## ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ «КАЗАНСКИЙ (ПРИВОЛЖСКИЙ) ФЕДЕРАЛЬНЫЙ УНИВЕРСИТЕТ»

На правах рукописи

Батулин Руслан Германович

## Оптическая спектроскопия атомов и ионов бария в сверхтекучем <sup>4</sup>Не

01.04.07 – Физика конденсированного состояния

ДИССЕРТАЦИЯ

на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

> Научный руководитель д. ф.-м. н., проф. Таюрский Д.А.

## Оглавление

Введен	ие		5
Глава	I. Примеси	в жидком гелии	16
1.1.	Структура при	имесей в жидком гелии	17
	1.1.1. Состоя	ание «пузырь»	18
	1.1.2. Состоя	чние «снежный ком»	20
1.2.	Методы внедрения примесей в жидкий гелий		
	1.2.1. Конден	нсация атомного или ионного пучка	23
	1.2.2. Лазерн	ная абляция	26
1.3. Оптическая спектроскопия примесей в сверхтекучем и		пектроскопия примесей в сверхтекучем гелии	28
	1.3.1. Спектр	ры люминесценции атомов и ионов в жидком гелии	29
	1.3.2. Рекомб	бинация в сверхтекучем жидком <sup>4</sup> Не	32
1.4.	Ионы под пове	ерхностью сверхтекучего гелия	33
	1.4.1. Локали	изация ионов под поверхностью жидкого гелия	35
	1.4.2. Поверх	хностная плотность ионов	37
	1.4.3. Неусто	ойчивость поверхности	38
1.5.	Мезоскопические структуры в сверхтекучем гелии 4		
1.6.	Выводы		
Глава	2. Теоретиче	еский расчет спектров перехода $\mathbf{D}_1$ иона $\mathbf{Ba}^+$ в	
жид	ком гелии .		45
2.1.	Свободный ио	он Ba <sup>+</sup>	46
2.2.	Парные потенциалы взаимодействия Ва <sup>+</sup> -Не		47
2.3.	Модель сферического атомного «пузыря»		
2.4.	Уширение спектральных линий		
2.5.	Модель деформированного атомного «пузыря» 6		
2.6.	Сравнение с экспериментальными данными		

2.7.	Вывод	ы	68		
Глава	3. Эк	спериментальная установка для исследования опти-			
чес	ких спе	ктров примесей в жидком гелии	69		
3.1.	Оптиче	Оптический криостат и схема откачки			
3.2.	Экспер	Экспериментальные ячейки и вставка в криостат			
3.3.	Оборуд	Оборудование для оптических измерений			
3.4.	Образе	Образец и метод очистки поверхности			
Глава	4. Экс	спериментальные результаты	89		
4.1.	Абляция в сверхтекучем гелии <sup>4</sup> Не				
	4.1.1.	Оптическая спектроскопия плазмы при абляции в сверх-			
		текучем <sup>4</sup> Не	90		
	4.1.2.	Оптическая спектроскопия атомов бария в сверхтекучем			
		$^{4}$ He	94		
	4.1.3.	Токовые характеристики при абляции в сверхтекучем <sup>4</sup> He 2	103		
	4.1.4.	Локализация заряда под поверхностью	106		
4.2.	Мезось	Мезоскопические структуры в сверхтекучем гелии 1			
	4.2.1.	Оптическая схема	110		
	4.2.2.	Движение микрочастиц в сверхтекучем гелии	113		
	4.2.3.	Микроскопия мезоскопических структур	119		
	4.2.4.	Формирование нитей и сетей в сверхтекучем гелии	120		
4.3.	Абляці	ия в газе с ионизацией импульсным радиочастотным раз-			
	рядом		128		
	4.3.1.	Оптическая схема	129		
	4.3.2.	Электрический пробой в сверхтекучем Не	133		
4.4.	Выводі	Ы	135		
Глава	5. Обо	суждение полученных результатов	137		
5.1.	Двумеј	рная ловушка на поверхности сверхтекучего гелия	137		

5.2.	Инжектирование ионов в жидкий гелий	138
5.3.	Структура ионов Ba <sup>+</sup> в жидком гелии	141
Заклю	чение	145
Списон	к литературы	149

## Введение

#### Актуальность темы исследования.

Квазичастицы, обладающие свойствами фермионов Майорана, привлекают ют интересы исследователей во многих областях физики, в том числе и в физике конденсированного состояния [1–3]. Среди многих других систем, сверхтекучая фаза <sup>3</sup>He-B на поверхности которой предсказано существование майорановских фермионов [4, 5] представляет особый интерес. Подобно топологическим изоляторам (TI), топологические сверхпроводники (SC) или сверхтекучие жидкости имеют энергетическую щель в спектре в объеме сверхпроводника, но на границе или на поверхности образца ширина щели обращается в нуль. Для исследования поверхностных состояний в сверхтекучем <sup>3</sup>He-B используются различные экспериментальные методы, такие, например, как ЯМР [7, 8], либо методы, основывающиеся на измерениях акустического импеданса [6], измерениях удельной теплоемкости [9, 10] или подвижности ионов, локализованных под поверхностью [11, 12]

В соответствии с опубликованными недавно теоретическими расчетами [13, 14], наличие майорановских поверхностных состояний ведет к сильной анизотропии спиновой магнитной восприимчивости вблизи поверхности или в тонкой пленке сверхтекучего <sup>3</sup>He-B. Такого рода анизотропия должна привести к особенностям в механизмах спиновой релаксации примесных частиц, инжектированных в приповерхностный слой сверхтекучего гелия. Время спиновой релаксации ансамбля частиц с направлением поляризации, ортогональным к поверхности, будет значительно меньше чем поляризованных вдоль поверхности.

Чунг и Чжан в своей работе [13] предложили измерить время спиновой релаксации локализованного вблизи поверхности сверхтекучего <sup>3</sup>He-B ансамбля электронов. Однако, имеется ряд ограничений, существенно осложняющих осуществление этой идеи. Концентрация примесных электронов, локализованных под поверхностью, не может превысить  $10^9 \text{ см}^{-2}$ , измерения должны проводится в слабом статическом магнитном поле - должно выполняться условие  $H \ll k_B T/\mu_B$ , а времена продольной релаксации могут достигать порядка  $10^3$  с, что может привести к насыщению спиновой системы [13]. Таким образом, необходимо провести измерения спектров ЭПР и времени продольной релаксации парамагнитных центров с концентрацией не более  $10^9 \text{ см}^{-2}$  в постоянном магнитном поле не превышающем миллитесла, что ниже предела чувствительности современных спектров.

В работе [15] был предложен альтернативный метод наблюдения анизотропии спиновой релаксации, основанный на оптическом детектировании спинполяризованного ансамбля ионов Ba<sup>+</sup>, локализованных под поверхностью сверхтекучего гелия <sup>3</sup>He-B. Задача внедрения примесных ионов в приповерхностный слой сверхтекучего <sup>3</sup>He-B была успешно решена для «собственных» примесей ионов He<sup>+</sup> и электронов [16]. Вместе со свободными электронами и катионами He<sup>+</sup>, ион Ba<sup>+</sup> является модельным объектом для изучения свойств заряженных примесей в сверхтекучем гелии. Исторически первые измерения подвижности Ba<sup>+</sup> в жидком гелии были опубликованы Джонсоном и Глаберсоном [17] в 1972 г., а первые оптические измерения - Рейхером и др. [18] в 1986 г.

С 1960-х гг. хорошо известно, что свободный электрон в жидком гелии образует полость вокруг себя, известную как электронный «пузырь», тогда как положительный ион He<sup>+</sup>, окруженный плотной оболочкой из атомов гелия, формирует кластер, известный как «снежный ком». Гораздо больше дебатов [19–23] вызывает структура и свойства иона Ba<sup>+</sup> и других щелочноземельных катионов в жидком гелии.

Состояние типа «пузырь» формируется из-за отталкивания, возникающего между свободным электроном и замкнутыми электронными оболочками окружающих атомов гелия (принцип Паули). Эта сила уравновешивается силой поверхностного натяжения и внешним гидростатическим давлением на границе «пузыря» и приводит к равновесному состоянию «пузыря» с радиусом 17 Å. Многие нейтральные примеси, в частности атомы большинства металлических элементов, образуют «пузыри», которые аналогичны электронному «пузырю» и имеют типичные радиусы от 5 до 7 Å. В этом случае сила отталкивания действует между электронными оболочками атомов Не и валентными электронами примесного атома (для обзора по атомным «пузырям» см. [24]). Для «снежного кома» локальное увеличение плотности жидкого гелия вокруг примесного иона происходит потому, что на атомы Не в сильно неоднородном электрическом поле иона действует притягивающая сила, природа которой - ион-дипольное взаимодействие. В работе Аткинса [25] было предсказано, что это увеличение локальной плотности Не вокруг He<sup>+</sup> (электрострикция) может приводить к затвердеванию жидкого Не и образованию твердого «снежного кома» с радиусом  $\approx 8$  Å.

Катионы щелочных металлов также имеют структуру, напоминающую «снежный ком» [26, 27]. Однозарядные катионы щелочноземельных элементов, такие как Ва<sup>+</sup>, представляют собой более сложную систему которая находится между двумя предельными случаями: «пузырь» и «снежный ком». Электронная структура таких катионов эквивалентна структуре нейтрального атома щелочного металла с одним валентным электроном, занимающим сферически симметричную nS-орбиталь (n = 6 для Ba<sup>+</sup>) с электронной плотностью которая распространяется на область радиусом несколько ангстрем. Отталкивание между внешним *s*-электроном и замкнутой электронной оболочкой атома He превалирует над притяжением между ионом Ва<sup>+</sup> и атомами Не на межатомных расстояниях меньше 5 Å. С другой стороны, электрическое поле, создаваемое ионом, поляризует атомы Не и приводит к появлению дополнительной притягивающей силы, которая доминирует на расстояниях больше 5 Å. Результирующая структура локализованного иона определяется конкуренцией между двумя механизмами и может сочетать свойства - как «пузыря», так и «снежного кома». В настоящее время данное представление активно разивается, формируя новую область исследований.

Методы внедрения в сверхтекучий гелий ионов и атомов различных щелочных, щелочно-земельных и переходных металлов значительно отличаются от метода внедрения «собственных» примесей: электронов и ионов He<sup>+</sup>. Одним из методов создания наночастиц и внедрения их в жидкий гелий является лазерная абляция металлов непосредственно в жидком гелии. Уже в первых экспериментах подобного рода было обнаружено, что создаваемые методом лазерной абляции наночастицы объединяются в мезоскопические структуры нитевидной формы [28]. В некоторых случаях из нитей формируются дендритные структуры, представляющие собой сети или паутины размерами несколько миллиметров или даже сантиметров. Исследования таких структур методами сканирующей электронной микроскопии показали, что металлические нити состоят из большого числа скрученных и запутанных нанонитей с характерными диаметрами 2 – 20 нм [24]. В дальнейшем проводились исследования их кристаллической структуры, температурной стабильности и электрических свойств [29–36]. Похожие структуры наблюдались в экспериментах по внедрению металлических атомов и кластеров в микро- и нанокапли сверхтекучего гелия [37–40].

Отличительной особенностью сверхтекучего гелия, помимо других его интересных физических свойств, является наличие долгоживущих вихрей (топологических дефектов), на оси которых отсутствует сверхтекучесть [41, 42]. Еще в 1970-ые годы было экспериментально обнаружено свойство вихрей притягивать и захватывать примесные электроны за счет разницы давлений на периферии и на оси вихря [43]. Существует гипотеза, что в сверхтекучем гелии и нанокаплях гелия металлические нанонити формируются за счет агрегации частиц на оси вихря [24, 29, 44–46]. В настоящее время большинство публикаций по данной тематике придерживаются этой гипотезы [33, 37–39, 47–49]. Локализация отдельных частиц, таких как электроны и ионы, широко исследовалась теоретически [50, 51]. Изучались процессы диффузии нейтральных частиц в жидком Не и их объединения в мелкие кластеры [40, 47]. Однако в настоящее время отсутствует завершенная теория, которая описывала бы рост нанопроволок или нанонитей

8

из наночастиц, локализованных на оси вихря. Особенно загадочным является образование нитей, когда отдельные нанопроволоки запутываются или скручиваются вместе, чтобы образовать «веревку» или проволоку миллиметрового размера и сетку из таких проволок.

Нанопроволоки в сверхтекучем гелии представляют интерес по нескольким причинам. Во-первых, нанопроволоки, полученные таким способом, могут обладать физическими свойствами, резко отличающимися от полученных традиционными методами. Во-вторых, структура нанопроволок и их сетей может дать новое представление о физике квантованных вихрей в бесконечно больших (в объеме гелия) и конечных (капли гелия) сверхтекучих системах. Изучение роста нанопроволок в сверхтекучем гелии является обособленной актуальной задачей, напрямую связанной с задачей о внедрении отдельных ионов в сверхтекучий гелий. Присутствие проводящих нанопроволок сильно искажает локальное электрическое поле в системе, и в зависимости от полярности ведёт - либо к потерям в числе отдельных ионов - вследствие их коагуляции с нанопроволоками, либо к выталкиванию ионов из зоны наблюдения.

Для решения задачи локализации ионов под поверхностью сверхтекучего <sup>3</sup>Не важно понимать процесс роста нанопроволок в условиях близости к свободной поверхности. Эксперименты в сверхтекучем <sup>3</sup>Не на данном этапе не целесообразны из-за своей дороговизны по сравнению с <sup>4</sup>Не и дополнительных сложностей в подготовке и проведении эксперимента при температурах порядка 1 мК. Таким образом необходимо было сначала апробировать механизм внедрения ионов и исследовать процесс роста нанопроволок вблизи свободной поверхности жидкого <sup>4</sup>Не, для чего проводились эксперименты с различными конфигурациями ячеек и схемами абляции.

**Цели и задачи диссертационной работы:** Целями данной работы являются:

1. Апробация методов внедрения примесных атомов и ионов щелочных и ще-

9

лочноземельных металлов в сверхтекучий <sup>4</sup>Не и исследования образуемых ими точечных дефектов и мезоскопических металлических структур.

Для достижения поставленных целей необходимо было решить следующие задачи:

- Создать экспериментальную установку по исследованиям оптических спектров атомов и ионов щелочных и щелочноземельных металлов, внедряемых в приповерхностный слой сверхтекучего <sup>4</sup>Не в диапазоне температур 1.5 - 2.2 K;
- 2. Исследовать различные конфигурации ячеек и схем абляции для внедрения атомов и ионов бария в сверхтекучий <sup>4</sup>He;
- Измерить оптические спектры атомов и ионов Ва, инжектированных в сверхтекучий <sup>4</sup>He;
- 4. Выполнить теоретический расчет спектров иона Ba<sup>+</sup> в сверхтекучем гелии в приближении модели атомного «пузыря» и сравнить результаты с полученными экспериментальными данными;
- Пронаблюдать рост и формирование мезоскопических структур при наличии свободной поверхности гелия в приложенном вертикально электрическом поле;

#### Научная новизна.

- Предложен экспериментальный метод по оптическому детектированию майорановских поверхностных состояний в сверхтекучем <sup>3</sup>He-B. Сделана оценка критического поля и максимальной концентрации ионов, которые можно локализовать под поверхностью сверхтекучего <sup>3</sup>He-B;
- 2. Выполнено оригинальное исследование влияния рекомбинации в плазме, создаваемой абляцией мишени в сверхтекучем жидком гелии;

- Выполнен расчет спектров поглощения и люминесценции, отвечающих переходу D<sub>1</sub> иона Ba<sup>+</sup> в сверхтекучем <sup>4</sup>He в модели деформированного атомного «пузыря» с использованием полученных из первых принципов парных потенциалов Ba<sup>+</sup>-He;
- 4. Для внедрения ионов в сверхтекучий гелий реализована экспериментальная установка в которой скомбинированы два метода внедрения ионов: лазерная абляция и разряд в газовой фазе;
- Исследован процесс формирования мезоскопических структур, локализованных под свободной поверхностью гелия в приложенном вертикально электрическом поле;

Научная и практическая значимость. Детектирование майорановских фермионов на поверхности сверхтекучей фазы <sup>3</sup>He-В является актуальной фундаментальной задачей современной физики конденсированного состояния. Майорановские поверхностные состояния сверхтекучей фазы <sup>3</sup>He-В обладают физическими свойствами, которые могут быть использованы в так называемых топологических квантовых вычислениях [52]. Прямое детектирование поверхностных состояний майорановских фермионов, а впоследствии манипулирование майорановскими поверхностными состояниями, будет первым шагом на пути к реализации топологического квантового компьютера.

В диссертации представлены результаты, развивающие представления о процессах формирования нанопроволок и сетей из внедренных атомов и ионов металлов в сверхтекучий гелий в новой системе при наличии свободной поверхности и статического электрического поля. Таким образом была создана двумерная ловушка для примесных частиц, по аналогии с квантовым вихрем, который представляет собой одномерную ловушку.

Были исследованы экспериментально и теоретически спектры перехода D<sub>1</sub> иона Ba<sup>+</sup>, внедренного в сверхтекучий <sup>4</sup>He. Установлено, что локальное увеличение плотности гелия He вокруг иона за счет эффекта электрострикции оказывает сравнительно небольшое влияние на спектр электронного перехода. Модель атомного пузыря, которая не учитывает это увеличение плотности, по-прежнему обеспечивает качественное согласие результатов расчетов с экспериментом, а сама модель может применяться для расчетов спектров ионов щелочных и щелочно-земельных атомов.

#### Основные положения, выносимые на защиту:

- Реализована универсальная экспериментальная установка, позволяющая внедрять примесные атомы и ионы щелочных и щелочноземельных металлов в сверхтекучий <sup>4</sup>Не и исследовать образуемые ими точечные дефекты и мезоскопические металлические структуры;
- Численными расчетами показано, что полученные экспериментально сдвиг и ширина спектров поглощения и люминесценции хорошо описываются в рамках модели атомного «пузыря», а структура иона Ва<sup>+</sup> в возбужденном состоянии в окружении сверхтекучего <sup>4</sup>Не представляет собой пузырь;
- 3. При наличии свободной поверхности гелия, в приложенном вертикально электрическом поле, происходит образование мезоскопических структур, которые представляют из себя квазиодномерные нанонити и квазидвумерные наносетки в сверхтекучем <sup>4</sup>He, состоящие из атомов аблируемого вещества.

Апробация работы. Основные результаты работы докладывались и обсуждались на следующих международных конференциях и семинарах: International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS) (Matsue, Japan, August 1 - 6 2013); V Young Scientists Conference «Problems of Theoretical Physics» (YSC-2013) (Kyiv, Ukraine, December 24 - 27, 2013); 2014 Annual meeting of the Physical Society of Japan (Kasugai, Japan, September 7-9, 2014); International Workshop «2D electrons on helium and quantum information» (Kazan, Russia, May 3-7 2014); 27th International Conference on Low Temperature Physics (LT-27) (Buenos Aires, Argentina, August 1st - 6th, 2014); The International Workshop on Electrons and Ions in Quantum Fluids and Solids (Mishima, Japan, March 11-14 2018);

Публикации. Основные результаты по теме диссертации изложены в 6 печатных изданиях: три из которых изданы в журналах, рекомендованных ВАК, индексируемых аналитическими базами данных Web of Science (WOS), Scopus, РИНЦ [15, 53, 54], 3 в тезисах докладов [55–57].

**Личный вклад автора.** Представленные в диссертации экспериментальные результаты получены в лаборатории физики низких температур Института физических и химических исследований RIKEN (Япония) в рамках сотрудничества между КФУ и RIKEN. Автор принимал личное участие в создании экспериментальной установки для регистрации оптических спектров атомов и ионов при низких температурах, разработке экспериментальных ячеек, проведении экспериментов, анализе и интерпретации экспериментальных данных, выполнении численных расчетов. Публикации полученных результатов проводились совместно с соавторами.

Экспериментальные и теоретические исследования по теме диссертации выполнены при поддержке гранта JSPS КАКЕNHI грант № 24000007, и теоретические исследования частично за счет средств субсидии, выделенной Казанскому федеральному университету для выполнения государственного задания в сфере научной деятельности (проект №3.8138.2017/8.9).

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, 5 глав, заключения и списка цитируемой литературы. Общий объем диссертации 163 страницы, включая 61 рисунок и 3 таблицы. Список цитируемой литературы включает 156 наименований.

#### Краткое содержание работы:

<u>Во введении</u> обосновывается актуальность диссертационной работы, её научная новизна, научная и практическая значимость. Формулируются цели, задачи работы и основные положения, выносимые на защиту. <u>В первой главе</u> представлен обзор работ, в которых рассматриваются методы внедрения примесей в сверхтекучий гелий, оптическая спектроскопия примесей, задача о локализации ионных примесей под поверхностью сверхтекучего гелия и неустойчивость поверхности. Отдельный раздел посвящен мезоскопическим структурам: нитям и проволокам, рост которых наблюдается в сверхтекучем гелии.

В начале <u>второй главы</u> представлены парные потенциалы Ba<sup>+</sup>-He, используемые для расчетов с помощью моделей сферического атомного «пузыря» и деформированного атомного «пузыря». Приводятся результаты расчетов спектров поглощения и люминесценции, соответствующих переходу D<sub>1</sub> иона Ba<sup>+</sup>, и сравнение теоретически рассчитанного спектра поглощения иона Ba<sup>+</sup> с экспериментальным.

<u>Третья глава</u> посвящена описанию экспериментальной установки для исследования оптических спектров примесей в жидком гелии. Описываются оптический криостат и схема откачки. Приведено экспериментальное оборудование для оптических измерений. Отдельный раздел посвящен образцу бария и методу очистки поверхности.

<u>В четвертой главе</u> представлены основные экспериментальные результаты. В первом разделе приведены оптические спектры плазмы, которые наблюдаются при абляции в жидком гелии и спектры атомов бария и стронция в сверхтекучем <sup>4</sup>Не для оптической схемы с ипользованием диссоциирующего импульса. Второй раздел посвящен формированию мезоскопических структур в сверхтекучем гелии, приведены результаты исследования движения такого рода частиц с помощью высокоскоростной камеры и результаты исследования наблюдаемых структур методом сканирующей электронной микроскопии. В третьем разделе приведены экспериментальные спектры люминесценции перехода D<sub>1</sub> иона Ba<sup>+</sup> и сравнение теоретически рассчитанного спектра люминесценции иона Ba<sup>+</sup> с экспериментальным, полученным в настоящей работе для оптической схемы: лазерная абляция с ионизацией импульсным радиочастотным разрядом. Описывается электрический пробой в сверхтекучем Не, который сопровождает процесс внедрения ионов при низких температурах.

<u>Пятая глава</u> посвящена обсуждению полученных результатов. Обосновывается существование двумерной ловушки, значительно усиливающей коалесценцию заряженных частиц, роль который выполняет свободная поверхность сверхтекучего гелия в вертикально ориентированном электрическом поле. Описывается процесс инжектирования ионов в жидкий гелий и структура ионов Ba<sup>+</sup> в жидком гелии.

В заключении сформулированы основные выводы и кратко обозначены основные результаты данной работы.

## Глава 1

## Примеси в жидком гелии

Более века прошло с тех пор как Камерлинг-Оннес впервые получил жидкий <sup>4</sup>He, но до сих пор его свойства при низких температурах являются объектом теоретических и экспериментальных исследований. Маленькая масса атомов гелия и слабое ван-дер-ваальсово взаимодействие между ними позволяют ему оставаться в жидкой фазе при давлении насыщенных паров вплоть до температур сколь угодно близких к абсолютному нулю. Твердый гелий удается получить только при давлениях свыше 25 атмосфер (см. Рисунок 1.1). Наиболее удивительным свойством жидкого гелия является сверхтекучесть — фазовый переход второго рода при температурах ниже критической ( $T_{\lambda}$ =2.172 K), переход от обычной вязкой жидкости к квантовой жидкости.

Практически сразу после открытия сверхтекучести начались эксперименты с внедрением примесных ионов в жидкий гелий, измерение мобильности внедренных ионов и энергии, необходимой для внедрения.



Рис. 1.1. Фазовая диаграмма <sup>4</sup>He [58]

Данная глава по большей части посвящена исследованию примесных ато-

мов и ионов методами оптической спектроскопии [59, 60]. Спектры поглощения и люминесценции примесных частиц, внедренных в жидкий гелий, позволяют получить важную информацию о структуре дефекта, который образует данная примесь, а существующие теории качественно описать сдвиги и уширение линий оптических переходов.

В первом разделе данной главы рассматриваются дефекты, которые образует внедренный ион или атом в жидком гелии, такие как «пузырь» и «снежный ком». Второй раздел посвящен методам внедрения, таким как конденсация атомного или ионного пучка и лазерная абляция, описываются их преимущества и недостатки. Третий раздел целиком посвящен оптической спектроскопии примесных ионов и атомов, в том числе и рекомбинационной спектроскопии. В четвертом разделе рассматривается задача о локализации примесных ионов под поверхностью жидкого гелия, и сделана оценка концентрации поверхностных ионов в соответствующем критическом поле при превышении которого возникает неустойчивость поверхности. Пятый раздел полностью посвящен обзору работ по изучению мезоскопических структур в сверхтекучем гелии, таких как нити и сетки.

#### 1.1. Структура примесей в жидком гелии

На протяжении нескольких десятилетий после открытия сверхтекучести в жидком гелии исследовались только два типа примесей: отрицательные и положительно заряженные ионы. Несмотря на то что за это время было поставлено большое количество экспериментов, долгое время их структура оставалась неизвестной вследствие противоречивых экспериментальных результатов. В 1957 году неожиданно длинные времена жизни позитрония в жидком <sup>4</sup>He [61] позволили интерпретировать данные результаты в рамках теории, предложенной ранее Феррелом. Еще в 1956 году Феррел [62] предположил, что позитрон, в связанном состоянии с электроном образующий позитроний, может быть экранирован электроном от контакта с окружающими атомами гелия, что в противном случае привело бы к немедленной аннигиляции. Такая интерпретация предсказала существование между электроном позитрония и электронной оболочкой окружающих его атомов гелия сильного отталкивающего взаимодействия (из-за принципа Паули). Приведенные выше рассуждения справедливы и в случае квазисвободного электрона, внедренного в жидкий гелий, который таким образом тоже образует состояние «пузырь» [63].

#### 1.1.1. Состояние «пузырь»

Структура примесей многих атомов и молекул, внедренных в жидкий гелий, хорошо описывается в рамках, так называемой, модели «пузыря» [59]. Она была разработана Йортнером и др. в 1965 году [64, 65] и описывает структуру примесного электрона, внедренного в жидкий гелий. Два фундаментальных свойства жидкого гелия позволяют упростить квантовую задачу о взаимодействии внедренного иона с окружающими атомами гелия. Во-первых, из-за своей квантовой природы (сильного перекрытия волновых функций соседних атомов гелия) жидкий гелий можно интерпретировать как непрерывную среду на нанометровом масштабе. Во-вторых, взаимодействие между электроном и замкнутой S-оболочкой атомов гелия преимущественно отталкивающее (из-за принципа Паули) и значительно больше сил притяжения Ван-дер-Ваальса между соседними атомами гелия на расстояниях в несколько ангстрем. Отталкивающее взаимодействие настолько сильное, что превышает внутреннее давление жидкости и создает небольшую сферическую полость (Рисунок 1.2), которая получила название электронный «пузырь» или «bubble» состояние.

Размер «пузыря» определяется балансом между отталкивающим взаимодействием электрона с атомами гелия и внутренним давлением жидкости на поверхность пузыря. В жидком гелии радиус электронного «пузыря» при давлении насыщенных паров равен  $R_b \approx 17$  Å.

Размер «пузыря» объясняет относительно низкие экспериментальные зна-

18



Рис. 1.2. Электронный «пузырь» в жидком гелии

чения подвижности электронов в жидком гелии, полученные ранее в экспериментах [66, 67]. В этих работах были измерены температурные зависимости подвижности отрицательных и положительных и<br/>онов в сверхтекучем гелии ${}^{4}\mathrm{He}.$ Результаты измерений показали, что подвижности отрицательных ионов в жидком <sup>4</sup>Не меньше чем для положительных ионов. Интерпретация этих результатов стала первым подтверждением теоретической «пузырной» модели. Тем не менее, потребовались дополнительные теоретические исследования [68, 69], прежде чем данная модель получила общее признание. «Пузырная» модель позволила не только правильно описать кинематические свойства примесей в жидком гелии, но и рассчитать спектр поглощения электрона и уровни энергии электронного «пузыря» в жидком гелии [64, 70].

Данная задача сводится к квантово-механической задаче о частице в потенциальной яме. Поверхность жидкого гелия играет роль потенциального барьера для электрона из-за принципа Паули. Высота барьера была рассчитана теоретически и оказалось, что она приближенно равна 1 эВ [68]. Позднее, это значение было подтверждено в экспериментах по измерению энергии необходимой для внедрения электрона в жидкий гелий [71].

Теоретические расчеты энергетических уровней электронного «пузыря» показали, что переходы между уровнями 1s основного состояния и возбужденных состояний 1р и 2р лежат в инфракрасном диапазоне. На Рисунке 1.3 приведена диаграмма энергетических уровней электрона, внедренного в жидкий гелий [59, 64].



Рис. 1.3. Электрон в потенциальной яме в жидком гелии [59]. Стрелками обозначены переходы в возбужденные состояния 1р и 2р

Валентный электрон атома, внедренного в жидкий гелий, локализован гораздо сильнее чем квазисвободный электрон в состоянии «пузыря». Причиной этому является сильная связь электрона с атомным ядром, поэтому радиус «пузыря» будет меньше.

Оптические спектры атомов и ионов щелочных и щелочно-земельных металлов групп Ia, IIa и переходных металлов групп Ib-IVb периодической таблицы Менделеева достаточно хорошо описываются «пузырной» моделью.

#### 1.1.2. Состояние «снежный ком»

Структура положительных ионов He<sup>+</sup>, внедренных в жидкий гелий, сильно отличается от «пузыря». Плотность и давление поляризуемой жидкости в неоднородном электрическом поле увеличиваются с увеличением напряженности электрического поля. Положительный ион в жидком гелии образует сильное электрическое поле вокруг себя и поляризует окружающие атомы гелия. Рассматривая жидкий гелий как непрерывную среду, Аткинс впервые оценил эффект поляризации [25]. Притяжение за счет поляризации атомов гелия между ионом He<sup>+</sup> и окружением преобладает над отталкивающим взаимодействием из-за принципа Паули, в соответствии с теорией электрострикции Аткинса [25]. Структура, которая образуется вокруг дефекта в виде иона He<sup>+</sup>, представляет собой твердое образование из порядка 40 атомов гелия (Рисунок 1.4), радиусом  $\approx 8$  Å.

Как показали теоретические расчеты вариационным методом Монте-Карло, некоторые ионы шелочных металлов, такие как Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, внедренные в жидкий <sup>4</sup>He, формируют состояния «снежный ком» [72]. Радиальный профиль плотности распределения гелия вокруг примесей показывает четко выраженный пик, характерный для такого типа состояний примесных ионов. Оболочка из атомов гелия локализована вокруг примеси и не участвует в обмене с окружающей жидкостью.



Рис. 1.4. Ио<br/>н ${}^{4}\mathrm{He^{+}}$  в состоянии «снежный ком» в жидком гелии

Эксперименты [17, 19, 73, 74] в которых измерялось время пролета различных ионов в сверхтекучем гелии показали, что подвижность щелочноземельных катионов, в том числе ионов Ba<sup>+</sup>, несколько выше, чем у гораздо более легких ионов He<sup>+</sup>, что не согласуется с моделью «снежного кома». Измерения подвижности ионов щелочно-земельной группы [74] показали, что из всех ионов, только подвижность ионов Be<sup>+</sup> больше чем у ионов <sup>4</sup>He<sup>+</sup>. Позднее Коул и Бахман [20] предположили, что ловушка в которую попадает ион может быть представлена как атомный «пузырь» с радиусом 4-5 Å, окруженный сжатым, но не затвердевшим гелием. Подвижности Ba<sup>+</sup> и некоторых других положительных и отрицательных ионов различных атомов были исследованы в недавней теоретической работе [23], где структура комплекса Не вокруг иона вычисляется с использованием метода расчета TDDFT. Полученный профиль плотности гелия напоминает пузырь с радиусом 4.5 Å в окружении ярко выраженной структуры в виде оболочки из атомов гелия высокой плотности. Общий радиус дефекта оценивается в 11.6 Å.

#### 1.2. Методы внедрения примесей в жидкий гелий

Существует несколько различных методов внедрения примесей в жидкий гелий, таких как полевая эмиссия, тлеющий разряд в газе, фотоэлектрический эффект, термоэлектронная эмиссия и лазерная абляция. Более подробно о каждом из методов можно прочитать в книге Боргесани [75] и в обзорной статье Табберта и др. [59].

Одним из методов внедрения ионов в жидкий гелий является термоэмиссия. Вольфрамовую нить покрывают слоем материала или допируют химическим элементом, который необходимо исследовать. При протекании электрического тока нить нагревается до температуры плавления и материал с поверхности нити испаряется. Создается тлеющий разряд, который ионизирует атомы газа, и ионы под действием приложенного постоянного электрического поля внедряются (инжектируются) в жидкий гелий и дрейфуют к электроду-коллектору.

С помощью методики, описанной выше, были инжектированы в сверхтекучий гелий и измерены подвижности щелочных и щелочно-земельных ионов [19]. Однако, у данного метода есть существенный недостаток. Кроме ионов исследуемого элемента инжектируются и нежелательные примеси. Например, для инжектирования ионов Ba<sup>+</sup> таким методом использовались покрытия BaCl<sub>2</sub>, BaBr<sub>2</sub>. Токовые сигналы, измеренные на коллекторе, показали наличие нескольких пиков, характеризующих движение ионов с разными значениями подвижности в жидком гелии. Оптическая спектроскопия ионов, инжектированных таким способом, не была опубликована.

В данной главе рассмотрены лазерная абляция, и комбинация тлеющего

разряда и термоэмиссии, в качестве основных методов, с помощью которых атомы и ионы различных щелочных и щелочноземельных металлов, металлов переходной группы были инжектированы в сверхтекучий <sup>4</sup>Не и исследовались методами оптической спектроскопии.

#### 1.2.1. Конденсация атомного или ионного пучка

Недостатки метода инжекции с использованием нити с покрытием из исследуемого материала привели к усовершенствованию методов инжекции. Такой метод получил название инжекция атомов или ионов конденсацией атомного или ионного пучка. С помощью этого метода впервые Гордон и др. попробовали инжектировать атомы азота в жидкий гелий [76]. В эксперименте молекулы азота N<sub>2</sub> диссоциировались методом безэлектродного разряда под действием высокочастотного электромагнитного поля (f=40 МГц) в охлажденной жидким азотом трубке. Для того, чтобы уменьшить влияние рекомбинации, газ смешивался с гелием в пропорции [N<sub>2</sub>]:[He] от 1:20 до 1:2000 и под давлением до 20 торр через капилляр поступал в ванну с гелием и инжектировался в сверхтекучий <sup>4</sup>He. Скорость конденсации частиц была порядка  $10^{18}$ - $10^{20}$  частиц в секунду. Позднее, при инжектировании в сверхтекучий <sup>4</sup>He других инертных газов: Ne, Ar, Kr, Xe [77] той же группой, выяснилось, что при инжекции примеси формируют кластеры, и вокруг них за счет взаимодействия Ван-дер-Ваальса образуется метастабильная твердая фаза гелия.

Для инжектирования ионов различных металлов в жидкий гелий данный метод требует существенной модификации. Бауэр и др. [78] разработали экспериментальную ячейку (Рисунок 1.5 а) с сложной конфигурацией электродов и оптическими окнами для измерения подвижности ионов и регистрации оптических спектров.

Ионная пушка или источник ионов состоит из анода и двух микропечей (Рисунок 1.5 b). Исследуемый материал испаряется за счет термоэмиссии. Через сквозное отверстие в аноде в камеру поступает поток газообразного гелия и создается тлеющий разряд. Атомы исследуемого материала ионизируются при столкновении с метастабильными атомами и ионами гелия. Ионы инжектируются в жидкий гелий и дрейфуют к коллектору в постоянном электрическом поле. Для измерения подвижности, на сетки, расположенные в верхней части ячейки, подавалось запирающее отрицательное напряжение. Для инжекции ионов импульсно переключалась полярность запирающего напряжения с длительностью импульса порядка 7 мс. За это время облако ионов проходит сетки и оказывается в объеме жидкого гелия, где движется к коллектору под действием постоянного электрического поля. Движущиеся ионы создают ток смещения на коллекторе, для подавления которого используется, так называемая, сетка Фриша. Количество ионов инжектируемых таким способом достигало порядка 10<sup>7</sup> ионов на импульс. Для того, чтобы компенсировать диффузию ионов к стенкам ячейки были установлены дополнительные экранирующие электроды (Рисунок 1.5 b).

Несмотря на то что мощность рассеиваемого микропечками тепла составляла порядка 12 Вт, проблема теплообмена с жидким гелием была решена. Ионная пушка была изолирована от ванны с гелием и помещена в стеклянный дьюар. Минимальная температура в гелиевой ванне была порядка 1.5 К.



Рис. 1.5. Инжекция примесных ионов в сверхтекучий гелий методом конденсации ионного пучка [78]. a) На рисунке изображено сечение криостата. b) Ячейка для измерения подвижности ионов

Для регистрации оптических спектров данная ячейка была модифицирова-

на: из ячейки убрали экранирующие электроды и было уменьшено расстояние между сетками и коллектором [18, 79]. Атомы в сверхтекучем гелии исследовались методом рекомбинационной спектроскопии [21], для этого был установлен острый металлический наконечник вблизи дна ячейки (Рисунок 1.6). Электроны, получающиеся в результате полевой эмиссии, дрейфуют в постоянном поле напряженностью *E* и рекомбинируют с положительными ионами. В результате рекомбинации атомы находятся преимущественно в возбужденном состоянии и релаксируют в основное состояние с излучением фотонов.



Рис. 1.6. Инжекция примесных ионов в сверхтекучий гелий методом конденсации ионного пучка [79]. Ячейка для измерения оптических спектров методом рекомбинационной спектроскопии

Кинетика люминесценции показывает, что атомы медленно уплывают из зоны наблюдения за время порядка нескольких сотен миллисекунд [80]. Основным механизмом, с помощью которого инжектируемые атомы покидают зону наблюдения, является конвекция, вызванная локальным нагревом и звуковыми ударными волнами, возникающими во время процесса инжекции. В другой работе [81] время затухания люминесценции атомов Ва составляло несколько секунд, но использовался другой метод инжекции, основанный на лазерной абляции (см. следующий раздел).

Конденсация атомного или ионного пучка, как метод внедрения примесей в жидкий гелий, может использоваться практически для всех металлов. Однако

использование микропечей подходит только для материалов с низкой температурой плавления, из-за теплообмена с гелиевой ванной. Поэтому более широкое распространение получил метод лазерной абляции, который будет описан в следующем разделе.

#### 1.2.2. Лазерная абляция

С развитием лазерных технологий в начале 1980-х годов широкое распространение получил метод внедрения примесей в жидкий гелий, основанный на лазерной абляции. Вместо испарения материала в микропечках вещество удаляют с поверхности лазерным импульсом [82, 83]. Пучок лазерного излучения фокусируется на материале с помощью линзы (обычно использовались N<sub>2</sub> или Nd:YAG лазеры). Лазерная абляция может происходить как в газовой фазе [81, 84, 85], над поверхностью жидкого гелия, так и в жидкости [86–88].

В случае абляции в газе, мишень располагается на расстоянии в несколько миллиметров над поверхностью жидкого гелия. Лазерный луч, сфокусированный на образце, создает плазму, содержащую атомы, ионы и кластеры. Энергия импульса должна быть достаточной для абляции материала и ионизации. В эксперименте Химберта и др. [84] для абляции бария использовался ультрафиолетовый лазер на длине волны 330 нм с частотой повторения импульсов 1 Гц и энергией импульса порядка 1 мДж. Ионы Ва<sup>+</sup> инжектировались в жидкий гелий и дрейфовали к коллектору под действием приложенного электрического поля. Количество ионов, инжектированных таким способом, достигало порядка  $10^8 - 10^9$  ионов на импульс. Ячейка с жидким <sup>4</sup>Не была помещена в <sup>3</sup>Не криостат, минимальная температура в ячейке была 0.6 К. Давление насыщенных паров при данной температура составляет  $20 \cdot 10^{-3}$  торр. Концентрация ионов He<sup>+</sup>, получающихся в результате абляции, была пренебрежимо мала по сравнению с концентрацией ионов Ва<sup>+</sup>. После каждого импульса ячейка нагревалась до температуры порядка 0.8 К.

При температурах выше 1.3 К в плазме всегда присутствуют ионы гелия.

Так, например, в эксперименте Фоерсте и др. [74] абляция производилась импульсным лазером Nd:YAG с энергией импульса 4 мДж. В эксперименте были измерены относительные подвижности щелочноземельных ионов группы IIa: Be<sup>+</sup>, Mg<sup>+</sup>, Ca<sup>+</sup>, Sr<sup>+</sup>, и Ba<sup>+</sup>. Помимо щелочноземельных ионов в жидкий гелий инжектировались и ионы He<sup>+</sup>, количество которых по оценкам составляло порядка  $10^5 - 10^6$  ионов на импульс.



Рис. 1.7. Инжекция примесных ионов в сверхтекучий гелий методом лазерной абляции [21]. Лазерная абляция в газе

Метод внедрения примесей, основанный на лазерной абляции материала, позволил исследовать методом рекомбинационной спектроскопии (см. Рисунок 1.7) различные металлы переходных групп Ib-IVb, инжектированных в жидкий гелий [81, 85]. Более подробно эта тема будет освещена в Разделе 1.3.



Рис. 1.8. Инжекция примесных ионов в сверхтекучий гелий методом лазерной абляции [28]. Лазерная абляция в жидкости

Другим распространенным способом внедрения примесей в жидкий гелий является абляция непосредственно в жидком гелии (Рисунок 1.8). Метод инжектирования примесных частиц при абляции в жидкости имеет свои особенности. Основными продуктами при абляции мишени в сверхтекучем <sup>4</sup>Не являются кластеры и наночастицы аблируемого материала, которые затем движутся в жидкости за счет диффузии и конвекции. Поэтому для диссоциации таких структур используется второй лазер [28, 86, 88]. Лазер для первичной абляции может также выступать в роли диссоциирующего лазера, если частота повторений составляет порядка 1 кГц, так как за время между импульсами кластеры не успевают уйти из зоны абляции. Абляция в жидком гелии хорошо зарекомендовала себя для внедрения преимущественно атомов с концентрацией  $10^8 - 10^{10}$  см<sup>-3</sup> [28, 59, 87].

# 1.3. Оптическая спектроскопия примесей в сверхтекучем гелии

Хорошо известно, что спектры атомов, ионов и молекул сильно зависят от их окружения. Например, линии переходов атомных и ионных спектров в буферном газе сдвигаются в красную или синюю область спектра в зависимости от давления и типа газа [89]. Взаимодействие иона Ba<sup>+</sup> с окружающими частицами вызывает уширение, сдвиг и асимметрию контура спектральной линии. Здесь необходимо упомянуть о спектроскопических исследованиях взаимодействия ионов Ba<sup>+</sup> и атомов He в газовой фазе. Эксперименты [90, 91] проводились в плотном газообразном He при очень высоком давлении и температуре: T = 3300 K, p = 1100 бар. В экспериментах наблюдалась лоренцева форма линий спектров, что характерно для ударного уширения за счет упругих столкновений двух атомов (бинарные столкновения). Исследования [92–94] ионов Ba<sup>+</sup> в газообразном гелии при T = 1.6–30 K концентрируются на энергетическом спектре и механизме образования квазимолекулы Ba<sup>+\*</sup>-He (эксиплекса).

В предыдущем Разделе 1.2 мы рассмотрели методы внедрения примесей в жидкий гелий, что позволяет исследовать особенности оптических спектров различных примесей, изолированных в химически инертной квантовой жидкости. Спектры поглощения и люминесценции большинства элементов групп щелочных и щелочно-земельных металлов Ia и IIa, а также элементов переходной группы от Ib и до IVb обладают одной общей особенностью. Линии поглощения и люминесценции сдвинуты по отношению к своим значениям в вакууме. Теоретический расчет спектров примесных частиц в жидком гелии представляет собой непростую задачу. Сдвиги линий переходов атомных спектров таких элементов и ширина линий могут быть объяснены в рамках модели атомного «пузыря», которая будет рассмотрена в Разделе 2.3.

#### 1.3.1. Спектры люминесценции атомов и ионов в жидком гелии

Оптические спектры атомов и ионов в жидком гелии обладают одним общим свойством: линии поглощения сдвинуты по отношению к линиям излучения. В свою очередь линии излучения практически симметричны и слабо сдвинуты по отношению к своим значениям в вакууме, но сильно уширены, а сдвиг линии сильно зависит от давления [95–97]. Соответствующие этим переходам линии поглощения являются широкими полосами сдвинутыми в синюю область спектра. На Рисунке 1.9 b) изображен спектр поглощения и люминесценции атома Ва для оптического перехода 6s6p  ${}^{1}P_{1}$  - 6s<sup>2 1</sup>S<sub>0</sub> в сверхтекучем <sup>4</sup>He. Спектральная линия люминесценции практически симметрична с полушириной 0.80±0.2 нм и сдвинута в синюю область спектра по отношению к значению в вакууме (длина волны  $\lambda$ =553.55 нм) на 0.23±0.20 нм [80]. Линия поглощения асимметрична и смещена на 4.3±0.5 нм в синюю область спектра, полуширина линии 8.5±0.5 нм [21].

Для атомов и однократно ионизированных ионов модель атомного «пузыря» хорошо предсказывает направление сдвига и уширение линий переходов. Изменение электронной конфигурации примесного атома или иона при переходе из основного состояния в возбужденное состояние приводит к изменению радиуса «пузыря». Как следствие, изменяется полная энергия атома или иона в этом состоянии. Сдвиги линий в спектре поглощения и люминесценции обусловлены расширением или сжатием «пузыря», соответственно. Избыточная энергия при расширении и сжатии «пузыря» передается жидкости.



Рис. 1.9. Спектр поглощения и люминесценции атома Ва перехода 6s6p  ${}^{1}P_{1}$  - 6s ${}^{2}$   ${}^{1}S_{0}$  в сверхтекучем  ${}^{4}$ Не при температуре T=1.3 К [59]. Стрелкой отмечена длина волны перехода в вакууме.

Методом рекомбинационной спектроскопии были исследованы нейтральные атомы многих элементов шелочно-земельных металлов группы IIa, таких как Be, Mg, Ba, Ca, Sr, а также элементов переходных металлов групп Ib: Cu, Ag, Au, IIb: Zn, Cd, Hg, IIIb: B, Al, In, Tl и IVb: Si, Ge, Sn, Pb [21, 80]. Сначала в газовой фазе над поверхностью сверхтекучего <sup>4</sup>Не методами лазерной абляции (Раздел 1.2.2) или конденсации ионного пучка (Раздел 1.2.1) создавались ионы, которые инжектировались в сверхтекучий гелий при температуре T=1.3 К и дрейфовали в оптическую зону под действием приложенного электрического поля. В исследуемом объеме облако ионов рекомбинировало с электронами, получающимися за счет полевой эмиссии с вольфрамового наконечника. Рекомбинационная люминесценция собиралась на входной щели монохроматора и детектировалась с помощью фотоумножителя (ФЭУ). Особенностью такого метода является отсутствие переходов с энергетических уровней лежащих в зоне шириной 1.8 эВ для щелочно-земельных атомов, отсчитываемой от потенциала ионизации или основного уровня иона. Данный эффект был объяснен в рамках, так называемой, туннельной модели [98]. Необходимо заметить, что методом рекомбинационной спектроскопии наблюдается только спектр излучения нейтральных атомов. Для наблюдения спектра люминесценции ионов необходимо оптическое возбуждение (лазерно-индуцированная флуоресценция или LIF). Прямое измерение спектра поглощения ионов невозможно, из-за низкой концентрации инжектируемых в сверхтекучий гелий ионов. Поэтому спектр поглощения измеряется косвенно, по интенсивности люминесценции в зависимости от длины волны возбуждения. При условии, что нет никаких нелинейностей (например, насыщения) измеряемый спектр будет пропорционален спектру поглощения.

Спектроскопия ионов Ba<sup>+</sup> была исследована той же группой [18]. Ионы создавались методом конденсации ионного пучка (Раздел 1.2.1) и инжектировались в сверхтекучий <sup>4</sup>He под действием электрического поля. Были измерены спектры поглощения (Рисунок 1.10) и люминесценции при возбуждении непрерывным лазером на красителе с выходной мощностью 150 мВт.



Рис. 1.10. Спектр поглощения иона Ba<sup>+</sup> в сверхтекучем <sup>4</sup>He [18]. а) Линия D<sub>2</sub>, b) Линия D<sub>1</sub>

В случае, когда возбужденное состояние не обладает сферической симметрией, спектральная линия расщепляется. Расщепление линии обусловлено динамическим эффектом Яна-Теллера [99]. Линия перехода  ${}^{2}S_{1/2} - {}^{2}P_{3/2}$  иона Ba<sup>+</sup> в сверхтекучем <sup>4</sup>He имеет ярко выраженную двойную структуру за счет этого эффекта (Рисунок 1.10 а), тогда как уровень  ${}^{2}P_{1/2}$  не расщепляется за счет эффекта Яна-Теллера и в спектре поглощении для перехода  ${}^{2}S_{1/2} - {}^{2}P_{1/2}$  присут-

ствует только один пик (Рисунок 1.10 b).

Недавно были проведены исследования методом оптической спектроскопии ионов Ba<sup>+</sup> в нанокаплях He [100]. Наблюдаемые спектры возбуждения идентичны наблюдаемым ранее [18] в объеме жидкого He, а значит ион в его основном электронном состоянии локализован в центре нанокапли. Наблюдаемые спектры поглощения, процесс ионной сольватации и динамика фотовозбужденного иона были промоделированы методом теории функционала плотности TDDFT в работах Матео, Леала и др. [23, 101].

### 1.3.2. Рекомбинация в сверхтекучем жидком ${}^{4}\text{He}$

Процессы рекомбинации играют важную роль при инжекции ионных примесей и локализации ионов под поверхностью жидкого гелия. Как было рассмотрено в Разделе 1.2.2, существуют несколько принципиально отличающихся друг от друга методов инжекции примесей в сверхтекучий гелий. В случае абляции в газе, главную роль играют процессы рекомбинации электронов и ионов в плазме, образованной в результате лазерной абляции или тлеющего разряда.

Процесс рекомбинации в плазме трудно подавить, однако при напряженности поля порядка 1 кВ/см, концентрация ионов, инжектируемых в жидкий гелий, может достигать порядка 10<sup>8</sup> см<sup>-3</sup> [102].

Рекомбинация ионов и электронов в сверхтекучем гелии хорошо описывается туннельной моделью [98]. В этом случае рекомбинация имеет место когда электрон в состоянии «пузыря» и ион в состоянии «пузыря» подходят друг к другу на расстояние достаточное, чтобы кулоновское притяжение между ними превысило постоянное электрическое поле,  $E_{\perp}$ , в котором они дрейфуют (подвижность ионов практически постоянна в поле напряженностью  $E \leq 1$  кВ/см при  $T \geq 1.2$  К). В этом приближении сечение рекомбинации составляет  $10^{-9}$ см<sup>2</sup>, что на несколько порядков больше сечения рекомбинации в газовой фазе, из-за маленьких скоростей движения ионов в сверхтекучем гелии. В случае рекомбинации электрона в состоянии «пузырь» и иона в состоянии «снежный ком» вероятность туннелирования электрона мало отличается от случая рекомбинации с ионом в состоянии «пузырь». Несмотря на то что потенциальный барьер для туннелирования увеличивается с увеличением плотности гелия, плотность оболочки дефекта типа «снежный ком» лишь незначительно отличается от объемной плотности жидкого гелия.

Рекомбинация в плазме при абляции в жидком гелии исследовалась мало. Однако хорошо известно, что первый импульс с энергией несколько мДж создает преимущественно нейтральные и/или заряженные кластеры, тогда как второй ионизирует и диссоциирует нейтральные кластеры и/или диссоциирует заряженные кластеры [80, 88]. Так, например, в экспериментах по спектроскопии щелочных атомов в сверхтекучем гелии [86] задержка между двумя импульсами составляла 10 мс, и за это время кластеры не успевали покинуть зону абляции. Спектроскопия примесей, инжектированных таким методом, показывает, что в этом случае образуются преимущественно нейтральные атомы с концентрацией 10<sup>10</sup> см<sup>-3</sup> [28]. Инжекция ионов в сверхтекучий гелий при абляции в жидкости малоэффективна в отсутствие приложенного электрического поля. Так, например, в работе Мориваки и Мориты [88] были измерены спектры поглощения и люминесценции ионов Yb<sup>+</sup>. Интенсивность люминесценции для перехода  $D_1$  (длина волны  $\lambda = 389$  нм) сильно зависела от напряженности приложенного электрического поля и была максимальной при E = 2.8 kB/cmи пропадала в отсутствие электрического поля.

#### 1.4. Ионы под поверхностью сверхтекучего гелия

Квазичастицы, обладающие свойствами фермионов Майорана, привлекают интересы исследователей во многих областях физики [1–3]. Среди многих других систем, сверхтекучая фаза гелия <sup>3</sup>He-B [4, 5] представляет особый интерес. Для детектирования майорановских состояний были разработаны различные методики, основанные на измерении акустического импеданса [6], удельной

теплоемкости [9, 10] и ЯМР в тонкой пленке сверхтекучего <sup>3</sup>Не [7]. Недостатками таких методов является косвенное детектирование поверхностных состояний.

Недавние теоретические расчеты показали, что наличие майорановских состояний приводит к анизотропии спиновой магнитной восприимчивости примесных частиц, локализованных вблизи поверхности или в тонкой пленке сверхтекучего <sup>3</sup>Не в В-фазе [13, 14]. Анизотропия спиновой восприимчивости в свою очередь должна привести к особенностям в механизмах спиновой релаксации примесных частиц, инжектированных в сверхтекучий гелий и локализованных вблизи поверхности. Время спиновой релаксации ансамбля частиц с направлением поляризации, ортогональным к поверхности, будет значительно меньше чем для направления поляризации вдоль поверхности.

Чунг и Чжан в своей работе [13] предложили измерить время спиновой релаксации,  $T_1$ , ансамбля электронов, локализованных под поверхностью сверхтекучего жидкого <sup>3</sup>He-B методом ЭПР. Время спиновой релаксации сильно зависит от ориентации спина электрона относительно нормали к поверхности как  $1/T_1 \propto sin^2\theta$  (Рисунок 1.11 а). Однако, из-за возникновения неустойчивости поверхности, концентрация примесных электронов, локализованных под поверхностью жидкого гелия, ограничена  $10^9$  ионов/см<sup>-2</sup> [16], что ниже предела чувствительности современных спектрометров ЭПР. Нестабильность поверхности была хорошо изучена для системы электроны на поверхности гелия [103, 104]. Измерение времени  $T_1$  должно проводится в слабом статическое магнитном поле, **B**, гораздо меньше приведенной средней тепловой энергии системы  $B \ll k_B T/\mu_B$ [13], для <sup>3</sup>He-B при T=1 мК примерно равна 1.5 мTл. Большие времена релаксации могут привести к насыщению спиновой системы, теоретически рассчитанные времена релаксации составляют порядка  $10^3$  секунд [13].

В нашей работе [15] был предложен альтернативный метод детектирования майорановских состояний, основанный на оптической накачке спиновой системы. Используя в качестве зонда ионы Ba<sup>+</sup>, локализованные под поверхностью



Рис. 1.11. Ионы Ва<sup>+</sup>, локализованные под поверхностью сверхтекучего гелия [15]. а) Ион с произвольной ориентацией спина в статическом электрическом поле. b) Ансамбль спинполяризованных ионов методом, полученных накачки циркулярно-поляризованным светом в статическом электрическом и магнитном полях

сверхтекучего гелия, и метод оптической накачки циркулярно поляризованным резонансным излучением для создания спиновой поляризации ансамбля ионов, можно измерить времена спиновой релаксации для двух направлений спиновой поляризации, вдоль поверхности (Рисунок 1.11 b) и перпендикулярно поверхности.

#### 1.4.1. Локализация ионов под поверхностью жидкого гелия

До настоящего времени под поверхностью жидкого гелия были локализованы квазисвободные электроны и ионы  $\text{He}^+$  в сверхтекучем гелии <sup>4</sup>He [105, 106] и сверхтекучем <sup>3</sup>He [16]. Для создания ионов, как положительных так и отрицательных, на вольфрамовый наконечник, размещенный в жидкости, подавалось напряжение порядка нескольких сотен вольт для эмиссии электронов и ионизации атомов гелия. Если приложить электрическое поле соответствующей полярности в котором напряженность будет ориентирована перпендикулярно поверхности, то ионы локализуются под поверхностью. Локализация достигается за счет баланса между двумя кулоновскими силами, силы, направленной вниз, возникающей за счет поляризации диэлектрика, и силы, направленной вверх, за счет приложенного напряжения к нижнему электроду. Чтобы препятствовать утечке заряда к стенкам ячейки, параллельно поверхности прикладывается удерживающий потенциал в несколько десятков вольт соответствующей полярности. Ионы могут удерживаться под поверхностью жидкого гелия несколько часов [16].

Теоретически задача о локализации иона в жидкости решается с помощью метода изображений, хорошо известного в электростатике [107]. Пусть z - расстояние, отсчитываемое от поверхности жидкого гелия, а направление оси z совпадает с направлением вектора нормали (Рисунок 1.12), тогда на электрон или ион, помещенный в жидкий гелий, будет действовать сила  $F_{img}$ , модуль которой равен:

$$F_{img} = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{\epsilon - 1}{\epsilon(\epsilon + 1)} \cdot \frac{e^2}{z^2}$$
(1.1)

В уравнении (1.1)  $\epsilon_0$  - электрическая постоянная,  $\epsilon$  - диэлектрическая проницаемость жидкого гелия, e - заряд электрона.

Рассмотрим теперь положительный заряд в статическом поле напряженностью *E* (Рисунок 1.12).



Рис. 1.12. И<br/>он Ва $^+,$ локализованный под поверхностью жидкого<br/>  $^3\mathrm{He}$ 

Такой заряд будет находиться в электрическом поле, потенциал которого, V, равен:

$$V = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{\epsilon - 1}{\epsilon(\epsilon + 1)} \cdot \frac{e^2}{z} + eE_{\perp}z \tag{1.2}$$

Как видно из графика зависимости потенциала от расстояния от поверхности при различной напряженности приложенного электрического поля (Рисунок 1.13), у этой функции есть минимум, соответствующей глубине *d* на которой


Рис. 1.13. Зависимость потенциала от расстояния z от поверхности

Нетрудно показать, что минимальное расстояние d равно :

$$d = \sqrt{\frac{(\epsilon - 1)e}{16\pi\epsilon_0\epsilon(\epsilon + 1)E_\perp}}$$
(1.3)

Для сверхтекучего жидкого <sup>3</sup>Не при напряженности приложенного поля  $E_{\perp} = 100 \text{ B/см}$ , глубина локализации равна  $d \approx 30 \text{ нм}$ . Толщина поверхностного слоя сверхтекучего гелия, где предсказано существование майорановских состояний, сравнима с длиной когерентности сверхтекучего жидкого <sup>3</sup>He,  $\xi_0 \approx 77$  нм [13, 108]. Изменяя напряженность электрического поля, можно менять глубину локализации пробных зарядов и увеличить чувствительность детектирования таких состояний.

#### 1.4.2. Поверхностная плотность ионов

На практике для создания однородного поля,  $E_{\perp}$ , в герметичной ячейке размещают два дисковых электрода, между которыми прикладывают напряжение  $V_{dc}$ . Пусть  $d_c$  - расстояние между электродами. В ячейку конденсируется гелий до некоторой высоты  $d_l$  между электродами. Таким образом мы получаем конденсатор, и заряд под поверхностью жидкого гелия будет накапливаться до тех пор пока не экранирует заряд на пластине конденсатора. Нетрудно показать, что максимальная плотность ионов,  $n_0$ , под поверхностью жидкого гелия будет определяться условием экранирования [16] и будет пропорционально прижимающему полю $E_{\perp}$ :

$$n_0 \simeq \frac{\varepsilon_0 V_{dc}}{(d_c - d_l)e} \tag{1.4}$$

При условии, что ячейка заполнена жидким гелием до половины расстояния между электродами, уравнение (1.4) можно переписать:

$$n_0 = \frac{2\varepsilon_0 V_{dc}}{d_c e} \tag{1.5}$$

Например, для сверхтекучего <sup>3</sup>Не в поле напряженностью  $E_{\perp} = 100 \text{ B/cm}$  поверхностная плотность ионов будет равна  $n_0 \simeq 10^8 \text{ cm}^{-2}$ .

#### 1.4.3. Неустойчивость поверхности

При наличии поверхностной плотности зарядов, локализованных над или под поверхностью, равновесное состояние поверхности формируется за счет комбинации силы гравитации, капиллярных и электростатических сил [109]. Для системы электроны, локализованные на поверхности сверхтекучего гелия, возникает однородная деформация поверхности [110], существование которой было предсказано ранее Шикиным [111, 112]. Рассматривая динамический сценарий неустойчивости поверхности в приближении малых колебаний можно получить закон дисперсии малых колебаний заряженной поверхности жидкости. Из условия равенства нулю частот таких колебаний находится критическое значение напряженности электростатического поля, при превышении которого развивается нестабильность поверхности. Верхний предел величины однородной поверхностной плотности зарядов в электрическом поле напряженностью,  $E_c$ , при превышении которого возникает нестабильность поверхности в сверхте<br/>кучем  ${}^{4}\mathrm{He},$ составляет  $n_0 \simeq 2 \cdot 10^9$  см<sup>-2</sup>. Дальнейшее развитие неустойчивости происходит в рамках флуктуационного сценария: появления на плоской заряженной поверхности многозарядных кластеров (электронов или ионов) в форме лунок. Для

зарядов, локализованных под поверхностью, образуются деформации поверхности в виде холмов. Таким образом, нестабильность поверхности проявляется в появлении капиллярных волн, наблюдаемых экспериментально, с длинами 2 - 5 мм [113] в узлах которых собираются электроны. Дальнейшее развитие нестабильности при превышении критического значения напряженности электрического поля развивается по следующему сценарию: возрастает амплитуда колебаний капиллярных волн, электроны преодолевают потенциальный барьер и формируют многоэлектронный «пузырь» (10<sup>7</sup>-10<sup>8</sup> электронов) в сверхтекучем гелии, который движется к нижнему электроду.

Нестабильность поверхности экспериментально исследовалась, как для системы: электроны на поверхности сверхтекучего <sup>4</sup>He [103, 104], так и для системы заряженных микро- и наночастиц, локализованных под поверхностью [114]. В последнем случае, амплитуда деформаций увеличивается с ростом напряженности электрического поля, и при превышении критического значения заряд преодолевает барьер на границе жидкость-газ.

При наличии разноименных зарядов, локализованных над и под поверхностью сверхтекучего гелия формируется еще более экзотическая система, образующая «диполь» [115]. Такие системы являются неустойчивыми и время жизни в связанном состоянии составляет всего несколько минут.

Нами была сделана оценка [15] критического поля,  $E_c$ , для системы: ионы, локализованные под поверхностью сверхтекучего <sup>3</sup>He-B, воспользовавшись уравнением, полученным ранее [103, 104]. В соответствующем температурном диапазоне напряженность электрического поля при котором поверхность будет нестабильна составляет  $E_c \approx 2 \text{ kB/cm}$ , а соответствующая этому полю поверхностная плотность зарядов  $n_c \approx 10^9 \text{ cm}^{-2}$ .

# 1.5. Мезоскопические структуры в сверхтекучем гелии

Лазерная абляция металлов в различных жидкостях является известным методом создания наночастиц. Во многих экспериментах подобного рода наблюдалась агрегация наночастиц в сложные структуры: сетки и нити. Уже в первых экспериментах по внедрению атомов и молекул в сверхтекучий гелий методом лазерной абляции Фуджисаки и др. наблюдали формирование нитей, которые были видны невооруженным глазом [28]. В экспериментах мишень из бария или меди была погружена в жидкий гелий, а в качестве лазера абляции использовались вторые гармоники импульсных лазеров Nd:YAG или Nd:YLF с энергией импульса 200 мкДж и фундаментальная гармоника Nd:YAG с энергией импульса менее 1 мДж. Похожие нити или цепочки из микрочастиц были обнаружены при внедрении твердых частиц водорода в сверхтекучий гелий [44, 45, 116]. Характерный размер таких нитей составлял от десятков до сотен микрон, и их можно было наблюдать невооруженным глазом. Некоторые нити имели ответвления [24, 28] и могли формировать сети или паутины с характерными размерами от нескольких миллиметров до сантиметров [24]. Также было показано, что металлические нити на самом деле состоят из большого набора запутанных и скрученных нанонитей характерными размерами 2 - 20 нм (см. Рисунок 1.14). Их кристаллическая структура, температурная стабильность и электрические свойства были исследованы в недавних экспериментах [29–36]. Похожие структуры наблюдались в сверхтекучих нано- и микрокаплях гелия, в которые инжектировались металлические атомы и кластеры [37–40].

Сверхтекучий гелий является особенной жидкостью, отличающейся от классических жидкостей во многих аспектах. Он имеет чрезвычайно высокую теплопроводность, низкую плотность и поверхностное натяжение, стремящуюся к нулю вязкость и поддерживает движение без трения.

Особое значение имеет существование долгоживущих сверхтекучих вихрей с не сверхтекучим ядром субатомного диаметра, циркуляция скорости кото-



Рис. 1.14. Фотографии нанонитей из золота, выращенных в сверхтекучем гелии при T=1.5 К и давлении P=22 бар [24]. Изображения нанонитей а), b), (c), (d) получены с помощью сканирующей электронной микроскопии (SEM). Нити были собраны на стеклянной подложке после осушения ячейки, (e) фотография «паутины» из медных нанонитей в ячейке, заполненной сверхтекучим гелием

рых квантуется [42]. Способность вихря увлекать и локализовать на оси вихря мелкие частицы хорошо известна по новаторской работе Ярмчука и др. [43] о захвате свободных электронов. Поэтому было сделано предположение, что в сверхтекучем гелии, как водородные нити [44, 116], так и металлические нанопроволки [24, 29] формируются за счет агрегации примесей, локализованных на оси вихря. В настоящее время большинство публикаций в этой быстро развивающейся области поддерживают такую интерпретацию формирования нанонитей [33, 37–39, 47–49], как в объеме сверхтекучего гелия, так и в микрокаплях гелия.

Интерес к формирования нанонитей в сверхтекучем гелии заключается в следующем: во-первых, нанопроволоки, полученные этим новым способом, могут обладать физическими свойствами, отличными от полученных другими методами, во-вторых, структура нанопроволок и сетей из нанопроволок может многое рассказать о природе квантовых вихрей в бесконечно больших (в объеме гелия) и конечных (каплях гелия) сверхтекучих системах. Задача о локализации отдельных частиц, таких как электроны и ионы, на оси вихря была изучена теоретически [50, 51]. Совсем недавно были опубликованы результаты численного моделирования диффузии нейтральных частиц в жидком Не и их коалесценции в мелкие кластеры [40, 47, 117]. Однако до сих пор не существует общей теории формирования нанопроволок или роста нитей на мезоскопическом масштабе вследствие агрегации кластеров, локализованных на оси вихря. Особенно загадочным является процесс образования нитей, когда отдельные нанопроволоки запутываются и скручены вместе, образовывая при этом «веревки» миллиметрового размера и сети. Экспериментальные наблюдения в работе Морошкина и др. [24] при абляции мишени в жидком гелии и воспроизведенные недавно при абляции мишени в газе гелия [53] противоречат этой модели. Во-первых, многие наблюдаемые нити и нанопроволоки имеют очень богатую структуру с многочисленными ответвлениями, которые не могут сформироваться вследствие локализации на одном вихре. Во-вторых, нанопроволоки были сформированы также в нормальной жидкости Не, при температуре выше 2.17 К. Однако, в этом случае не наблюдались более крупные структуры, такие как сети, но можно было наблюдать миллиметровые нити, а нанопроволоки имели менее однородную структуру [47].

В настоящей работе [53] был исследован процесс формирования нанопроволок, нитей и сетей в системе, которая представляет собой двумерную ловушку для примесных частиц, в противоположность квантовому вихрю, представляющего собой одномерную ловушку. Потенциальная яма создается комбинацией приложенного вертикально относительно свободной поверхности гелия статического электрического поля и электрического поля противоположной полярности, создаваемого за счет поляризации свободной поверхности сверхтекучего Не (см. Раздел 1.4). Ловушка загружается заряженными металлическими микро- и наночастицами, создаваемыми абляцией мишени лазерными импульсами в парах Не над поверхностью сверхтекучего Не. Мезоскопические структуры, микроскопические частицы и их динамика анализировались с помощью

высокоскоростной CMOS камеры, а сами структуры, осажденные на подложки, затем изучались методом сканирующей электронной микроскопии (SEM) при комнатной температуре. Таким образом, в данной работе было расширены существующие исследования металлических наноструктур в сверхтекучем гелии, что позволит в будущем лучше понять сложный процесс коалесценции примесей на мезоскопическом масштабе. Альтернативный сценарий формирования дендритных структур в сверхтекучем гелии, наблюдаемых в экспериментах [53], был предложен в работе Шикиной и Шикина [118]. В данной работе был предложен сценарий при котором квазиодномерные нити формируются в плазме, состоящей из фрагментов металла, получающихся в результате абляции, при наличии внешнего электрического поля, создаваемого электродами. В работе также обсуждается механизм формирования ответвлений у таких структур в сверхтекучем гелии. В недавней работе Стовбуна и Скоблина [117] был предложен механизм, который рассматривает агрегацию заряженных поляризованных частиц как частный случай управляемого дрейфа, для случая когда дрейф преобладает над диффузией. Металлические сферические частицы нанометрового размера становятся заряженными из-за теплового излучения электронов и процесса лазерной абляции. По теоретическим оценкам, дрейф преобладает над диффузией во всех возможных случаях. Характерные времена предлагаемого механизма достаточно малы, чтобы обеспечить рост нанопроволок, который наблюдается экспериментально. Предлагаемый механизм дрейфа не противоречит ни одному из многочисленных экспериментальных наблюдений. Таким образом, на сегодняшний день вопрос о доминирующем механизме формирования нанонитей в сверхтекучем гелии не решён.

#### 1.6. Выводы

В Главе 1 представлен обзор работ, посвященных как внедрению отдельных атомов и ионов в сверхтекучий гелий, так и росту мезоскопических структур в сверхтекучем гелии, таких как нити и сетки. Данный обзор отражает текущее положение в области физики конденсированного состояния, посвященной изучению свойств примесных частиц в сверхтекучем гелии методом оптической спектроскопии и методам внедрения примесей. Отдельно рассмотрена актуальная задача о локализации ансамбля ионов под поверхностью сверхтекучего гелия и оптическому детектированию времени спиновой релаксации.

# Теоретический расчет спектров перехода D<sub>1</sub> иона Ва<sup>+</sup> в жидком гелии

Точный расчет оптических спектров примесного атома или иона в жидком гелии требует больших вычислительных ресурсов, так как необходимо учесть взаимодействие примесного атома или иона со всеми окружающими его атомами гелия и взаимодействие между атомами гелия. Из-за большого количества взаимодействующих частиц численное решение уравнения Шрёдингера требует значительного времени даже для современных суперкомпьютеров.

Впервые задача расчета энергетических уровней примеси в жидком гелии была поставлена для электрона в жидком <sup>4</sup>He. Для расчета энергетической структуры электрона была разработана модель электронного «пузыря» [71]. Развитие модели электронного «пузыря» получила, так называемая, модель сферического атомного «пузыря», которая впервые была введена в работе Хикмана и др. [119, 120] для расчета энергетической структуры атомов <sup>4</sup>He в возбужденном состоянии. Впоследствии модель была расширена для щелочноземельных атомов и ионов Бауэром и др. [21]. Разработанные методы инжекции примесей позволили в дальнейшем внедрять и другие элементы в жидкий гелий (см. обзоры [59, 60]). В своей статье Бауэр и др. [21] применили модель атомного «пузыря» для расчета оптических спектров щелочно-земельных атомов Са, Sr, Ва и иона Ва<sup>+</sup>, «пузырная» структура которого была предсказана Коулом и Бахманом [20]. В текущей главе мы применяем модель атомного «пузыря» для расчета спектров иона Ba<sup>+</sup> в жидком He, используя *ab initio* парные потенциалы Ba<sup>+</sup>-He, которые являются более точными, чем потенциалы, которыми пользовались в более ранних вычислениях [21].

В данной главе представлены модели атомного «пузыря» и деформированного «пузыря». Отдельный раздел посвящен парным потенциалам взаимодействия Ba<sup>+</sup>-Не без которых невозможно описать экспериментальные спектры, рассчитанные в рамках этих моделей. В пятом разделе главы представлены результаты расчетов спектров поглощения и люминесценции линии D<sub>1</sub> иона Ba<sup>+</sup> в сверхтекучем гелии с учетом квадрупольных мод. В шестом разделе полученные теоретические значения сдвига линий и полуширина линий сравниваются с экспериментальными данными, представленными в литературе и полученными в экспериментах, описание которых будет в следующих главах диссертационной работы.

## 2.1. Свободный ион Ва<sup>+</sup>

Электронная конфигурация иона Ba<sup>+</sup> (Ba II) - 6s<sup>1</sup>. Основное состояние иона Ba<sup>+</sup> - 6s  ${}^{2}S_{1/2}$ , а его наиболее распространенные изотопы имеют ядерный спин I=0. Энергетическая диаграмма нижних уровней иона бария Ba<sup>+</sup> в вакууме приведена на Рисунке 2.1. Энергии двух возбужденных состояний 6p  ${}^{2}P_{1/2}$ , 6p  ${}^{2}P_{3/2}$  (L=1) равны 20 262 см<sup>-1</sup> и 21 952 см<sup>-1</sup>, соответственно. За ноль принимается основное состояние иона. Как показано на энергетической диаграмме, ион Ba<sup>+</sup> имеет два нижележащих метастабильных состояния 5d  ${}^{2}D_{3/2}$  и 5d  ${}^{2}D_{5/2}$ (L=2) энергии которых равны 4 874 см<sup>-1</sup> и 5 675 см<sup>-1</sup>, соответственно. Переходы между основным состоянием и метастабильными 5D состояниями запрещены. Их времена жизни [121] 89.4 с и 32.0 с.

При возбуждении резонансным излучением иона Ba<sup>+</sup> в состояние 6р  ${}^{2}P_{1/2}$ (время жизни 7.9 нс [123]) ион совершает спонтанный переход в основное состояние 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  (вероятность перехода  $A_{ki}=9.53\cdot10^{7}$  c<sup>-1</sup>) или нижележащее метастабильное состояние 5d  ${}^{2}D_{3/2}$  (вероятность перехода  $A_{ki}=3.10\cdot10^{7}$  c<sup>-1</sup>).

При возбуждении резонансным излучением иона Ba<sup>+</sup> в состояние 6р  ${}^{2}P_{3/2}$ (время жизни 6.32 нс [123]) ион совершает спонтанный переход в нижележащие метастабильные состояния 5d  ${}^{2}D_{3/2}$  (вероятность перехода  $A_{ki}$ =6.00·10<sup>6</sup> c<sup>-1</sup>), 5d  ${}^{2}D_{5/2}$ , время жизни 32.0 с [121] (вероятность перехода  $A_{ki}$ =4.12·10<sup>7</sup> c<sup>-1</sup>) или в



Рис. 2.1. Энергетическая диаграмма уровней иона бария Ba<sup>+</sup> [122]. Энергия в см<sup>-1</sup>, длины волн указаны в нм

основное состояние.

### 2.2. Парные потенциалы взаимодействия Ва<sup>+</sup>-Не

Взаимодействие между ионом  $Ba^+$  и окружающими атомами He описывается с помощью парных потенциалов, полученных *ab initio* квантово-химическими методами расчета. Первоначально парные потенциалы взаимодействия,  $V^{pair}$ , были рассчитаны в работах [92, 93] для основного 6s и возбужденных 6p состояний иона  $Ba^+$ . Расчеты были проведены с помощью программного пакета MOLPRO. Методом самосогласованного поля в полном активном пространстве (CASSCF) был сделан расчет молекулярных орбиталей и парные потенциалы  $Ba^+$ -Не были получены методом конфигурационного взаимодействия (MRCI). Метод расчета парных потенциалов описан в работе Мориваки и др. [88] для пары Yb<sup>+</sup>-Не. Потенциальная кривая парного взаимодействия  $Ba^+$ -Не для основного состояния иона  $Ba^+$  была также получена в работах [22, 124]. Полный набор парных потенциалов  $Ba^+$ -Не для разнообразных электронных состояний  $Ba^+$  и атома He в основном состоянии был рассчитан в недавних работах [23, 125] методом объединенных кластеров, CCSD (T). Известно, что метод объединенных кластеров, CCSD (T), позволяет вычислить энергию корреляции электронов значительно точнее, чем MRCI. Таким образом, для состояния 6s энергия связи или энергия диссоциации, D<sub>e</sub>, парного взаимодействия Ва <sup>+</sup>-Не увеличилась с 12 K для потенциала [92, 93] до 20 K для потенциала [23, 125], тогда как длина связи, R<sub>e</sub>, уменьшилась с 5.7 Å до 5.0 Å, соответственно. Доступные в литературе парные потенциалы, описывающие взаимодействие между возбужденным состоянием иона Ba<sup>+</sup> и основным состоянием атома He, не учитывают спин-орбитальное взаимодействие. Потенциальная энергия пары Ba<sup>+</sup>-Не зависит от ориентации орбитального момента валентного электрона иона для L  $\geq$  1 относительно межъядерной оси, что приводит к двум потенциальным кривым, соответствующим вырожденному состоянию 6р П с проекциями на ось квантования M<sub>L</sub> =± 1 и состоянию 6р  $\Sigma$  с проекцией M<sub>L</sub> = 0. Расщепление этих состояний за счет спин-орбитального взаимодействия рассчитывалось отдельно методом двухатомных фрагментов в молекулах (DIM) [126].



Рис. 2.2. Слева: адиабатические парные потенциалы Ba<sup>+</sup>-He, с учетом спин-орбитального взаимодействия. Пунктирной линией построены парные потенциалы, полученные в работах [92, 93], сплошной линией, полученные в работах [23, 125]. Справа: энергетические уровни и электронные переходы свободного иона Ba<sup>+</sup>

Для возбуждённого состояния Ba<sup>+</sup>(6P), полный гамильтониан пары Ba<sup>+</sup>-He,

$$H_{6P}^{pair}(R) = \left\{ \begin{array}{cccccc} V_{\Sigma}^{pair}(R) & \frac{\sqrt{2}}{3}\Delta & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\sqrt{2}}{3}\Delta & V_{\Pi}^{pair}(R) - \frac{1}{3}\Delta & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & V_{\Pi}^{pair}(R) + \frac{1}{3}\Delta & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & V_{\Sigma}^{pair}(R) & \frac{\sqrt{2}}{3}\Delta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{\sqrt{2}}{3}\Delta & V_{\Pi}^{pair}(R) - \frac{1}{3}\Delta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & V_{\Pi}^{pair}(R) + \frac{1}{3}\Delta \end{array} \right\} (2.1)$$

 $\hat{H}_{6P}^{pair}$ , записывается как сумма гамильтониана взаимодействия,  $\hat{H}_{int}$ , и спинорбитального взаимодействия,  $\hat{H}_{SO}=\xi \mathbf{LS}$ . S = 1/2 - спин электрона, а  $M_S$  проекция спина на ось квантования. Гамильтониан  $\hat{H}_{int}$  является диагональным в представлении  $|n, L, M_L, M_s >$  и его собственные значения задаются *ab initio* потенциалами  $V_{\Pi}^{pair}$  и  $V_{\Sigma}^{pair}$ . Гамильтониан спин-орбитального взаимодействия,  $\hat{H}_{SO}$ , рассматривается в полуэмпирическом виде с использованием стандартной процедуры, описанной в статьях [92, 127].  $\xi = 2/3\Delta$  является константой спин-орбитального взаимодействия, где  $\Delta=20$  261.561  $^{-1}$  - расщепление энергетического уровня бр $^2{\rm P}$ на уровни бр $^2{\rm P}_{1/2}$ и бр $^2{\rm P}_{3/2}$  свободного и<br/>она  ${\rm Ba^+}$ взятые из базы данных атомных спектров NIST [128]. Матрица спин-орбитального взаимодействия диагональна в представлении  $|n, L, J, M_J >$ , где J и  $M_J$ - полный момент импульса валентного электрона и его проекция, соответственно. Таким образом, необходимо преобразовать гамильтониан,  $\hat{H}_{SO}$ , записанный в представлении  $|n, L, J, M_J >$  в представление  $|n, L, M_L, M_s > [129]$ . Полный гамильтониан  $\hat{H}_{6P}^{pair}$  в представлении  $|n, L, M_L, M_S >$  является блок-диагональной матрицей, состоящей из двух блоков 3 × 3 (см. уравнение (2.1)).

Собственные значения гамильтониана пары Ba<sup>+</sup>-He, включая спин-орбитальное взаимодействие, получены методом диагонализации гамильтониана  $H_{6P}^{pair}$ в пакете программ Mathematica 9. Результирующие потенциальные кривые для состояний 6р  ${}^{2}\Sigma_{1/2}$ , 6р  ${}^{2}\Pi_{1/2}$ , и 6р  ${}^{2}\Pi_{3/2}$  изображены на Рисунке 2.2 красными линиями. Кривая потенциальной энергии основного состояния 6s  ${}^{2}\Sigma_{1/2}$  нарисована синий линией.

#### 2.3. Модель сферического атомного «пузыря»

Пусть оператор  $\hat{H}_{tot}$  является гамильтонианом всей системы, а  $\psi_{tot}$  - волновая функция всей системы. Для того, чтобы найти уровни энергии примеси в жидком гелии необходимо найти собственные значения энергии полного гамильтониана системы.

$$E_{tot} = \langle \psi_{tot} | \hat{H}_{tot} | \psi_{tot} \rangle \tag{2.2}$$

В модели атомного «пузыря» [120] оператор  $\hat{H}_{tot}$  представляется в виде суммы энергии атомов гелия, гамильтониана взаимодействия примеси с окружающими атомами гелия и собственной энергии примесного атома или иона. В первом приближении многочастичными взаимодействиями пренебрегают:

$$\hat{H}_{tot} = \hat{H}_{He} + \hat{H}_{int} + \hat{H}_{Atom}$$
(2.3)

Гамильтониан взаимодействия примеси с окружающими атомами гелия можно записать как сумму парных взаимодействий [130]:

$$\hat{H}_{int} = \sum_{i=1}^{N} \hat{H}_i^{pair}(\mathbf{R}_i), \qquad (2.4)$$

где  $\hat{H}_i^{pair}(\mathbf{R}_i)$  - гамильтониан взаимодействия і - го атома гелия и примесного атома в системе координат (X,Y,Z), связанной с атомом примеси (Z ось квантования),  $\mathbf{R}_i$  - радиус вектор, соединяющий центр примесного атома и центр і - го атома гелия. Для выполнения суммирования в уравнении (2.4) необходимо все парные гамильтонианы  $H_i^{pair}(\mathbf{R}_i)$  преобразовать к одной общей системе координат. В общем случае, когда атом гелия не находится на оси Z, матрица парного взаимодействия запишется через матрицу поворота, как:

$$\hat{H}_j^{pair} = \hat{D}^* \hat{H}_j^{pair}(\mathbf{R}_j) \hat{D}, \qquad (2.5)$$

где  $\hat{D}$  - матрица поворота [60, 130].

В формуле (2.4) мы заменяем суммирование интегрированием по объёму с весом, равным плотности жидкого гелия. Для этого необходимо все элементы матрицы в уравнении (2.5) проинтегрировать по сферическому «пузырю» (плотность жидкого гелия в модели представляется как радиальная функция распределения, и введена ниже), при этом, вследствие сферической симметрии, недиагональные элементы обращаются в ноль, а диагональные элементы матрицы равны друг другу:

$$\hat{H}_{int} = \int \rho(\mathbf{R}) \hat{D} \hat{H}_{int}^{pair}(\mathbf{R}) \hat{D}^* d^3 \mathbf{R}.$$
(2.6)

Учет спин-орбитального взаимодействия и диагонализация гамильтониана  $\hat{H}_{6P} = \hat{H}_{int} + \hat{H}_{SO}$ аналогичен процедуре, описанной в Разделе 2.2 для парного гамильтониана. Тогда полная энергия иона,  $E_{tot}$ , в жидком гелии может быть записана как сумма собственного числа гамильтониана  $\hat{H}_{int} + \hat{H}_{Atom}$  и энергии жидкого гелия,  $E_{liq}$ .

Необходимо заметить, что жидкий гелий в модели рассматривается как сплошная среда даже на нанометровом масштабе. Энергия жидкости,  $E_{liq}$ , состоит из трех членов: работы силы, создаваемой за счет давления жидкого гелия,  $E_{PV}$ , энергии поверхностного натяжения «пузыря»,  $E_S$ , и дополнительной кинетической энергии, связанной с локализацией атомов гелия на границе «пузыря»,  $E_{Vk}$  [59].  $E_{liq}$  может быть записана как:

$$E_{liq} = E_{PV} + E_S + E_{Vk} = pV_{bubble} + \sigma S_{bubble} + \frac{\hbar^2}{8M_{He}} \int \frac{(\nabla \rho(\mathbf{R}))^2}{\rho(\mathbf{R})} d^3\mathbf{R}, \quad (2.7)$$

где  $M_{He}$  - масса атома гелия,  $V_{bubble}$  - объем «пузыря»,  $S_{bubble}$  - площадь поверхности «пузыря».

Распределение плотности жидкого гелия вокруг примесного центра,  $\rho(\mathbf{R})$ , описывается радиальной пробной функцией. В приближении сферического «пузыря» мы используем ту же функцию  $\rho(\mathbf{R})$ , что и в работе Бауэра и др. [21] и других работах по атомным «пузырям» (см. [60]):

$$\rho(R, R_0, \alpha) = \begin{cases} 0, & R \le R_0 \\ \rho_0 [1 - \{1 + \alpha (R - R_0)\} e^{-\alpha (R - R_0)}], & R \ge R_0, \end{cases}$$
(2.8)

здесь,  $\rho_0$  - плотность жидкого гелия для заданной температуры и давлении насыщенных паров,  $1/\alpha$  и  $R_0$  соответствуют толщине поверхностного слоя на границе «пузыря» и радиусу полости с  $\rho = 0$ , соответственно.

Работа силы, создаваемая за счет давления жидкого гелия,  $E_{PV}$ , и энергия поверхностного натяжения пузыря,  $E_S$ , зависят от характеристического радиуса «пузыря»,  $R_b$ . Граница «пузыря» имеет определенную толщину, где  $\rho(R)$  меняется от 0 до  $\rho_0$ , и поэтому вводится эффективный радиус  $R_b$ .  $R_b$  вычисляется как положение центра масс профиля границы «пузыря», которое определяется из уравнения:

$$\int_{0}^{R_{b}} \rho(R) \cdot 4\pi R^{2} dR = \int_{R_{b}}^{+\infty} [\rho_{0} - \rho(R)] \cdot 4\pi R^{2} dR.$$
(2.9)

Зная плотность распределения жидкого гелия, можно переписать энергию жид-кости:

$$E_{liq} = \frac{4}{3}\pi pR_b^3 + 4\pi\sigma R_b^2 + \frac{\pi\hbar^2}{2M_{He}} \int_0^{+\infty} \frac{(\nabla\rho(R))^2}{\rho(R)} R^2 dR.$$
(2.10)

Подставив уравнение (2.10) в уравнение (2.3) можно переписать полную энергию иона Ba<sup>+</sup> в жидком гелии как:

$$E_{tot}(R, R_0, \alpha) = E_{liq}(R, R_0, \alpha) + E_{Ba^+}^{\text{free}} + 4\pi \int_{0}^{+\infty} \rho(R, R_0, \alpha) \Delta V^{pair} R^2 dR, \quad (2.11)$$

где  $\Delta V^{pair} = V^{pair}(R) - V^{pair}(+\infty)$ , энергия взаимодействия стремящаяся к нулю на больших расстояниях.

Поверхностное натяжение жидкого гелия,  $\sigma$ , давление насыщенных паров, p, и плотность жидкого гелия,  $\rho_0$  при температуре T = 1.6 К (температура, при которой были проведены измерения оптических спектров иона Ba<sup>+</sup> в сверхтекучем гелии [18, 54]) были взяты из литературы [131–133]. Авторы статьи [18] не увидели зависимости от температуры в диапазоне температур T=1.44-1.58 К и соответствующем для данной температуре давлении насыщенных паров гелия  $P_{SVP}=350-700$  Па. Данный экспериментальный факт объясняется небольшим вкладом  $E_{liq}$  при малых давлениях. Тогда как при больших давлениях линии оптических переходов сдвигаются, а сдвиги хорошо описываются в рамках модели атомного «пузыря» [60, 96].

В Таблице 2.1 представлены параметры жидкого <sup>4</sup>He, использованные при расчете полной энергии иона Ba<sup>+</sup> в сверхтекучем гелии.

Поверхностное	Плотность жидкого	Давление	
натяжение, $\sigma$ , $10^{-3}$	$^4\mathrm{He}, ho_0,\kappa\Gamma/\mathrm{m}^3$	насыщенных паров,	
Дж/м		$\mathbf{P}_{SVP},  \Pi \mathbf{a}$	
0.32751	145.57	746.364	

Таблица 2.1. Параметры жидкого <sup>4</sup>Не при температуре T=1.6 К [131–133]

Минимум полной энергии,  $E_{tot}$ , для основного 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  и возбужденного 6р  ${}^{2}P_{1/2}$  состояний иона Ba<sup>+</sup> в жидком гелии находятся численным методом с помощью пакета программ *Mathematica 9*. Таким способом мы получаем параметры  $R_0$  и  $\alpha$ , отвечающие двум равновесным конфигурациям «пузыря». Радиальные функции распределения жидкого гелия, построенные с использованием этих параметров изображены на Рисунке 2.3.

Для нахождения полной энергии задается массив данных { R<sub>0</sub>,  $\alpha$  }, где данные параметры меняются с шагом достаточным для нахождения минимума полной энергии в уравнении (2.11). Для проведенных расчетов шаг составлял 0.1 Å. Радиус «пузыря» в основном состоянии находится из условия минимума полной энергии иона Ba<sup>+</sup> в жидком гелии.

Равновесные параметры «пузыря», приведенные в Таблице 2.2, используются для расчета вклада квадрупольной моды в уширение спектральных линий. Сам метод описан в Разделе 2.5 текущей главы.



Рис. 2.3. Радиальные функции распределения плотности жидкого гелия вокруг иона Ba<sup>+</sup> для электронных состояний Ba<sup>+</sup> 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  и 6p  ${}^{2}P_{1/2}$ . В качестве функции распределения используется пробная функция из уравнения (2.8). Сплошные кривые соответствуют парным потенциалам, взятым из работ [92, 93], кривые, изображенные пунктирной линией соответствуют парным потенциалам взятым из работ [23, 125]

Таблица 2.2. Равновесные параметры атомного пузыря, полученные из стандартной атомной модели для различного набора парных потенциалов Ba<sup>+</sup>-He.  $R_{0eq}$  - значение параметра  $R_0$  в уравнении 2.8,  $\alpha_{eq}$  - величина обратная толщине границы «пузыря»,  $R_b$  - характерный радиус «пузыря»

$6s \ ^2S_{1/2}$			$6p \ ^2P_{1/2}$			Паршио	
	° 1			° 1		парные	
$R_{0eq}, A$	$\alpha_{eq}, \mathbf{A}^{-1}$	$R_b, A$	$R_{0eq}, A$	$\alpha_{eq}, \mathbf{A}^{-1}$	$R_b, A$	потенциалы	
4.3	3.5	4.8	5.1	2.6	5.9	[92, 93]	
3.9	4.3	4.3	4.8	2.9	5.5	[23, 125]	

Сдвиг уровня энергии примеси по отношению к энергии в вакууме можно записать как:

$$\Delta E(R) = E_{tot} - E_{Dopant}^{0} = \int V^{pair}(\mathbf{R}) \cdot \rho(\mathbf{R}) d^{3}\mathbf{R} + E_{liq}$$
(2.12)

Сдвиг спектральной линии при переходе из основного состояния (1) в возбужденное (2) запишется, как:

$$\Delta \nu = \frac{1}{h} \int [V_2^{pair}(\mathbf{R}) - V_1^{pair}(\mathbf{R})] \rho(\mathbf{R}) d^3 \mathbf{R} + E_{liq}$$
(2.13)

В уравнении 2.13,  $V_2^{pair}$  и  $V_1^{pair}$  обозначают парные потенциалы основного и возбужденного состояний, соответственно. Для поглощения используется  $\rho(R)$ основного состояния, для излучения - возбуждённого.

#### 2.4. Уширение спектральных линий

Движение атомов гелия приводит к колебаниям поверхности «пузыря» и уширению спектральных линий. Для расчета уширения спектральных линий оптических переходов примесного атома или иона в жидком гелии применяются различные приближения.

В настоящей работе для вычисления ширины спектральной линии применяется модель колеблющегося «пузыря». Движение атомов Не, окружающих Ba<sup>+</sup>, возмущает поверхность «пузыря», и, следовательно, изменяется полная энергия, что приводит к сдвигу спектральной линии. Сложное движение границы «пузыря» можно рассматривать как совокупность колебательных мод: радиальное сжатие и расширение «пузыря» (так называемая, «дышащая» мода), движение центра «пузыря» или иона относительно границы «пузыря» (дипольная мода) и моды более высокого порядка (квадрупольные и др.).

В этом разделе мы ограничимся приближением в котором рассматривается «дышащая» мода колебаний поверхности пузыря вблизи равновесного состояния. Данный метод использовался для расчета спектров электронного «пузыря» в жидком гелии [70], и спектров примесных щелочных атомов в сверхтекучем <sup>4</sup>He [21]. Модель деформированного атомного «пузыря», которая учитывает моды более высоких порядков, будет рассмотрена в следующем разделе.

«Пузырь» в жидком гелии в данном приближении представляется как

квантовый осциллятор. Его эффективная масса вычисляется в соответствии с классической теорией Рэлея [96, 134] и равна  $M_{eff} = 4\pi R_b^3 \rho_0$ .

Полная энергия примеси в жидком гелии зависит от размеров «пузыря» и рассматривается в качестве потенциала колебаний «пузыря». Изменение размеров и соответствующее возмущение полной энергии «пузыря» находится тем же способом, что описан в работах [60, 99]. Вероятность обнаружить пузырь в состоянии с радиусом  $R_b = R'$  задается волновой функцией  $\Psi^B(R')$ . Волновые функции в свою очередь, как и собственные значения энергии колебательных состояний «пузыря»,  $E_{vib}$ , находятся как решение уравнение Шрёдингера:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2M_{\text{eff}}}\bigtriangledown^2 + E_{tot}(R')\right]\Psi^B(R') = E_{vib}\Psi^B(R')$$
(2.14)

Для иона Ba<sup>+</sup> расчеты показали, что энергетический зазор между основным колебательным состоянием и первым возбужденным состоянием составляет приблизительно 12 K для иона Ba<sup>+</sup> в состоянии 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  и 8 K для 6p  ${}^{2}P_{1/2}$ . Поэтому в температурном интервале T = 1.6-2.1 K, в котором проводились эксперименты, мы можем учитывать только основное колебательное состояние.

На Рисунке 2.4 изображен цикл «возбуждение-излучение». В тепловом равновесии ион и «пузырь» находятся в нижнем состоянии в потенциальной яме состояния 6S. Согласно принципу Франка-Кондона во время электронного перехода с поглощением фотона форма и радиус «пузыря» не изменяются. Время оптического перехода составляет порядка  $10^{-15}$  секунд, тогда как время релаксации «пузыря» составляет порядка  $10^{-12}$  секунд [135–137]. Далее «пузырь» успевает перейти в новое равновесное состояния за время жизни атома или иона в возбужденном электронном состоянии, которое характеризуется новыми равновесными значениями параметров  $\alpha$  и  $R_0$ . Время жизни возбужденного состояния 6р  $^{2}P_{1/2}$  свободного иона Ва<sup>+</sup> составляет 7.9 нс [123]. Как правило, времена жизни электронно-возбужденных состояний атома, внедренного в жидкий гелий, короче, чем в свободном атоме, на несколько процентов [60, 138]. Таким образом, «пузырь» имеет достаточно времени, чтобы изменить свою форму и размер для нового электронного состояния иона или атома. Люминесценция происходит в «пузыре» радиус которого больше чем радиус «пузыря» при поглощении, при этом происходит переход системы из возбужденного состояния в основное электронное состояние. После этого пузырь восстанавливается до равновесного состояния или начальной конфигурации.

Квадрат модуля волновой функции,  $|\Psi(R')|^2$ , определяет вероятность с которой «пузырь» находится в состоянии с радиусом  $R_b = R'$ . Распределение вероятности говорит о том, что граница пузыря делокализована даже в нижнем колебательном состоянии, а значит существует неопределенность в нахождении полной энергии примесного атома или иона в жидком гелии, показанная на Рисунке 2.4 горизонтальной полосой. Флуктуации энергии в свою очередь приводят к уширению линий люминесценции и поглощения.

Форма линии поглощения,  $P^B(E)$ , задается проекцией функции распределения вероятностей  $|\Psi^B(R')|^2$  на потенциальную кривую возбужденного состояния (см. Рисунок 2.4). Аналогичная процедура применяется для расчета спектра излучения при переходе из возбужденного состояния  ${}^2P_{1/2}$  в основное состояние. Как обсуждалось в работе Морошкина и др. [139], дискретная структура вибронных состояний «пузыря» не проявляется в спектрах из-за того, что релаксация (расширение или сжатие «пузыря») после электронного перехода происходит на масштабах порядка нескольких пикосекунд, что сравнимо с периодом колебаний пузыря. Сильная связь между колебаниями «пузырей» и фононами приводит к перекрытию соседних квантовых состояний и непрерывному спектру возбуждения/излучения.

Как видно из Рисунка 2.4, линии поглощения асимметричны, сильно уширены и смещены по сравнению с переходами в свободном атоме или ионе, а линии излучения практически симметричны с небольшим сдвигом относительно линии в вакууме. Это связано с различной кривизной и наклоном потенциальных кривых на больших и малых  $R_b$ . Модель осциллирующего «пузыря» каче-



Рис. 2.4. Энергетическая диаграмма цикла «возбуждение-излучение» перехода  $D_1$  иона Ba<sup>+</sup> (6s  ${}^{2}S_{1/2}$  - 6p  ${}^{2}P_{1/2}$ ). Потенциальные кривые нарисованы для параметра  $\alpha = 3.5$  Å<sup>-1</sup>, отвечающего равновесной конфигурации «пузыря». Черные стрелки вверх и вниз показывают направление электронных переходов  $D_1$ , отвечающих соответственно возбуждению и люминесценции Ba<sup>+</sup>. Пунктирные стрелки - релаксация «пузыря». Затененные области визуализируют делокализацию границы пузыря и соответствующее уширение линий переходов. Энергетическая диаграмма была построена с использованием парных потенциалов из работы Фукуямы и др. [92, 93]

ственно описывает уширение спектральных линий примесных атомов/ионов в жидком гелии. Для более точного расчета необходимо учитывать дипольные, квадрупольные моды и моды более высокого порядка [88, 99].

Модель осциллирующего «пузыря» не единственный метод расчета спектров. Более строгая модель является адаптацией адиабатической квазистатиче-

58

ской теории уширения спектральных линий [60, 96, 120]. В этом приближении, интенсивность спектральной линии записывается, как преобразование Фурье от дипольной автокорреляционной функции C( $\tau$ ):

$$I(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \exp^{i\omega\tau} C(\tau)$$
 (2.15)

Автокорреляционная функция, изначально введенная Андерсоном [140], в модифицированном виде [141, 142] запишется, как:

$$C(\tau) = \exp\{-\int |\psi(\mathbf{R}_b)|^2 [1 - \exp(-\frac{i}{\hbar}\Delta V^{pair}(\mathbf{R})\tau)] d^3\mathbf{R}\}$$
(2.16)

В этом уравнении  $\Delta V^{pair}(\mathbf{R})$  - возмущение энергии перехода одним атомом гелия, находящимся на расстоянии R от примесного атома или иона. Данное приближение справедливо при условии, что можно пренебречь движением атомов гелия за корреляционное время  $\tau_{corr} \approx \Delta \nu^{-1}$ , где  $\Delta \nu$  - ширина линии перехода. Тепловая скорость движения атомов гелия при T=1.5 K составляет порядка 2.7 · 10<sup>4</sup> см/с [143]. Соответствующее смещение атомов гелия за время перехода будет порядка 0.1 Å, что гораздо меньше радиуса «пузыря», и им можно пренебречь.

Модель сферического атомного «пузыря» является хорошим приближением, и предсказывает направление сдвига линий и качественно описывает уширение спектральных линий. Недостатки этой модели:

- Не учитывается влияние симметрии волновой функции валентного электрона на геометрические размеры пузыря, что справедливо только для сферически симметричных состояний;
- Жидкий гелий представляется как непрерывная, несжимаемая среда, что может не выполняться на масштабе размеров дефекта;
- Учитываются только парные взаимодействия примеси с окружающими его атомами гелия, многочастичными взаимодействиями пренебрегают;

• Энергия жидкости записывается в классическом приближении (работа силы гидростатического давления, энергия поверхностного натяжения).

#### 2.5. Модель деформированного атомного «пузыря»

Совершенствование методов *ab initio* расчетов [144–146] и парные потенциалы, рассчитанные с более высокой точностью, могут позволить лучше описать оптические спектры примесей в жидком гелии. В данном разделе мы ограничимся рассмотрением сферически симметричного состояния  ${}^{2}P_{1/2}$  иона Ba<sup>+</sup>. Необходимо заметить, что в случае не сферически симметричного возбужденного состояния, как, например, состояние  ${}^{2}P_{3/2}$  иона Ba<sup>+</sup>, потенциал  $V^{pair}(\mathbf{R})$  также не будет сферически симметричным и раскладывается по полиномам Лежандра [99].

Для более точных расчетов уширения спектральных линий, необходимо кроме «дышащих» мод учитывать более высокие моды колебаний «пузыря»: дипольные, квадрупольные и т.д. В модели деформированного «пузыря» [99], радиус «пузыря»,  $R_S$ , зависит от полярных углов,  $\theta$  и  $\phi$ , и записываются в виде разложения по сферическим гармоникам:

$$R_S(R_0, \theta, \phi) = R_0 + \sum_{i=1}^{\infty} \sum_{j=-i}^{i} R_{ij} Y_i^j(\theta, \phi), \qquad (2.17)$$

Коэффициенты  $R_{ij}$  считаются малыми величинами по сравнению с  $R_0$ , а  $\theta$ ,  $\phi$  - углы в сферической системе координат.

В уравнении (2.17) первый член,  $R_0$ , отвечает за радиус сферического «пузыря», а остальные за деформацию «пузыря». Например, члены для i=1 соответствуют дипольным модам (смещение центра «пузыря» относительно неподвижной границы «пузыря»), а для i=2 - квадрупольным модам.

Основной вклад в уширение спектральной линии дает, так называемая, «дышащая» мода, что соответствует первому слагаемому в уравнении (2.17). В работе Мориваки и др. [88] было показано, что вклад дипольных мод значительно меньше, чем квадрупольных. При смещении атома (иона) относительно центра пузыря, пузырь следует за ним. В своей работе мы ограничимся рассмотрением квадрупольного вклада. Квадрупольные моды приводят к деформации поверхности «пузыря» и к дополнительному уширению спектральной линии. Для квадрупольных мод существует шесть независимых параметров R<sub>0</sub> и R<sub>2j</sub> (j=-2, ...,2). Перейдем в новую систему координат, где оси системы координат совпадают с главными осями деформированного пузыря [99]. В этой системе координат деформация поверхности «пузыря» может быть записана в следующем виде:

$$R_{S}'(R_{0},\Theta',\Phi') = R_{0} + R_{20}'Y_{2}^{0}(\Theta') + R_{22}'[Y_{2}^{2}(\Theta',\Phi') + Y_{2}^{-2}(\Theta',\Phi')]/\sqrt{2}.$$
 (2.18)

После такой трансформации начало координат и радиус «пузыря»,  $R_0$ , не меняются, но происходит поворот «пузыря». В расчетах не учитывается энергия, необходимая для вращения, так как было показано ранее [99], что вращение «пузыря» - адиабатический процесс относительно колебательных мод поверхности «пузыря». Плотность распределения гелия вокруг примеси можно переписать, заменив в уравнении (2.8) радиус пузыря,  $R_0$ , на радиус деформированного пузыря,  $R_s$ :

$$\rho(R,\Theta,\Phi) = \begin{cases} 0, & R \le R_S \\ \rho_0[1 - \{1 + \alpha(R - R_S)\}e^{-\alpha(R - R_S)}], & R \ge R_S. \end{cases}$$
(2.19)

Мы предполагаем, что, как «дышащие», так и квадрупольные колебания возбуждаются независимо друг от друга в одно и то же время. Форма «пузыря» определяется амплитудами  $R_{20}$ ,  $R_{22}$  и параметром  $R_0$ . Поскольку мы рассматриваем только малые квадрупольные колебания, равновесные параметры пузыря  $R_0$  и  $\alpha$ , полученные из модели сферического атомного «пузыря» (см. Раздел 2.3), также используются в модели деформированного «пузыря». Энергию поверхностного натяжения и работу за счет давления жидкости можно переписать в следующем виде [96, 120]:

$$E_S = \left[4\pi R_b^2 + 4R_b^2 (R_{20}^2 + R_{22}^2)/R_0^2\right]\sigma,$$
(2.20)

$$E_{PV} = \left[\frac{4}{3}\pi R_b^3 + 4R_b^3 (R_{20}^2 + R_{22}^2)/R_0^2\right]P,$$
(2.21)

где  $R_b$  - эффективный радиус «пузыря», полученный из модели сферического атомного «пузыря».

Потенциальные энергии основного  ${}^{2}S_{1/2}$  и возбужденного состояния  ${}^{2}P_{1/2}$ получены как сумма энергии взаимодействия и энергии «пузыря», аналогично уравнению (2.11). Для соответствующего диапазона амплитуд  $R_{20}$ ,  $R_{22}$  они изображены на Рисунке 2.5. В состоянии 6р  ${}^{2}P_{3/2}$  деформация пузыря приводит к снятию вырождения (динамический эффект Яна-Теллера) и расщеплению состояний с  $|M_{J}| = 1/2$  и  $|M_{J}| = 3/2$  [60, 88, 99]. В настоящей работе мы рассматриваем только сферически симметричные состояния 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  и 6р  ${}^{2}P_{1/2}$ , которые не расщепляются.

Энергетические поверхности  $E_{tot}(R_{20}, R_{22})$ , изображенные на Рисунке 2.5, были аппроксимированы двумерными гармоническими потенциалами. Эффективная масса для квадрупольных колебаний определяется как  $M_{eff}^Q = R_b^3 \rho_0 M_{He}/3$ [99]. Тогда волновые функции,  $\Psi^Q(R)$ , получаются путем решения двумерного уравнения Шрёдингера. Для квадрупольных мод энергетические интервалы между основным и первым возбужденным вибронными состояниями равны 24 К для основного состояния и 14 К для возбужденного состояния. Эти энергии намного больше, чем тепловая энергия атомов гелия в эксперименте (T= 1.6–2.1 К). Поэтому мы предполагаем, что оптический переход происходит только из основного квадрупольного состояния.

Профиль линии для квадрупольных мод получается путем проекции плотности распределения вероятности исходного состояния на потенциальную поверхность конечного состояния в предположении, что конфигурация «пузыря» не изменяется во время оптического перехода. Для фиксированной энергии пе-



Рис. 2.5. Энергетическая диаграмма для перехода D<sub>1</sub> (поглощение) иона Ba<sup>+</sup> для случая квадрупольных осцилляций. Потенциальные поверхности нарисованы для равновесных параметров  $\alpha$  и  $R_0$ , полученных из стандартной модели атомного «пузыря», и соответствуют состоянию 6s  ${}^2S_{1/2}$ . Для наглядности рассчитанные потенциальные поверхности для перехода D<sub>1</sub>(люминесценция) не нарисованы

рехода, E, возможны различные конфигурации деформированного «пузыря». В общем случае амплитуды  $R_{20}$  и  $R_{22}$ , соответствующие таким деформациям, распределены на эллипсе. Затем, чтобы получить профиль линии,  $P^Q(E)$ , мы выражаем полярный радиус r в плоскости ( $R_{20}, R_{22}$ ) как функцию от E и  $\theta$  и интегрируем по полярному углу, с весом определённым распределением вероятности:

$$P^{Q}(E) = \int_{0}^{2\pi} |\Psi^{Q}[r(E,\theta)]|^{2} r(E,\theta) d\theta.$$
(2.22)

Общий профиль линии перехода рассчитывается как свертка профилей

63

нормированной «дышащей» и квадрупольной мод:

$$P(E) = \int_{-\infty}^{+\infty} P^Q(E - E') P^B(E') dE',$$
 (2.23)

где  $P^B(E')$  - профиль линии, полученный в Разделе 2.4 с учетом только дышащей моды.

Рассчитанные сдвиги линий перехода, полуширина линий оптических спектров люминесценции и поглощения в сверхтекучем гелии с учетом дышащей и квадрупольных мод приведены в Таблице 2.3.

Таблица 2.3. Сдвиги спектральных линий и ширина спектральных линий иона Ba<sup>+</sup> в сверхтекучем гелии <sup>4</sup>He.  $\delta^{exp}$ ,  $\gamma^{exp}$  - экспериментальные [18] сдвиги линий и ширина линий,  $\delta^{exp}$ ,  $\gamma^{th}$  - теоретически полученные сдвиги линий и ширина линий для различного набора парных потенциалов (настоящая работа). Переход D<sub>1</sub> свободного иона Ba<sup>+</sup> соответствует 20 262 см<sup>-1</sup>

	Ва <sup>+</sup> в жидком гелии,		Ва <sup>+</sup> в жидком гелии, модель «пузыря» (ВМ)				
Спектральный	эксперимент [18]		MRCI [92, 93]		CCSD(T) [23, 125]		
переход $D_1$	$\delta^{exp}$ (cm <sup>-1</sup> )	$\gamma^{exp}$ (cm <sup>-1</sup> )	$\delta^{th}$ (cm <sup>-1</sup> )	$\gamma^{th} (\mathrm{cm}^{-1})$	$\delta^{th^*} (\mathrm{cm}^{-1})$	$\gamma^{th} (\mathrm{cm}^{-1})$	
Люминесценция	+105	83	+141	38	+108	51	
Поглощение	+485	194	+373	91	+421	93	

#### 2.6. Сравнение с экспериментальными данными

Спектры поглощения и люминесценции ионов Ba<sup>+</sup> впервые были измерены группой из гейдельбергского университета [18]. На Рисунке 2.6, представлен экспериментальный профиль спектральной линии перехода 6p  ${}^{2}P_{1/2}$  - 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  взятый из статьи [18] в поглощении (необходимо заметить, что экспериментальные спектры в [18] были получены после деконволюции с спектральной функцией спектрометра), и теоретически рассчитанные спектры поглощения. Экспериментальные и теоретически рассчитанные спектры люминесценции будут представлены в Главе 4.



Рис. 2.6. Спектр поглощения  $Ba^+$  перехода  $D_1$  в сверхтекучем Не. Красная линия - результат настоящей работы в рамках модели «пузыря» (сплошная кривая для потенциалов[23, 125], пунктирная линия - для парных потенциалов [92, 93]), синяя линия - экспериментальные данные из работы [18]. Вертикальная пунктирная линия обозначает переход  $D_1$  свободного иона.

На Рисунке 2.6 рассчитанные спектры поглощения перехода  $D_1$  иона Ba<sup>+</sup> сопоставлены с экспериментальными данными, полученными при температуре T = 1.6 К. Две рассчитанные формы линий соответствуют различным наборам *ab initio* парных потенциалов Ba<sup>+</sup>-He [23, 92, 93, 125]. Сдвиги линий переходов,  $\delta$ , и полная ширина линии на половине высоты FWHM,  $\gamma$ , для рассчитанных теоретически и полученных экспериментально спектров люминесценции приведены в первой строке Таблицы 2.3. Сдвиг линии относительно свободного иона,  $\delta^{th}$ , составляет +141 см<sup>-1</sup> и +108 см<sup>-1</sup> для рассчитанных спектров и +105 см<sup>-1</sup> для экспериментальных данных. Расчетная ширина линии,  $\gamma^{th}$ , равна 38 см<sup>-1</sup> и 51 см<sup>-1</sup> соответственно, тогда как экспериментальное значение  $\gamma^{exp} = 83$  см<sup>-1</sup>. Экспериментальные значения значительно лучше описываются теоретическими

расчетами для набора потенциалов, полученных методом объединенных кластеров CCSD(T) [23, 125]. Таким образом, модель атомного «пузыря» переоценивает смещение линии излучения только на 3 %, и недооценивает уширение в 1.6 раза.

В нашем эксперименте спектр поглощения не исследовался. На Рисунке 2.6 расчетный спектр возбуждения сравнивается с экспериментальными данными [18]. Соответствующие сдвиги линий и ширина линии, FWHM, указаны во второй строке Таблицы 2.3. Согласие с экспериментальными данными снова лучше для набора парных потенциалов, полученных методом объединенных кластеров [23, 125], особенно при сравнении сдвига линии. Как обсуждалось в Разделе 2.4 текущей главы, и сдвиг линии, и уширение линии более выражены в спектрах поглощения, чем для спектров люминесценции. Расчет опять сильно недооценивает уширение линии:  $\gamma^{th} = 93 \text{ см}^{-1}$  против экспериментального значения  $\gamma^{exp} = 194 \text{ см}^{-1}$ . Недооценка сдвига линии составляет 15%:  $\delta^{th} = +421 \text{ см}^{-1}$  против экспериментального значения  $\delta^{exp} = +485 \text{ см}^{-1}$ .

Как и ожидалось, основной вклад в уширение спектра и сдвиг линии вносит «дышащая» мода, отвечающая за радиальные колебания пузыря. Учет квадрупольной моды приводит к дополнительному незначительному уширению линии на 5.5 см<sup>-1</sup> для линии поглощения и 0.5 см<sup>-1</sup> для линии люминесценции для парных потенциалов [92, 93] и 2.6 см<sup>-1</sup> для линии поглощения и 0.3 см<sup>-1</sup> для линии люминесценции для парных потенциалов [23, 125]. Форма спектральной линии из-за вклада квадрупольной моды сильно асимметрична. Поэтому учет этой моды вызывает дополнительный заметный сдвиг линий на +14.0 см<sup>-1</sup> для линии поглощения и на +1.5 см<sup>-1</sup> для линии люминесценции для потенциалов [92, 93] и на +7.7 см<sup>-1</sup> в поглощении и на +1.7 см<sup>-1</sup> для линии люминесценции для потенциалов [23, 125]. Мы не учитываем вклад дипольных мод колебаний пузыря, поскольку ожидается [88], что их вклад будет еще меньше чем у квадрупольных. Мы можем сравнить наши результаты с другими существующими расчетами с помощью модели атомного «пузыря» [21, 88] для ионов некоторых химических элементов.

В более ранней работе [21] был рассчитан только спектр поглощения перехода  $D_1$  иона  $Ba^+$  в жидком He. Этот расчет приводил к недооценке сдвига линии на 40%, тогда как уширение линии было в хорошем согласии с экспериментом, и было недооценено только на 10%. Другой примесный ион, для которого имеются экспериментальные данные по спектроскопии в жидком гелии, это ион Yb<sup>+</sup>. И спектры поглощения и люминесценции перехода  $4f^{14}6s\ ^2S_{1/2}$  - $4f^{14}6p\ ^2P_{1/2}$  были измерены в работе Мориваки и др. [88]. Этот переход аналогичен переходу  $D_1$  линии  $Ba^+$ , хотя Yb<sup>+</sup> обладает также внутренней электронной оболочкой 4f. Расчеты [88] сильно завышают сдвиг линий как в поглощении (на 85%), так и в люминесценции (на 133%). Уширение линии недооценено на 10% в поглощении и на 62% в люминесценции, соответственно. Данных, приведенных в литературе, недостаточно для наблюдения какой-либо определенной тенденции. Не ясно, в какой степени эти расхождения могут быть объяснены неточностью межатомных парных потенциалов и недостатками пузырной модели.

Если расхождение теоретических и экспериментальных данных обуславливается недостатками модели атомного «пузыря», приведенными в конце Раздела 2.3, то в том числе и выбором пробной функции  $\rho(\mathbf{R})$  (уравнение (2.8)). Распределение жидкого гелия вокруг примеси  $\rho(\mathbf{R})$  является предметом вычислений для метода функционала плотности TDDFT и вариационного метода Монте-Карло [22, 72]. Характерный пик вблизи  $\mathbf{R}_0$ , для теоретически рассчитанных с помощью данных методов кривых плотности жидкого гелия  $\rho(\mathbf{R})$ , предсказывает неоднородное распределение плотности жидкого гелия вокруг иона  $\mathbf{Ba}^+$ . Данное распределение плотности жидкого гелия вокруг иона валось, в том числе, в работе Коула и Бахмана о структуре положительных ионов в жидком гелии [20] в приближении теории электрострикции Аткинса [25].

#### 2.7. Выводы

Качественное согласие экспериментальных и теоретических значений сдвигов оптических спектров перехода D<sub>1</sub> иона Ba<sup>+</sup> позволяет сделать вывод о применимости модели атомного «пузыря» для расчета спектров ионов щелочных и щелочно-земельных металлов. Совпадение в пределах экспериментальной погрешности значения сдвига спектра люминесценции перехода D<sub>1</sub> иона Ba<sup>+</sup> с теоретическим значением говорит о структуре возбужденного состояния <sup>2</sup>P<sub>1/2</sub> иона Ba<sup>+</sup> в сверхтекучем гелии в виде «пузыря», тогда как в поглощении сдвиг лучше описывается в рамках модели TDDFT [101], которая предсказывает состояние «снежный ком». Результирующая структура локализованного иона определяется противостоянием этих двух механизмов и сочетает свойства, как «пузыря», так и «снежного кома».

# Глава З

# Экспериментальная установка для исследования оптических спектров примесей в жидком гелии

Для наблюдения и регистрации оптических спектров примесных атомов и ионов в сверхтекучем <sup>4</sup>Не была создана экспериментальная установка в лаборатории физики низких температур института физических и химических исследований RIKEN, Япония. Была поставлена задача подбора оптимальной конфигурации для абляции исследуемого материала импульсным лазером, инжекции в сверхтекучий гелий примесных частиц и измерении спектральных линий оптических переходов атомов и ионов в сверхтекучем гелии.

Поставленная задача для инжекции нейтральных примесных частиц в сверхтекучий гелий была полностью решена с использованием одного или нескольких импульсных лазеров для абляции мишени и эффективной диссоциации кластеров. Для инжекции ионов впервые был применен комбинированный метод, основанный на лазерной абляции мишени в газе и ионизации атомов радиочастотным разрядом. Инжекция ионов в сверхтекучий гелий <sup>4</sup>Не была осуществлена под действием приложенного вертикально электрического поля. В качестве исследуемого материала был выбран щелочно-земельный металл Ва. Переходы атома Ва и иона Ва<sup>+</sup> лежат в оптическом диапазоне, что позволяет исследовать данный элемент методами оптической спектроскопии.

Данная глава состоит из пяти разделов и заключения. Первые два раздела данной главы 3.1 и 3.2 посвящены описанию экспериментальной установки, схемам откачки и напуска газа, различным инженерным решениям для установки образца в оптический криостат и проведении измерений при низких температурах. В Разделе 3.3 приводится экспериментальное оборудование: для абляции и инжекции примесей в сверхтекучий гелий с применением методов, описанных в первой главе данной работы, для детектирования лазерно индуцированной флуоресценции атомов и ионов Ва и наблюдения за формированием мезоскопических структур в сверхтекучем гелии. Наздел 3.4 посвящен характеристикам исследуемого образца и описанию методики очистки поверхности. Данная методика эффективна при абляции щелочных и щелочноземельных металлов, позволяет уменьшить энергию лазерного импульса абляции и увеличить стабильность выхода ионов и атомов.

#### 3.1. Оптический криостат и схема откачки

Оптический криостат американской фирмы Cryo Industries, изображенный на рисунке 3.1, предназначен для проведения оптических измерений при охлаждении образца методом откачки паров жидкого гелия. Криостат состоит из трех основных камер: центральная цилиндрическая камера в которую помещается образец (13) диаметром 80 мм и объемом 3.7 литра, резервуара для жидкого азота (6), объемом 6.2 литра и резервуара для жидкого гелия (7), объемом 8 литров. Камеры изолированы друг от друга вакуумной полостью, в которой размещен адсорбирующий угольный геттер (11). При охлаждении внутренних полостей криостата геттер работает как крионасос, и позволяет значительно уменьшить загрязнение окон при низком изоляционном вакууме в вакуумной полости.

Криостат имеет две пары кварцевых окон (CFQ), смонтированных на стенках камеры с образцом и расположенных под углом 90 градусов относительно друг друга, и дополнительное окно на дне криостата (15). На промежуточном цилиндре и на внешнем цилиндре аналогичным образом располагаются дополнительные окна (15).

Криостат предназначен для проведения оптических измерений в широком диапазоне температур от комнатной температуры до температуры сверхтекучего гелия. Для трансфера жидкого гелия во внутреннюю камеру криостата, в которую помещается вставка с образцом, резервуар с жидким гелием (7) со-



Рис. 3.1. Оптический криостат американской фирмы Cryo Industries, модель 12.5CN-XE. Чертеж выполнен производителем

единен с ней капилляром (12). Капилляр снабжен вентилем (4), позволяющим регулировать скорость перетекания гелия в камеру с образцом (13). В случае блокировки капилляра (9) замерзшими атмосферными газами и для его размораживания, капилляр снабжен 25 омным нагревателем (проволочный резистор) с номинальной рассеиваемой мощностью 10 Вт. В дно стальной полости (13) приварен медный теплообменник (14), в котором размешены датчик температуры (кремниевый диод, модель № DT-670B1-Cu) и основной нагреватель. Основной нагреватель представляет собой два соединенных последовательно резистора, номиналом 25 Ом каждый, с суммарной рассеиваемой мощностью 50 Вт. Два резистора обеспечивают равномерный нагрев теплообменника. Считывание по-

71

казаний напряжения датчика температуры, контроль и установка температуры осуществляются с помощью PID контроллера CryoCon 32B.

Оперируя вентилем (4) можно наполнять внутреннюю камеру жидким гелием, или обеспечить продувку холодным газом полости с образцом (13), откачивая пары гелия через вакуумный порт (2). Изменяя мощность нагревателя (13) и установочные параметры PID контроллера, можно стабилизировать температуру в диапазоне 1.6–4.2 К при заполнении полости с образцом жидким гелием и в диапазоне 5–300 К при продувке гелием. Наилучшая стабилизация достигается при использовании PID контроллера с двойной связью, основным нагревателем (14) и вспомогательным, установленным на ячейке с образцом. Минимальная температура теплообменника без вставки с образцом была 1.3 К.

Для запуска криостата были смонтированы вакуумные линии откачки и напуска инертных газов в гелиевый резервуар (7) и во внутреннюю камеру криостата (13). Были смонтированы линии трансфера гелиевого газа в ячейку с образцом (Рисунок 3.2), соединение с линией сбора гелиевого газа.

На Рисунке 3.2 изображена схема откачки и напуска инертных газов в оптический криостат. Откачка изоляционного вакуума через клапан V6 до давления  $10^{-5}$  Торр осуществлялась с помощью двух последовательно соединенных вакуумных насосов: роторного и турбомолекулярного. Давление в вакуумной камере измерялось с помощью ионизационного вакууметра. Откачка паров, испаряющегося из внутренней полости криостата гелия, осуществлялась с помощью роторного насоса Pfeifer DUO 65С через клапан V5 для откачки больших объемов газа (внутреннее сечение 40 мм) и Swagelok клапан V11 для тонкой регулировки скорости откачки (внутреннее сечение 3 мм). На выходе роторного насоса установлен Т-образный переключатель для ручного переключения между режимом сбора гелия в линию, при этом клапан V3 закрыт, и откачкой атмосферных газов, в этом режиме клапаны V4, V3 закрыты.

Для подготовки криостата к охлаждению, а именно откачки гелиевой камеры через клапан V2, внутренней камеры через клапан V5 и продувки данных
объемов инертными газами для удаления атмосферного воздуха используются клапаны V9, V13, соединенные с азотной линией и клапаны V10, V12, соединенные с гелиевой линией. Давление в азотной линии, установленной в Институте RIKEN, составляет 5 атм. и для регулировки давления был установлен регулятор в диапазоне 0.1 - 1 атм. Гелиевая линия соединена через регулятор давления с цилиндром в котором содержится гелиевый газ марки 6.0 с концентрацией 99.9999 % под давлением в 150 атм.

Трансфер гелиевого газа в ячейку осуществляется с помощью клапана V8, откачка вакуумно-изолированной ячейки с помощью клапана V7. Для точного измерения температуры в камере с образцом (13, Рисунок 3.1) по калибровочной кривой зависимости давления насыщенных паров жидкого гелия и для калибровки температурного сенсора в диапазоне 1.3–2.6 К, который устанавливается в ячейке, используется емкостной вакуумметр ULVAC G-Tran 100D. Диапазон измерения давления вакуумметра равен 100 торр. Известная аналитическая формула [132] для зависимости давления насыщенных паров жидкого гелия от температуры позволяет откалибровать датчик (термосопротивление Allen-Bradley номиналом 100 Ом) для измерения температуры внутри ячейки.

Сбор испаряющегося жидкого гелия осуществляется через клапан V4, V3, которые соединены с линией сбора гелия. В линии установлен счетчик газа, который позволяет контролировать расход жидкого гелия и измеритель концентрации гелия, который позволяет следить за чистотой линии сбора, при необходимости перекрыть главный вентиль и прекратить подачу сторонних газов в линию.

В резервуаре с жидким гелием (7, Рисунок 3.1) установлен измеритель уровня гелия, измерения осуществляются прибором LM500 фирмы CryoMagnetics. Измеритель уровня представляет собой сверхпроводящий датчик длиной 31 см., снабженный нагревателем в верхней части датчика. В верхней части оптического криостата (Рисунок 3.2) установлен 10-контактный разъем, который используется для подключения измерителя уровня гелия (4 контакта), датчика темпе-



Рис. 3.2. Схематическое изображение линий откачки и напуска газа в оптический криостат

ратуры (2 контакта) и двух нагревателей (4 контакта). Для контроля давления в гелиевом резервуаре (7, Рисунок 3.1) и в камере с образцом (13, Рисунок 3.1) установлены манометры (Рисунок 3.2).

Для виброизоляции криостата и оптических платформ, с расположенными оптическими элементами, от колебаний фундамента (сейсмоактивная зона) и колебаний, создаваемых вакуумными насосами, под опоры рамы держателя криостата и роторного насоса установлены резиновые подкладки (Рисунок 3.3). Для установки двух оптических плит размером 1000×700 мм<sup>2</sup> были использованы опоры из бетонных блоков, изолированных друг от друга пенопластовыми

74

пластинами толщиной 10 мм для гашения вибраций передаваемых фундаментом здания и создаваемых работающими вакуумными насосами.



Рис. 3.3. Виброизоляция оптического криостата

Оптический криостат установлен на специально изготовленную по заказу в мастерской алюминиевую раму (Рисунок 3.3) с вырезом в верхней части под внешний диаметр криостата. Прецизионное выравнивание положения криостата в горизонтальной плоскости осуществляется с помощью трех винтов, ввинченных во фланец, а грубое с помощью подстраиваемых по высоте ножек самой рамы.

#### 3.2. Экспериментальные ячейки и вставка в криостат

Конструкция ячейки для образца изменялась по ходу работы, по мере накопления опыта и выявления проблем. Ячейка устанавливается внутри камеры для образца и со всех сторон окружена жидким гелием.

Экспериментальные ячейки (6, Рисунок 3.4) первого поколения представляют собой полый цилиндр из органического стекла. Размеры цилиндра 70×70×80



мм<sup>3</sup>, толщина боковых стенок 8 мм.

Рис. 3.4. Экспериментальные ячейки из органического

Верхняя и нижняя крышки (3, 12) выточены из латуни, позднее крышки были заменены на медные для более эффективного теплообмена с жидким гелием. Крышки ячейки крепятся к цилиндру с помощью 8 болтов МЗ (4,11). В крышках выточены канавки в которые укладывается индиевая проволока диаметром 1 мм для вакуумной изоляции ячейки (8) при низких температурах. В нижней крышке ячейки просверлены два отверстия (13) для измерительных проводов. Для вакуумной изоляции отверстия с измерительными проводами заклеены эпоксидным клеем Stycast 2850FT.

Мишень для абляции устанавливается в цилиндрическое углубление в нижней крышке ячейки, и зажимается с помощью держателя образца (10). Верхний электрод (5) крепится к нижней крышке (12) с помощью четырех пластиковых болтов МЗ (7) и зажимается пластиковыми гайками (9). В электроде просверлено отверстие диаметром 5 мм для фокусировки лазерного излучения на образце. Лазерное излучение заводится через оптическое кварцевое окно (2) диаметром 25 мм, вклеенное в верхную крышку ячейки криостата силиконовым клеем КЕЗ47В фирмы Shin-Etsu. Для трансфера гелиевого газа в ячейку к верхней крышке припаян капилляр (1) с внутренним диаметром 0.5 мм. Для измерения температуры внутри ячейки используется откалиброванный полупроводниковый резистор Allen-Bradley (15). Сопротивление измеряется по 4-х проводной схеме с помощью цифрового мультиметра Agilent 34401A.

Для абляции в газе ячейка была модифицирована (Рисунок 3.4). В ячейке были установлены два электрода, к верхнему электроду (16) с помощью держателя крепится образец бария (14) и прикладывается постоянное напряжение. С нижнего электрода (10) снимается токовый сигнал.

Позднее ячейка была модифицирована, было принято решение отказаться от оргстекла в силу нескольких причин. Примерно через 10 - 15 циклов охлаждение - отогрев до комнатной температуры, ячейка давала трещину. Для оптических измерений предпочтительнее иметь плоскую прозрачную поверхность, чтобы исключить искажения пучка. Горизонтальный луч лазера абляции невозможно сфокусировать в точку из-за дополнительного преломления цилиндрическими стенками ячейки. Приходится использовать избыточную мощность, что ведёт к нагреву и возмущению поверхности жидкого гелия. Сфокусированный луч импульсного лазера с энергией от 1 мДж приводил к деградации (помутнению) оргстекла.



Рис. 3.5. Экспериментальная ячейка из латуни

Новая экспериментальная ячейка, изображенная на Рисунке 3.5, была выполнена из латуни и представляла собой цилиндр высотой 70 мм и внутренним диаметром 54 мм. По периметру ячейки вклеены четыре сапфировых окна диаметром 25 мм и одно окно вклеено в дно ячейки, таким образом, что его апертура составляла 20 мм. Абляция осуществляется через одно из боковых окон, лазерным пучком в горизонтальной плоскости. Для создания радиочастотного разряда к верхней крышке ячейки крепился спиральный резонатор один конец которого был срезан (изображен на Рисунке 3.6). Размеры спирального резонатора - цилиндр высотой 26 мм и внутренним диаметром 11 мм, в цилиндр установлена спираль диаметром 8 мм и длиной ≈20 см. Стенки ячейки, мишень и стенки спирального резонатора заземлены. В верхнюю крышку ячейки припаяны два высоковольтных кабеля с напряжением пробоя 5 кВ.



Рис. 3.6. Фотографии спирального резонатора. Слева фотография резонатора на которой видна срезанная нижняя часть, справа изображено свечение модулированного высокочастотного разряда в гелиевой атмосфере. Фотографии сделаны с помощью микроскопа Dinolite через боковое окно криостата

Атомы Ва и ионы Ва<sup>+</sup> получаются лазерной абляцией металлического Ва в газообразном гелии выше уровня поверхности жидкости. Радиочастотный разряд используется для ионизации нейтральных атомов Ва, создаваемых лазерным импульсом и, следовательно, увеличивается концентрация ионов в газе. Разряд создается внутри спирального радиочастотного резонатора, который имеет открытый нижний конец и возбуждается на собственной резонансной частоте 430 МГц (см. Рисунок 3.7). Возбуждающий в.ч. сигнал модулируется прямоугольными импульсами с частотой повторения f<sub>dis</sub>, которая варьируется в диапазоне от 0.5 Гц до 2 кГц с скважностью 0.01–0.5. Мощность возбуждающего высокочастотного сигнала с помощью усилителя можно варьировать в диапазоне 0–190 Вт. С выхода усилителя сигнал подается на циркулятор. С второго плеча циркулятора сигнал через измеритель мощности подается на спиральный резонатор, установленный в ячейке. Часть этой мощности идёт на поддержание разряда, а часть отражается от резонатора и поступает на третье плечо. С третьего плеча циркулятора сигнал поступает на диодный детектор. Входное сопротивление детектора согласовано с коаксиальной линией с помощью нагрузки 50 Ом. Эта нагрузка принимает на себя основную часть мощности. Вследствие этого, при работе на большой мощности в непрерывном режиме, заметно нагревалась. С выхода детектора сигнал поступает на вход осциллографа.



Рис. 3.7. Блок схема высокочастотного (ВЧ) разряда

На Рисунке 3.8 схематически изображена вставка в криостат для установки ячейки с образцом. Вставка помещается во внутреннюю цилиндрическую камеру оптического криостата. В верхний фланец криостата (6) вклеено (клеем Shin-Etsu 347В) оптическое кварцевое окно (16), соосное с окном в верхней крышке ячейки для образца, диаметром 40 мм и припаяны два 1/4 дюймовых Swagelok порта (5). К одному порту подсоединен блок (18) с медноникелевыми коаксиальными кабелями SXK-12. Блок представляет собой полый латунный цилиндр к одному из оснований которого припаяна 1/4 дюймовая медная трубка для подсоединения к первому Swagelok порту. В крышке блока сделаны четыре отверстия для установки 4-х вакуумных Lemo разъемов (19). Крышка крепится к цилиндру с помощью 12 болтов M3 с использованием индиевой проволоки для вакуумной изоляции.

Через второй порт (5) проходит 1/4 дюймовый стальной (SuS) капилляр (1) насквозь через 1/4 дюймовую медную трубку и через промежуточный соединительный переходник Swagelok с 1/4 на 1/8 дюйма (4). Капилляр соединен с гелиевой линией через напускной клапан (2). Для разбора ячейки и демонтажа капилляра предусмотрено промежуточное соединение 1/8 на 1/8 дюйма (7), которое постоянно находится в газовой фазе или при давлении насыщенных паров жидкого гелия. К стальному капилляру (1) припаян импеданс (9) для эффективного охлаждения поступающего в ячейку газа за счет теплообмена с гелиевой ванной и его конденсирования в ячейку. Импеданс представляет собой медно-никелевый капилляр с внутренним диаметром 0.5 мм, скрученный в катушку из 6 витков.

Ячейка (11) крепится к держателю для линзы (12) с помощью трех стальных стержней с нарезанной резьбой МЗ и крепится с помощью гаек (12). Нарезанная резьба позволяет регулировать точку фокусировки лазерного излучения на образце или высоту ячейки относительно центра окна криостата. В держатель вклеена плоско-выпуклая линза (13) диаметром 25 мм с фокусным расстояние 175 мм. Держатель ячеек разборный и унифицирован для крепле-



Рис. 3.8. Вставка в оптический криостат

81

ния всех типов ячеек. Держатель крепится к верхнему фланцу криостата с помощью трех металлических стержней и промежуточных секций между которыми размещены радиационные экраны (8) для уменьшения теплообмена с верхним фланцем криостата (6). Верхние стержни (15) выполнены из материала G10 (стекловолокно) с низким коэффициентом теплопроводности. Позднее в верхний фланец криостата (6) были установлены дополнительные порты (5) к которым припаивались высоковольтные кабели для создания разряда и локализации заряда под поверхностью сверхтекучего гелия.

## 3.3. Оборудование для оптических измерений

Для получения оптимальной конфигурации для инжекции примесей в сверхтекучий гелий были опробованы различные схемы абляции. Основываясь на литературном обзоре (см. Главу 1), были исследованы: абляция мишени в газе и в жидкости, абляция в жидкости с последующей диссоциацией продуктов абляции (кластеров, наночастиц) с помощью дополнительного импульсного лазерного пучка.

Оптимизировались такие параметры, как интенсивность и частота повторений лазерного импульса. Возникновение и схлопывание газового пузыря на поверхности мишени в точке абляции порождает колебания на поверхности жидкого гелия, амплитуда которых зависит от расстояния до поверхности от точки абляции. В зависимости от интенсивности и частоты повторений лазерного импульса увеличивается тепловая энергия плазмы и температура мишени, что приводит к нагреву экспериментальной ячейки.

Возбуждение электронных переходов ионов и атомов в сверхтекучем гелии осуществляется различными лазерными источниками:

 Лазер №1 - перестраиваемый лазер фирмы CryLas на красителе Coumarin 102. Краситель растворен в метаноле с концентрацией 1.69 г/л, что соответствует максимуму спектра поглощения иона бария в жидком гелии (переход 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  - 6р  ${}^{2}P_{1/2}$ ), длина волны 482 нм [18]. Энергия импульса лазера на красителе для данной длины волны составляет 13 мкДж/импульс (на частоте повторений 20 Гц). Для измерения энергии импульса используется термоэлектрический датчик фирмы Ophir 3A-P. Накачка красителя осуществляется твердотельным лазером с диодной накачкой DPSS (марка лазера FTSS 355-50) на длине волны 355 нм, энергия импульса 100 мкДж/импульс (на частоте повторений 1-20 Гц) и 70 мкДж/импульс (на частоте повторений 100 Гц);

- Лазер №2 не стабилизированный и не перестраиваемый непрерывный твердотельный лазер с длиной волны 532 нм. Максимальная мощность излучения 0.5 Вт. Длина волны лазера перекрывается с коротковолновым крылом линии поглощения, что позволяет возбуждать переход 6s <sup>1</sup>S<sub>0</sub> -6s6p <sup>1</sup>P<sub>1</sub> атома Ва в сверхтекучем гелии;
- 3. Лазер №3 не стабилизированный и не перестраиваемый непрерывный твердотельный лазер с длиной волны 455 нм. Максимальная мощность излучения 1 Вт. Длина волны лазера перекрывается с коротковолновым крылом линии поглощения, что позволяет возбуждать переход 5s<sup>2</sup> <sup>1</sup>S<sub>0</sub> -5s5p <sup>1</sup>P<sub>1</sub> атома Sr, а также переход D<sub>2</sub> иона Ba<sup>+</sup> в сверхтекучем гелии;
- 4. Лазер №4 непрерывный диодный лазер с удвоением частоты Toptica, модель DL TA-SHG PRO. Он настроен на 482 нм, чтобы соответствовать длине волны 6s <sup>2</sup>S<sub>1/2</sub> 6p <sup>2</sup>P<sub>1/2</sub> (D<sub>1</sub>) линии поглощения Ba<sup>+</sup> в жидком He (λ= 493.5 нм в свободном ионе). Мощность лазера, как правило, варыровалась в диапазоне 20–200 мВт. При высокой мощности лазер вызывает заметный нагрев ячейки с образцом примерно на 10–20 мК. Чтобы уменьшить эффект нагрева, в некоторых экспериментах интенсивность лазерного пучка модулировалась с помощью акустооптического модулятора (AOM) с частотой повторения 1 Гц и скважностью 0.1 0.01% и

100% глубиной модуляции;

Лазер №5 - непрерывный диодный лазер Toptica, модель DL PRO. Используется для перекачки ионов из метастабильного состояния <sup>2</sup>D<sub>3/2</sub> (см. Рисунок 2.1) иона Ва<sup>+</sup>. Длина волны 650 нм, мощность 25 мВт.

Также используются светодиоды (LED) фирмы Thorlabs M490L2 (длина волны 490 нм) для возбуждения перехода 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  - 6p  ${}^{2}P_{1/2}$  и M455L3 (длина волны 455 нм) для перехода 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  - 6p  ${}^{2}P_{3/2}$ . Ширина спектральной линии излучения на уровне половины от максимума интенсивности (FWHM) составляет 25 нм. Мощность сфокусированного пучка диаметром 5 мм в фокусе составляет 33 мВт. Таким образом мощность LED гораздо выше, чем у лазера на красителе, но он имеет более гораздо более широкий пучок излучения и широкий спектр, перекрывающийся с ожидаемой линией флуоресценции ионов бария в жидком гелии. Ток светодиода изменяется с помощью контроллера LED D1B фирмы Thorlabs, режимы работы: импульсный и непрерывный. Импульсный режим работы светодиодов позволяет существенно уменьшить интенсивность рассеянного света, минимальная длительность импульса составляет 10 мс.

Первичная и вторичная абляция осуществляется на второй гармонике импульсного лазера Nd:YAG (иттрий-алюминиевый гранат, допированный неодимом) Continuum Minilite II, длина волны 532 нм, частота повторений 1-15 Гц, длительность импульса составляет 5 нс. Максимальная энергия импульса составляет 25 мДж. Встроенный аттенюатор позволяет изменять энергию импульса, энергия импульса измеряется с помощью термоэлектрического сенсора фирмы Ophir 3A-P. В некоторых экспериментах, первичная абляция осуществлялась импульсным DPSS лазером, предназначавшемся для накачки лазера на красителе (лазер №1). Лазер на красителе при этом не использовался.

Синхронизация импульсного лазера для первичной абляции и лазеров для возбуждения переходов ионов осуществляется с помощью 4-х канального генератора TTL импульсов BNC Model 505 фирмы Berkeley Nucleonics. В настройках генератора импульсов можно независимо менять задержку для каждого из каналов.

Для наблюдения за формированием мезоскопических структур и исследованием их динамики в сверхтекучем гелии использовалась CMOS камера фирмы Mikrotron, модель EoSens CL. Размер сенсора цифровой камеры: 1280х1024 пикселей, размер пикселя 14х14 мкм, максимальная частота кадров - 506 кадров в секунду. Частота следования кадров увеличивается при использовании части сенсора. Камера оснащена макро-объективом с переменным фокусом и максимальным увеличением равным 1.

Люминесценция собирается на входной щели спектрометра Acton SP2300 фирмы Princeton Instruments. Данный спектрометр оборудован туррелью со сменными решетками 1200 штр/мм, 600 штр/мм и 300 штр/мм. Ширина входной шели была постоянной для всех конфигураций и равнялась 50 мкм (нормальная ширина щели на длине волны 532 нм). В фокальной плоскости спектрографа имеются два выходных порта. На одном установлена выходная щель и фотоумножитель ФЭУ Hamamtsu H9305-03, на втором установлена CCD камера. Переключение между ними осуществляется с помощью встроенного поворотного зеркала. Для регистрации оптических спектров используется ССО камера PIXIS 100BR, размер матрицы 1340 × 100 пикселей, типичное время экспозиции в измерениях 1 сек. Спектрометр был откалиброван с помощью неоновой спектральной лампы, для решетки 1200 штр/мм погрешность измерений составляла  $\pm 0.08$  нм, для решетки 600 штр/мм  $\pm 0.14$  нм. Поворот решетки осуществляется встроенным шаговым двигателем, данные с ССD камеры поступают на компьютер по USB интерфейсу и обрабатываются программой WinSpec или LightField.

#### 3.4. Образец и метод очистки поверхности

Исследуемый образец - металлический барий, Ва, с концентрацией 99 % и с примесью стронция, Sr, менее 0.8 %. Геометрические размеры образца - цилиндр диаметром 22 мм, производен компанией Alfa Aesar. Как и любой щелочноземельный металл барий быстро окисляется в атмосфере, и поэтому, чтобы предотвратить окисление, хранится в инертной среде.

Химический состав: природная смесь изотопов <sup>138</sup>Ва - 72 % (ядерный спин I=0), <sup>137</sup>Ва - 11.2 % (ядерный спин I=3/2), <sup>136</sup>Ва - 7.8 % (ядерный спин I=0), <sup>135</sup>Ва - 6.6 % (ядерный спин I=3/2), <sup>134</sup>Ва - 2.4 % (ядерный спин I=0).

Окисление поверхности щелочноземельных и шелочных металлов является одной из проблем для инжекции примесей в сверхтекучий гелий, и требует значительно большей интенсивности лазерного импульса для абляции в сверхтекучем гелии, порядка нескольких мДж/импульс. Увеличение интенсивности, и как следствие дополнительный нагрев образца при абляции, приводит к повышенному расходу гелия и повышению температуры внутри ячейки. Кроме того, распыляющиеся частички оксида оседают на окнах и рассеивают свет. Несмотря на условия хранения материалов в инертной среде, поверхность материала успевает окислиться при резке и обработке образца, установки в ячейку, а также во время подготовительных работ, таких как, поиск течи, проверка контактов, подготовка криостата к трансферу криогенных жидкостей. На время проведения подготовительных процедур ячейка с образцом находится под откачкой либо заполняется инертным газом, что позволяет существенно уменьпить процесс окисления. Тем не менее дегазация металлических поверхностей и оргстекла не позволяет предотвратить его полностью.

Для решение проблемы был применен метод очистки поверхности с помощью сфокусированного импульсного лазерного излучения (с использованием второй гармоники лазера Nd:YAG, длина волны 532 нм) и программируемых шаговых двигателей Thorlabs MTS 25/M-Z8 под управлением сервоконтроллеров Thorlabs TDC 001. Механизированные площадки позволяют перемещать фокусирующую линзу перпендикулярно оптической оси, а лазерный луча вдоль поверхности образца.

На Рисунке 3.9 изображена очищенная поверхность бария. Фотография сделана с помощью цифрового микроскопа DinoLite.



Рис. 3.9. Поверхность бария после очистки. Справа на фотографии видна неочищенная область

Для управления моторами использовалась программа APT в которой устанавливаются задающие параметры программируемых шаговых двигателей с актуатором MTS 25/M-Z8 под управлением сервоконтроллера, такие как перемещение, минимальный шаг смещения, количество циклов повторения и время простоя. Минимальный шаг смещения, равный 1 мкм, позволяет эффективно очистить поверхность образца перед заливкой жидкого гелия.

Данный метод позволяет аблировать и внедрять в жидкий гелий примеси при малой интенсивности лазерного импульса. Для данной экспериментальной установки типичная энергия импульса составляет 70 мкДж/импульс при абляции на длине волны 355 нм и 400 мкДж/импульс при абляции на длине волны 532 нм. Одним из преимуществ при использовании механизированных площадок является стабильная искра на поверхности. Без использования площадок через некоторое время после начала абляции в образце образовывался кратер, и как следствие поверхность мишени отдалялась от точки фокуса лазерного излучения, пропадала искра, что требовало подстройки фокусирующей линзы.

Перед охлаждением криостата, ячейка для образца заполняется газообразным гелием, а поверхность мишени очищается импульсным Nd: YAG-лазером, работающим с частотой 10 Гц и с энергией импульса 20 мДж. Две механизированные площадки используются для перемещения линзы в плоскости, перпендикулярной лазерному пучку. Пучок сфокусирован на несколько миллиметров глубже поверхности мишени, чтобы иметь не слишком маленький размер пятна. Пятно абляции движется вдоль поверхности бария, следуя запрограммированному перемещению. Процесс контролируется видеокамерой, защищенной от интенсивного рассеянного лазерного излучения интерференционным фильтром. После удаления оксидного слоя абляция осуществлялась лазером на гораздо меньшей мощности во время проведения низкотемпературного эксперимента, что предотвращает перегрев ячейки. Как правило, в ходе эксперимента при низкой температуре импульс лазера для абляции имеет энергию 0.4 - 1.5 мДж. Лазерный пучок в эксперименте сфокусирован на поверхности образца, а пятно абляции перемещается вдоль очищенной части поверхности той же оптико-механической системой. Размер пятна абляции составлял ≈ 4 мкм в диаметре (оценка была сделана для гауссова пучка с следующими параметрами: диаметр пучка - 10 мм, фокусное расстояние линзы 10 см, длина волны лазера  $\lambda$ =532 нм). Таким образом, каждый импульс абляции попадает в новую точку на поверхности. Это предотвращает эффект образования кратера и значительно улучшает стабильность выхода ионов.

# Глава 4

# Экспериментальные результаты

Экспериментальная установка для наблюдения и регистрации оптических спектров в сверхтекучем <sup>4</sup>Не в совокупности с методом инжекции примесных частиц, основанном на лазерной абляции, является мощным инструментом для исследования природы сверхтекучего гелия и экзотических возбуждений, а также мезоскопических структур, как в объеме сверхтекучего гелия, так и на его поверхности.

В данной главе, состоящей из трех разделов, представлены основные экспериментальные данные. В Разделе 4.1 описаны спектры ионов и атомов  $Ba^+$  в плазме при абляции в жидком гелии, атомные спектры Ba в сверхтекучем гелии. Сделана оценка влияния рекомбинационных процессов на концентрацию ионов  $Ba^+$ , инжектированных в сверхтекучий гелий. В Разделе 4.2 описываются мезоскопические структуры, наблюдаемые в сверхтекучем гелии. Изучается движение таких структур в приложенном электрическом поле, и представлены результаты сканирующей электронной микроскопии (SEM) мезоскопических структур. В Разделе 4.3 описан метод генерации ионов бария в газе над поверхностью жидкого гелия с использованием лазерной абляции и радиочастотного разряда, а также явление электрического пробоя, которое сопровождает процесс внедрения ионов  $Ba^+$  в сверхтекучий гелий при низких температурах. Приведен экспериментальный спектр перехода  $D_1$  ионов  $Ba^+$ , инжектированных в жидкий гелий, и его сравнение с теоретическим, полученным в рамках модели деформированного атомного «пузыря» (см. Раздел 2.5).

## 4.1. Абляция в сверхтекучем гелии <sup>4</sup>Не

Одним из наиболее простых методов инжекции примесей в сверхтекучий гелий является абляция непосредственно в жидкой фазе сверхтекучего гелия

(см. Рисунок 4.1). Данный метод представляет интерес для решения задачи локализации ионов под поверхностью гелия в силу простоты реализации. Недостатком данного метода является получение преимущественно кластеров аблируемого материала, а не атомов или ионов в состоянии «пузырь». Методами оптической спектроскопии для данной оптической схемы удалось качественно оценить влияние рекомбинационных процессов в плазме, создаваемой в точке абляции.

# 4.1.1. Оптическая спектроскопия плазмы при абляции в сверхтекучем <sup>4</sup>Не

Ячейка (см. Рисунок 3.4) была полностью заполнена жидким гелием. Температура внутри ячейки T=1.6 К. Расстояние между мишенью и верхним электродом равнялось 7.5 мм.



Рис. 4.1. Оптическая схема А. Абляция Ва в сверхтекучем <sup>4</sup>He. 1 - импульсный лазер Nd:YAG, 2 - экспериментальная ячейка, 3 - капилляр, 4 - спектрометр, 5 - ССD камера, 6 - мишень Ва, 7 - светофильтр, 8 - лазер №1 на красителе или LED для возбуждения люминесценции

Абляция бария (6) осуществлялась импульсным лазером Nd:YAG (1) на второй гармонике (длина волны 532 нм), сфокусированном на образце плоско выпуклой линзой L1, установленной внутри криостата (см. Рисунок 3.8). Частота повторений 1-3 Гц, энергия импульса была максимальной и равнялась 25 мДж/импульс. Нагрев ячейки при абляции на частоте 1 Гц и максимальной интенсивности был незначительным и составлял всего 5 мК. На частоте повторений 3 Гц температура внутри ячейки повышалась на 20 мК.

Флуоресценция собирается на входной щели спектрометра (4) с помощью оптической системы. Оптическая система состоит из двух двояковыпуклых линз и двух зеркал. Первая линза с фокусным расстоянием 100 мм (диаметром 50 мм) собирает флуоресценцию и формирует параллельный пучок света, который транслируется с помощью двух зеркал (диаметром 75 мм) и фокусируется второй линзой (диаметром 50 мм) с фокусным расстоянием 200 мм. Параметры линзы подобраны для численной апертуры спектрометра равной 1/4.

Для уменьшения рассеянного света лазерного излучения, перед щелью спектрометра установлен интерференционный фильтр (7), подавляющий излучение на длине волны 532 нм с полушириной линии поглощения равной 17 нм. В качестве источника возбуждения (8) использовались светодиоды (с длиной волны 455 нм и 490 нм) и лазер на красителе (длина волны 482 нм).



Рис. 4.2. Электрическая схема в экспериментах с оптической схемой А

На Рисунке 4.2 изображена электрическая схема для регистрации электрического тока, переносимого ионами. Ток измерялся с помощью 4-х канального осциллографа LeCroy с полосой пропускания 1 ГГц и входным сопротивлением 1 МОм. Ионы Ba<sup>+</sup> создаются в плазме при абляции мишени (6) и движутся к верхнему электроду (10) под действием приложенного постоянного положительного напряжения к нижнему электроду (11). Напряжение изменялось в диапазоне 0–800 В. При более высоких напряжениях происходил пробой изоляции в кабеле, позднее были установлены дополнительные кабели с напряжением пробоя 5 кВ.

Спектральные линии переходов в плазме при абляции в жидкости еще более уширены по сравнению с уширением линий в газе [147]. Любое воздействие на излучающую или поглощающую квантовую систему (атом, ион) влияет на ширину и сдвиг спектральной линии. Взаимодействие атома или иона с окружающими частицами вызывает уширение, сдвиг и асимметрию контура спектральной линии. Уширение спектральных линий при столкновении с нейтральными частицами буферного газа определяется ударным механизмом вплоть до давлений в несколько десятков атмосфер. Уширение линий при столкновении с электронами в плазме практически всегда имеет ударный характер.



Рис. 4.3. Спектр плазмы при абляции образца в сверхтекучем гелии при T=1.6 К в диапазоне длин волн 410–670 нм. Сплошная кривая 1 красного цвета - центральная часть плазменного шлейфа, сплошная кривая 2 синего цвета - периферическая часть плазменного шлейфа. Наблюдаемые линии поглощения / флуоресценции принадлежат ионам Ba<sup>+</sup> и нейтральным атомам Ba. Серая затененная область на 530 нм отмечает полосу поглощения светофильтра

Лазерная абляция в сверхтекучем гелии приводит к образованию плотной плазмы в точке фокуса лазерного импульса мощностью 25 мДж на образце.

Характерный спектр излучения плазмы показан на Рисунке 4.3. Вблизи центра плазмы спектр излучения непрерывный. Электронные переходы иона Ba<sup>+</sup> и нейтрального атома Ba представлены в виде спектров поглощения на фоне непрерывного спектра (кривая 1). В спектре излучения периферийной части плазмы, спектральные линии представлены в виде пиков и вклад непрерывного спектра существенно меньше. Полученные спектры плазмы позволяют оценить количество ионов Ba<sup>+</sup> в плазме. Коэффициент поглощения  $\alpha(\omega)$  разрешенного перехода может быть посчитан из уравнения [148]:

$$\alpha(\omega) = \frac{4\pi D^2 \omega_0 N_i}{3\hbar c} \frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \frac{\Gamma}{(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2}$$
(4.1)

В уравнении (4.1),  $\omega_0$  и D - частота перехода и дипольный момент перехода, соответственно,  $\Gamma$  - ширина линии перехода, и  $N_i$  - количество поглощающих оптическое излучение частиц. Спектр пропускания может быть описан законом Ламберта-Бугера-Бэра:

$$I(\omega) = I_0 exp[-\alpha(\omega)L] \tag{4.2}$$

В уравнении (4.2), L - толщина поглощающего слоя, а  $I_0$  и I интенсивность падающего и проходящего излучения, соответственно. Радиус плазмы для оценки выбран равным 1 мм, тогда аппроксимация спектра поглощения электронного перехода 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  - 6p  ${}^{2}P_{1/2}$  формулой (4.1) позволяет вычислить концентрацию ионов  $N_i \approx 10^{15}$  см<sup>-3</sup>. В объеме плазмы 1 мм<sup>3</sup> соответственно будет  $10^{12}$  ионов Ba<sup>+</sup>, производимых за один лазерный импульс мощностью 25 мДж.

Несмотря на попытки пронаблюдать спектр ионов  $Ba^+$  в жидком гелии лазерно-индуцированная флюоресценция спектральных переходов  $D_1$  и  $D_2$  не была зарегистрирована. Линии переходов ионов в жидком гелии существенно сдвинуты по сравнению с теми же линиями в плазме и их легко можно разрешить (см. Главу 2) относительно линий в плазме.

#### 4.1.2. Оптическая спектроскопия атомов бария в сверхтекучем <sup>4</sup>He

Принципиальное отличие оптической схемы Б, приведенной на Рисунке 4.4, от оптической схемы А (см. Рисунок 4.1) - использование второго лазера для диссоциации кластеров бария.



Рис. 4.4. Оптическая схема Б. Абляция в газе/жидкости и диссоциация в сверхтекучем гелии. 1 - импульсный лазер Nd:YAG  $\lambda$ =355 нм, 2 - экспериментальная ячейка, 3 - капилляр, 4 - спектрометр, 5 - CCD камера, 6 - мишень Ва, 7 - светофильтр, 8 - лазер или LED для возбуждения, 9 - импульсный лазер Nd:YAG  $\lambda$ =532 нм

Мишень аблировалась импульсным лазером DPSS (длина волны  $\lambda$ =355 нм), с энергией импульса 70-100 мкДж. Диссоциации кластеров осуществлялась второй гармоникой импульсного лазера Nd:YAG (9 на Рисунке 4.4) (длина волны  $\lambda$ =532 нм). Энергия импульса лазера для диссоциации кластеров составляет 25 мДж/импульс, частота повторений 1-5 Гц. В оптической схеме Б первичная абляция осуществлялась, как в газе, так и в сверхтекучем гелии. При абляции в газе, расстояние от мишени до поверхности составляет 5 мм. В случае абляции в сверхтекучем гелии ячейка была полностью заполнена жидким гелием. В качестве источников возбуждения (8) используются светодиоды Thorlabs либо лазеры №1, 2, 3.

В оптической схеме В (Рисунок 4.5) по сравнению с предыдущими схемами впервые использовался метод очистки поверхности. Данный метод позволил добиться стабильной искры на мишени (6 на Рисунке 4.5) и использовать один лазер для абляции бария (1 на Рисунке 4.5) и диссоциации кластеров. Излучение импульсного лазера Nd:YAG (9 на Рисунке 4.5) (вторая гармоника, длина волны 532 нм) разделяется на два пучка с помощью светоделителя (10 на Рисунке 4.5). Светоделитель представляет собой частично прозрачное диэлектрическое зеркало. Отраженный от передней поверхности луч фокусируется на поверхности мишени плосковыпуклой линзой (фокусное расстояние 100 мм). Энергия импульса 400 мкДж/импульс на частоте повторений 1-5 Гц.



Рис. 4.5. Оптическая схема В. Абляция бария в жидкости и диссоциация в сверхтекучем гелии с использованием одного импульсного лазера. 1 - импульсный лазер Nd:YAG  $\lambda$ =532 нм, 2 - экспериментальная ячейка, 3 - капилляр, 4 - спектрометр, 5 - CCD камера, 6 - мишень Ва, 7 - светофильтр, 8 - лазер или LED для возбуждения, 9 - ФЭУ

Проходящий пучок с помощью поворотных зеркал М1 и М2 фокусируется линзой L2 (фокусное расстояние 100 мм) в центре ячейки. Энергия импульса 20 мДж/импульс на частоте повторений 1-5 Гц. Исследовалась динамика вторичных продуктов абляции (кластеров, наночастиц) при заблокированном лазере для абляции (1).

В фокусе лазерного пучка, диссоциирующего кластеры, если туда попадает макрочастица, она аблируется и образуется газовый пузырек. В этом случае визуально видно искру и регистрируется характерный спектр плазмы. Ионы и электроны в плазме рекомбинируют и термализуются на границе газ/жидкость. Атомы Ва формируют «пузырные» состояния и движутся в жидкости, покидают зону абляции и заполняют окружающий объем. Спустя несколько минут после начала работы диссоциирующего лазерного импульса, сфокусированного в центре ячейки, можно было невооруженным глазом наблюдать светящийся зеленый конус, который повторял форму сфокусированного лазерного пучка.

Широкий спектр линии поглощения перехода 6s  ${}^{1}S_{0}$  - 6s6p  ${}^{1}P_{1}$  атома Ва (Рисунок 1.9) в сверхтекучем  ${}^{4}$ Не позволяет возбуждать атомы бария и наблюдать оптические спектры многочисленных линий электронных переходов бария с помощью лазерного излучения на длине волны 532 нм (диссоциирующий импульс).

На Рисунке 4.6 изображена энергетическая диаграмма электронных уровней атома бария в вакууме. Электронная оболочка атома бария полностью заполнена, её электронная конфигурация 6s<sup>2</sup>. Задача нахождения спектральных термов многоэлектронных конфигураций решена и достаточно подробно описана в литературе [149].

Механизм возбуждения атомов бария можно показать с помощью диаграммы энергетических уровней на Рисунке 4.6. Энергия одного фотона на длине волны 532 нм (18 796 см<sup>-1</sup>) возбуждает атом бария в сверхтекучем гелии в состояние 6s6p <sup>1</sup>P<sub>1</sub> (18 060 см<sup>-1</sup>). Из этого состояния атом релаксирует с излучением в основное состояние 6s<sup>2</sup> <sup>1</sup>S (длина волны в вакууме 553.5 нм). В сверхтекучем гелии линия перехода сдвинута в синюю область спектра на -0.5±0.08 нм. На Рисунке 4.7 изображена наблюдаемая в эксперименте спектральная линия перехода атома Ва для данного состояния.

Однако, есть ненулевая вероятность (данный переход разрешен в магнитодипольном приближении) перейти из состояния 6s6p <sup>1</sup>P<sub>1</sub> (18 060 см<sup>-1</sup>) в ме-



Рис. 4.6. Энергетическая диаграмма электронных уровней атома Ва в вакууме [128]. Стрелками отмечены переходы между уровнями. Длины волн в нм, энергия уровней в см<sup>-1</sup>. В скобках указано время жизни в нс



Рис. 4.7. Спектральная линия перехода 6<br/>s $^1S_0$ - 6s6p $^1P_1$ атома Ва в жидком гелии. Пунктирной линией обозначен переход в вакуум<br/>е $\lambda{=}553.55$  нм

тастабильное состояние 6s5d  ${}^{3}D_{1}$  (9034 см<sup>-1</sup>). По порядку величины отношение вероятностей переходов, разрешенных в электродипольном и магнитодипольном приближениях,  $\approx 10^{5}$  и требуется время, чтобы заселить это состояние.



Рис. 4.8. Спектральные линии электронных переходов атома Ва в жидком <sup>4</sup>Не при температуре T=1.6 K в диапазоне длин волн 594–616 нм.

Из метастабильного состояния 6s5d  ${}^{3}D_{3}$  энергия кванта лазерного импульса (18 797  ${}^{-1}$ ) позволяет осуществить переход в состояние 5d6p  ${}^{1}F_{3}$  (26 816 см ${}^{-1}$ ). Из этого состояния происходит излучательный переход в метастабильное состояние 6s5d  ${}^{1}D_{2}$  (11 395 см ${}^{-1}$ ), длина волны в вакууме 648.3 нм. Данная линия сдвинута в красную область на  $+0.60\pm0.08$  нм (Рисунок 4.9). Интенсивность линий нормирована на максимальное значение интенсивности спектральной линии перехода атома бария в указанном диапазоне длин волн.



Рис. 4.9. Спектральные линии электронных переходов атома Ва в жидком <sup>4</sup>He при температуре T=1.6 K в диапазоне длин волн 638–674 нм.

По указанной выше схеме при переходе из метастабильного состояния 6s5d  ${}^{3}D_{3}$  происходит заселение состояний 5d6p  ${}^{3}P_{0,1,2}$  и 5d6p  ${}^{3}D_{1,2,3}$  и регистрируются переходы с этих уровней в состояния 6s5d  ${}^{3}D_{1,2,3}$ . На Рисунках 4.8 и 4.9 приведены экспериментальные спектры указанных выше переходов. На Рисунке 4.10 приведены экспериментальные спектры переходов в красной части спектра.

Когда в фокус диссоциирующего импульса попадает микрочастица бария, визуально наблюдается искра, и регистрируются узкие спектральные линии переходов атома бария, характерные для газовой фазы, на фоне уширенных и сдвинутых спектральных линий, характерных для спектральных переходов атомов бария в состоянии «пузыря». В спектре искры были видны, в том чис-



Рис. 4.10. Спектральные линии электронных переходов атома Ва в жидком <sup>4</sup>He при температуре T=1.6 K в диапазоне длин волн 760–795 нм

ле, интенсивные гелиевые линии. Так, например, на Рисунке 4.11 изображен спектр в сверхтекучем гелии в диапазоне длин волн 459–495 нм. В спектре присутствуют линии атомов <sup>4</sup>He 1s2p <sup>3</sup>P<sub>1,2</sub> - 1s4s <sup>3</sup>S<sub>1</sub>, длина волны в вакууме 471.314 нм [128].



Рис. 4.11. Спектральные линии электронных переходов атома Ва в жидком <sup>4</sup>He при температуре T=1.6 K в диапазоне длин волн 459–495 нм

В Таблице 4.1 измеренные длины волн, соответствующие максимумам в спектре излучения, а также длины волн соответствующих переходов атома бария в вакууме.

Несмотря на многочисленные попытки пронаблюдать спектральные линии переходов 6<br/>s $^2\mathrm{S}_{1/2}$ - 6p $^2\mathrm{P}_{1/2}$ и 6<br/>s $^2\mathrm{S}_{1/2}$ - 6p $^2\mathrm{P}_{3/2}$ ионов Ba<sup>+</sup> для всех конфигура-

100

Спектральные переходы	Длина волны, $\lambda$ ,	Длина волны, $\lambda$ ,
атома Ва	в жидком гелии, нм	в вакууме, нм
6s8s ${}^{1}S_{0}$ - 6s6p ${}^{3}P_{1}^{0}$	$460.50 \pm 0.08$	459.97
$6p^2 {}^3P_1$ - $6s6p {}^3P_2^0$	$468.10\pm0.08$	469.16
6s7 p $^1\mathrm{P}^0_1$ - 6s5 d $^1\mathrm{D}^0_2$	$471.30\pm0.08$	472.64
6s6p ${}^{1}\mathrm{P}_{1}^{0}$ - 6p ${}^{2}$ ${}^{1}\mathrm{D}_{2}^{0}$	$488.30 \pm 0.08$	487.76
6s6p ${}^{3}\mathrm{P}_{2}^{0}$ - 6s8 s ${}^{3}\mathrm{S}_{1}$	$491.60\pm0.08$	490.28
$6s^2 {}^1S_0$ - $6s6p {}^1P_1^0$	$553.05 \pm 0.08$	553.55
6s5d ${}^{3}D_{2}$ - 5d6p ${}^{3}P_{2}^{0}$	$596.10 \pm 0.08$	597.17
6s5 d $^3\mathrm{D}_1$ - 5d6p $^3\mathrm{P}^0_1$	$598.70 \pm 0.08$	599.71
6s5 d $^3\mathrm{D}_1$ - 5d6p $^3\mathrm{P}^0_0$	$600.95\pm0.08$	601.95
6s5d ${}^{3}D_{2}$ - 5d6p ${}^{3}P_{1}^{0}$	$605.25 \pm 0.08$	606.31
6s5d ${}^{3}D_{3}$ - 5d6p ${}^{3}P_{2}^{0}$	$610.00\pm0.08$	611.08
6s5d ${}^{3}D_{1}$ - 5d6p ${}^{3}D_{2}^{0}$	$644.10 \pm 0.08$	645.09
6s5 d $^1\mathrm{D}_2$ - 5d6p $^1\mathrm{F}^0_3$	$648.90\pm0.08$	648.29
6s5d ${}^{3}D_{3}$ - 5d6p ${}^{3}D_{2}^{0}$	$651.70 \pm 0.08$	649.88
6s5d ${}^{3}D_{1}$ - 5d6p ${}^{3}D_{1}^{0}$	$658.50\pm0.08$	659.53
6s5d ${}^{3}D_{2}$ - 5d6p ${}^{3}D_{1}^{0}$	$666.40 \pm 0.08$	667.53
6s5d ${}^{3}D_{3}$ - 5d6p ${}^{3}D_{2}^{0}$	$668.30\pm0.08$	669.38
6s5d ${}^{3}D_{1}$ - 5d6p ${}^{3}F_{2}^{0}$	$765.40 \pm 0.08$	767.21
6s5d ${}^{3}D_{2}$ - 5d6p ${}^{3}F_{2}^{0}$	$776.20\pm0.08$	778.05
6s6p ${}^{3}\mathrm{P}_{2}$ - 6s7 s ${}^{3}\mathrm{S}_{1}^{0}$	$789.70\pm0.08$	790.57

Таблица 4.1. Таблица значений теоретических [128] и экспериментальных данных длин волн спектральных линий атома Ba<sup>+</sup> в вакууме и в жидком гелии

ций (А, Б и В), с помощью различных источников возбуждения (лазеров №1, 3, 4 и светодиодов Thorlabs), при напряженности поля до нескольких кВ/см, нам не удалось зарегистрировать указанные выше линии. Чувствительность спектральных приборов позволяет зарегистрировать малые концентрации атомов и ионов. В конфигурации В удалось зарегистрировать излучение спектральной линии 5s<sup>2</sup> <sup>1</sup>S<sub>0</sub> - 5s5p <sup>1</sup>P<sub>1</sub> атома стронция Sr [21]. Концентрация примеси стронция в нашем образце составляла не более 0.8 % (см. Главу 3). Длина волны люминесценции в вакууме 460.73 нм, в сверхтекучем <sup>4</sup>Не сдвинута на +0.63±0.07 нм [79]. Экспериментально измеренная линия в сверхтекучем <sup>4</sup>Не (настоящая работа) сдвинута на +0.46±0.08 нм и приведена на Рисунке 4.12.



Рис. 4.12. Спектральная линия перехода 5<br/>s $^{2}$   $^{1}\mathrm{S}_{0}$  - 5<br/>s5p  $^{1}\mathrm{P}_{1}$ атома Sr в сверхтекучем гелии. Стрелкой обозначен переход в вакууме

В качестве источника возбуждения использовался непрерывный полупроводниковый лазер №3 с интенсивностью 1.0 Вт на длине волны 455 нм. Широкая линия поглощения иона бария [18] при наличии необходимой концентрации ионов позволила бы эффективно возбудить состояние 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  - 6p  ${}^{2}P_{3/2}$ .

Для разработки метода локализации ионов под поверхностью сверхтекучего гелия, важно оценить характерное время за которое продукты абляции



Рис. 4.13. Интенсивность флюоресценции перехода 6s6p  ${}^{1}P_{1}$  - 6s ${}^{2}$   ${}^{1}S_{0}$  (оптическая схема В), точки на графике соответствуют максимуму линии перехода при накоплении сигнала за десять импульсов диссоциирующего лазера. Первичная абляция мишени заблокирована

(кластеры, наночастицы) уплывают из зоны наблюдения. Для оценки было измерено время затухания спектральной линии перехода бария 6s6p  ${}^{1}P_{1}$  - 6s ${}^{2}$   ${}^{1}S_{0}$ , оно равно  $\tau = 175$  секунд. Условия эксперименты были следующие: мишень аблировалась на протяжении нескольких минут для создания достаточного количества продуктов абляции в сверхтекучем гелии. После нескольких минут абляции, первичный импульс блокировался и работал только диссоциирующий импульс. Записывался спектр люминесценции через определенные интервалы времени. На Рисунке 4.13 представлен график зависимости интенсивности максимума спектральной линии перехода 6s6p  ${}^{1}P_{1}$  - 6s ${}^{2}$   ${}^{1}S_{0}$  от времени.

### 4.1.3. Токовые характеристики при абляции в сверхтекучем ${}^{4}\text{He}$

Типовые электрические токовые сигналы в поле 1 кВ/см при температуре жидкого гелия T=1.6 К приведены на Рисунке 4.14. Они были получены с использованием оптической схемы А. Энергия импульса 25 мДж. Ячейка пол-

103

ностью заполнена сверхтекучим <sup>4</sup>He. Расстояние между электродами 10 мм. Расстояние от мишени до верхнего электрода составляло 7.5 мм.



Рис. 4.14. Токовый сигнал ионов в поле 1 кВ/см. Черная кривая - напряжение на электроде U=800 В, красная - U=0 В. Температура в ячейке T=1.6 К. Частота повторений лазерных импульсов - 1 Гц

Из Рисунка 4.14 видно, что процесс условно можно разделить на два этапа: движение ионов в плазме и в жидком гелии. Первый процесс быстропротекающий и занимает порядка ста микросекунд. Второй процесс занимает 3–3.5 миллисекунды и связан с движением ионов в жидком гелии. Дрейф ионов в сверхтекучем гелии от мишени к коллектору порождает ток смещения, регистрируемый на электроде (см. Рисунок 4.2). Интегрируя по времени ток, можно оценить заряд, который достигает верхнего электрода. Он равен порядка 10<sup>-11</sup> Кл, что соответствует 10<sup>8</sup> ионов/импульс. При меньшей напряженности поля ≈0.5 кВ/см количество ионов составляло 10<sup>7</sup> ионов/импульс. Токовые характеристики позволяют оценить концентрацию ионов, считая, что они равномерно распределены по объему 1 мм<sup>3</sup>. При напряженности поля E=1 кB/см, концентрация заряженных частиц как минимум на четыре порядка меньше чем в плазме (см. оценки концентрации ионов в плазме в Разделе 4.1.1). Таким образом можно говорить об эффективном процессе рекомбинации в плазме при абляции мишени в сверхтекучем гелии.



Рис. 4.15. Температурная зависимость подвижности ионов Ba<sup>+</sup> и ионов He<sup>+</sup> в сверхтекучем гелии [74, 150]. Красная кривая - подвижность ионов Ba<sup>+</sup>, синяя кривая - ионов He<sup>+</sup>

На Рисунке 4.15 приведены экспериментальные графики температурной зависимости подвижности ионов Ba<sup>+</sup> и ионов He<sup>+</sup> в сверхтекучем гелии [74, 151]. Как видно из графика на Рисунке 4.15, подвижности ионов Ba<sup>+</sup> и ионов He<sup>+</sup> при температуре T=1.6 K равны соответственно 0.32 см<sup>2</sup>/(B·c) и 0.27 см<sup>2</sup>/(B·c). Время пролета в поле напряженностью 1 кB/см составляет 2.2 мс для ионов Ba<sup>+</sup> и 2.6 мс для ионов He<sup>+</sup>. Из экспериментального графика на Рисунке 4.14 характерные времена дрейфа составляют 3–3.5 мс, что практически на 40 % - 60 % больше рассчитанного времени.

#### 4.1.4. Локализация заряда под поверхностью

Для локализации заряда под поверхностью, был установлен высоковольтный медноникелевый кабель с напряжением пробоя 5 кВ (см. Рисунок 4.16). Положительное или отрицательное напряжение прикладывается к наконечнику кабеля. Мишень размещался на нижнем электроде (2). Свободная поверхность и пространство между поверхностью и электродом контролируется через боковое окно цифровой видеокамерой, показанной на Рисунке 4.16 а. Камера ориентирована либо горизонтально, либо повернута на угол 15 градусов относительно поверхности.



Рис. 4.16. Оптическая схема Г. Локализация заряда на поверхности. 1 - импульсный лазер Nd:YAG  $\lambda$ =532 нм, 2 - экспериментальная ячейка, 3 - капилляр, 4 - спектрометр, 5 - CCD камера, 6 - мишень Ва, 7 - светофильтр, 8 - LED для возбуждения, 9 - ФЭУ

Расстояние между наконечником и поверхностью жидкого гелия составляло 0.5–2.0 мм. Напряжение приложенное к наконечнику изменялось в диапазоне –0.6 до –1.0 кВ. При другой полярности наблюдался тот же эффект. Практически сразу после абляции бария было видно деформацию поверхности вблизи наконечника (Рисунок 4.17). Эффект известен в литературе под названием «конус Тейлора». Он наблюдался во многих классических жидкостях [152]. Деформация возникает при локализации электрического заряда под поверхностью сверхтекучего гелия. При выключении напряжения деформация пропадает, а с приложенным напряжением, но без абляции бария никакой деформации не возникает. При более низкой температуре увеличивается амплитуда волн и ухудшается стабильность холмика. В нормальной фазе интенсивное кипение жидкого гелия, и как следствие возмущение поверхности, не позволяет пронаблюдать этот эффект.



Рис. 4.17. Деформация поверхности сверхтекучего гелия при T=2.1 К. Напряжение на электроде U=-400 В, напряжение на нижнем электроде U=+500 В

При освещении (использовались лазеры №1, 4 и светодиод Thorlabs) области в которой локализован заряд резонансным излучением на длине волны 482 нм, что соответствует максимуму линии поглощения перехода Ba<sup>+</sup> 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  - 6p  ${}^{2}P_{1/2}$  в сверхтекучем гелии, в спектре не наблюдалась соответствующая линия ионов бария. Наблюдалось только рассеянное излучение лазера. В эксперименте с локализацией заряда (оптическая схема Г, Рисунок 4.16) диссоциирующий импульс сильно возмущает поверхность. По этой же причине, приходилось ограничивать энергию импульса лазера для первичной абляции до минимального значения (400 мкДж/импульс), при котором еще визуально наблюдалась искра на образце.

В отсутствии диссоциирующего импульса, и при наличии импульса для

абляции бария, в жидкий гелий инжектируются преимущественно кластеры, их исследование представлено ниже в Разделе 4.2. Данные кластеры заряжены, что объясняет наличие токовых импульсов и отсутствие оптического сигнала ионов бария в пузырном состоянии. Кластеры находятся в постоянном электрическом поле и движутся к наконечнику, локализуясь под поверхностью сверхтекучего гелия.

При длительной абляции (10–20 минут) можно наблюдать структуры в виде нитей. Нити так же обладают зарядом, так как барий является проводником, то на одном конце нити образуется нескомпенсированный заряд и нити движутся вдоль линий напряженности электрического поля. На Рисунке 4.18 а) приведен снимок бариевой нити, приложенное к наконечнику напряжение составляет U=–600 В.



Рис. 4.18. Эксперимент с электродом при T=2.1 К, напряжение на электроде U=-600 В. а) Бариевые нити при абляции в сверхтекучем гелии, б) Коронный разряд над поверхностью сверхтекучего <sup>4</sup>He

При дальнейшем повышении напряжения до U=–1 кВ на наконечнике возникает коронный разряд (Рисунок 4.18 б)), который виден визуально, а в спектре наблюдаются гелиевые линии и спектр эксимера гелия. Для наблюдения и возникновения разряда необходимо определенное давление насыщенных паров
гелия, в эксперименте разряд не наблюдался при температуре ниже 1.8 К.

#### 4.2. Мезоскопические структуры в сверхтекучем гелии

Лазерная абляция металлов в различных жидкостях является известным способом создания наночастиц. Во многих таких экспериментах было обнаружено, что получаемые методом лазерной абляции наночастицы образуют более крупные структуры: нанонити и наносетки. В данном разделе представлены основные результаты исследований формирования нанопроволок, нитей и сетей в системе, которая представляет собой двумерную ловушку для примесных частиц, в противоположность одномерной ловушке, созданной квантовым вихрем. Потенциал захвата создается комбинацией приложенного вертикально статического электрического поля и горизонтальной свободной поверхностью сверхтекучего Не. Ловушка заполняется заряженными металлическими микрои наночастицами, созданными лазерным импульсом в парах гелия над поверхностью сверхтекучего жидкого Не. Результирующие мезоскопические структуры и их динамика в жидкости наблюдаются оптически: за счет рассеяния лазерного света микрочастицами. Наблюдаемые структуры собираются на подложках, установленных в ячейке, и изучаются также методом сканирующей электронной микроскопии (SEM) при комнатной температуре. Таким образом, в данном разделе мы дополняем и расширяем существующие исследования металлических наноструктур в сверхтекучем Не, что позволит лучше понимать процесс коалесценции примесей на мезоскопическом масштабе.

Во-первых, мы воспроизвели результаты экспериментов [24, 31], в которых использовалась медная мишень для лазерной абляции, а ячейка была полностью заполнена сверхтекучим гелием. Мы наблюдали похожие нанопроволоки и формирование больших сетей из нанопроволок в нашей ячейке. В дальнейшем мы сконцентрировались на экспериментах с абляцией медной или бариевой мишени, расположенной в газе Не выше поверхности сверхтекучего гелия (см. Рисунок 4.19).

#### 4.2.1. Оптическая схема

Ячейка с образцом погружена в ванну с жидким Не (см. Рисунок 4.19 (а)). Сечение ячейки в вертикальной плоскости изображено на Рисунке 4.19 (б). Расстояние между нижним электродом и мишенью составляет 12 мм, поверхность жидкого гелия находится на расстоянии 6 мм от мишени. Металлические частицы получаются методом лазерной абляции мишени (1) в газовой фазе с помощью второй гармоники импульсного лазера Nd: YAG ( $\lambda$ =532 нм). В качестве мишени используется барий или медь.



Рис. 4.19. Оптическая схема Д. Абляция бария в газовой фазе. Экспериментальная установка: а) вид сверху на криостат и оптическую установку, б) сечение ячейки в вертикальной плоскости. 1 - мишень, 3 - полуволновая пластинка, 4 - зеркало

Абляция мишени (1) в газовой фазе на малой мощности (2.5 мДж/импульс) создает ионы и атомы в плазме. Под действием электрического поля ионы инжектируются в сверхтекучий гелий и дрейфуют к нижнему электроду. Минимальная температура внутри ячейки T=1.4 К. Лазерный пучок попадает в ячейку через одно из боковых окон и фокусируется на мишени в вертикальной плоскости. В некоторых экспериментах мы также аблировали мишень, наклоненную относительно вертикальной оси примерно на 45 градусов в сторону свободной поверхности жидкого гелия.

За пределами криостата лазерный пучок расширялся до диаметра 3 см, а затем фокусировался линзой с фокусным расстоянием 15 см. Линза установлена перед окном криостата на механизированной площадке (см. Раздел 3.4), которая передвигает линзу в плоскости ортогональной к оптической оси. Во время лазерной абляции линза постоянно перемещается. Фокус лазерного пучка смещается вдоль поверхности мишени и каждый импульс абляции попадает в новое место. Таким образом, мы предотвращаем сверление кратера в образце и получаем более высокую стабильность абляции.

В нижней части ячейки установлен плоский электрод. Электрод изготовлен из латуни или стекла толщиной 0.7 мм с прозрачным проводящим покрытием на верхней поверхности. Корпус ячейки для образца заземлен. В течение эксперимента можно независимо менять электрические потенциалы на мишени, U<sub>tar</sub>, и нижнем электроде U<sub>plate</sub>. Ячейка детально описана в Разделе 3.2. Ячейка заполнена жидким Не до определенной высоты, при которой свободная поверхность жидкости находится на середине между мишенью и электродом и хорошо видна через боковые окна. Наблюдение за свободной поверхностью и пространством между поверхностью и электродом осуществляется через боковое окно ячейки цифровой CMOS видеокамерой фирмы Mikrotron, изображенной на рисунке 4.19 (a). Камера ориентирована либо горизонтально, либо повернута на угол  $\leq 15$  градусов относительно поверхности. Камера (подробное описание см. Раздел 3.3) позволяет нам изучать быстрое движение субмиллиметровых частиц и «нитей» в сверхтекучем гелии. Ячейка освещается пучком непрерывного диодного лазера №4 с длиной волны  $\lambda$ =480 нм (см. Рисунок 4.19 (a)), или с помощью белой галогенной лампы, или коллимированным синим светодиодом Thorlabs (не изображены на Рисунке 4.19 (a)). Диодный лазер ориентирован ортогонально к камере и позволяет наблюдать рассеяние света на большие углы частицами на темном фоне. Направление линейной поляризации лазера регулируется с помощью полуволновой пластинки  $\lambda/2$ , для того чтобы получить максимальную интенсивность рассеянного света. Для наблюдения нитей, ориентированных параллельно поверхности жидкого Не в ячейке под криостатом устанавливалась камера, как показано на Рисунке 4.19 (б). Пучок непрерывного лазера всего несколько миллиметров в диаметре, поэтому для подсветки поверхности жидкого гелия, пучок сначала расширяется до диаметра 10 мм с помощью собирающей линзы, а затем фокусируется в вертикальном направлении цилиндрической линзой для получения горизонтально ориентированного пучка в поперечном сечении (таким образом происходит преобразования круглого пучка в горизонтальную линию).

Все металлические частицы и нити, произведенные в объеме сверхтекучего Не, или в газе над ним, или на поверхности раздела газ-жидкость, попадают на нижний электрод в конце эксперимента, когда жидкий гелий из ячейки испаряется. Однако, во время эксперимента мы наблюдаем как некоторые нити прилипают к вертикальным стенкам ячейки. После окончания эксперимента, открывая ячейку, мы наблюдали многочисленные отложения на боковых стенках. Их плотность распределения вдоль горизонтальной линии (по внутреннему периметру ячейки), обозначающей положение уровня жидкого гелия во время эксперимента, значительно больше чем плотность нитей по площади внутренней поверхности ячейки ниже линии. В ячейке дополнительно устанавливались кремниевые подложки, на которых собирались продукты абляции для последующего изучения под микроскопом или методом сканирующей электронной микроскопии (SEM). Горизонтально ориентированные подложки накладываются на плоский электрод, по аналогии с экспериментами по абляции мишени из золота [24]. Вертикально ориентированные подложки крепятся к боковым стенкам ячейки, между мишенью и электродом. Ориентация нитей, обнаруженных на этих подложках, позволяет различать структуры, сформированные на поверхности, от тех, что были произведены в объеме жидкого гелия.

#### 4.2.2. Движение микрочастиц в сверхтекучем гелии

Каждый лазерный импульс генерирует поток заряженных частиц, движущихся в сверхтекучем Не по направлению от мишени к нижнему электроду. Знак заряда частиц, инжектируемых в сверхтекучий гелий, зависит от полярности прикладываемого электрического поля. Видимый диаметр частиц на фотографиях варьируется от 1 пикселя (размер пикселя 14 мкм) до 10 пикселей, реальный размер частиц, скорее всего, не разрешается камерой. Необходимо заметить, что глубина фокуса объектива камеры меньше, чем освещаемая площадь. Поэтому не все наблюдаемые частицы дают четкие изображения. Гистограмма, показывающая распределение скоростей частиц, движущихся вниз, для потенциала на мишени,  $U_{tar} = +100$  В, и потенциала на нижнем электроде,  $U_{plate} = -300$  В, изображена на Рисунке 4.20 (а).

Большинство частиц ( $\approx$ 85%) движутся с постоянной скоростью в диапазоне 0.5 - 10.0 см/с. Для нахождения скорости частиц сравнивалось положение одной и той же частицы в последовательных кадрах видеозаписи с использованием программы Diatrack. Некоторые частицы также движутся вверх. Частицы, движущиеся вниз и вверх, наблюдаются при любой полярности приложенного напряжения. Распределение скоростей частиц, движущихся вверх для потенциала на мишени, U<sub>tar</sub> = +100 B, и потенциала на электроде, U<sub>plate</sub> = -300 B, изображены на Рисунке 4.20 (б). При такой относительно низкой напряженности электрического поля ( $\approx$  330 B/см) их число намного меньше, чем число частиц, движущихся вниз.

При более высокой напряженности электрического поля ( $\approx 660 \text{ B/cm}$ ) распределение скоростей частиц становится шире, а максимум распределения смещается в сторону больших скоростей. Этот эффект можно наблюдать на гистограмме распределения скоростей частиц, изображенной на Рисунках 4.20 (в), (г), при потенциале на мишени, U<sub>tar</sub> = -200 B, и потенциале на нижнем электроде, U<sub>plate</sub> = +600 B. В этих условиях количество частиц, движущихся



Рис. 4.20. Распределение скоростей частиц Ва, движущихся вниз (а), (в) и вверх (б), (г) в статическом электрическом поле [53]. Параметры приложенного электрического поля: для гистограмм (а), (б) потенциал мишени,  $U_{tar} = +100$  В, потенциал нижнего электрода,  $U_{plate} = -300$  В; для гистограмм (в), (г), потенциал мишени,  $U_{tar} = -200$  В, потенциал нижнего электрода, чижнего электрода,  $U_{plate} = +600$  В

вверх, почти такое же, как количество частиц, движущихся вниз. Необходимо заметить, что максимум гистограммы распределения частиц по скоростям смещен в сторону больших значений скорости для частиц, движущихся вверх, относительно частиц, движущихся вниз, при одинаковых условиях, при любой полярности внешнего электрического поля.

Многие из этих частиц выполняют повторяющееся движение между свободной поверхностью жидкого Не и нижним электродом, которое мы назвали челночным. Частица, инжектированная в сверхтекучий гелий, движется вниз с некоторой постоянной скоростью, v<sub>down</sub>. После того как частица достигает нижнего электрода, она начинает двигаться в обратную сторону, вверх, к свободной поверхности жидкого гелия также с постоянной, но несколько другой скоростью, v<sub>up</sub>. После того как частица достигает поверхности, она снова начинает двигаться вниз, и весь цикл повторяется много раз. Эффект гораздо более ярко выражен при напряженности поля, направленной вверх (положительный потенциал на нижнем электроде и отрицательный потенциал на мишени), чем при напряженности поля, направленной вниз. Как правило, в наших экспериментах для каждой частицы скорости  $v_{up} > v_{down}$ , и значение скорости воспроизводится в последующих циклах челночного движения. Траектория челночного движения одной такой частицы при потенциале на мишени,  $U_{tar} = -200$  B, и потенциале на электроде,  $U_{plate} = +600$  B, изображена на Рисунке 4.21.



Рис. 4.21. Траектория одной частицы, Z(t), выполняющей челночное движение между свободной поверхностью сверхтекучего Не и нижним электродом [53]. Координата Z = 0 соответствует свободной поверхности, координата расположения нижнего электрода Z = -9мм, потенциал мишени  $U_{tar} = -200$  В, потенциал нижнего электрода  $U_{plate} = +600$  В, T = 1.4 К. Каждая точка соответствует одному кадру видеозаписи, сплошные линии - линейная аппроксимация экспериментальных данных

На рисунке показана зависимость вертикальной координаты частицы, Z, от времени. Координата Z = 0 соответствует свободной поверхности жидкого гелия. Нижний электрод находится на 9 мм ниже поверхности гелия, и только верхняя часть траектории (Z> -3мм) была освещена лазером и захвачена объективом камеры. Тем не менее, линейная экстраполяция зависимости Z (t) позволяет воспроизвести всю траекторию движения частицы. Для этой частицы скорость v<sub>up</sub> = 19 ± 2 см/с, v<sub>down</sub> = 16 ± 1 см/с, а один полный цикл занимает 105 ± 5 мс.

На Рисунке 4.22 показаны гистограммы времени появления, T<sub>0</sub>, частиц, движущихся вверх и вниз, за временной интервал между лазерными импульсами абляции.



Рис. 4.22. Распределение времени появления частиц Ва, движущихся вниз (а), (в) и вверх (б), (г), в статическом электрическое поле [53]. Параметры приложенного электрического поля: для (а), (б) потенциал мишени,  $U_{tar} = +100$  В, потенциал нижнего электрода,  $U_{plate} = -300$  В; для (в), (г) потенциал мишени,  $U_{tar} = -200$  В, потенциал нижнего электрода,  $U_{plate} = +600$  В. Лазерный импульс абляции стреляет по мишени в момент времени t = 0

Время  $T_0$  соответствует началу траектории движения частицы в поле видимости камеры. Для частиц, выполняющих челночное движение, каждый проход через поле видимости считается новой траекторией. При потенциале на мишени  $U_{tar} > 0$  и потенциале на электроде  $U_{plate} < 0$ , большинство частиц появляются только один раз или выполняют только один цикл движения между двумя лазерными импульсами. Они появляются в основном в течение 50 мс после лазерного импульса абляции. Как видно на Рисунках 4.22 (а) и (б), движение частиц вниз и вверх начинается примерно в одно и то же время. Некоторые частицы, достигая нижнего электрода, остаются на дне, но отсоединяются от электрода в момент абляции мишени следующим лазерным импульсом. Достигая свободной поверхности, некоторые из них возвращаются назад и наблюдаются во второй раз. Эти возвращающиеся частицы создают второй значительно меньший пик на Рисунке 4.22 (а) в момент времени  $T_0 \approx 0.4$  с.

Механизм отрыва частиц от нижнего электрода в момент абляции мишени лазерным импульсом не совсем понятен. Скорее всего, отрыв частиц происходит за счет звуковой волны, которая создается лазерным импульсом, падающим на мишень выше жидкости, и достигает нижнего электрода. Отрыв также может быть вызван колебаниями мишени (механический удар), которые передаются на нижний электрод из-за конструкции держателей мишени и электродов (см. Рисунок 3.4). Отрыв также может быть вызван турбулентностью, создаваемой потоком положительных ионов, движущихся вниз после лазерного импульса абляции. Атомные ионы: He<sup>+</sup>, Ba<sup>+</sup>, Cu<sup>+</sup> обладают гораздо большей подвижностью, чем частицы, наблюдаемые в эксперименте. Ожидается, что они достигают нижнего электрода в течение нескольких миллисекунд после импульса (см. Рисунок 4.15). Эффект отрыва частиц от нижнего электрода наблюдается при большей напряженности электрического поля той же полярности. В этом случае частицы движутся быстрее в обоих направлениях и задержка между временем их появления и лазерным импульсом становится короче.

При потенциалах на мишени, U<sub>tar</sub> <0, и на электроде, U<sub>plate</sub>> 0, движение частиц продолжается на протяжении всего интервала между последовательными лазерными импульсами (интервал длится одну секунду на частоте повторения лазера 1 Гц). При большей напряженности электрического поля большинство частиц движутся со скоростью 10–20 см/с, и обычно совершают несколько циклов челночного движения в течение этого временного интервала. Поэтому времена их появления в объективе камеры распределены более равномерно в интервале от 0 до 1 с, как показано на Рисунках 4.22 (в) и (г). После выключения лазера абляции движение продолжается на протяжении ≈ 3 секунд.

В дополнение к точечным частицам в экспериментах мы наблюдаем вытянутые объекты с видимым соотношением сторон от 1:1 до 1:50. Как обсуждалось выше, диаметр таких частиц не может быть разрешен камерой. Только длина частицы может быть определена по фотографии поскольку она, конечно, не ограничена дифракцией. Мы также делаем поправку на кажущееся удлинение частиц из-за расстояния, пройденного частицей за время выдержки камеры, которая равна 2 мс. Результирующие длины частиц находятся в диапазоне от 40 до 200 мкм. Вытянутые частицы двигаются между нижним электродом и свободной поверхностью сверхтекучего Не в том же режиме, что и точечные частицы, движение которых было описано выше.

Анализируя экспериментальные данные движения частиц, можно сделать вывод, что заряженные частицы, локализуются под свободной поверхностью жидкого гелия под действием электрической силы, которая толкает их вверх, и отталкивающей силы за счет индуцированных зарядов на поверхности диэлектрика. Локализованные частицы образуют холмик (см. Рисунок 4.17) за счет силы поверхностного натяжения, которая мешает им покинуть жидкость. Частицы, локализованные под поверхностью, бомбардируются ионами противоположной полярности, произведенными в большом количестве лазерной абляцией мишени над поверхностью жидкости. Заряд частицы при этом нейтрализуется и частица заряжается зарядом противоположного знака. При этом частица начинает двигаться вниз, к нижнему электроду. Достигнув нижнего электрода, частица передает свой заряд ему, приобретает некоторый заряд противоположного знака и отбрасывается в сторону поверхности. В процессе, частица разрастается, так как к ней прикрепляются заряженные частицы, прибывающие сверху.

#### 4.2.3. Микроскопия мезоскопических структур

При абляции, как медной, так и бариевой мишени, структуры, которые получаются в сверхтекучем гелии в виде нитей и сеток, очень похожи. Однако, в отличие от меди, барий быстро окисляется под воздействием атмосферы. Под микроскопом такие частицы выглядят как кусочки нитей, состоящие из микрочастиц неправильно формы. Поэтому в этом разделе представлены результаты исследования медных сетей, которые получаются в сверхтекучем гелии. Данные структуры достаточно стабильны. С помощью подложек, установленных в ячейке, сети можно собрать для анализа методом сканирующей электронной микроскопии (SEM). Типичные изображения, сделанные с помощью SEM, представлены на Рисунках 4.23 и 4.25. В верхнем ряду Рисунка 4.23 представлены изображения, сделанные с небольшим увеличением 120×90 мкм. На них изображены несколько длинных нитей. В среднем ряду этого же рисунка фрагменты двух из этих нитей масштабированы. Наконец, в нижнем ряду приведены изображения выделенных областей этих же нитей с большим увеличением.

На Рисунке 4.23 видно, что нити состоят из большого количества запутанных нанопроволок, шириной порядка 10 нм. В третьем ряду рисунка можно увидеть сферические частицы, которые соединены с нанопроволоками случайным образом, но встречаются и свободные сферические частицы. Анализируя множество увеличенных изображений подложки с медными сетями, можно построить распределение сферических наночастиц в зависимости от их размеров. Гистограмма такого распределения изображена на Рисунке 4.24. Максимум в пике распределения сферических частиц по диаметру приходится на диапазон 60 – 80 нм. Распределение имеет довольно длинный шлейф, наиболее крупные из них имеют диаметр ≈500 нм.

На Рисунке 4.25 приведены изображения медных нитей, полученных с высоким разрешением. На рисунках видно, что нити имеют большое количество ответвлений и соединений, а структура напоминает фрактал.



Рис. 4.23. Изображения медных нитей [53], полученные с помощью сканирующего электронного микроскопа (SEM), собранных с поверхности сверхтекучего Не. (a) Изображение с небольшим увеличением  $120 \times 90$  мкм; (b) увеличенное изображение левой области рисунка (a),  $17 \times 13$  мкм; (c) увеличение центральной части рисунка (b),  $4 \times 3$  мкм; (d) изображение с небольшим увеличением  $120 \times 90$  мкм; (e) увеличенное изображение центральной части рисунка (d),  $24 \times 18$  мкм; (f) увеличенное изображение центральной части из рисунка (e),  $4 \times 3$ мкм. Черными прямоугольниками отмечена область увеличения

### 4.2.4. Формирование нитей и сетей в сверхтекучем гелии

Через некоторое время (10–20 минут) после начала абляции, помимо точечных частиц, описанных выше, мы наблюдаем формирование вытянутых объектов в виде нитей, совершающих движение между свободной поверхностью сверхтекучего гелия и нижним электродом в постоянном электрическом поле (см. Рисунок 4.26 а)). Траектория движения таких структур проходит вдоль линий напряженности приложенного электрического поля, а нити движутся



Рис. 4.24. Распределение наночастиц сферической формы по размеру [53]. Гистограмма распределения ≈200 сферических наночастиц по диаметру, обнаруженных при большом увеличении изображения, полученных с помощью SEM

с постоянной скоростью. Когда нити достигают нижнего электрода, они чаще всего не касаясь его, меняют направление движения на противоположное, двигаются вверх и локализуются вблизи поверхности сверхтекучего гелия (см. Рисунок 4.26 b)). Локализованные вблизи поверхности нити, ориентированные вертикально, могут, тем не менее, свободно перемещаться вдоль поверхности. Иногда они меняют ориентацию с вертикальной на горизонтальную, и становятся локализованными под поверхностью. В некоторых случаях, сразу после лазерного импульса, они снова начинают движение вниз к нижнему электроду и процесс, описанный выше, повторяется.

В экспериментах мы наблюдаем рост нитей, один конец которых закреплен на нижнем электроде. Разрешение камеры не позволяет нам увидеть начало роста таких структур, но очевидно, что строительным материалам для них выступают частицы, которые создаются лазерным импульсом в газе, пересекают границу раздела газ-жидкость под действием приложенного электрического поля и двигаются к нижнему электроду, или частицы, совершающие цикл чел-

121



Рис. 4.25. Изображения высокого разрешения медных нитей с большим количеством ответвлений и Т-образных соединений, полученные с помощью электронного микроскопа (SEM) [53]. (a) - (d) размер изображения 3×4 мкм; (e) и (f) размер изображения 2.4×1.8 мкм.

ночного движения в жидком гелии. В дальнейшем, если абляция мишени продолжается, нити растут вверх в сторону свободной поверхности жидкого гелия, и ориентированы вдоль линий напряженности электрического поля. На Рисунке 4.26 а) приведена фотография нитей, прикрепленных к нижнему электроду и выращенных в сверхтекучем гелии при T=1.5 K и напряженности электрического поля 250 B/см (потенциал на мишени U<sub>tar</sub> = +300 B, потенциал нижнего электрода U<sub>plate</sub> = 0 B). По мере роста нити, картина линий напряженности электрического поля все больше искажается вблизи заряженной поверхности нити. Заряженные частицы движутся вдоль этих линий, что приводит к появлению боковых ответвлений у нити. Такие структуры напоминают дерево и



Рис. 4.26. Изображения вертикально ориентированных нитей Ва в сверхтекучем жидком He [53]. (a) Нити, закрепленные на нижнем электроде; (b) нити прикрепленные к свободной поверхности жидкого He. U<sub>tar</sub> = +300 B, U<sub>plate</sub> = 0, T = 1.5 K. Снимки сделаны через боковое окно ячейки. Подсветка выполнена непрерывным синим лазером. Фотография на рисунке (b) сделана с помощью цветной камеры

имеют множество ветвей, что позволяет называть их дендриты. Верхняя часть дендрита может достигать свободной поверхности.

Экспериментально было обнаружено, что дендриты, прикрепленные к нижнему электроду, отрываются только при большой напряженности электрического поля  $\approx 1$  кB/см. Одним из возможных механизмов, за счет которого нить может прикрепиться к электроду, является плавление нити в точке контакта, вызванное нагревом при протекании заряда через контакт [30, 47].

Помимо структур в виде дендритов, растущих снизу-вверх, мы наблюдаем множество таких структур, локализованных под поверхностью жидкого гелия

123

и свободно перемещающихся вдоль свободной поверхности. Количество таких структур намного превышает количество структур, плавающих в объеме жидкого гелия. Иногда их ориентация меняется на вертикальную, они покидают поверхность и двигаются к нижнему электроду. Возможен и обратный процесс, когда нить движется вверх, достигает поверхности и становится ориентированной вдоль нее. Нити также могут покидать поверхность, заряжаясь от потока частиц, генерируемых лазерным импульсом. В этом случае, они снова начинают двигаться к нижнему электроду и, достигая его, могут прикрепиться к его поверхности. В этом случае, такие нити являются зародышами для роста структур в виде дендритов, изображенных на Рисунке 4.26 а) и описанных выше. Со временем, нитей под поверхностью сверхтекучего гелия становится настолько много, что они образуют сложные структуры в виде сетей. Отдельные участки сети могут представлять дендриты с многочисленными ответвлениями.

На Рисунке 4.27 изображена одна такая сеть, локализованная под поверхностью сверхтекучего гелия. Рост такой сети занял время порядка одного часа с момента начала абляции мишени, напряженность электрического поля была  $\approx 80$  В/см. Частота повторения лазерных импульсов - 2 Гц, потенциал мишени  $U_{tar} = +100$  В, потенциал нижнего электрода  $U_{plate} = 0$  В. Сеть электрически заряжена, так как один конец сети уходит вглубь жидкого гелия и прикреплен к нижнему электроду, и очень стабильна. На Рисунке 4.27 видно, что ветви дендритов, из которых преимущественно состоит данная сеть, указывают на разные направления и стремятся оттолкнуться от соседних ветвей.

В случае, когда нет прямого контакта таких сетей с нижним электродом, поведение сети становится более сложным. При той же полярности электрического поля (потенциал мишени  $U_{tar} = +100$  В, потенциал нижнего электрода  $U_{plate} = 0$  В) сети плавают вдоль поверхности и заряжены отрицательно. Поток частиц, генерируемых лазерным импульсом, и заряженных положительно, постепенно нейтрализует отрицательный заряд сетей. В этом случае различные сети начинают сближаться, и разрастаются, образуя еще большие структуры.



Рис. 4.27. Изображение сети Ва под свободной поверхностью сверхтекучего жидкого He,  $U_{tar}$ = +100 B,  $U_{plate}$  = 0, T = 1.4 K [53]. Сеть освещается непрерывным синим лазером, снимок сделан через нижнее окно криостата и ячейки с образцом

Отдельные нити также участвуют в этом процессе. В какой-то момент конец такой сети начинает тонуть и касается нижнего электрода. Вся сеть мгновенно заряжается и распадается на фрагменты, состоящие из небольших сетей, после чего нити снова начинают сближаться и процесс повторяется.

Процесс динамического роста сети можно проиллюстрировать с помощью Рисунка 4.28. В момент времени t=0 (Рисунок 4.28 a)), сеть касается нижнего электрода и находится в максимально растянутом состоянии. Рисунки 4.28 b), c) и d) иллюстрируют процесс объединения сетей в моменты времени t=1.3, 1.8 и 2.3 с, соответственно. Процесс роста, изображенный на Рисунке 4.28 – циклический и весь цикл в данном случае занимает 2.8 с.

Очевидно, что как и в случае роста дендритов, строительным материалом для роста сетей являются заряженные микрочастицы и заряженные нити, движение которых мы наблюдаем с помощью камеры. Сами микрочастицы и



Рис. 4.28. Серия изображений, иллюстрирующих движение сети Ва под свободной поверхностью сверхтекучего He,  $U_{tar} = +100$  B,  $U_{plate} = 0$ , T = 1.4 K [53]. Сеть подсвечена непрерывным синим лазером, фотографии сделаны через нижнее окно ячейки. (a) Растянутая сеть в момент времени t=0.7 с после прикосновения к нижнему электроду; (b), (c), (d) сжатие сети в моменты времени t = 1.3, 1.8 и 2.3 с соответственно

нити получаются вследствие коалесценции кластеров и/или отдельных атомов и ионов, образующихся в плазме при абляции мишени. Отдельные атомы и ионы, инжектированные в жидкий гелий, также могут образовывать кластеры в объеме жидкого гелия (см. Раздел 1.5), а движение частиц играет важную роль для процесса формирования нитей и сетей.

Движение заряженных сферических и цилиндрических частиц изучалось теоретически и экспериментально [153–155]. При контакте с нижним электродом сферические частицы приобретают заряд, который пропорционален квадрату радиуса частицы и напряженности электрического поля [53]. Зная распределение частиц по скоростям из эксперимента, и подставим их в решение уравнения Ньютона в классическом приближении, когда на частицы действует сила вязкого трения Стокса, сила тяжести и сила Кулона, можно оценить размер

126

сферической частицы, которая может подняться к поверхности. В поле напряженностью 400 В/см, радиус частицы составляет не более 2.2 мкм. Сферические частицы, радиус которых соответствует этой оценке, наблюдались на фотографиях, сделанных с помощью SEM (см. Рисунок 4.24). Для нитей, теоретическая оценка дает значение длины нити в диапазоне 100 нм – 2 мкм. Из теоретических оценок также следует, что заряд, который приобретают сферические частиц и нити (размеры которых приведены выше) небольшой, и составляет порядка 20 элементарных зарядов.

Для ответа на вопрос: где преимущественно происходит формирование нитей: на нижнем электроде, под поверхностью или в объеме сверхтекучего гелия, рассмотрим движение частиц при различной полярности напряженности электрического поля.

Сравнивая гистограммы распределения частиц в зависимости от времени их появления в интервале между лазерными импульсами, видно, что в поле напряженностью ≈330 В/см, направленной от мишени к электроду (потенциал мишени  $U_{tar} > 0, U_{plate} \le 0)$ , большинство частиц совершает один цикл челночного движения. При этом, достигая нижнего электрода, они заряжаются отрицательно, и дрейфуют к поверхности. Достигнув поверхности, частицы локализуются под поверхностью, и в отсутствии положительного заряда в газе над поверхностью, остаются там, до следующего лазерного импульса. Таким образом, большую часть времени такие частицы находятся в ловушке под поверхностью. При противоположной полярности напряженности электрического поля (потенциал мишени  $U_{tar} < 0$ ,  $U_{plate} \ge 0$ ) в газе над поверхностью сверхтекучего гелия могут накапливаться электроны, создавая объемный заряд, так как для них существует потенциальный барьер для проникновения в жидкость ≈ 1эВ. В этом случае заряженные частицы и нити совершают челночное движение (см. Рисунок 4.21). Начиная движение от поверхности в момент абляции мишени, они заряжены отрицательно и двигаются к нижнему электроду. Достигнув нижнего электрода, меняют заряд на противоположный, становятся положительно заряженными

и, прибывая на поверхность, обмениваются зарядом с электронным газом на поверхности, снова меняют заряд на противоположный и т.д. Таким образом, частицы большую часть времени проводят в объеме жидкого гелия, совершая циклическое челночное движение (см. Рисунок 4.21) на протяжении всего времени в интервале между лазерными импульсами, или находятся в состоянии, когда они прикреплены к нижнему электроду. Очевидно, что в этом режиме подавляется механизм формирования нитей под поверхностью сверхтекучего гелия.

В экспериментах формирование нитей и сетей под поверхностью сверхтекучего гелия наблюдаются только при напряженности электрического поля, направленной вниз (при потенциале на нижнем электроде  $U_{plate} < 0$ , на мишени  $U_{tar} > 0$ ), а челночное движение подавляет процесс формирования таких структур. Процесс коалесценции двух частиц или нитей наблюдается в многочисленных видеозаписях экспериментов. Так как частицы заряжены, то это возможно только в тех случаях, когда они заряжены либо разноименно, либо не заряжены или одна из них потеряла свой заряд. Большинство таких событий происходит на поверхности: фрагменты сетей или нитей могут объединяться, так как становятся нейтральными или заряжаются зарядом противоположного знака за счет потока заряженных частиц, генерируемых лазерным импульсом в газе и пересекающих границу газ-жидкость под действием приложенного электрического поля. Поэтому мы предполагаем, что формирование сетей большую часть времени происходит под поверхностью жидкого гелия, а поверхность является двумерной ловушкой, способствующей росту таких структур.

# 4.3. Абляция в газе с ионизацией импульсным радиочастотным разрядом

Спектр ионов бария Ba<sup>+</sup> удалось наблюдать только при комбинации методов лазерной абляции и импульсного радиочастотного разряда в газе.

#### 4.3.1. Оптическая схема

Сечение ячейки с вклеенными сапфировыми окнами в вертикальной плоскости изображено на Рисунке 4.29 (б).



Рис. 4.29. Оптическая схема Е. Абляция бария в газовой фазе с использованием радиочастотного разряда. Экспериментальная установка: а) вид сверху на криостат и оптическую установку, б) сечение ячейки в вертикальной плоскости. 1 - мишень, 2 - спиральный резонатор, 3 - акусто-оптический модулятор (AOM), 4 - дихроичное зеркало, 5 - интерференционный фильтр, подавляющий рассеянный лазерный свет, 6 - ПЗС-камера

Спиральный радиочастотный резонатор и капилляр для конденсации Не в ячейку установлены на верхней крышке ячейки. Вторая гармоника импульсного Nd: YAG-лазера заводится через одно из боковых окон и фокусируется на бариевой мишени с помощью линзы с фокусным расстоянием f = 10 см. Стенки ячейки, мишень и стенки спирального резонатора заземлены. Атомы Ва и ионы Ba<sup>+</sup> создаются лазерной абляцией металлического Ва в газе Не выше поверхности жидкости вблизи от открытого нижнего торца резонатора. Радиочастотный разряд используется для ионизации нейтральных атомов Ва, создаваемых лазерной абляцией. Таким образом увеличивается концентрации ионов в газе. Несмотря на то что выходная мощность усилителя известна, трудно определить мощность которая на самом деле рассеивается плазмой внутри ячейки. Параметры разряда подбираются экспериментально таким образом, чтобы найти компромисс между нагревом внутри ячейки и концентрацией ионов Ba<sup>+</sup> в газе.

Эффективность разряда или увеличение концентрации ионов Ва<sup>+</sup> контролировалось путем регистрации спектров испускаемого разрядом света и измерением относительных интенсивностей спектральных линий, принадлежащих атомам He, атомам Ba и ионам Ba<sup>+</sup>. Типичные спектры излучения плазмы приведены на Рисунке 4.30. При абляции лазерными импульсами с частотой повторения несколько герц, внутри спирального резонатора устанавливалось стационарное состояние с определенной концентрацией атомов Ва. В этих условиях синхронизация между абляцией и радиочастотными импульсами уже неважна, и мы могли изменять параметры абляции и параметры радиочастотного разряда независимо друг от друга. С помощью комбинированного метода удалось создать большое количество ионов Ва<sup>+</sup>, которые диффундируют из радиочастотного резонатора, и могут быть возбуждены непрерывным лазерным излучением. Оценка концентрации ионов в газе Не отдельная задача, подробное обсуждение которой выходит за рамки настоящей работы. Измерение спектра поглощения перехода  $6^2 S_{1/2} - 6^2 P_{3/2}$  иона  $Ba^+$  ( $\lambda = 455.4$  нм) в газе Не под резонатором проводилось в отдельном эксперименте [94]. Зная форму линии, можно оценить концентрацию ионов, используя формулу (4.1), концентрация ионов Ba<sup>+</sup> составляет  $\approx 10^{10}$  см<sup>-3</sup>.

Горизонтальный дисковый электрод (Рисунок 4.29 (б)) помещается в жидкий Не на расстоянии 10 мм ниже мишени для того, чтобы создать вертикальное электрическое поле и вызвать дрейф ионов к поверхности жидкого гелия и инжектировать ионы в жидкость. Ионы движутся к электроду в статическом электрическом поле, как правило, E = 1.0 - 3.5 кB/см, которое приложено между электродом и мишенью.

Для возбуждения ионов Ba<sup>+</sup> в жидком гелии использовался непрерывный диодный лазер № 4 с удвоением частоты, пучок которого проходил на несколько



Рис. 4.30. Типичные эмиссионные спектры Не-Ва плазмы создаваемой радиочастотными разрядами над свободной поверхностью сверхтекучего Не. Температура T = 1.65 K, длительность импульса разряда  $\tau_{dis} = 50 \ \mu$ с, частота повторений,  $f_{dis} = 5$  Гц, мощность возбуждающего в.ч. сигнала в импульсе 190 Вт. Верхняя (красная) кривая - лазер абляции включен, нижняя (синяя) кривая - лазер абляции выключен

миллиметров ниже поверхности жидкого гелия. Он настроен на длину волны 482 нм, чтобы соответствовать длине волны линии поглощения Ba<sup>+</sup> в жидком He 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  - 6p  ${}^{2}P_{1/2}$  (линия D<sub>1</sub>) (длина волны для свободного иона  $\lambda = 493.5$  нм).

Типичный спектр лазерно-индуцированной флуоресценции, регистрируемый в жидком гелии на несколько мм ниже свободной поверхности изображен на Рисунке 4.31. Линия излучения D<sub>1</sub> смещена на 2.4 нм (+105 см<sup>-1</sup>) относительно перехода свободного иона. Полная ширина на уровне половинной амплитуды (FWHM) составляет 2.0 нм (83 см<sup>-1</sup>). Центральная длина волны наблюдаемой линии излучения соответствует  $\lambda$ =491 нм, что соответствует ранним наблюдениям [18]. В более ранних экспериментах разрешение монохроматора было равно 6.6 нм, и была применена деконволюция для того, чтобы получить ширину линии  $\delta\lambda$  из экспериментальных спектров. Полученная ширина линии FWHM также согласуется с нашими результатами.

Значительная часть и<br/>онов, возбужденных в состояние бр $^2\mathrm{P}_{1/2},$  релаксиру-



Рис. 4.31. Наблюдаемый спектр излучения ионов  $Ba^+$  в сверхтекучем Не. Переход  $D_1$   $(6p^2P_{1/2} - 6s^2S_{1/2})$ , T = 2.13 K, абляция на частоте 10 Гц, параметры разряда  $f_{dis} = 3.3$  кГц, длительность импульса  $\tau_{dis}=10$  мкс, напряженность приложенного вертикально электрического поля  $E_{\perp}=3.2$  кВ/см. Красная кривая представляет собой расчетный спектр  $Ba^+$  в жидком *He* в рамках модели атомного «пузыря» (сплошная кривая для парных потенциалов [23, 125], пунктирная кривая для парных потенциалов [92, 93]). Вертикальная пунктирная линия указывает длину волны перехода  $D_1$  свободного иона

ют в метастабильное состояние 5d  ${}^{2}D_{3/2}$  (см. Рисунок 2.1). Чтобы вернуть эти ионы обратно в состояние 6p  ${}^{2}P_{1/2}$ , мы вводим второй непрерывный лазерный пучок с длиной волны  $\lambda = 649.7$  нм, что соответствует переходу 5d  ${}^{2}D_{3/2}$  - 6p  ${}^{2}P_{1/2}$ . Вторым источником является непрерывный диодный лазер № 5 с максимальной выходной мощностью 30 мВт. Пучок этого лазера совмещается с первичным лазером возбуждения с помощью дихроического зеркала, как показано на Рисунке 4.29 (а). Когда оба лазера возбуждают ионы Ba<sup>+</sup> в газе в зазоре между открытым торцом в.ч. резонатора и поверхностью жидкого гелия, интенсивность лазерно-индуцированной флуоресценции на переходе 6s  ${}^{2}S_{1/2}$  - 6p  ${}^{2}P_{1/2}$  значительно усиливается. Тем не менее, никакого существенного увеличения интенсивности флуоресценции в жидком гелии не наблюдалось. Поскольку точная длина волны перехода 5d  ${}^{2}D_{3/2}$  - 6p  ${}^{2}P_{1/2}$  Ba<sup>+</sup> в жидком гелии не извест-

на, возможно, что перекачка была неэффективной из-за несоответствия длины волны перехода в газе длине волны перехода в жидком гелии.

#### 4.3.2. Электрический пробой в сверхтекучем Не

Спектроскопические измерения проводились в интервале температур T = 1.60—2.17 К. Самый сильный сигнал люминесценции от инжектированных ионов наблюдался немного ниже λ-точки при температуре 2.17 К. Его интенсивность сильно уменьшалась выше 2.17 К, скорее всего из-за кипения жидкого Не в ячейке и в гелиевой ванне, которое приводило к сильному рассеянию лазерного света. Ниже 2.17 К люминесценция наблюдалась до температуры T = 2.0 К. Снижение эффективности инжекции ионов при более низкой температуре является неожиданным, поскольку давление насыщенных паров уменьшается с температурой и, следовательно, ионы, образующиеся в газовой фазе должны испытывать меньшее количество столкновений с атомами газа на пути к поверхности жидкости. Таким образом, наблюдаемый эффект должен быть связан с зависимостью от температуры и давления концентрации ионов, получающихся за счет радиочастотного газового разряда.

По мере дальнейшего снижения температуры, вплоть до T = 1.6—1.7 K, сигнал люминесценции от инжектированных ионов Ba<sup>+</sup> восстанавливался. При напряженности приложенного статического электрического поля превышающей 1.5 кB/см, при наличии плазмы радиочастотного разряда, наблюдается пробой сверхтекучего He. Пробой происходит только при условии, что, и лазер абляции, и радиочастотный разряд включены. Мы наблюдаем импульс электрического тока, регистрируемый высоковольтным источником питания, который сопровождается яркой вспышкой разряда и внезапным большим всплеском жидкого гелия в ячейке. Уровень жидкого гелия в результате всплеска поднимается над окнами камеры и достигает аблируемой мишени, спирального радиочастотного резонатора и даже верхнего фланца ячейки. Разряд прекращается самопроизвольно и не включается снова в течение примерно 100 мс, вероятно, из-за того, что жидкий гелий разрушает проводящий газовый (плазменный) канал между заземленными частями ячейки и электродом высокого напряжения. Если условия не меняются, то мы наблюдаем, что процесс пробоя/всплеска происходит с нерегулярными интервалами в 50–200 с.

Спектр испускаемой световой вспышки содержит все те же спектральные линии атомов Не и Ва, эксимера  $\text{He}_2^*$ , и иона  $\text{Ba}^+$ , что наблюдаются в спектре радиочастотного разряда в газовой фазе (см. Рисунок 4.30). Эффект проиллюстрирован на Рисунке 4.32, где построен график зависимости интенсивности люминесценции от времени для двух спектральных линий,  $\lambda$ =493.4 нм и  $\lambda$ =491 нм, соответствующих одному и тому же переходу иона  $\text{Ba}^+$  в газовой фазе и в жидком гелии, соответственно.



Рис. 4.32. Наблюдаемая временная зависимость интенсивности флуоресценции перехода D<sub>1</sub> иона Ba<sup>+</sup>. Не закрашенные кружки (синие) - сигнал от инжектированных ионов в сверхтекучем гелии на длине волны  $\lambda$ =491 нм; закрашенные кружки (красные) - сигнал от ионов в пузырьках газа или газе Не над жидкостью на длине волны  $\lambda$ =493.4 нм. T = 1.7 K. Вертикальные пунктирные линии обозначают события пробоя/всплеска

Интенсивности лазеров абляции и возбуждения, а также приложенное высокое напряжение и параметры радиочастотного разряда были постоянными во время записи спектров. Каждая точка представляет 2-секундную временную экспозицию. Можно увидеть 6 событий пробоя, которые произошли в течение 300 с. Интенсивность сигнала иона Ва<sup>+</sup> в газовой фазе сильно усиливается в течение 10 секунд после каждого пробоя/всплеска. Это излучение может происходить от ионов Ва<sup>+</sup>, захваченных в газовых пузырьках, создаваемых всплеском в жидком Не. Интенсивность излучения инжектированных ионов Ba<sup>+</sup> сильно колеблется между событиями пробоя. Тем не менее, интенсивность люминесценции уменьшается до нуля перед каждым всплеском и быстро повышается в течение 1 с после него. Никакой люминесценции от инжектированных ионов не наблюдалось в диапазоне температур T = 1.6–1.7 К в отсутствии процесса пробоя/всплеска, то есть при наличии статического электрического поля ниже порога пробоя, без радиочастотного разряда или с недостаточной мощностью радиочастотного разряда. Поэтому, мы заключаем, что ионы инжектируются в сверхтекучий Не в результате этих всплесков и/или большого электрического тока, протекающего к коллектору. В результате пробоя не наблюдалось значительного нагрева ячейки с образцом или повышения давления Не. Однако локальные условия в плазме Не-Ва могут отличаться от показаний датчика температуры в гелиевой ванне и датчика давления в теплой части гелиевой линии. Отметим также, что порог пробоя значительно уменьшается со временем в течение которого работает лазер для абляции и радиочастотный разряд, что, вероятно, обусловлено накоплением зарядов в ячейке. Этот эффект делает систематическое изучение пробоя гораздо сложнее, а количественные оценки явления менее надежными.

#### 4.4. Выводы

В Главе 4 были представлены экспериментальные спектры плазмы при абляции в сверхтекучем гелии, спектры атома бария в сверхтекучем гелии и спектры примесного атома стронция. На основании анализа токовых сигналов и полученной концентрации ионов Ba<sup>+</sup> в плазме из спектров поглощения, была сделана оценка сверху концентрации заряженных носителей, инжектируемых в сверхтекучий гелий за один лазерный импульс. Фотографии деформации поверхности позволили объяснить наличие токовых сигналов при отсутствии спектров излучения ионов в сверхтекучем гелии. Была сделана оценка динамики нейтральных продуктов абляции.

Был исследован рост мезоскопических структур при наличии свободной поверхности гелия в вертикально ориентированном электрическом поле. Исследование движения заряженных микрочастиц, позволило пронаблюдать и описать новый тип движения частиц, а также формирование нитей и сетей в двумерной ловушкой, роль которой играет поверхность сверхтекучего гелия.

Комбинирование лазерной абляции и радиочастотного разряда для инжектирования ионов привело к появлению динамической нестабильности поверхности сверхтекучего гелия и новому типу такой нестабильности (в виде пробоя/всплеска), которая носит квазипериодический характер, при температурах порядка 1.6 К

## Глава 5

## Обсуждение полученных результатов

## 5.1. Двумерная ловушка на поверхности сверхтекучего гелия

Были расширены ранние исследования по формированию нанопроволок и сетей в сверхтекучем Не в новой системе с участием свободной поверхности сверхтекучего Не в вертикально-ориентированном статическом электрическом поле. Мы наблюдали, что формирование нанопроволок и мезоскопических сетей происходило преимущественно под поверхностью, а сам процесс сильно зависит от полярности и напряженности приложенного электрического поля. Система, изученная в настоящей работе, топологически отличается от всех предыдущих исследований, приведенных в обзоре в Разделе 1.5. В наших экспериментах нанопроволоки и сети формируются преимущественно под свободной поверхностью сверхтекучего гелия и ориентированы в плоскости поверхности. Процесс формирования таких структур под поверхностью не может быть связан с процессом коалесценции частиц на оси квантовых вихрей, из-за фундаментального свойства квантовых вихрей: они всегда ортогональны свободной поверхности, по крайней мере, вблизи поверхности.

Экспериментальные наблюдения свидетельствует о том, что свободная поверхность жидкого Не в вертикально ориентированном электрическом поле действует как очень эффективная двумерная ловушка для различных заряженных примесных частиц и, таким образом, значительно усиливает процесс их коалесценции и формирования сетей.

Необходимо заметить, что в экспериментах наблюдаются некоторые нити в объеме жидкого He. Механизм их формирования действительно может быть связан с локализацией частиц на оси вихря и их коалесценции. Было бы очень интересно найти какое-либо качественное различие между структурами нанопроволок, получаемых под поверхностью и в объеме жидкого гелия.

Дальнейшие исследования движения заряженных частиц могут дать новое представление о механизмах формирования нитей и сетей в сверхтекучем гелии, а сами заряженные частицы могут использоваться для возбуждения квантовых вихрей в сверхтекучем гелии.

#### 5.2. Инжектирование ионов в жидкий гелий

Лазерная абляция в жидкости и диссоциация кластеров вторичным импульсом позволяют инжектировать примесные атомы различных металлов. Апробированные конфигурации и методы инжекции, рассмотренные в Главе 4, позволяют получить стабильную абляцию образцов на малой интенсивности лазерного излучения. Данный метод позволил зарегистрировать спектры атомов бария в сверхтекучем гелии, определить сдвиги центров спектральных линий оптических переходов бария с более высокой точностью, чем в ранних экспериментах, а также добиться высокой эффективности внедрения нейтральных примесей, что позволило также измерить оптические спектры примесных атомов стронция Sr.

Первоначально, абляция в жидкости для инжекции ионов Ba<sup>+</sup> представлялась наиболее простой схемой для решения задачи о локализации ионов под поверхностью сверхтекучего гелия. Однако, полученные экспериментальные данные позволяют сделать вывод о неэффективности такого метода инжекции ионов в сверхтекучий гелий. Сравнительный анализ токовых сигналов при абляции в сверхтекучем гелии и оптических спектров поглощения в плазме позволяет оценить эффективность абляции в жидкости для внедрения заряженных частиц аблируемого материала в сверхтекучий гелий. Визуализация локализованных под поверхностью заряженных микрочастиц позволила объяснить отсутствие спектров излучения ионов бария в сверхтекучем гелии при наличии токовых сигналов.

В действительности, инжекция заряженных примесей в сверхтекучий гелий и их локализация под поверхностью жидкого гелия требует разработки метода внедрения отличного от метода внедрения нейтральных частиц. Основным процессом, значительно подавляющим увеличение концентрации заряженных ионов в сверхтекучем гелии, является рекомбинация ионов и электронов в плазме. Комбинация методов лазерной абляции в газе и радиочастотного разряда повышает концентрацию ионов в газовой фазе, что позволяет создать достаточную для детектирования концентрацию ионов в жидком гелии, не устанавливая в ячейку сложную конфигурацию электродов, как в более ранних экспериментах [78]. Инжекция ионов в сверхтекучий Не при низких температурах достигается за счет пересечения границы раздела газ-жидкость в приложенном статическом электрическом поле порядка кВ/см. Детали этого процесса в настоящее время не до конца понятны и требуют дальнейшего изучения. Локализации ионов при такой схеме инжекции - технически более сложная задача и требует дополнительных исследований. Так, например, необходимо импульсно менять полярность приложенного поля Е<sub>1</sub>, или создавать ячейку с несколькими резервуарами и сложной конфигурацией электродов. Как показали эксперименты по измерению подвижности ионов [74], в этом случае концентрация ионов бария не превышает 10<sup>7</sup> ионов/импульс. Абляция в газе также приведет к локализации и ионов гелия He<sup>+</sup>, что является одним из недостатков данного метода.

Тот факт, что мы не наблюдали люминесценцию ионов Ba<sup>+</sup> в сверхтекучем гелии при напряженности электрического поля ниже чем 1.5 кB/см, может указывать на наличие энергетического барьера для проникновения ионов в жидкость. Этот вывод подтверждается наблюдением квазипериодического явления электрического пробоя при температуре T=1.7 К. На данный момент у нас нет исчерпывающего объяснения этому явлению. Одним из объяснений может быть накопление заряда над свободной поверхностью жидкости до тех пора пока их поверхностная плотность не превысит определенный порог. Затем развивается

поверхностная нестабильность, приводящая к локальной деформации поверхности, образованию пузырька или газового канала, достигающего поверхности отрицательно заряженного электрода и приводящего, наконец, к пробою. Подобная нестабильность и образование заряженных пузырьков исследовались (см. Раздел 1.4.3), как теоретически, так и экспериментально, для электронов, локализованных над свободной поверхностью сверхтекучего Не [109, 113, 115], и заряженных кластеров, локализованных под поверхностью [114]. В этих экспериментах не сообщалось о пробоях/всплесках в сверхтекучем гелии. С другой стороны, инжекция Ва<sup>+</sup> в сверхтекучий Не была успешно продемонстрирована ранее в работе Рейхера и др. [18] в экспериментальных условиях близких к тем, что представлены в настоящей работе, но при гораздо меньшем значении напряженности электрического поля. Расчеты методом DFT в работе Матео и др. [23] также не выявили наличие барьера для проникновения иона Ва<sup>+</sup> в жидкий Не, а экспериментальные наблюдения [100] показывают, что ион погружается в нанокаплю сверхтекучего гелия без наличия какого-либо внешнего электрического поля.

Исследования показали [156], что в условиях настоящего эксперимента в жидком гелии и через поверхность раздела жидкость-газ протекает электрический ток, ограниченный создаваемым объемным зарядом под поверхностью сверхтекучего гелия. В сильном статическом электрическом поле, приложенном вертикально, этот ток достигает 2—5 мкА, что соответствует плотности ионов порядка 10<sup>9</sup> см<sup>-3</sup>. Это большая плотность, которая сравнима с типичными плотностями нейтральных примесных атомов, которые могут быть инжектированы в жидкость или твердое тело. Такое количество также сопоставимо с численной плотностью ионов Ва<sup>+</sup>, которую мы обнаружили в газе Не чуть ниже открытого конца радиочастотного резонатора. По измерениям электрического тока мы не можем различить ионы Ва<sup>+</sup> и ионы Не<sup>+</sup>. Однако ток, наблюдаемый в отсутствие атомов и ионов Ва, при выключенном лазере абляции, значительно ниже, чем при наличии атомов и ионов Ва, при прочих равных условиях. Поэтому мы ожидаем, что большое количество ионов Ba<sup>+</sup> инжектируется в сверхтекучий Не в эксперименте. Низкая интенсивность спектра люминесценции ионов Ва<sup>+</sup> и ее полное отсутствие при напряженности электрического поля ниже 1.5 кВ/см все еще вызывает удивление. Подобная ситуация встречалась в работе [31], где считалось, что большое количество ионов Ва<sup>+</sup> было инжектировано в жидкий и твердый Не, но не наблюдалась люминесценция ионов Ва<sup>+</sup>. Одним из возможных объяснений является то, что ионы, инжектируемые в жидкий Не в настоящем эксперименте, эффективно улавливаются металлическими нитями Ва и наносетями, прикрепленными к нижнему электроду и имеющими такой же (отрицательный) электрический потенциал. Наличие таких мезоскопических структур (нитей, сетей и древовидных структур) в нашей ячейке было установлено с помощью визуальных наблюдений и микроскопическими исследованиями [53, 114]. Такие мезоскопические структуры появляются в результате слияния продуктов абляции (нейтральных или заряженных) в сверхтекучем Не и на границе раздела жидкость-газ. Другим объяснением низкой концентрации ионов является тот факт, что доминирующие заряженные частицы представляют собой не отдельные ионы Ва<sup>+</sup>, а некоторые молекулярные или кластерные ионы Ba<sup>+</sup>, или квазимолекулярные комплексы Ba<sup>+</sup>-He<sub>n</sub> [53], полосы поглощения которых не перекрываются с длиной волны лазера возбуждения.

## 5.3. Структура ионов Ba<sup>+</sup> в жидком гелии

Мы провели расчеты с помощью модели атомного «пузыря», чтобы ответить на старый вопрос [20, 21]: как хорошо модель атомного «пузыря» представляет локальное окружения и описывают энергетическую структуру иона, локализованного в жидком гелии. Достоинствами этой модели являются простота и прямая физическая интерпретация наблюдаемых эффектов. Однако, модель атомного «пузыря» была разработана для примесей с чисто отталкивательным взаимодействием примеси с атомами гелия, таким как в случае нейтральных атомов щелочных металлов. Поэтому модель не учитывает структуру локального окружения в виде плотной оболочки из атомов гелия, которая характерна для ионов из-за притягивающего поляризационного взаимодействия. Результаты расчетов, представленные в Главе 2 показывают, что для иона Ba<sup>+</sup> модель атомного «пузыря» качественно согласуется с экспериментально полученными оптическими спектрами. Как и ожидалось, согласие с экспериментальными данными не такое хорошее, как в случае нейтральных атомов щелочных металлов Cs и Rb [60, 99, 142]. В дальнейшем было бы интересно исследовать зависимости сдвигов спектральных линий и их уширение от давления и температуры гелия, и проверить, соответствуют ли они предсказаниям в рамках модели «пузыря», как это было продемонстрировано для щелочных металлов [60, 142].

Расчеты методом теории функционала плотности (DFT) [22, 23] показывают, что более реалистичный профиль плотности Не вокруг иона Ba<sup>+</sup> имеет ярко выраженный максимум, соответствующий твердой плотной оболочке гелия, окружающей ион, что соответствует структуре «снежный ком». Структура «снежного кома» формируется за счет противодействия силы притяжения, действующей на атомы Не из-за ион-дипольного взаимодействия, и силы отталкивания из-за обменного взаимодействия с оставшимся валентным электроном иона Ba<sup>+</sup>.

Спектр поглощения перехода D<sub>1</sub>, рассчитанный методами DFT в работе [23] переоценивает уширение линии и немного недооценивает сдвиг линии, измеренный в работе [18]. Наши расчеты методом атомного «пузыря» недооценивают как ширину линии, так и сдвиг линий для спектра поглощения. Спектр люминесценции того же перехода, рассчитанный методом DFT в работе Леала и др. [101], недооценивает как уширение, так и сдвиг линий, наблюдаемых нами и ранее Рейхером и др. [18]. Наши расчеты методом атомного «пузыря» дают лучший результат для сдвига линии, но недооценивают ширину линии для спектра люминесценции. В наших экспериментах мы не видим люминесценцию на длине волны  $\lambda$ =523 нм [18], существование которой связано с образованием эксиплекса бария [101]. Валентный электрон иона Ва<sup>+</sup> занимает довольно большой объем. Отталкивающее взаимодействие между этим электроном и электронными оболочками атомов Не доминирует на расстояниях до 5 Å. Таким образом, потенциальные кривые на Рисунке 2.2 очень похожи на потенциальные кривые нейтральных атомов щелочных металлов. Потенциальная яма из-за дополнительного вклада (ион-дипольного) притягивающего поляризационного взаимодействия мала и существенно не влияет на взаимодействие Ba<sup>+</sup>-He. Поэтому неудивительно, что модель атомного пузыря успешно воспроизводит основные свойства локализованного иона и полученные спектры. Оболочка из атомов гелия высокой плотности расположена довольно далеко от иона, и слабо влияет на энергетическую структуру электронного перехода. И метод DFT, и модель атомного «пузыря» предсказывают гораздо более локализованную область захвата иона в основном электронном состоянии, чем для возбужденного состояния. Это приводит к гораздо более выраженному энергетическому сдвигу спектра поглощения по сравнению со спектром люминесценции. Величина сдвига рассчитывается с удовлетворительной точностью обеими моделями. Оставшееся расхождение может быть связано с неточностью используемых парных потенциалов.

Уширение линии перехода и форма спектральной линии определяются колебаниями атомов Не, окружающих ион. Модель пузыря представляет их как суперпозицию различных колебательных мод «пузыря», рассчитанных в рамках классической гидродинамики. Можно представить, что наличие твердой оболочки вокруг пузыря должно уменьшить амплитуду его колебаний и, таким образом, сделать ширину линии меньше. На самом деле происходит обратное. Наши результаты показывают, что модель атомного пузыря недооценивает уширение в 2 раза, хотя форма спектра довольно близка к той форме, что наблюдалась экспериментально. Поэтому мы заключаем, что оболочка высокой плотности, окружающая пузырь, существенно влияет на его колебания, причем противоположным образом. Остается вопрос, можно ли описать эти колебания в терминах некоторых коллективных мод, характерных для полой сферической оболочки, погруженной в жидкость.
## Заключение

Целью данной диссертации являлось усовершенствование методов инжекции примесных атомов и ионов в сверхтекучий гелий и исследование примесей методами оптической спектроскопии. С точки зрения автора, метод оптического детектирования примесей в сверхтекучем гелии являются недооцененным в физике низких температур, несмотря на тот факт, что оптическая спектроскопия является одним из наиболее мощных инструментов в исследовании поверхностных возбуждений, а также возбуждений в объеме жидкого гелия. Апробированные теоретические модели на примере иона Ва<sup>+</sup> позволяют предсказать сдвиги линий оптических переходов примесных атомов или ионов в жидком гелии, а также структуру вокруг примесного центра. Таким образом по сдвигу линии и её уширению можно будет глубже понять природу сверхтекучих жидкостей <sup>4</sup>He и <sup>3</sup>He.

Автор считает, что двумерная ловушка для примесных частиц, роль которой выполняет свободная поверхность сверхтекучего гелия, является причиной формирования поверхностных нанонитей и сетей. В работе предлагается более подробное сравнение различных по структуре и форме сетей и скрученных меж собой проволок, выращенных под поверхностью и в объеме жидкого гелия, которое может привести к лучшему пониманию роли одномерной и двумерной ловушек в формировании мезоскопических структур в сверхтекучем гелии.

Диссертационная работа содержит следующие основные результаты.

- Апробирован метод внедрения отдельных атомов и ионов Ba<sup>+</sup> в сверхтекучий <sup>4</sup>He;
- Определена структура окружения иона Ва<sup>+</sup> в сверхтекучем <sup>4</sup>Не в приближении модели атомного «пузыря»;
- Исследован рост мезоскопических структур при наличии свободной поверхности гелия;

Для получения основных результатов:

- Реализована универсальная экспериментальная установка, позволяющая внедрять примесные атомы и ионы щелочных и щелочноземельных металлов в сверхтекучий <sup>4</sup>Не и исследовать образуемые ими точечные дефекты и мезоскопические металлические структуры. Исследованы различные схемы абляции для инжекции нейтральных и заряженных примесей в сверхтекучий гелий: с использованием одного и нескольких лазеров и комбинацией методов лазерной абляции и радиочастотного разряда. Получены спектры атомов и ионов бария в сверхтекучем гелии. Внедрен метод очистки поверхности для инжекции примесей и абляции на малых мощностях;
- Выполнен теоретический расчет оптических спектров поглощения и люминесценции иона бария в сверхтекучем гелии для перехода <sup>2</sup>S<sub>1/2</sub> - <sup>2</sup>P<sub>1/2</sub> в рамках модели атомного «пузыря» с учетом квадрупольных мод и использованием двух наборов парных потенциалов, что позволило описать структуру иона Ba<sup>+</sup> в сверхтекучем гелии;
- 3. Предложен эксперимент по наблюдению поверхностных возбуждений в сверхтекучем гелии <sup>3</sup>He-В методом оптического детектирования спинового резонанса совместно с соавторами [15]. Сделана оценка влияния рекомбинации ионов Ва<sup>+</sup> при абляции в жидкости. В процессе проведения экспериментов по локализации ионов бария под поверхностью сверхтекучего гелия <sup>4</sup>He был обнаружен механизм формирования сетей и нитей в приповерхностном слое сверхтекучего <sup>4</sup>He в электрическом поле, что привело к созданию двумерной ловушки для роста мезоскопических структур в сверхтекучем гелии.

В заключение, автор хотел бы выразить свою благодарность и глубокую признательность тем людям, которые помогли закончить этот труд.

Прежде всего, автор благодарит своего старшего коллегу - сотрудника лаборатории физики низких температур Института физико-химических исследований RIKEN Петра Морошкина (Petr Moroshkin) за помощь в проведении измерений, усовершенствовании экспериментальной установки, за полезные советы в расчетах и помощь в написании статей. Автор искренне благодарен ему за все, чему он его научил.

Автор благодарит своего научного руководителя профессора Казанского Федерального Университета Таюрского Дмитрия Альбертовича (Tayurskii Dmitrii) и заведующего лабораторией физики низких температур Института физико-химических исследований RIKEN профессора Кимитоши Коно (Kimitosh Kono) за редкий пример преданности любимому делу и за возможность участвовать в программе международной аспирантуры IPA в рамках которой проводилось данное исследование.

Представленные в диссертации экспериментальные результаты получены автором совместно с Петром Морошкиным (Petr Moroshkin) и Кимитоши Коно (Kimitoshi Kono).

Автор благодарит профессора Йошики Мориваки (Yoshiki Moriwaki), Дэвида Mameo (David Mateo), Массимо Мелла (Massimo Mella) и Фаусто Каргнони (Fausto Cargnoni) за предоставленные парные потенциалы для теоретического расчета оптических спектров иона Ba<sup>+</sup>.

Автор благодарит Алексея Семакина (Alexei Semakin) и Айрата Киямова (Airat Kiiamov) за полезные замечания в ходе подготовки данной работы.

Я особенно хочу поблагодарить свою семью: маму, Батулину Галину Набиулловну, жену, Батулину Любовь Владимировну, брата, Батулина Степана Германовича и дочь, Батулину Тею Руслановну - за бесконечную любовь,

\*\*\*

поддержку, заботу и терпение.

## Список литературы

- Classification of topological insulators and superconductors in three spatial dimensions / A. P. Schnyder, S. Ryu, A. Furusaki, A. W. W. Ludwig // Phys. Rev. B. - 2008. - V. 78. - P. 195125.
- Wilczek, F. Majorana returns / F. Wilczek // Nature Physics. 2009. V. 5. — Pp. 614–618.
- Signatures of Majorana fermions in hybrid superconductor-semiconductor nanowire devices / V. Mourik, K. Zuo, S. M. Frolov et al. // Science. - 2012. -V. 336. - Pp. 1003-1007.
- 4. Volovik, G. E. Fermion zero modes at the boundary of superfluid <sup>3</sup>He–B / G. E. Volovik // JETP Lett. 2009. V. 90. Pp. 398-401.
- Silaev, M. A. Andreev-Majorana bound states in superfluids / M. A. Silaev, G. E. Volovik // J. Exp. Theor. Physics. — 2012. — V. 24, No.6. — Pp. 1042–1057.
- Okuda, Y. Surface Andreev bound states of superfluid <sup>3</sup>He and Majorana fermions / Y. Okuda, R. Nomura // J. Phys.: Condens. Matter. — 2012. — V. 24. — P. 343201.
- 7. Silaev, M. A. Majorana states and longitudinal NMR absorption in a <sup>3</sup>He-B film / M. A. Silaev // Phys. Rev. B. 2011. V. 84. P. 144508.
- Bunkov, Y. M. Observation of Majorana quasiparticles' edge states in superfluid <sup>3</sup>He / Y. M. Bunkov, R. R. Gazizulin // Applied Magnetic Resonance. – 2014. – V. 45. – Pp. 1219–1224.
- Surface specific heat of <sup>3</sup>He and Andreev bound states / H. Choi, J. P. Davis,
   J. Pollanen, W. P. Halperin // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 96. P. 125301.
- Bunkov, Y. M. Direct observation of a Majorana quasiparticle heat capacity in <sup>3</sup>He / Y. M. Bunkov // J. Low Temp. Phys. - 2014. - V. 175. - Pp. 385–394.
- Ikegami, H. Nonlinear transport of negative ions below a free surface of topological superfluid <sup>3</sup>He-B / H. Ikegami, S. B. Chung, K. Kono // J. Phys. Soc.

Jpn. - 2013. - V. 82. - P. 124607.

- Ikegami, H. Nonlinear transport of positive ions below a free surface of topological superfluid <sup>3</sup>He-B / H. Ikegami, K. Kono // J. Low Temp. Phys. — 2014. — V. 175. — Pp. 718–724.
- Chung, S. B. Detecting the Majorana fermion surface state of <sup>3</sup>He-B through spin relaxation / S. B. Chung, S. C. Zhang // Phys. Rev. Lett. - 2009. - V. 103. - P. 235301.
- 14. Nagato, Y. Strong anisotropy in spin suceptibility of superfluid <sup>3</sup>He-B film caused by surface bound states / Y. Nagato, S. Higashitni, K. Nagai // J. Phys. Soc. Jap. - 2009. - V. 78. - P. 123603.
- Laser spectrosopy of Ba<sup>+</sup> ion in liquid He: Towards the detection of Majorana fermion surface state in superfluid <sup>3</sup>He-B / R. Batulin, P. Moroshkin, D. A. Tayrskii et al. // J. Low Temp. Phys. 2014. V. 175. Pp. 63–69.
- 16. First mobility measurement of ions trapped below the normal and superfluid <sup>3</sup>He surface / T. Shiino, H. Mukuda, K. Kono, W. F. Vinen // J. Low Temp. Phys. - 2002. - V. 126. - Pp. 493-498.
- 17. Johnson, W. W. Positive impurity ions in He II / W. W. Johnson, W. I. Glaberson // Phys. Rev. Lett. 1972. V. 29, No. 4. Pp. 214–217.
- Spectrocopy of barium ions in He II / H. Reyher, H. Bauer, C. Huber et al. // Phys. Lett. A. - 1986. - V. 115, No. 5. - Pp. 238-244.
- Glaberson, W. I. Impurity ions in liquid helium / W. I. Glaberson, W. W. Johnson // J. Low Temp. Phys. 1975. V. 20. Pp. 313-338.
- 20. Cole, M. W. Structure of positive impurity ions in liquid helium / M. W. Cole,
  R. A. Bachman // Phys. Rev. B. 1977. V. 15, No. 3. Pp. 1388–1394.
- 21. Laser spectrosopy of alkaline earth atoms in He II / H. Bauer, M. Beau,
  B. Friedl et al. // Phys. Lett. A. 1990. V. 146, No. 3. Pp. 134–140.
- 22. Theoretical modeling of ion mobility in superfluid <sup>4</sup>He / S. L. Fiedler, D. Mateo,
  T. Aleksanyan, J. Eloranta // Phys. Rev. B. 2012. V. 86. P. 144522.
- 23. Communication: Nucleation of quantized vortex rings in  ${}^{4}$ He nanodroplets /

D. Mateo, A. Leal, A. Hernando et al. // J. Chem. Phys. — 2014. — V. 140. —
P. 131101.

- 24. Nanowire formation by gold nano-fragment coalescence on quantized vortices in He II / P. Moroshkin, V. Lebedev, B. Grobety et al. // Europhys. Lett. – 2010. – V. 90. – P. 34002.
- Atkins, K. R. Ions in liquid helium / K. R. Atkins // Phys. Rev. 1959. V.
   116, No. 6. Pp. 1339–1343.
- 26. Müller, S. Alkali-helium snowball complexes formed on helium nanodroplets /
  S. Müller, M. Mudrich, F. Stienkemeier // J. Chem. Phys. 2009. V. 131. P. 044319.
- 27. Solvation of Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, and their dimers in helium / L. A. der Lan, P. Bartl,
  C. Leidlmair et al. // Chem. Eur. J. 2012. V. 18. Pp. 4411-4418.
- Implantation of neutral atoms into liquid helium by laser sputtering / A. Fujisaki, K. Sano, T. Kinoshita et al. // Phys. Rev. Lett. - 1993. - V. 71, No. 7. - Pp. 1039–1042.
- Electric properties of metallic nanowires obtained in quantum vortices of superfluid helium / E. B. Gordon, A. V. Karabulin, V. I. Matyushenko et al. // Low Temp. Phys. - 2010. - V. 36, No. 7. - Pp. 590–595.
- 30. Structure of metallic nanowires and nanoclusters formed in superfluid helium /
  E. B. Gordon, A. V. Karabulin, V. I. Matyushenko et al. // J. Exp. Theor.
  Phys. 2011. V. 112, No. 6. Pp. 1061–1070.
- 31. Formation of metallic nanowires by laser ablation in liquid helium / V. Lebedev,
  P. Moroshkin, B. Grobety et al. // J. Low Temp. Phys. 2011. V. 165. Pp. 166–176.
- 32. The electrical conductivity of bundles of superconducting nanowires produced by laser ablation of metals in superfluid helium / E. B. Gordon, A. V. Karabulin, V. I. Matyushenko et al. // Appl. Phys. Lett. — 2012. — V. 101. — P. 052605.
- 33. The nanostructures produced by laser ablation of metals in superfluid helium /

E. B. Gordon, A. V. Karabulin, V. I. Matyushenko et al. // J. Low Temp. Phys. - 2013. - V. 172. - Pp. 94–112.

- 34. Structure and properties of platinum, gold and mercury nanowires grown in superfluid helium / E. B. Gordon, A. V. Karabulin, A. Morozov et al. // J Phys. Chem. Lett. - 2014. - V. 5. - Pp. 1072–1076.
- 35. Stability and structure of nanowires grown from silver, copper and their alloys by laser ablation into superfluid helium / E. Gordon, A. Karabulin, V. Matyushenko et al. // Phys. Chem. Chem. Phys. 2014. V. 16. Pp. 25229–25233.
- 36. Experimental study of thermal stability of thin nanowires / E. B. Gordon, A. V. Karabulin, V. I. Matyushenko, I. I. Khodos // J. Phys. Chem. A. – 2015. – V. 119, No. 11. – Pp. 2490–2501.
- 37. Gomez, L. F. Traces of vortices in superfluid helium droplets / L. F. Gomez,
  E. Loginov, A. F. Vilesov // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 108. P. 155302.
- 38. Formation of bimetallic core-shell nanowires along vortices in superfluid He nanodroplets / P. Thaler, A. Volk, F. Lackner et al. // Phys. Rev. B. – 2014. – V. 90. – P. 155442.
- Preparation of ultrathin nanowires using superfluid helium droplets / E. Latimer, D. Spence, C. Feng et al. // Nano Letters. — 2014. — V. 14. — Pp. 2902–2906.
- 40. The impact of doping rates on the morphologies of silver and gold nanowires grown in helium nanodroplets / A. Volk, P. Thaler, D. Knez et al. // Phys. Chem. Chem. Phys. - 2016. - V. 18. - Pp. 1451–1459.
- 41. Glaberson, W. I. Quantized vortices in superfluid helium-4 / W. I. Glaberson,
  K. W. Schwarz // Physics Today. 2016. V. 40, No. 2. Pp. 54–60.
- Donnelly, R. J. Quantized vortices in helium II / R. J. Donnelly. London: Cambridge University Press, 1991.
- Yarmchuk, E. J. Observation of stationary vortex arrays in rotating superfluid helium / E. J. Yarmchuk, M. J. V. Gordon, R. E. Packard // Phys. Rev. Lett. —

1979. – V. 43, No. 3. – Pp. 214–217.

- 44. Bewley, G. P. SUPERFLUID HELIUM: Visualization of quantized vortices / G. P. Bewley, D. Lathrop, K. R. Sreenivasan // Nature. — 2006. — V. 441. — P. 588.
- 45. Filament formation by impurities embedding into superfluid helium / E. B. Gordon, R. Nishida, R. Nomura, Y. Okuda // JETP Lett. – 2007. – V. 85, No. 11. – Pp. 581–584.
- 46. Coagulation of metals in superfluid and normal liquid helium / E. B. Gordon,
  A. V. Karabulin, V. I. Matyushenko et al. // J. Phys. Chem. A. 2017. V.
  121, No. 48. Pp. 9185-9190.
- 47. The role of vortices in the process of impurity nanoparticles coalescence in liquid helium / E. B. Gordon, A. V. Karabulin, V. I. Matyushenko et al. // Chem. Phys. Lett. - 2012. - V. 519-520. - Pp. 64–68.
- 48. The nanowires growth by laser ablation of metals inside rotating superfluid helium / E. B. Gordon, M. I. Kulish, A. V. Karabulin et al. // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. — 2019. — V. 222–223. — Pp. 180–185.
- 49. The nanowires growth by laser ablation of metals inside rotating superfluid helium / E. B. Gordon, M. E. Stepanov, M. I. Kulish et al. // Laser Phys. Lett. - 2019. - V. 16. - P. 026002.
- 50. Berloff, N. Capture of an impurity by a vortex line in a Bose condensate / N. Berloff, P. H. Roberts // Phys. Rev. B. 2000. V. 63. P. 024510.
- 51. Kivotides, D. Interactions between particles and quantized vortices in superfluid helium / D. Kivotides, C. F. Barenghi, Y. A. Sergeev // Phys. Rev. B. – 2008. – V. 77. – P. 014527.
- 52. Sarma, S. Majorana zero modes and topological quantum computation / S. Sarma, M. Freedman, C. Nayak // NPJ Quantum inf. 2015. V. 1. P. 15001.
- 53. Metallic nanowires and mesoscopic networks on a free surface of superfluid helium and charge-shuttling across the liquid-gas interface / P. Moroshkin, R. Batulin, P.Leiderer, K. Kono // Phys. Chem. Chem. Phys. - 2016. - V.

18, No. 38. – Pp. 26444–26455.

- 54. Spectroscopy of Ba<sup>+</sup> ions in liquid <sup>4</sup>He / R. Batulin, P. Moroshkin,
  D. Tayurskii, K. Kono // AIP Advances. 2018. V. 8. P. 015328.
- 55. Laser spectroscopy of Ba<sup>+</sup> ions in liquid He: Towards the detection of Majorana fermion surface state in superfluid <sup>3</sup>He-B / R. Batulin, P. Moroshkin, D. Tayurskii et al. // International Symposium on Quantum Fluids and Solids QFS2013. Abstract booklet. - 2013. - PS1.23.
- 56. Theoretical study of Ba<sup>+</sup> ion in superfluid helium / R. Batulin, P. Moroshkin,
  D. Tayurskii et al. // V Young Scientists Conference Problems of Theoretical Physics. Abstract Book. - 2013. - P25.
- 57. Impurity ions at the surface of superfluid He / R. Batulin, P. Moroshkin,
  D. Tayurskii et al. // 27th International Conference on Low Temperature Physics. Book of Abstracts. - 2014. - 0620.
- Pobell, F. Matter and methods at low temperatures / F. Pobell. Dresden: Springer, 2007.
- Tabbert, B. Optical investigation of impurities in superfluid <sup>4</sup>He / B. Tabbert, H. Günther, G. zu Putlitz // J. Low Temp. Phys. 1997. V. 109. Pp. 653-707.
- Moroshkin, P. Atomic and molecular defects in solid <sup>4</sup>He / P. Moroshkin,
   A. Hofer, A. Weis // Phys. Rep. 2008. V. 469. Pp. 1–57.
- Wackerle, J. Annihilation of positrons in liquid helium / J. Wackerle, R. Stump // Phys. Rev. - 1957. - V. 106, No. 1. - Pp. 18-20.
- Ferrel, R. A. Theory of positron annihilation in solids / R. A. Ferrel // Rev. Mod. Phys. - 1956. - V. 28, No.3. - Pp. 308-337.
- Ferrel, R. A. Long lifetime of positronium in liquid helium / R. A. Ferrel // Phys. Rev. - 1957. - V. 108, No. 2. - Pp. 167–168.
- 64. Study of the properties of an excess electron in liquid helium: I. The nature of the electron-helium interactions / J. Jortner, N. R. Kestner, S. A. Rice, M. H. Cohen // J. Chem. Phys. 1965. V. 43. Pp. 2614-2625.

- 65. Study of the properties of an excess electron in liquid helium. II. A refined description of configuration changes in the liquid / K. Hiroike, N. R. Kestner, S. A. Rice, J. Jortner // J. Chem. Phys. 1965. V. 43, No. 8. Pp. 2625–2632.
- 66. Williams, R. L. Ionic mobilities in argon and helium liquids / R. L. Williams // Can. Phys. - 1957. - V. 35. - Pp. 134–146.
- 67. Meyer, L. Mobilities of He ions in liquid helium / L. Meyer, F. Reif // Phys. Rev. 1958. V. 110, No. 1. Pp. 279–280.
- 68. Burdick, B. Negative ions in liquid He II / B. Burdick // Phys. Rev. Lett. 1965. V. 14, No. 1. Pp. 11-13.
- Clark, R. C. Self-trapped electrons in liquid helium II / R. C. Clark // Phys. Lett. - 1965. - V. 16, No. 1. - Pp. 42-43.
- 70. Fowler, W. B. Electronic bubble states in liquid helium / W. B. Fowler,
  D. L. Dexter // Phys. Rev. 1968. V. 176, No. 1. Pp. 337-343.
- 71. Sommer, W. T. Liquid helium as a barrier to electrons / W. T. Sommer // Phys. Rev. Lett. -1964. V. 12, No. 11. Pp. 271-273.
- 72. Buzzacchi, M. Alkali ions in superfluid <sup>4</sup>He and structure of the snowball / M. Buzzacchi, D. E. Galli, L. Reatto // Phys. Rev. B. - 2001. - V. 64. -P. 094512.
- 73. Johnson, W. W. Size measurement of positive impurity ions in liquid hehum /
  W. W. Johnson, W. I. Glaberson // Phys. Rev. A. 1974. V. 10, No. 3. Pp. 868-871.
- 74. Ions and atoms in superfluid helium (<sup>4</sup>He). IV. Temperature dependence of the mobility of alkali earth ions / M. Foerste, H. Günther, O. Riediger et al. // Z. Phys. B. 1997. V. 104. Pp. 317–322.
- Borghesani, A. F. Ions and electrons in liquid helium / A. F. Borghesani. Oxford: Oxford University Press, 2007.
- 76. Gordon, E. B. Stabilization of nitrogen atoms in superfluid helium / E. B. Gordon, L. P. Mezhov-Deglin, O. Pugachev // JETP Lett. - 1973. - V. 19. -

Pp. 63–65.

- 77. Metastable impurity-helium solid phase. Experimental and theoretical evidence / E. B. Gordon, V. V. Khmelenko, A. A. Pelmenev et al. // Chem. Phys. 1993. V. 170. Pp. 411-426.
- 78. Implantation of impurity ions into He ii for optical spectroscopy purposes / H. Bauer, M. Hausmann, R. Mayer et al. // Phys. Lett. 1985. V. 110A, No. 5. Pp. 279-282.
- 79. Implantation of atoms into liquid helium for the purpose of impurity spectroscopy / H. Bauer, M. Beau, A. Bernhardt et al. // Phys. Lett. A. 1989. –
  V. 137, No. 4,5. Pp. 217–224.
- 80. Atoms and ions in superfluid helium. I. Optical spectra of atomic and ionic impurities / B. Tabbert, M. Beau, H. Günther et al. // Z. Phys. B. 1995. V. 97. Pp. 425–432.
- 81. Can paramagnetic atoms in superfluid helium be used to search for permanent electric dipole moments? / M. Arndt, S. I. Kanorsky, A. Weis, T. W. Hänsch // Phys. Lett. A. – 1993. – V. 174. – Pp. 298–303.
- Russo, R. E. Laser ablation / R. E. Russo // Apl. Spec. 1995. V. 49, No.
   9. Pp. 14A-28A.
- 83. Russo, R. E. Laser ablation in analytical chemistry a review / R. E. Russo // Talanta. — 2002. — V. 57. — Pp. 425–451.
- 84. Himbert, M. Laser excitation of Ba<sup>+</sup> ions in liquid helium / M. Himbert,
  A. Lezama, J. Dupont-Roc // J. Physique. 1985. V. 46. Pp. 2009–2014.
- 85. Optical spectrocopy of alkali and alkali-like ions in superfluid <sup>4</sup>He / H. Bauer,
  M. Beau, J. Fischer et al. // Physica B. 1990. V. 165 & 166. Pp. 137–138.
- 86. Beijersbergen, J. H. M. Spectrocopy and dynamics of trapped alkaline earth atoms in superfluid helium / J. H. M. Beijersbergen, Q. Hui, M. Takami // Phys. Lett. A. - 1993. - V. 181. - Pp. 393-403.
- 87. Laser spectroscopy and optical pumping of alkali atoms in superfluid helium /
  T. Yabuzaki, T. Kinoshita, K. Fukuda, Y. Takahashi // Z. Phys. B. 1995. –

V. 98. – Pp. 367–369.

- Moriwaki, Y. Spectroscopic studies on Yb<sup>+</sup> ions in liquid helium / Y. Moriwaki,
   N. Morita // Eur. Phys. J. D. 2001. V. 13. Pp. 11-20.
- Chen, S. Y. Broadening and shift of spectral lines due to the presence of foreign gases / S. Y. Chen, M. Takeo // Rev. Mod. Phys. - 1957. - V. 29, No. 1. -Pp. 20-73.
- 90. Ch'en, S. Y. Pressure shift and broadening of the resonance lines of singly ionized alkaline-earth atoms and some alkali atoms in hot compressed Ar and He / S. Y. Ch'en, P. K. Henry // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. — 1973. — V. 13. — Pp. 385–391.
- 91. Hammond, G. The shift and broadening of the resonance doublet of Ba II caused by He and Ar collisions / G. Hammond // Astrophys. J. 1962. V. 136. Pp. 431–437.
- 92. Fukuyama, Y. Laser-induced fluorescence spectra of Ba<sup>+\*</sup>-He exciplexes produced in cold He gas / Y. Fukuyama, Y. Moriwaki, Y. Matsuo // Phys. Rev. A. - 2004. - V. 69. - P. 042505.
- 93. Fukuyama, Y. Formation and dissociation of Ba<sup>+\*</sup>-He exciplexes at 3–25 k /
  Y. Fukuyama, Y. Moriwaki, Y. Matsuo // Phys. Rev. A. 2007. V. 75. P. 032725.
- 94. Moroshkin, P. Bound-bound transitions in the emission spectra of Ba<sup>+</sup>-He excimer / P. Moroshkin, K. Kono // Phys. Rev. A. -2016. V. 93. P. 052510.
- 95. Optical spectrosopy of atoms trapped in solid helium / S. I. Kanorsky, M. Arndt, R. Dziewior et al. // Phys. Rev. B. - 1994. - V. 49, No. 5. -Pp. 3645-3647.
- 96. Pressure shift and broadening of the resonance line of barium atoms in liquid helium / S. I. Kanorsky, M. Arndt, R. Dziewior et al. // Phys. Rev. B. – 1994. – V. 50, No. 9. – Pp. 6296–6302.
- 97. Optical properties of alkali-metal atoms in pressurized liquid helium / T. Kinoshita, K. Fukuda, Y. Takahashi, T. Yabuzaki // Phys. Rev. B. – 1995. – V.

52, No. 4. – Pp. 2707–2716.

- 98. Atoms and ions in superfluid helium. II. Theoretical considerations / M. Beau,
  H. Günther, G. zu Putlitz, B. Tabbert // Z. Phys. B 101. 1996. V. 101. Pp. 253-262.
- 99. Kinoshita, T. Doubly shaped D<sub>2</sub> excitation spectra of Cs and Rb atoms in superfluid helium due to a quadrupole bubble surface oscillation / T. Kinoshita, K. Fukuda, T. Yabuzaki // Phys. Rev. B. – 1996. – V. 54, No. 9. – Pp. 6600–6607.
- 100. Zhang, X. Communication: Barium ions and helium nanodroplets: Solvation and desolvation / X. Zhang, M. Drabbels // J. Chem. Phys. - 2012. - V. 137. - P. 051102.
- 101. Dynamics of photoexcited Ba<sup>+</sup> cations in <sup>4</sup>He nanodroplets / A. Leal, X. Zhang,
  M. Barranco et al. // J. Chem. Phys. 2016. V. 144. P. 094302.
- 102. Optical studies of atoms and ions in superfluid helium using a ccd-camera system / B. Tabbert, M. Beau, M. Foerste et al. // Z. Phys. B. – 1995. – V. 98. – Pp. 399–404.
- 103. Leiderer, P. Structure of the dimple lattice on liquid <sup>4</sup>He / P. Leiderer, M. Wanner // Phys. Lett. — 1979. — V. 73A, No. 3. — Pp. 189–192.
- 104. Ebner, W. Development of the dimple instability on liquid <sup>4</sup>He / W. Ebner,
  P. Leiderer // Phys. Lett. 1980. V. 80A, No. 4. Pp. 277-280.
- 105. Poitrenaud, J. Precise measurement of effective mass of positive and negative charge carriers in liquid helium II / J. Poitrenaud, F. I. B. Williams // Phys. Rev. Lett. - 1972. - V. 29, No. 18. - Pp. 1230-1232.
- 106. Experiments on ions trapped below the surface of superfluid <sup>4</sup>He / C. F. Barrenghi, C. J. Mellor, C. M. Muirhead, W. F. Vinen // J. Phys. C: Solid State Phys. - 1986. - V. 19. - Pp. 1135–1144.
- 107. Сивухин, Д. В. Общий курс физики. Т. III. Электричество / Д. В. Сивухин. — Москва: МФТИ, 2004.
- 108. Superfluid <sup>3</sup>He confined to a single 0.6 micron slab stability and properties of

the A-like phase near the weak coupling limit / R. G. Bennett, L. V. Levitin, A. Casey et al. // J. Low Temp. Phys. - 2010. - V. 158. - Pp. 163-169.

- 109. Shikin, V. B. Instability and reconstruction of a charged liquid surface /
  V. B. Shikin // Physics Uspekhi. 2011. V. 54, No. 12. Pp. 1203–1225.
- 110. Crandall, R. S. Instability and reconstruction of a charged liquid surface / R. S. Crandall // Surf. Sci. — 1976. — V. 58. — Pp. 266–282.
- 111. Shikin, V. B. Motion of helium ions near a vapor-liquid surface / V. B. Shikin // SOV. PHYS. JETP. -1974. V. 31, No. 5. Pp. 936-940.
- 112. Shikin, V. B. On the interaction of surface electrons in liquid helium with oscillations of the vapor-liquid interface / V. B. Shikin, Y. P. Monarkha // Physics Uspekhi. — 1974. — V. 16. — Pp. 193–208.
- 113. Volodin, A. P. Development of instability and bubblon production on a charged surface of liquid helium / A. P. Volodin, M. S. Khaikin, V. S. Edel'man // Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. - 1977. - V. 26, No. 10. - Pp. 707-711.
- 114. Taylor cone and electrospraying at a free surface of superfluid helium charged from below / P. Moroshkin, P. Leiderer, T. B. M?ller, K. Kono // Phys. Rev. E. 2017. V. 95. P. 053110.
- 115. Leiderer, P. Macroscopic electron dimples on the surface of liquid helium /
  P. Leiderer, W. Ebner, V. B. Shikin // Surf. Sci. 1982. V. 113. –
  Pp. 405–411.
- 116. Catalysis of impurities coalescence by quantized vortices in superfluid helium with nanofilament formation / E. B. Gordon, R. Nishida, R. Nomura, Y. Okuda // Low Temp. Phys. - 2009. - V. 35. - P. 209.
- 117. Stovbun, S. V. Drift mechanism of the metal nanowires formation in liquid helium / S. V. Stovbun, A. A. Skoblin // Phys. Chem. Chem. Phys. - 2019. -V. 21. - Pp. 5771-5779.
- 118. Shikina, I. Barium ions in liquid helium / I. Shikina, V. Shikin // Low Temp. Phys. - 2018. - V. 44. - Pp. 401-409.
- 119. Hickman, A. P. Localized excited states of helium in liquid helium / A. P. Hick-

man, N. F. Lane // Phys. Rev. Lett. -1971. - V. 26, No. 20. - Pp. 1216-1219.

- 120. Hickman, A. P. Nature of excited helium atoms in liquid helium: A theoretical model / A. P. Hickman, W. Steets, N. F. Lane // Phys. Rev. B. – 1975. – V. 12, No. 9. – Pp. 3705–3717.
- 121. Laser-probing measurements and calculations of lifetimes of the 5d  ${}^{2}D_{3/2}$  and 5d  ${}^{2}D_{5/2}$  metastable levels in Ba II / J. Gurell, E. Biemont, K. Blagoev et al. // Phys. Rev. A. -2007. V.75. P.052506.
- 122. Curry, J. J. Compilation of wavelengths, energy levels, and transition probabilities for Ba I and Ba II / J. J. Curry // J. Phys. Chem. Ref. Data. - 2004. -V. 33, No. 3. - Pp. 725-746.
- 123. Pinnington, E. H. Studies of laser-induced fluorescence in fast beams of Sr<sup>+</sup> and Ba<sup>+</sup> ions / E. H. Pinnington, R. W. Berends, M. Lumsden // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. - 1995. - V. 28. - Pp. 2095-2103.
- 124. Theoretical study of Ba<sup>n+</sup>–RG (RG=rare gas) complexes and transport of Ba<sup>n+</sup> through RG (n=1,2; RG=He-Rn / M. F. McGuirk, L. A. Viehland, E. P. F. Lee et al. // J. Chem. Phys. 2009. V. 130. P. 194305.
- 125. Mella, M. Exciplexes with ionic dopants: Stability, structure, and experimental relevance of  $M^+(^2P)$  <sup>4</sup>He<sub>n</sub> (M = Sr, Ba) / M. Mella, F. Cargnoni // J. Phys. Chem. A. -2014. V. 118. Pp. 6473–6483.
- 126. Ellison, F. O. A method of diatomics in molecules. I. General theory and application to H<sub>2</sub>O / F. O. Ellison // J. Am. Chem. Soc. 1963. V. 85, No. 22. Pp. 3540-3544.
- 127. Cohen, J. S. Ground and excited states of Ne<sub>2</sub> and Ne<sub>2+</sub>. I. Potential curves with and without spinorbit coupling / J. S. Cohen, B. Schneider // J. Chem. Phys. -1974. V. 61. Pp. 3230-3239.
- 128. A. Kramida and Yu. Ralchenko and J. Reader and NIST ASD Team (2018) // NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.6.1) / National Institute of Standards and Technology. — Gaithersburg, MD, 2001. https://physics.nist.gov/ asd.

- 129. Condon, E. The theory of atomic spectra / E. Condon, G. Shortley. London: Cambridge University Press, 1959.
- 130. Pressure-dependent quenching of Rb 5P states in liquid helium / T. Kinoshita,
  K. Fukuda, T. Matsuura, T. Yabuzaki // Phys. Rev. A. 1996. V. 53, No.
  6. Pp. 4054-4063.
- 131. Atkins, K. R. Surface tension of liguid He<sup>4</sup> / K. R. Atkins, Y. Narahara // Phys. Rev. 1965. V. 138, No. 2A. Pp. 437–441.
- 132. Rusby, R. L. New vapor pressure equations for <sup>4</sup>He and <sup>3</sup>He / R. L. Rusby // J. Low Temp. Phys. -1985. V. 58, No. 1/2. Pp. 203-205.
- 133. Kerr, E. C. Density of liquid <sup>4</sup>He / E. C. Kerr // J. Chem. Phys. 1957. V. 26. Pp. 511-514.
- 134. Rayleigh, J. W. S. Theory of sound / J. W. S. Rayleigh. New York: Dover Publications, Incorporated, 1959.
- 135. Celli, V. Vibrational modes of a negative ion in liquid helium / V. Celli, M. H. Cohen, M. J. Zuckerman // Phys. Rev. - 1968. - V. 173. - Pp. 253-256.
- 136. Femtosecond photoexcitation dynamics inside a quantum solvent / B. Thaler,
  S. Ranftl, P. Heim et al. // Nat. Commun. 2018. V. 9. P. 4006.
- 137. Femtosecond photoexcitation dynamics inside a quantum solvent / A. V. Benderskii, J. Eloranta, R. Zadoyan, V. A. Apkarian // J. Chem. Phys. 2002. V. 117, No. 3. Pp. 1201-1213.
- 138. Spectroscopy and dynamics of neutral atoms in superfluid helium / Q. Hui, J. L. Persson, J. H. M. Beijersbergen et al. // Z. Phys. B. – 1995. – V. 98. – Pp. 353–357.
- 139. Moroshkin, P. Phonon generation in condensed <sup>4</sup>He by laser-excited atomic bubbles / P. Moroshkin, V. Lebedev, A. Weis // EPL. - 2011. - V. 96. -P. 26002.
- 140. Anderson, P. W. An approximate quantum theory of the antiferromagnetic ground state / P. W. Anderson // Phys. Rev. - 1952. - V. 86, No. 5. -Pp. 694-701.

- 141. Allard, N. The effect of neutral nonresonant collisions on atomic spectral lines / N. Allard, J. Kielkopf // Rev. Mod. Phys. - 1982. - V. 54, No. 4. -Pp. 1103-1182.
- 142. Moroshkin, P. Spectroscopy of alkali-metal atoms in dense supercritical <sup>4</sup>He at low temperatures / P. Moroshkin, V. Lebedev, A. Weis // Phys. Rev. A. – 2013. – V. 87. – P. 022513.
- 143. Gibbs, A. G. Kinetic energies of atomic motions in liquid <sup>4</sup>He / A. G. Gibbs,
  O. K. Harling // Phys. Rev. A. 1971. V. 3, No. 5. Pp. 1713-1717.
- 144. Eloranta, J. A time dependent density functional treatment of superfluid dynamics: Equilibration of the electron bubble in superfluid <sup>4</sup>He / J. Eloranta, V. A. Apkarian // J. Chem. Phys. — 2002. — V. 117, No. 22. — Pp. 10139–10150.
- 145. Eloranta, J. Structure and energetics of He<sub>2</sub><sup>\*</sup> bubble-states in superfluid <sup>4</sup>He / J. Eloranta, N. Schwentner, V. A. Apkarian // J. Chem. Phys. 2002. V. 116, No. 10. Pp. 4039-4053.
- 146. Eloranta, J. Time-domain analysis of electronic spectra in superfluid <sup>4</sup>He / J. Eloranta, H. Y. Seferyan, V. A. Apkarian // Chem. Phys. Lett. – 2004. – V. 396. – Pp. 155–160.
- 147. Ельяшевич, М. А. Атомная и молекулярная спектроскопия / М. А. Ельяшевич. — Москва: Эдиториал УРСС, 2001.
- Demtroder, W. Laser spectroscopy / W. Demtroder. Berlin: Springer-Verlag, 2001.
- 149. Фриш, С. Э. Оптические спектры атомов / С. Э. Фриш. Москва: Государственное издательство физ-мат литературы, 1963.
- 150. Reif, F. Study of superfluidity in liquid he by ion motion / F. Reif, L. Meyer // Phys. Rev. - 1960. - V. 119, No. 4. - Pp. 1164-1173.
- 151. Dahm, A. J. Relaxation time and effective mass of ions in liquid helium / A. J. Dahm, T. M. Sanders // J. Low Temp. Phys. - 1970. - V. 2, No. 2. -Pp. 199-222.

- 152. Taylor, G. I. The stability of a horizontal fluid interface in a vertical electric field / G. I. Taylor, A. D. McEwan // J. Fluid Mech. – 2017. – V. 22. – Pp. 1–15.
- 153. Generation, growth and collapse of bubbles on collision of particle with electrode in dc electrically stressed liquid helium / M. Hara, H. Nakagawa, T. Shinohara, J. Suehiro // IEEE TDEI. 2002. V. 9, No. 6. Pp. 910–921.
- 154. DC breakdown voltage characteristics of saturated liquid helium in the presence of metallic particles / M. Hara, Y. Maeda, N. Nakagawa et al. // IEEE TDEI. 2006. V. 13, No. 3. Pp. 470–476.
- 155. Microsphere viscometers for low temperature applications / K. Gloos,
  W. Schoepe, J. T. Simola, J. T. Tuoriniemi // Cryogenics. 2006. V. 32,
  No. 9. Pp. 791-798.
- 156. Moroshkin, P. Motion of metallic microparticles in superfluid helium in the presence of space charge / P. Moroshkin, P. Leiderer, K. Kono // Phys. Fluids. - 2017. - V. 29. - P. 047106.