗП-0 имеет прыжковый характер. Данное заключение требует дальнейшего анализа. На данный момент можно сделать вывод, что близость значений проводимости зарядов в коллективном и одночастичном состояниях для трех ВЗП, имеющих существенно разные свойства, не является случайным совпадением.

Интересно отметить, что, если в относительно небольших полях диссипация ВЗП определяется рассеянием квазичастиц, возбужденных через пайерловскую щель [20, 21], в больших полях механизм диссипации ВЗП аналогичен механизму рассеяния сконденсированных в ней электронов в нормальном состоянии. При этом мы не можем исключить, что $\sigma_{CDW}(\infty)$ в какой-то мере также определяется квазичастицами, сосуществующими с ВЗП. На это указывают результаты работы [22], в которой за счет использования эффекта Холла удалось добиться скольжения ВЗП в $NbSe_3$ при отсутствии сонаправленного тока квазичастиц. Оказалось, что в этом случае $\sigma_{CDW}(\infty)$ может быть существенно выше, чем при скольжении ВЗП во внешнем электрическом поле, и заметно превышать проводимость сконденсированных в ВЗП квазичастиц в нормальном состоянии.

Отдельной дискуссии требуют полученные значения плотности заряда трех ВЗП. Для ВЗП-0 значения j_{CDW}/f были получены в диапазоне $23\text{--}40 \text{ А/МГц/см}^2$, т.е. в $1.3\text{--}2.3$ раза выше, чем для ВЗП-1. Для ВЗП-1 отношение j_{CDW}/f соответствует скольжению 1 цепочки ВЗП из 8 на элементарную ячейку [11]. Можно было бы предположить, что ВЗП-0 модулирует 2 цепочки из 8 ($j_{CDW}/f = 36 \text{ А/МГц/см}^2$), в то время как разброс значений j_{CDW}/f связан с погрешностью в определении площади сечения нанобразцов. Однако на тех образцах, где ступеньки Шапиро наблюдались при скольжении обеих ВЗП, – ВЗП-0 и ВЗП-1, отношение N_{ch0}/N_{ch1} также не было целым и зависело от образца. Таким образом, можно предположить, что “рассадить”

ВЗП-0 и ВЗП-1 по “своим” цепочкам невозможно, и необходимо учесть одновременную модуляцию одних и тех же цепочек разными ВЗП, как предложено в [9, 23]. Эта модель нашла экспериментальное подтверждение для NbSe_3 [24], где формируются две ВЗП. Отметим, однако, что в случае NbSe_3 значения j_{CDW}/f совпадают для обеих ВЗП [25, 26] и согласуются с общепринятыми представлениями о формировании каждой из ВЗП на одной из трех пар цепочек в элементарной ячейке. Мы также не можем исключить, что разброс значений j_{CDW}/f в NbS_3 связан с неоднородностью образца.

Наконец, отметим, что предложенный нами метод оценки подвижности квазичастиц, основанный на использовании эффекта синхронизации ВЗП и анализе кривой $\sigma(T)$ в области перехода, может быть весьма актуальным для нитевидных кристаллов с ВЗП. Так, висеры NbS_3 -II обычно имеют ширину менее 1 мкм, и исследовать на них эффект Холла для определения подвижности весьма затруднительно.

Электрофизические исследования NbS_3 и анализ полученных результатов выполнены С. Г. Зыбцевым, В. Я. Покровским и С. А. Никоновым при поддержке Российского научного фонда, проект # 22-12-00319.

Рост кристаллов II фазы проводился А. А. Майзлахом и С. В. Зайцевым-Зотовым в рамках Госзадания.

1. H. Frohlich, Proc. R. Soc. A **223**, 296 (1954).
2. P. Monceau, Adv. Phys. **61**, 325 (2012).
3. A. A. Sinchenko, P. Lejay, and P. Monceau, Phys. Rev. B **85**, 241104(R) (2012).
4. G. Gruner and A. Zettl, Phys. Rep. **119**, 117 (1985).
5. Л. П. Горьков, Е. Н. Долгов, ЖЭТФ **77**, 396 (1979) [L. P. Gor'kov and E. N. Dolgov, Sov. Phys. JETP **50**, 203 (1979)].
6. J. Bardeen, Mol. Cryst. Liq. Cryst. **81**, 1 (1982).
7. S. G. Zybtev, V. Ya. Pokrovskii, V. F. Nasretdinova, S. V. Zaitsev-Zotov, E. Zupanič, M. van Midden, and W. Wu Pai, J. Alloys Compd. **854**, 157098 (2021).
8. Z. Z. Wang, P. Monceau, H. Salva, C. Roucau, L. Guemas, and A. Meerschaut, Phys. Rev. B **40**, 11589 (1989).
9. E. Zupanič, H. J. P. van Midden, M. van Midden, S. Sturm, E. Tchernychova, V. Ya. Pokrovskii, S. G. Zybtev, V. F. Nasretdinova, S. V. Zaitsev-Zotov, W. T. Chen, W. W. Pai, J. C. Bennett, and A. Prodan, Phys. Rev. B **98**, 174113 (2018).
10. P. Monceau, in *Electronic Properties of Inorganic Quasi-one-dimensional Conductors*, ed. by P. Monceau, Reidl, Dordrecht (1985), part 2.
11. S. G. Zybtev, V. Ya. Pokrovskii, V. F. Nasretdinova, and S. V. Zaitsev-Zotov, Appl. Phys. Lett. **94**, 152112 (2009).
12. S. G. Zybtev, V. Ya. Pokrovskii, V. F. Nasretdinova et al. (Collaboration), Phys. Rev. B **95**, 035110 (2017).
13. S. Conejeros, B. Guster, P. Alemany, J.-P. Pouget, and E. Canadell, Chem. Mater. **33**, 5449 (2021).
14. W. W. Pai, M. W. Chu, W. T. Chen, V. Ya. Pokrovskii, S. V. Zaitsev-Zotov, S. G. Zybtev, V. F. Nasretdinova, M. D. Ustenko, E. Zupanič, H. J. P. van Midden, M. van Midden, S. Sturm, A. Prodan, E. Tchernychova, and J. C. Bennett, *Труды XXII Международного симпозиума*, Нижний Новгород, издательство Нижегородского госуниверситета им. Н. И. Лобачевского (2018) т. 1, с. 285.
15. 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).
16. S. G. Zybtev, V. Ya. Pokrovskii, V. F. Nasretdinova, S. V. Zaitsev-Zotov, V. V. Pryadun, E. S. Kozlyakova, O. S. Volkova, A. N. Vasiliev, W. W. Pai, and D. Starešinič, Phys. Rev. B **99**, 235155 (2019).
17. Y. Nakata, K. Sugawara, A. Chainani, O. Hirofumi, C. Bao, S. Zhou, P.-Y. Chuang, Ch.-M. Cheng, T. Kawakami, Y. Saruta, T. Fukumura, S. Zhou, T. Takahashi, and T. Sato, Nat. Commun. **12**, 5873 (2021).
18. R. E. Thorne, W. G. Lyons, J. W. Lyding, J. R. Tucker, and J. Bardeen, Phys. Rev. B **35**, 6360 (1987).
19. J. Bardeen and M. Stephen, Phys. Rev. **136**, A1485 (1964).
20. R. M. Fleming, R. J. Cava, L. F. Schneemeyer, E. A. Rietman, and R. G. Dunn, Phys. Rev. B **33**, 5450 (1986).
21. G. Mihály, P. Beauchêne, J. Marcus, J. Dumas, and C. Schlenker, Phys. Rev. B **37**, 1047(R) (1988).
22. A. V. Frolov, A. P. Orlov, F. Gay, A. A. Sinchenko, and P. Monceau, Appl. Phys. Lett. **118**, 213102 (2021).
23. A. Prodan, H. van Midden, R. Žitko, E. Zupanič, J. Bennett, and H. Bohm, Solid State Commun. **150**, 2134 (2010).
24. M. A. van Midden, H. J. P. van Midden, A. Prodan, J. C. Bennett, and E. Zupanič, Phys. Rev. B **102**, 075442 (2020).
25. J. Richard, J. Chen, and S. N. Artemenko, Solid State Comm. **85**, 605 (1993).
26. A. A. Sinchenko and P. Monceau, Phys. Rev. B **87**, 045105 (2013).

Гиротропные колебания магнитных вихрей в двух взаимодействующих ферромагнитных дисках

Е. В. Скороходов⁺¹⁾, Д. А. Татарский^{++*}, Р. В. Горев⁺, В. Л. Миронов⁺, А. А. Фраерман⁺

⁺Институт физики микроструктур РАН, 603950 Н. Новгород, Россия

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

Поступила в редакцию 12 сентября 2022 г.

После переработки 4 декабря 2022 г.

Принята к публикации 8 декабря 2022 г.

В работе представлены результаты экспериментальных исследований и численного моделирования гиротропного движения вихревых распределений намагниченности в двух взаимодействующих ферромагнитных дисках. Методом магнитно-резонансной силовой спектроскопии изучена зависимость резонансной частоты коллективной гиротропной моды колебаний вихрей от расстояния между центрами дисков. Из данной зависимости на основе решений уравнения Тила, получена оценка энергии взаимодействия магнитных вихрей в зависимости от расстояния между дисками.

DOI: 10.31857/S123456782302012X, EDN: oexmcq

Явление ферромагнитного резонанса (ФМР) является основой для изучения эффектов магнитного взаимодействия в сложных системах на основе ферромагнетиков. В частности, большое количество работ посвящено изучению межслоевого взаимодействия в многослойных магнитных пленках [1–10]. Однако традиционные ФМР – спектрометры на основе высокочастотных резонаторов позволяют исследовать образцы только в квазиоднородном состоянии в сильном внешнем магнитном поле. Поэтому для изучения ФМР спектров неоднородных состояний в ферромагнитных наночастицах используют спектрометры на основе зауженной копланарной линии и векторного анализатора цепей [11–14]. Эта методика требует создания достаточно больших массивов идентичных элементов на сигнальной шине волновода, что представляет собой трудную технологическую задачу.

Для изучения колебаний намагниченности наносистем в неоднородном магнитном состоянии подходящим инструментом является магнитно-резонансная силовая микроскопия (МРСМ) [15–19]. Данный метод основан на регистрации магнитостатического взаимодействия магнитного зонда сканирующего зондового микроскопа с прецессирующей под действием внешнего сверхвысокочастотного (СВЧ) – поля намагниченностью ферромагнитного образца. МРСМ является высокочувствительным методом, позволяющим изучать спектры ФМР

отдельных ферромагнитных частиц в нулевом магнитном поле и не требует изготовления больших массивов частиц [20, 21].

Одной из важных задач ФМР диагностики является изучение гиротропных колебаний вихревого распределения намагниченности в ферромагнитных дисках субмикронного размера [22–25]. Это связано, прежде всего, с возможностью создания компактных СВЧ генераторов, в которых гиротропные колебания магнитных вихрей используются для модуляции тока через туннельные контакты за счет эффекта гигантского (туннельного) магнитосопротивления (так называемые вихревые спин-трансферные наносцилляторы (ВСТНО) [26–32]. Для получения достаточной генерируемой мощности необходимо синхронизировать несколько ВСТНО, что достигается за счет магнитостатического [33], либо обменного [34] взаимодействия между вихрями. При этом важнейшим параметром, определяющим степень фазовой синхронизации ВСТНО, является величина энергии взаимодействия магнитных вихрей. В настоящей работе представлены результаты МРСМ исследований и численного моделирования резонансных гиротропных колебаний магнитных вихрей в двух взаимодействующих ферромагнитных дисках.

1. Методика эксперимента и моделирование. Массив круглых дисков радиусом 550 нм с разными расстояниями между центрами (рис. 1) был изготовлен на тонкой (толщиной 170 нм) стеклянной подложке методами электронной литографии и ионного травления из пленки пермаллоя (толщи-

¹⁾e-mail: evgeny@ipmras.ru

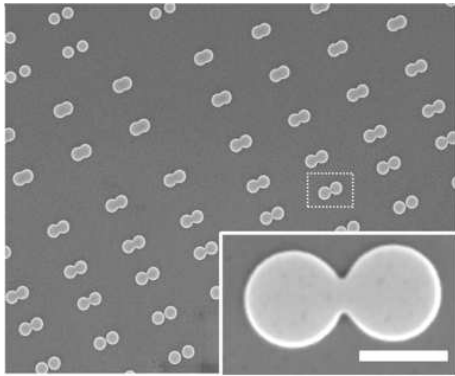


Рис. 1. Изображение в сканирующем электронном микроскопе массива ферромагнитных дисков. На вставке показано изображение двух дисков с перекрытием $v = -10\%$ (соответствует элементу массива, показанному на рисунке пунктирным контуром). Наличие перемычки между дисками связано с “эффектом близости” при изготовлении образцов методом электронной литографии. Размер масштабной метки – 1 мкм

ной 40 нм), полученной методом магнетронного осаждения. Размер образца составлял 3×3 мм. Радиус дисков и расстояния между центрами дисков определялись в сканирующем электронном микроскопе (СЭМ). Погрешность измерений составляла менее 20 нм.

Для удобства расстояние между дисками характеризовалось с помощью безразмерного параметра $v = \frac{2r-d}{2r} 100\%$ (r – радиус диска, d – расстояние между их центрами). В идеальном исполнении при отрицательных значениях $v < 0$ диски не перекрываются, а при положительных значениях $v > 0$ диски перекрываются. Однако в изготовленных нами структурах перекрытие дисков происходит при $v = -20\%$, поскольку из-за эффекта близости (переэкспонирование резиста) в узкой области между дисками формируется перешеек (см. вставку на рис. 1).

Предварительно образец намагничивался в сильном вертикальном магнитном поле (~ 10 кЭ) так, что вихри имели одинаковое направление коров. Контроль магнитных состояний осуществлялся с помощью магнитно-силового микроскопа (МСМ) “Solver Pro” (“NT-MDT Spectrum Instruments”). В качестве зондового датчика использовались стандартные кантилеверы NSG-01, покрытые слоем Со толщиной 30 нм. При МСМ измерениях применялась двухпроходная методика, в которой на первом проходе регистрировался рельеф поверхности образца, а на втором проходе – распределение изменения фазы колебаний кантилевера вдоль траектории, огибающей рельеф образца [35, 36].

МРСМ измерения проводились в микроскопе, разработанном в ИФМ РАН на базе вакуумного сканирующего зондового комплекса “Solver HV” (“NT-MDT Spectrum Instruments”) [37]. В качестве зондового датчика использовались кантилеверы CSG 10 (ScanSens, GmbH) с жесткостью 0.05 Н/м и резонансной частотой 23 кГц. На фронтальную грань пирамиды наносилась пленка Со (толщиной 100 нм). Измерения проводились в вакууме (давление остаточных газов 10^{-3} Торр), при этом добротность кантилевера составляла ~ 1000 . Зонд располагался над образцом на расстоянии 0.8 мкм в области между дисками.

Для СВЧ-накачки образца использовалась закороченная микрополосковая линия. На закороченной части образуется пучность переменного магнитного поля, куда и помещался исследуемый образец (рис. 2). Источником СВЧ излучения служил ши-

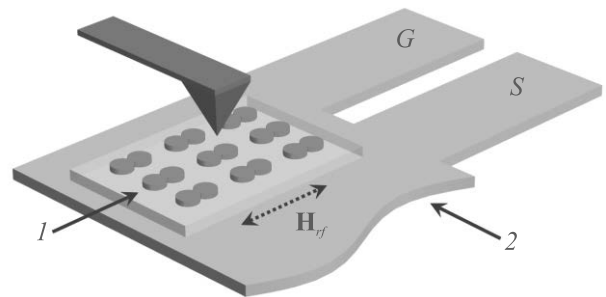


Рис. 2. (Цветной онлайн) Схема МРСМ эксперимента. 1 – Исследуемый образец; 2 – фрагмент закороченной копланарной линии

рокопосный перестраиваемый синтезатор частот SPS-20 (ООО “Спектран”, г. Саратов). СВЧ излучение модулировалось по амплитуде (глубина модуляции 100%) на частоте, соответствующей резонансной частоте кантилевера. В качестве выходного сигнала с помощью синхронного детектора регистрировалась амплитуда вынужденных колебаний кантилевера на частоте модуляции. Зависимости амплитуды колебаний от частоты СВЧ накачки записывались в качестве МРСМ спектров [37].

Образец ориентировался так, чтобы высокочастотное магнитное поле \mathbf{H}_{rf} было направлено в плоскости дисков, вдоль оси, соединяющей их центры (ось X) (см. рис. 3а). Также магнитные состояния и резонансные свойства взаимодействующих дисков моделировалось с помощью симулятора MuMax3, на основе численного решения уравнения Ландау–Лифшица [38, 39]. В расчетах использовались следующие материальные параметры пермаллоя: магнитный момент насыщения $M_s = 900$ Гс, обменная константа $J = 13 \times 10^{-7}$ эрг/см, константа анизотропии $K = 0$, параметр затухания $\alpha = 0.01$ и гиромагнит-

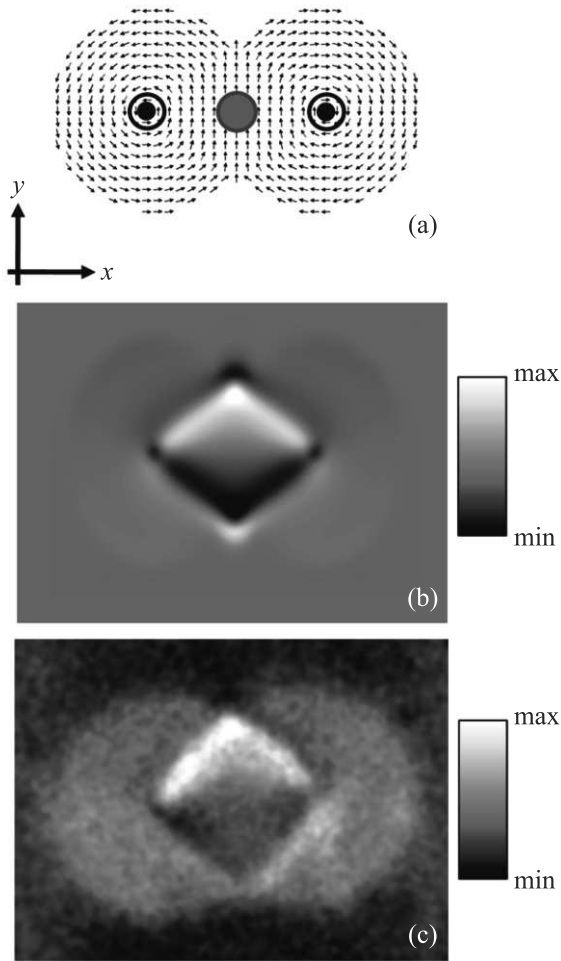


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Результат расчета распределения намагниченности в двух перекрывающихся дисках с магнитными вихрями, имеющими противоположные завихренности. Положение зонда над двойным диском отмечено темным кружком. (б) – Модельное распределение МСМ контраста для двух перекрывающихся дисков. (с) – Экспериментальное МСМ изображение. Перекрытие дисков $v = 20\%$

ное отношение $\gamma/2\pi = 2.95$ ГГц/кЭ. Для моделирования использовалась прямоугольная сетка размером $768 \times 256 \times 1$ с ячейкой $4.3 \times 4.3 \times 40$ нм³. Таким образом, размер ячейки в плоскости образца меньше обменной длины в пермаллое ≈ 5.7 нм. Для определения резонансных частот в численном эксперименте вместо изучения отклика системы на гармоническое внешнее поле, мы использовали кратковременное, фактически дельта-образное, воздействие. С этой целью к дискам с равновесным распределением намагниченности прикладывался импульс магнитного поля величиной 1 Э и длительностью 0.3 нс в направлении оси X. Спектр такого возмущения содер-

жит все возможные частоты (< 3 ГГц) и, в силу линейности рассматриваемой задачи, позволяет найти зависимость восприимчивости системы от частоты. Кор вихря совершает колебания, амплитуда которых уменьшается со временем в силу учета затухания в уравнении Ландау–Лифшица. На рисунке 4а представлена зависимость одной из компонент намагниченности образца $\langle M_x(t) \rangle$ (скобки здесь означают усреднение по образцу, состоящему из двух дисков с перекрытием 20%). Частота, при которой наблюдается максимальная амплитуда колебаний соответствует собственной частоте системы (рис. 4).

2. Результаты и обсуждение. При отрицательных перекрытиях $v < 0$ взаимодействие дисков имеет исключительно магнитостатическую природу. При положительном перекрытии $v > 0$ между дисками дополнительно включается обменное взаимодействие. В этом случае в дисках реализуется состояние, в котором вихри закручены в противоположные стороны. На рисунке 3а приведено модельное распределение намагниченности для дисков с перекрытием $v = 20\%$. В области перекрытия дисков образуется домен ромбической формы с квазиоднородной намагниченностью. Соответствующее данному распределению намагниченности модельное МСМ изображение представлено на рис. 3б. Аналогичное распределение МСМ контраста, соответствующее ромбическому домену, фиксируется на экспериментальном МСМ изображении системы перекрывающихся дисков (рис. 3с).

На рисунке 5 представлены результаты МРСМ измерений (треугольники) и численного моделирования (ромбы) резонансной частоты гиротропной моды колебаний вихрей в зависимости от степени перекрытия дисков. На вставке рис. 5, в качестве примера приведен экспериментальный МРСМ спектр для дисков с перекрытием $v = 20\%$. Разброс резонансных частот для различных пар дисков с одинаковым перекрытием составлял ± 5 МГц.

Из рисунка 5 видно, что резонансная частота гирации существенно уменьшается при сближении дисков, что является результатом как усиления дипольного взаимодействия, так и включения обменного взаимодействия между вихрями. Расчетная зависимость имеет перегиб в точке касания дисков, где в энергии взаимодействия между вихрями появляется обменная составляющая. На экспериментальной зависимости перегиб наблюдается в точке с перекрытием $v = -20\%$. Это связано с тем, что при изготовлении образцов из-за литографического “эффeкта близости” остается перемычка между дисками даже при отрицательных перекрытиях (см. вставку на рис. 1).

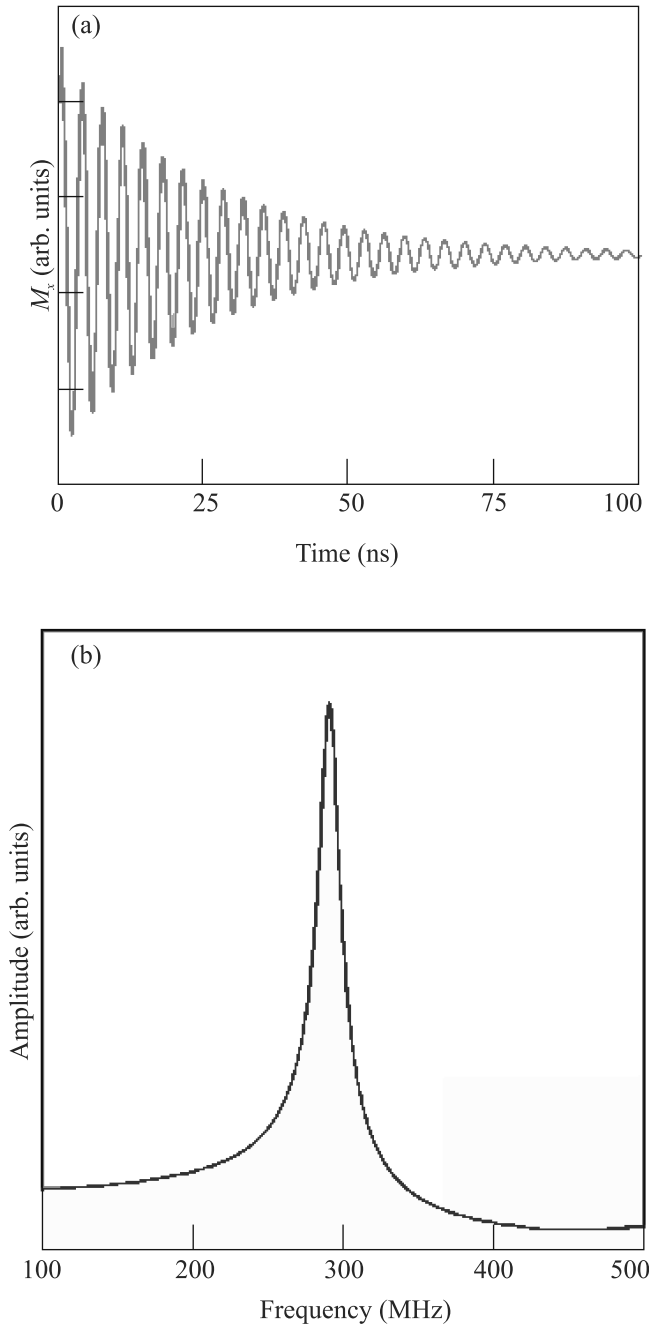


Рис. 4. (Цветной онлайн) Результаты расчета динамики намагниченности. (а) – Зависимость от времени средней по образцу x – компоненты намагниченности $\langle M_x(t) \rangle$ при кратковременном воздействии внешнего поля (см. текст) (б) – Фурье-спектр зависимости $\langle M_x(t) \rangle$. Данные приведены для дисков с перекрытием $\nu = 20\%$

Динамику двух взаимодействующих магнитных вихрей можно описывать с помощью уравнения Тила [40, 41].

$$\mathbf{G}_i \times \frac{\partial \mathbf{X}_i}{\partial t} - \frac{\partial W}{\partial \mathbf{X}_i} = 0, \quad (1)$$

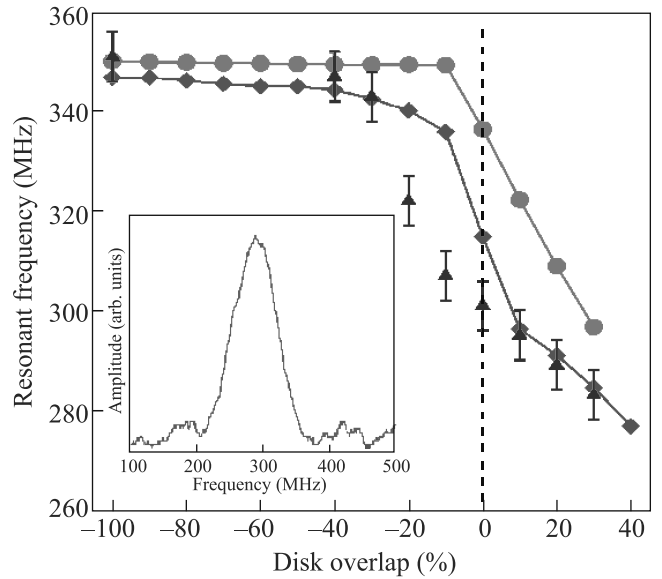


Рис. 5. (Цветной онлайн) Экспериментальная и численно рассчитанная зависимости резонансной частоты системы двух взаимодействующих магнитных вихрей от расстояния между центрами дисков. МPCM данные представлены треугольниками. На вставке показан экспериментальный МPCM спектр для дисков с перекрытием $\nu = 20\%$. Численно рассчитанные значения резонансных частот показаны ромбами, значения парциальных частот показаны кружками

где \mathbf{G}_i – гировектор i -го вихря, \mathbf{X}_i – вектор положения кора i -го вихря. Модуль гировектора оценивается по следующей формуле:

$$G = \frac{2\pi L M_s}{\gamma}, \quad (2)$$

где L – толщина диска, M_s – намагниченность насыщения ферромагнетика.

В рамках простой аналитической модели, в которой вихри считаются линейными осцилляторами, энергию системы можно записать в следующем виде [42]:

$$W = \frac{1}{2}\kappa_1 \mathbf{X}_1^2 + \frac{1}{2}\kappa_2 \mathbf{X}_2^2 + \mu(\mathbf{X}_1 \mathbf{X}_2), \quad (3)$$

где κ_1, κ_2 – коэффициенты “жесткости” каждого из вихрей; μ – коэффициент связи между вихрями. Если вихри считать одинаковыми ($\kappa_1 = \kappa_2 = \kappa$, $G_1 = G_2 = G$), то выражение для резонансной частоты гиротропной моды имеет простой вид

$$\omega_{\text{res}} = \frac{\kappa}{G} \pm \frac{\mu}{G}, \quad (4)$$

где жесткости κ и коэффициент связи μ являются функциями перекрытия ν . В формуле (4) первое

слагаемое является парциальной частотой $\omega_{\text{part}} = \kappa/G$. Значения парциальных частот в моделировании определялись следующим образом. При приложении сильного магнитного поля, локализованного в центре одного из дисков, кор соответствующего вихря жестко закреплялся и анализировалось гиротропное движение другого кора. На рисунке 5 зависимость парциальной частоты от перекрытия показана кружками. Разница между парциальной частотой и резонансной (нормальной) частотой определяет коэффициент связи μ . В эксперименте однородное СВЧ поле возбуждает лишь ту моду, в которой средние магнитные моменты вихрей колеблются в фазе. При этом, в силу различного направления завихренности, коры вихрей совершают противофазные колебания [43]. Частота этой моды соответствует знаку “-” в формуле (4). Поэтому коэффициент связи μ можно оценить следующим образом:

$$\mu = (\omega_{\text{part}} - \omega_{\text{res}})G. \quad (5)$$

Величина гировектора составляет $G \approx 1.3 \times 10^{-9} \text{ см(Гс)}^2/\text{Гц}$.

Отметим, что разница между резонансной и парциальной частотами, а следовательно, и коэффициент связи μ резко увеличивается в диапазоне перекрытий от -30 до -10% . Именно в этом диапазоне происходит переход от случая чисто магнитостатического взаимодействия к случаю, когда к магнитостатическому добавляется обменное взаимодействие. Для перекрытия 10% коэффициент связи достигает значения $\mu \approx 0.25 \text{ эрг/см}$.

Таким образом, методами МРСМ и численного моделирования исследовано влияние обменного взаимодействия на резонансные свойства системы двух взаимодействующих магнитных вихрей. В рамках простой аналитической модели получена оценка энергии взаимодействия между вихрями, которая показывает, что обменное взаимодействие при перекрытии дисков существенно увеличивает энергию связи вихрей, что можно использовать для фазовой синхронизации ВСТНО.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект # 21-12-00271).

Авторы выражают благодарность И. Ю. Пашенькину за помощь в изготовлении образцов.

1. S. M. Rezende, C. Chesman, M. A. Lucena, A. Azevedo, F. M. de Aguiar, and S. S. P. Parkin, *J. Appl. Phys.* **84**, 958 (1998).
2. A. B. Drovosekov, D. I. Kholin, N. M. Kreines, O. V. Zhotikova, and S. O. Demokritov, *J. Magn. Magn. Mater.* **226**, 1779 (2001).

3. E. S. Demidov, N. S. Gusev, L. I. Budarin, E. A. Karashtin, V. L. Mironov, and A. A. Fraerman, *J. Appl. Phys.* **120**, 173901 (2016).
4. Z. Zhang, L. Zhou, P. E. Wigen, and K. Ounadjela, *Phys. Rev. B* **50**, 6094(1994).
5. L. C. Nagamine, J. Geshev, T. Menegotto, A. A. R. Fernandes, A. Biondo, and E. B. Saitovitch, *J. Magn. Magn. Mater.* **288**, 205 (2005).
6. M. Belmeguenai, T. Martin, G. Woltersdorf, M. Maier, and G. Bayreuther, *Phys. Rev. B* **76**, 104414 (2007).
7. A. B. Drovosekov, D. I. Kholin, and N. M. Kreines, *Low Temp. Phys.* **36**, 808 (2010).
8. S. O. Demokritov, E. Tsybal, P. Grunberg, W. Zinn, and I. K. Schuller, *Phys. Rev. B* **49**, 720 (1994).
9. A. F. Kravets, A. N. Timoshevskii, B. Z. Yanchitsky, M. A. Bergmann, J. Buhler, S. Andersson, and V. Korenivski, *Phys. Rev. B* **86**, 214413 (2012).
10. D. Schwenk, F. Fishman, and F. Schwabl, *Phys. Rev. B* **38**, 11618 (1988).
11. R. Dutra, D. E. Gonzalez-Chavez, T. L. Marcondes, R. L. Sommer, S. O. Parreiras, and M. D. Martins, *Phys. Rev. B* **99**, 014413 (2019).
12. D. E. Gonzalez-Chavez, R. Dutra, W. O. Rosa, T. L. Marcondes, A. Mello, and R. L. Sommer, *Phys. Rev. B* **88**, 104431 (2013).
13. F. G. Aliev, A. A. Awad, D. Dieleman, A. Lara, V. Metlushko, and K. Y. Guslienko, *Phys. Rev. B* **84**, 144406 (2011).
14. R. V. Verba, A. Hierro-Rodriguez, D. Navas, J. Ding, X. M. Liu, A. O. Adeyeye, K. Y. Guslienko, and G. N. Kakazei, *Phys. Rev. B* **93**, 214437 (2016).
15. J. A. Sidles, *Appl. Phys. Lett.* **58**, 2854 (1991).
16. O. Klein, G. de Loubens, V. V. Naletov, F. Boust, T. Guillet, H. Hurdequint, A. Leksikov, A. N. Slavin, V. S. Tiberkevich, and N. Vukadinovic, *Phys. Rev. B* **78**, 144410 (2008).
17. H.-J. Chia, F. Guo, L. M. Belova, and D. McMichael, *Phys. Rev. B* **86**, 184406 (2012).
18. F. Guo, L. M. Belova, and D. McMichael, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 017601 (2013).
19. D. Rugar, O. Zuger, S. Hoen, C. S. Yannoni, H. M. Vieth, and R. D. Kendrick, *Science* **264**, 1560 (1994).
20. B. Pigeau, G. de Loubens, O. Klein, A. Riegler, F. Lochner, G. Schmidt, and L. W. Molenkamp, *Nat. Phys.* **7**, 2631 (2011).
21. B. Pigeau, G. de Loubens, O. Klein, A. Riegler, F. Lochner, G. Schmidt, L. W. Molenkamp, V. S. Tiberkevich and A. N. Slavin, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 132506 (2010).
22. N. A. Usov and S. E. Peschany, *Phys. Met. Metall.* **12**, 13 (1994).
23. K. Y. Guslienko, V. Novosad, Y. Otani, H. Shima, and K. Fukamichi, *Phys. Rev. B* **65**, 024414 (2001).

24. K. L. Metlov and K. Y. Guslienko, *J. Magn. Magn. Mater.* **242**, 1015 (2002).
25. R. Lehdorff, D. E. Beurgler, S. Gliga, R. Hertel, P. Grünberg, C. M. Schneider, and Z. Celinski, *Phys. Rev. B* **80**, 054412 (2009).
26. V. S. Pribiag, I. N. Krivorotov, G. D. Fuchs, P. M. Braganca, O. Ozatay, J. C. Sankey, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, *Nat. Phys.* **3**, 498 (2007).
27. Q. Mistral, M. van Kampen, G. Hrkac, J.-V. Kim, T. Devolder, P. Crozat, C. Chappert, L. Lagae, and T. Schrefl, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 257201 (2008).
28. A. Dussaux, B. Georges, J. Grollier, V. Cros, A. V. Khvalkovskiy, A. Fukushima, M. Konoto, H. Kubota, K. Yakushiji, S. Yuasa, K. A. Zvezdin, K. Ando, and A. Fert, *Nat. Commun.* **1**, 8 (2010).
29. S. Petit-Watelot, J.-V. Kim, A. Ruotolo, R. M. Otxoa, K. Bouzehouane, J. Grollier, A. Vansteenkiste, B. van de Wiele, V. Cros, and T. Devolder, *Nat. Phys.* **8**, 682 (2012).
30. A. Slavin and V. Tiberkevich, *IEEE Trans. on Magnetics* **45**, 1875 (2009).
31. Z. Li, Y. C. Li, and S. Zhang, *Phys. Rev. B* **4**, 054417 (2006).
32. M. R. Pufall, W. H. Rippard, S. E. Russek, S. Kaka, and J. A. Katine, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 087206 (2006).
33. A. N. Slavin and V. S. Tiberkevich, *Phys. Rev. B* **74**, 104401 (2006).
34. D. V. Berkov and N. L. Gorn, *Phys. Rev. B* **76**, 144414 (2007).
35. В. Л. Миронов, *Основы сканирующей зондовой микроскопии*, Техносфера, М. (2004).
36. T. Shinjo, T. Okuno, R. Hassdorf, K. Shigeto, and T. Duo, *Science* **289**, 930 (2000).
37. Е. В. Скороходов, М. В. Сапожников, А. Н. Резник, В. В. Поляков, В. А. Быков, А. П. Володин, В. Л. Миронов, *Приборы и техника эксперимента* **5**, 140 (2018).
38. A. Vansteenkiste, J. Leliaert, M. Dvornik, M. Helsen, F. Garcia-Sanchez, and B. van Waeyenberge, *AIP Adv.* **4**, 107133 (2014).
39. D. A. Tatarskiy, V. L. Mironov, E. V. Skorokhodov, and A. A. Fraerman, *J. Magn. Magn. Mat.* **522**, 169152 (2022).
40. A. A. Thiele, *J. Appl. Phys.* **45**, 377 (1974).
41. K. Yu. Guslienko, K. S. Buchanan, S. D. Bader, and V. Novosad, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 223112 (2005).
42. К. А. Звездин, Е. Г. Екомасов, *Физика металлов и металловедение* **123**(3), 219 (2022).
43. V. L. Mironov, D. A. Tatarskiy, A. D. Efimov, and A. A. Fraerman, *IEEE Trans. Magn.* **57**, 4300906 (2021).

Логарифмическая релаксация неравновесного состояния волны зарядовой плотности в соединениях TbTe₃ и HoTe₃

А. В. Фролов⁺¹⁾, А. П. Орлов^{+*}, Д. М. Воропаев^{+×}, А. Хадж-Аззем^{°2)}, А. А. Синченко⁺, П. Монсо⁺²⁾

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

^{*}Институт нанотехнологий микроэлектроники РАН, 115487 Москва, Россия

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

[°]Université Grenoble Alpes, CNRS, Grenoble INP, Institut Néel, 38042 Grenoble, France

Поступила в редакцию 24 ноября 2022 г.

После переработки 6 декабря 2022 г.

Принята к публикации 8 декабря 2022 г.

Выполнены измерения электронного транспорта, в том числе динамических свойств волны зарядовой плотности в квазидвумерном соединении HoTe₃. Обнаружены и изучены эффекты медленной релаксации неравновесного состояния волны зарядовой плотности при изотермической выдержке в режиме нулевого тока, наблюдаемые ранее в TbTe₃. Значительное увеличение времени выдержки позволило наглядно продемонстрировать, что релаксационные зависимости имеют логарифмический вид; изучены особенности релаксации в разных температурных и временных диапазонах. Полученные данные указывают на стекольное поведение системы центров пиннинга волны зарядовой плотности в трителлуридах редкоземельных атомов.

DOI: 10.31857/S1234567823020131, EDN: ofsutk

Введение. Волна зарядовой плотности (ВЗП), которая долгие годы изучалась в основном в квазиодномерных соединениях [1], в последнее время находит все новые и новые проявления в квазидвумерных системах [2]. Свойства “двумерной” ВЗП, несмотря на общие сходства с одномерными системами, имеют достаточно много оригинальных особенностей, требующих глубокого изучения и теоретического объяснения [3]. Одной из немногих квазидвумерных систем, в которой наблюдаются практически все основные эффекты ВЗП, являются соединения, относящиеся к классу трителлуридов редкоземельных элементов и имеющие формулу RTe₃ (R: La, Ce, Pr, Nd, Gd, Tb, Dy, Er, Tm). Соединения данной группы привлекают значительное внимание благодаря обнаружению в них различных коллективных квантовых состояний: сверхпроводимости [4, 5], нескольких типов волн зарядовой плотности [6, 7] и магнитного упорядочения [8, 9], а также их взаимодействия/конкуренции друг с другом [10, 11].

Перечисленные выше соединения семейства RTe₃ имеют одинаковую кристаллическую структуру, а также близкий уровень заполнения энергетических зон. Параметры решетки монотонно возрастают с

увеличением атомного номера редкоземельного элемента, что обуславливает монотонность целого ряда свойств системы: анизотропии в плоскости слоев, векторов волны зарядовой плотности, температуры ВЗП-переходов и даже стабильности под воздействием атмосферы. Таким образом, замена редкоземельного атома на более легкий/тяжелый эквивалентна созданию так называемого химического давления в системе [6, 7] и позволяет тонко настраивать ее свойства, в том числе параметры волны зарядовой плотности.

В данных соединениях отчетливо наблюдаются и наиболее интересные динамические эффекты ВЗП: коллективный перенос заряда (“скольжение” ВЗП) и синхронизация ВЗП внешним электрическим полем (ступени Шапиро) [12–14]. Как и в квазиодномерных системах, эффект скольжения ВЗП проявляется в резком возрастании проводимости при приложении электрического поля выше определенной пороговой величины E_t , определяемой пиннингом – “сцеплением” волны зарядовой плотности с дефектами.

Недавно в соединении TbTe₃ был обнаружен ряд необычных крайне медленных релаксационных эффектов (характерное время релаксации – десятки часов), связанных с коллективным движением ВЗП: при изотермической выдержке образца наблюдался рост порогового поля с насыщением [15, 16]. Измене-

¹⁾ e-mail: fralek@mail.ru

²⁾ А. Hadj-Azzem, P. Monceau.

нием величины порогового поля можно было управлять с помощью внешних факторов: тока и температуры [17, 18]. Эффекты, по-видимому, связанные с динамикой центров пиннинга, имеют много общего с релаксационными процессами в стекольных системах, однако природа их по-прежнему неясна, особенно на микроскопическом уровне.

Логичным следующим шагом в изучении обнаруженных релаксационных процессов является их поиск в другом соединении данного класса, что и было сделано в данной работе. В качестве такого соединения был выбран HoTe_3 . Выбор обусловлен рядом факторов:

1. Гольмий – один из элементов, наиболее близких по свойствам к тербию: их атомные номера 67 и 65, молярные массы отличаются на несколько процентов, радиусы – на доли процентов. Соответственно, ожидаются близкие свойства соединений, что позволяет использовать отработанные для TbTe_3 технологии изготовления образцов и измерительные методики.

2. Также благоприятен тот факт, что ВЗП-переход в соединении HoTe_3 происходит при $T_{CDW1} = 285 \text{ K}$ [7] – чуть ниже комнатной температуры. Это позволило исследовать образцы, которые до начала измерений никогда не претерпевали переход в состояние с ВЗП. В соединении TbTe_3 ($T_{CDW1} = 336 \text{ K}$ [7]) в результате хранения кристаллов при комнатной температуре образовывалось состояние с повышенным пиннингом, которое наблюдалось на температурной зависимости порогового поля в виде максимума при 295–300 K, и следы которого сохранялись даже после длительного отжига образца.

В обоих соединениях TbTe_3 и HoTe_3 наблюдаются как высокотемпературная, так и низкотемпературная ВЗП. Волновые векторы обеих ВЗП лежат в плоскости слоев, перпендикулярно друг другу: $\mathbf{Q}_{CDW1} = (0, 0, 0.296)$, $\mathbf{Q}_{CDW2} = (0.32, 0, 0)$. Температуры переходов низкотемпературной ВЗП: $T_{CDW2} = 41 \text{ K}$ в TbTe_3 [19] и 110 K в HoTe_3 [7].

Эксперимент. Были проведены транспортные измерения (сопротивление, вольт-амперные характеристики) мостиков HoTe_3 в диапазоне температур 77–350 K. Образцы изготавливались следующим образом [20, 17]: из монокристаллов HoTe_3 , выращенных методом self-flux [12] и прикрепленных к сапфировой подложке тонким слоем клея Stycast, изготавливались пленки субмикронной толщины методом микромеханического расщепления. Качество кристаллов контролировалось с помощью рентгеновской дифракции, а гладкость и однород-

ность отщепляемых пленок – посредством оптического микроскопа Carl Zeiss Axio Imager A2 в режиме дифференциально-интерференционного контраста. Использование сапфира с двусторонней полировкой в качестве подложки оказалось крайне удачным для образцов такого типа ввиду, во-первых, его высокой теплопроводности, а во-вторых, из-за возможности оптического контроля качества поверхности с обеих сторон пленки. Также нам удалось уменьшить толщину клеевого слоя до долей микрона, о чем свидетельствует наличие структуры типа колец Ньютона при наблюдении поверхности образца со стороны подложки.

Из полученных пленок сфокусированным ионным пучком (*focused ion beam*, FIB) вырезались мостиковые структуры длиной 20–250 мкм и шириной 8–100 мкм. Использование FIB позволило изготовить мостики четырехконтактной геометрии с ровными краями, ориентированные с высокой точностью вдоль направления волнового вектора \mathbf{Q}_{CDW1} . После резки область мостика инкапсулировалась тонким слоем полимера. Электрические контакты изготавливались лазерной абляцией золота и холодной пайкой индия. HoTe_3 менее устойчив к воздействию атмосферы, чем TbTe_3 : уже через несколько часов наблюдаются признаки деградации поверхности. Разработанная нами методика изготовления образцов с использованием вакуумных систем (FIB, установка лазерного напыления, эксикаторы) и инкапсуляции позволила сократить время взаимодействия рабочей области образца с атмосферой до десятков минут.

Проводимость и вольт-амперные характеристики (ВАХ) структур измерялись четырехконтактным методом с использованием прецизионного источника-измерителя тока Keysight B2912A и нановольтметра Keysight 34420A. Все измерения проводились в инертной атмосфере гелия.

В рамках данного эксперимента было изготовлено и измерено 11 мостиковых структур. Эффекты, описанные ниже, наблюдались на всех образцах. В работе представлены результаты, полученные на образце с наименьшими значениями удельного сопротивления и порогового поля – мостике длиной $l = 100$ мкм, шириной $w = 23.5$ мкм и толщиной $t = 800$ нм.

В HoTe_3 , как и в TbTe_3 , при выдержке образца при определенной температуре ниже ВЗП-перехода наблюдается изменение порогового поля со временем. В настоящей работе были последовательно измерены серии ВАХ в процессе выдержки при температурах 200, 220, 240, 260 и 280 K, аналогично [16]. В рамках одной серии образец охлаждался от тем-

пературы $T_{\text{анн}} > T_{CDW1}$ до заданной температуры экспозиции T_{exp} и затем изотермически выдерживался при T_{exp} в течение длительного времени, до 210 ч. В процессе выдержки измерялись пороговые вольт-амперные характеристики (ВАХ) через определенные промежутки времени, от 10 до 120 мин. Между измерениями ВАХ для контроля за процессом выдержки записывалась временная зависимость сопротивления образца на токе $I_{\text{exp}} = 10$ мкА. Пропускание через образец тока, много меньшего порогового тока скольжения ВЗП ($I_{CDW} > 300$ мкА), не влияет на процесс временной эволюции ВАХ [17], тем самым, эквивалентно режиму выдержки в режиме нулевого тока. Величина порогового поля $E_t = V_t/l$, соответствующего началу скольжения ВЗП, определялась по резкому излому на зависимости $dV/dI(V)$, получаемой численным дифференцированием.

Результаты и обсуждение. Типичный вид пороговых ВАХ до и после длительной изотермической выдержки при разных температурах T_{exp} показан на рис. 1а. Пороговое поле в процессе выдержки возрастало от двух до пяти раз (рис. 1б). При этом величина сопротивления, соответствующего режиму статической ВЗП, оставалась неизменной (рис. 1а). После завершения процесса выдержки производился кратковременный отогрев образца до $T_{\text{анн}} = 300$ К $> T_{CDW1}$ с последующим охлаждением до следующей температуры T_{exp} . Примечательно, что после кратковременного нагрева и охлаждения образца до одной и той же температуры T_{exp} пороговые ВАХ полностью воспроизводились, независимо от температуры и длительности процесса выдержки, предшествующего нагреву. Восстановление исходного вида ВАХ посредством кратковременного нагрева наблюдалось в обоих соединениях TbTe₃ и HoTe₃ и указывает на то, что процесс роста порогового поля не является диффузионным. Увеличение пиннинга из-за диффузии мобильных дефектов недавно наблюдалось в квазиодномерном соединении TaS₃ [21, 22].

Эволюция порогового поля при разных температурах в диапазоне 200–280 К (рис. 2а) имеет вид, аналогичный наблюдавшемуся ранее [16] – рост порогового поля, замедляющийся со временем. В работе [16] предполагалось, что зависимость порогового поля имеет вид $E_t(t) = E_0 - (E_0 - E_{t0}(t=0))e^{-t/\tau}$ – величина E_t стремится асимптотически к величине насыщения E_0 (вставка к рис. 2б). Для более точного определения значения E_0 было существенно увеличено время выдержки. Однако насыщения не наблюдалось даже после 150–200 ч выдержки.

После перестройки графиков в логарифмическом масштабе по оси X зависимости приобретают линей-

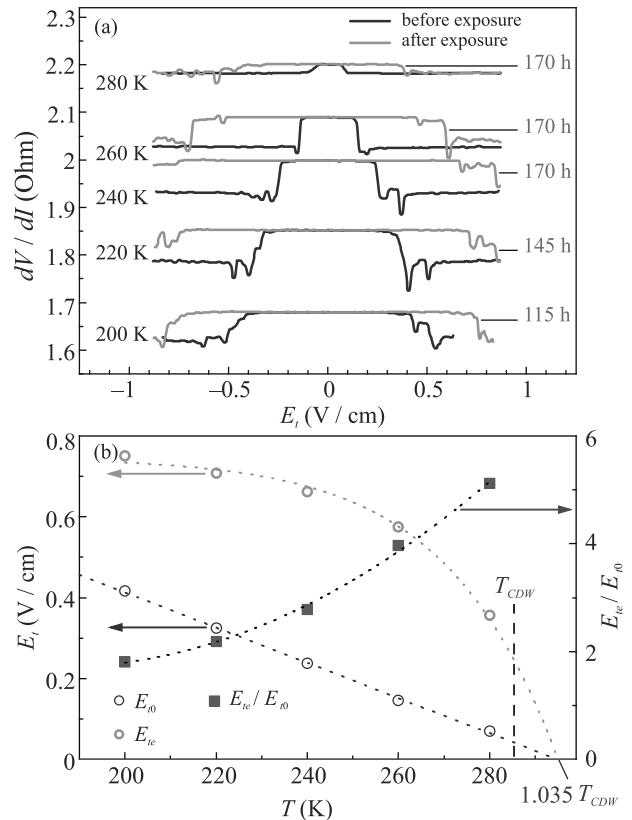


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Пороговые зависимости дифференциального сопротивления микромостика HoTe₃ от величины электрического поля при разных температурах до и после длительной изотермической выдержки. (б) – Температурные зависимости порогового поля до и после выдержки, $E_{t0}(t = 0)$ и $E_{te}(t = t_{\text{exp}})$, и их отношение E_{te}/E_{t0} , показывающее, во сколько раз выросло пороговое поле за время выдержки. Пунктирные кривые проведены для ориентира

ный вид (рис. 3), что соответствует эволюции порогового поля по закону $E_t(t) \sim \lg(t/\tau)$. На вставке к рис. 2 можно увидеть, что релаксационная зависимость для TbTe₃ при 280 К напоминает логарифмическую, однако из-за недостаточного времени экспозиции был сделан вывод о выходе зависимостей в режим насыщения. Новые результаты для HoTe₃ позволили наглядно продемонстрировать, что процесс релаксации имеет более сложный вид.

Логарифмический закон релаксации часто встречается в сложных сильно неупорядоченных системах: обычные [23] и спиновые [24] стекла, андерсоновские диэлектрики [25], а также в биологических объектах, например, в ДНК [26] или в корнях кукурузы [27]. Элементы в таких системах, как правило, сильно взаимодействуют между собой на микроуровне, при этом взаимодействие сильно зависит от истории системы. Нейроны в мозгу человека, как из-

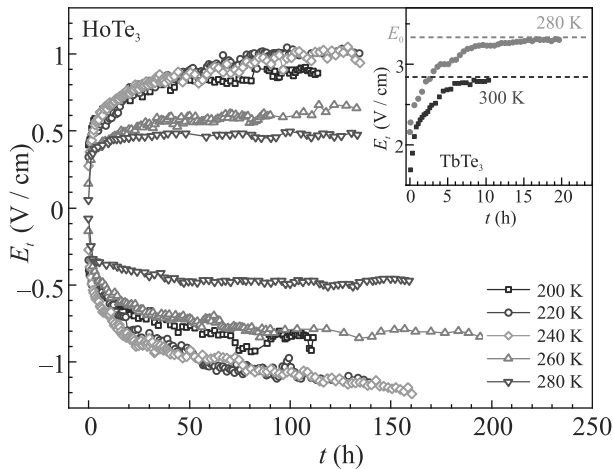


Рис. 2. (Цветной онлайн) Эволюция порогового поля в HoTe_3 в процессе изотермической выдержки для разных значений температур выдержки. На вставке – похожие зависимости, полученные в работе [16] для соединения TbTe_3

вестно, тесно взаимосвязанные друг с другом, также имеют логарифмическое распределение [28].

В обоих соединениях на релаксационной зависимости (рис. 3а, б) прослеживается наличие двух временных отрезков с разными углами наклона. В HoTe_3 переход отчетливо виден для большинства температур (рис. 3б), при этом точка излома для разных температур практически одна и та же: $t_b \approx 10$ ч.

Изменение наклона логарифмической зависимости часто наблюдается в различных стекольных системах и обычно связано с явлением “старения” [29] – зависимости релаксационного поведения системы от времени t_w нахождения в состоянии, предворяющем процесс релаксации. Причем время t_b , при котором наблюдается излом, как правило, коррелирует с временем старения, $t_b \approx t_w$.

В рамках данного эксперимента не наблюдается характерных времен масштаба 10 ч: процесс охлаждения до заданной температуры T_{exp} занимает не более 30 мин, а время стабилизации температуры перед началом серии измерений и вовсе не превышает нескольких минут. Вероятно, возникновение излома на релаксационной зависимости прямо не связано с процессом старения. В то же время вопрос существования в нашей системе эффектов старения остается открытым. Старение неразрывно связано со стекольными системами, поэтому его экспериментальное обнаружение могло бы прояснить природу неравновесного состояния в соединениях RTe_3 .

Еще одна особенность, которую можно наблюдать на рис. 3: рост порогового поля максимален при промежуточных значениях температур. Для всех ре-

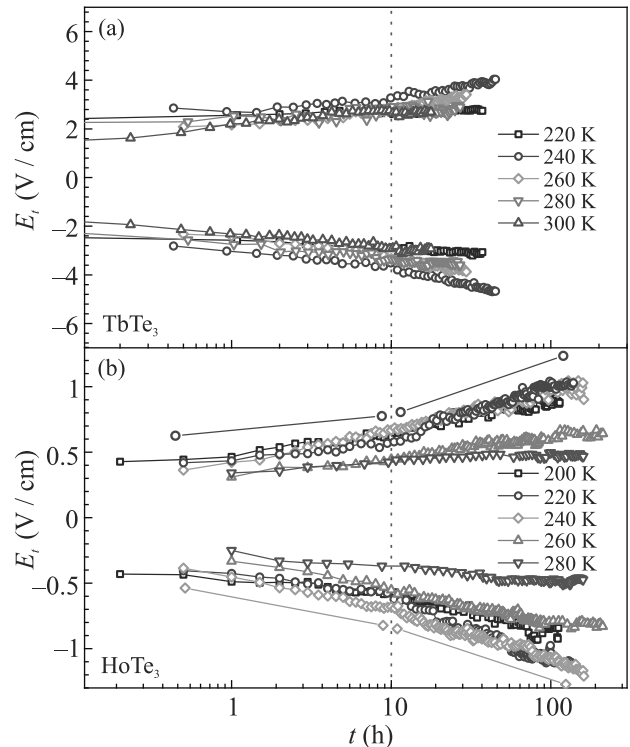


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости временной эволюции порогового поля при разных температурах, построенные в логарифмическом масштабе по оси x . (а) – В TbTe_3 , данные из работы [16]. (б) – В HoTe_3 , данные рис. 2. Вертикальной пунктирной линией показана условная граница между двумя временными участками с разными значениями угла наклона, $t_b \approx 10$ ч. Прямые линии (б) показывают, как изменяется угол наклона на разных участках для отдельных зависимостей соответствующего цвета (220 К, $E_t > 0$ и 240 К, $E_t < 0$)

лаксационных кривых на рис. 3а и б были определены значения углов наклона $dE_t/d \lg t$ для обоих временных диапазонов. На зависимостях полученных величин от температуры выдержки (рис. 4а), как и ожидалось, наблюдается максимум в центральной части, на 50–80 К ниже температуры ВЗП-перехода T_{CDW1} . Для соединения TbTe_3 максимум располагается выше по температуре примерно на 30 К.

Возникновение максимума на зависимости скорости роста порогового поля от температуры несмотря на то, что другие параметры соединений RTe_3 (сопротивление, пороговое поле) ведут себя монотонно в данном диапазоне температур, может показаться неожиданным, однако есть несколько возможных причин замедления скорости роста E_t как при высоких, так и при низких температурах.

При охлаждении происходит естественное замедление тепловых процессов, в том числе и в систе-

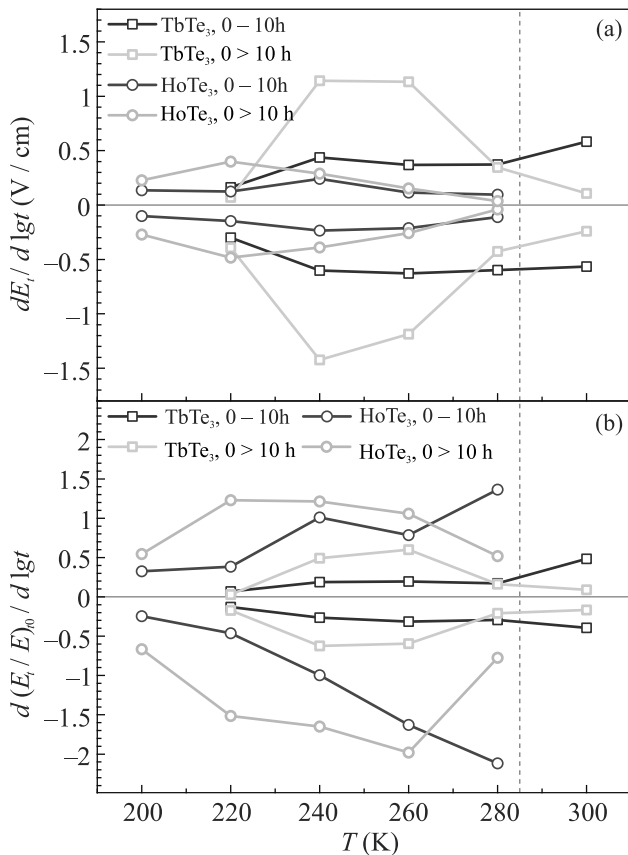


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость углов наклона, извлеченных из графиков 3а, b, для соединений TbTe_3 и HoTe_3 , для двух временных диапазонов. Пунктирной линией показана температура ВЗП-перехода в HoTe_3 , $T_{CDW1} = 285$ К (в TbTe_3 $T_{CDW1} = 336$ К находится за пределами графика)

ме ВЗП. Если предполагать, что система центров пиннинга находится в сильно неупорядоченном стекловом состоянии, которое, как известно, является неравновесным, и происходит медленная релаксация к состоянию равновесия, то уменьшение температуры приводит к увеличению времени перехода между метастабильными состояниями пиннинга и, тем самым, сильному замедлению процесса релаксации. Замедление роста E_t при высоких температурах, вероятно, связано с близостью к переходу ВЗП – флуктуации разрушают неравновесное состояние (схожие явления наблюдались и в спиновых стеклах).

В соединениях RTe_3 , в отличие от одномерных материалов с ВЗП, температурная зависимость порогового поля, $E_{t0}(T)$, имеет строгий линейный вид (рис. 1б), [13] несмотря на то, что величина E_{t0} является неравновесной. На данный момент не существует теоретической модели, объясняющей наблюдаемую линейную зависимость. Примечательно, что температурная зависимость порогового поля после

длительной экспозиции и, соответственно, сильного замедления процесса релаксации $E_{te}(T)$ на рис. 1б имеет совершенно другой вид, напоминающий типичную зависимость щели ВЗП от температуры. Отметим также, что если обе зависимости интерполировать в область низких температур, то возможно их пересечение при температуре $100 < T < 120$ К, вблизи $T_{CDW2} = 110$ К.

Учитывая, что в HoTe_3 значения E_{t0} при 200 и 280 К отличаются практически на порядок, было решено проанализировать, как меняется с температурой не только абсолютная величина порогового поля, но и ее отношение к начальному неравновесному значению, E_t/E_{t0} . На рисунке 4б показана зависимость величины $d(E_t/E_{t0})/d\ln t$ при разных температурах для обоих соединений. На начальном временном участке скорость роста E_t/E_{t0} монотонно увеличивается с повышением температуры выдержки, в то время как при T_{exp} , близким к T_{CDW} , после ~ 10 ч выдержки рост E_t/E_{t0} практически останавливается. Возможно, при температурах, близких к переходу ВЗП, образование полностью упорядоченной структуры центров пиннинга невозможно из-за флуктуаций, в результате чего в процессе релаксации образуется квазиравновесное состояние с пиннингом, близким к максимальному значению для заданной температуры выдержки. Зависимости на рис. 4б имеют схожий вид для обоих соединений.

Один из основных вопросов, связанных с обнаружением неравновесного состояния ВЗП в соединениях RTe_3 : является ли эволюция величины E_t изменением параметров пиннинга, определяющего E_{t0} , или образуется пиннинг нового типа? Полученные результаты показывают, что скорость роста порогового поля в процессе релаксации слабо коррелирует с величиной начального значения порогового поля E_{t0} , что является указанием к образованию и эволюции в соединениях RTe_3 особого типа пиннинга. Поскольку проводимость образцов и температура ВЗП-перехода не изменяются в процессе изотермической выдержки, наблюдаемая эволюция порогового поля может быть обусловлена только трансформациями в подсистеме ВЗП. Наиболее вероятно, таковым может быть перестройка макроструктуры ВЗП, например, образование и эволюция специфической доменной структуры. Выяснение природы наблюдаемого эффекта требует проведения новых исследований.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда, проект # 22-22-00331.

1. G. Grüner, Rev. Mod. Phys. **60**, 1129 (1988).
2. P. Monceau, Adv. Phys. **61**, 325 (2012).

3. X. Zhu, Y. Cao, J. Zhang, E. W. Plummer, and J. Guo, *Proceedings of the National Academy of Sciences* **112**, 2367 (2015).
4. D. A. Zocco, J. J. Hamlin, K. Grube, J.-H. Chu, H.-H. Kuo, I. R. Fisher, and M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **91**, 205114 (2015).
5. J. J. Hamlin, D. A. Zocco, T. A. Sayles, M. B. Maple, J. H. Chu, and I. R. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 177002 (2009).
6. E. DiMasi, M. C. Aronson, J. F. Mansfield, B. Foran, and S. Lee, *Phys. Rev. B* **52**, 14516 (1995).
7. N. Ru, C. L. Condrón, G. Y. Margulis, K. Y. Shin, J. Laverock, S. B. Dugdale, M. F. Toney, and I. R. Fisher, *Phys. Rev. B* **77**, 035114 (2008).
8. Y. Iyeiri, T. Okumura, C. Michioka, and K. Suzuki, *Phys. Rev. B* **67**, 144417 (2003).
9. N. Ru, J.-H. Chu, and I. R. Fisher, *Phys. Rev. B* **78**, 012410 (2008).
10. E. A. Nowadnick, S. Johnston, B. Moritz, R. T. Scalettar, and T. P. Devereaux, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 246404 (2012).
11. B. F. Hu, B. Cheng, R. H. Yuan, T. Dong, and N. L. Wang, *Phys. Rev. B* **90**, 085105 (2014).
12. A. A. Sinchenko, P. Lejay, and P. Monceau, *Phys. Rev. B* **85**, 241104 (2012).
13. A. Sinchenko, P. Lejay, O. Leynaud, and P. Monceau, *Solid State Commun.* **188**, 67 (2014).
14. A. A. Sinchenko, P. Lejay, O. Leynaud, and P. Monceau, *Phys. Rev. B* **93**, 235141 (2016).
15. A. V. Frolov, A. P. Orlov, A. A. Sinchenko, and P. Monceau, *JETP Lett.* **109**, 203 (2019).
16. A. V. Frolov, A. P. Orlov, A. Hadj-Azzem, P. Lejay, A. A. Sinchenko, and P. Monceau, *Phys. Rev. B* **101**, 155144 (2020).
17. A. V. Frolov, A. P. Orlov, D. M. Voropaev, A. Hadj-Azzem, A. A. Sinchenko, and P. Monceau, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 253102 (2021).
18. A. Frolov, A. Orlov, D. Voropaev, V. Shakhunov, A. Sinchenko, and P. Monceau, in *2021 IEEE International Conference on Manipulation, Manufacturing and Measurement on the Nanoscale (3M-NANO)*, Xi'an, China, IEEE (2021), p. 457.
19. A. Banerjee, Y. Feng, D. M. Silevitch, J. Wang, J. C. Lang, H.-H. Kuo, I. R. Fisher, and T. F. Rosenbaum, *Phys. Rev. B* **87**, 155131 (2013).
20. A. V. Frolov, A. P. Orlov, P. D. Grigoriev, V. N. Zverev, A. A. Sinchenko, and P. Monceau, *JETP Lett.* **107**, 488 (2018).
21. V. E. Minakova, A. M. Nikitina, and S. V. Zaitsev-Zotov, *JETP Lett.* **110**, 62 (2019).
22. V. E. Minakova, A. M. Nikitina, and S. V. Zaitsev-Zotov, *JETP Lett.* **112**, 346 (2020).
23. M. D. Ediger, C. A. Angell, and S. R. Nagel, *J. Phys. Chem.* **100**, 13200 (1996).
24. K. Binder and A. P. Young, *Rev. Mod. Phys.* **58**, 801 (1986).
25. A. Vaknin, Z. Ovadyahu, and M. Pollak, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3402 (2000).
26. E. B. Brauns, M. L. Madaras, R. S. Coleman, C. J. Murphy, and M. A. Berg, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 158101 (2002).
27. K. Büntemeyer, H. Lüthen, and M. Böttger, *Planta* **204**, 515 (1998).
28. G. Buzsáki and K. Mizuseki, *Nat. Rev. Neurosci.* **15**, 264 (2014).
29. V. S. Dotsenko, *Phys.-Uspekhi* **36**, 455 (1993).

Содержание

Том 117, выпуск 1

Поля, частицы, ядра

- Шитов М.И., Камерджиев С.П., Толоконников С.В.** Динамические корреляции в основном состоянии: переходы между однофононными состояниями ядра 3

Оптика, лазерная физика

- Архипов Р.М., Архипов М.В., Пахомов А.В., Образцов П.А., Розанов Н.Н.** Униполярные и субцикловые предельно короткие импульсы: последние результаты и перспективы (Миниобзор) 10

- Ушаков Н.А., Маковецкая Т.А., Маркварт А.А., Лиюкумович Л.Б.** Теоретические основы квантовой спектральной оптической когерентной томографии с частотным сканированием 29

- Майдыковский А.И., Апостолов Д.А., Мамонов Е.А., Копылов Д.А., Дагесян С.А., Мурзина Т.В.** Двухфотонная лазерная печать функциональных микроструктур интегральной фотоники: волноводов, микрорезонаторов и призмных адаптеров ввода/вывода оптического излучения 37

Конденсированное состояние

- Иванов В.Ю., Кузьменко А.М., Тихановский А.Ю., Пронин А.А., Мухин А.А.** Обнаружение индуцированной магнитным полем электрической поляризации в ортоферрите тербия 43

- Рыжков М.С., Козлов Д.А., Худайбердиев Д.А., Квон З.Д., Михайлов Н.Н.** Интерференционный транспорт в двумерном топологическом изоляторе в CdHgTe квантовой яме 50

- Irkhin V.Yu.** Hubbard bands, Mott transition and deconfinement in strongly correlated systems 55

- Пискунов Ю.В., Оглобличев В.В., Садыков А.Ф., Акрамов Д.Ф., Смольников А.Г., Герраченко А.П., Селезнева Н.В., Баранов Н.В.** Магнитное состояние слоистых халькогенидов кобальта Co_7Se_8 и Co_7Te_8 57

- Павлов Н.С., Шейн И.Р., Перваков К.С., Некрасов И.А.** Электронная структура $InCo_2As_2$ и $KInCo_4As_4$: LDA + DMFT 65

- Дорожкин С.И., Капустин А.А., Федоров И.Б., Уманский В., Смет Ю.Х.** Необычные состояния дробного квантового эффекта Холла в широкой квантовой яме 72

Квантовая информатика

- Молотков С.Н.** Квантовый алгоритм инвариантной оценки близости классических шифров к одноразовому блокноту 80

Разное

Leonidov A.V., Vasilyev S.B., Vasilyeva E.E. Interconnected evolution of epidemic and public vaccination opinion	89
---	----

Содержание

Том 117, выпуск 2

Поля, частицы, ядра

Ежов В.Ф., Рябов В.Л. Систематические эффекты при измерении времени жизни нейтрона в магнитных ловушках ультрахолодных нейтронов 93

Криворученко М.И. Дальнодействующие многочастичные взаимодействия, индуцируемые обменом нейтрино в веществе нейтронных звезд 98

Оптика, лазерная физика

Белоновский А.В., Николаев В.В., Гиршова Е.И. Квазистационарные поляритонные состояния в мезорезонаторах 102

Иногамов Н.А., Хохлов В.А., Ромашевский С.А., Петров Ю.В., Жаховский В.В., Ашитков С.И. Определение важнейших параметров металла, облученного ультракоротким лазерным импульсом 107

Гончар К.А., Божьев И.В., Шалыгина О.А., Осминкина Л.А. Оптические свойства кремниевых нанонитей, полученных методом металл-стимулированного химического травления с использованием золотых наночастиц 115

Плазма, гидро- и газодинамика

Бронин С.Я., Вихров Е.В., Зеленер Б.Б., Зеленер Б.В. Влияние магнитного поля на формирование ультрахолодной плазмы 121

Колоколов И.В., Лебедев В.В., Тумакова М.М. Парная корреляционная функция завихренности внутри когерентного вихря 127

Конденсированное состояние

Гаврилюк А.Г., Стружкин В.В., Аксенов С.Н., Миронович А.А., Троян И.А., Иванова А.Г., Любутин И.С. Электронные и магнитные свойства фазы железа ϵ -Fe при высоких давлениях до 241 ГПа в области температур 4–300 К 132

Gogina A.A., Tarasov A.V., Eryzhenkov A.V., Rybkin A.G., Shikin A.M., Filianina M., Klimovskikh I.I. Adsorption of Na monolayer on graphene covered Pt(111) substrate 145

Меньшов В.Н., Чулков Е.В. Особенности электронного спектра при переходе из фазы аксионного изолятора в фазу квантового аномального эффекта Холла в тонкой пленке собственного антиферромагнитного топологического изолятора 147

Зыбцев С.Г., Покровский В.Я., Никонов С.А., Майзлах А.А., Зайцев-Зотов С.В. Плотность заряда и подвижность волн зарядовой плотности в квазиодномерном проводнике NbS_3 158

Скороходов Е.В., Татарский Д.А., Горев Р.В., Миронов В.Л., Фраерман А.А. Гиротропные колебания магнитных вихрей в двух взаимодействующих ферромагнитных дисках	165
Фролов А.В., Орлов А.П., Воропаев Д.М., Хадж-Азем А., Синченко А.А., Монсо П. Логарифмическая релаксация неравновесного состояния волны зарядовой плотности в соединениях TbTe ₃ и HoTe ₃	171