

Вестник Российского фонда фундаментальных исследований

№ 1–2 (109–110) январь–июнь 2021 года

Основан в 1994 году

Зарегистрирован Комитетом РФ по печати, рег. № 012620 от 03.06.1994

Сетевая версия зарегистрирована Роскомнадзором, рег. № ФС77-61404 от 10.04.2015

Учредитель

Федеральное государственное бюджетное учреждение
«Российский фонд фундаментальных исследований»

Главный редактор В.Я. Панченко,
заместители главного редактора В.В. Квардаков и В.Н. Фридлянов

Редакционная коллегия:

В.П. Анаников, В.Б. Бетелин, К.Е. Дегтярев, И.Л. Еременко,
В.П. Кандидов, П.К. Кашкаров, В.П. Матвеев, Е.И. Моисеев,
А.С. Сигов, В.А. Ткачук, Р.В. Петров, И.Б. Федоров, Д.Р. Хохлов

Редакция:

Е.Б. Дубкова, И.А. Мосичева

Адрес редакции:

119334, г. Москва, Ленинский проспект, 32а

Тел.: (499) 995-16-05

e-mail: pressa@rfbr.ru



Russian Foundation for Basic Research Journal

N 1-2 (109-110) January-June 2021

Founded in 1994

Registered by the Committee of the Russian Federation for Printed Media, 012620 of 03.06.1994 (print)

Registered by the Roskomnadzor FS77-61404 of 10.04.2015 (online)

The Founder

Federal State Institution

“Russian Foundation for Basic Research”

Editor-in-Chief V. Panchenko,

Deputy chief editors V. Kvardakov and V. Fridlyanov

Editorial Board:

V. Ananikov, V. Betelin, K. Degtyarev, I. Eremenko,
V. Kandidov, P. Kashkarov, V. Matveenko, E. Moiseev,
A. Sigov, V. Tkachuk, R. Petrov, I. Fedorov, D. Khokhlov

Editorial staff:

E. Dubkova, I. Mosicheva

Editorial address:

32a, Leninskiy Ave., Moscow, 119334, Russia

Tel.: (499) 995-16-05

e-mail: pressa@rfbr.ru

«Вестник РФФИ»

№ 1–2 (109–110) январь–июнь 2021 г.

Приветствие <i>К. Беккер</i>	6
Предисловие <i>В.Я. Панченко</i>	8
ТЕМАТИЧЕСКИЙ БЛОК:	
25 ЛЕТ СОТРУДНИЧЕСТВА РОССИЙСКОГО ФОНДА ФУНДАМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ И НЕМЕЦКОГО НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО ОБЩЕСТВА (DEUTSCHE FORSCHUNGSGEMEINSCHAFT)	
<i>А.Н. Шаров</i> РФФИ – DFG: юбилейный этап сотрудничества	10
<i>А.Е. Благов, Н.В. Марченков, А.Г. Куликов, М. Жорнак, Е.Н. Овчинникова</i> Изучение изменений атомно-кристаллической структуры функциональных материалов под действием акустических волн и электрических полей	13
<i>Т.С. Шамирзаев</i> Непрямозонные гетероструктуры: рекомбинация и спиновая динамика экситонов	23
<i>Г.С. Бисноватый-Коган, О.Ю. Цупко</i> Российско-немецкие исследования тени черных дыр	33
<i>А.С. Порываев, Э. Гжузи, Д.М. Полюхов, Ф. Хоффманн, М. Фрёба, М.В. Федин</i> Изучение органических радикалов блаттеровского типа методом импульсного электронного парамагнитного резонанса при низких температурах	38
<i>К.В. Ковтунов, И.В. Коптюг, А.Н. Правдивцев, Я.-Б. Ховенер</i> Долгоживущие гиперполяризованные молекулы для магнитного резонанса на основе использования параводорода	44
<i>М. Байер, М.М. Глазов, А.В. Кавокин, Ю.Г. Кусраев</i> Когерентное управление взаимодействующими спиновыми возбуждениями в полупроводниковых гетероструктурах	54
<i>О.М. Орешкин, Л. Крайнест, Д.В. Панов, В.А. Хлопонин, Д.В. Ушаков</i> Российско-немецкое сотрудничество в области лазерной поверхностной обработки металлов	74
<i>Г.А. Туричин, Т. Хассель, Д.В. Мукин, С.Л. Станкевич, Е.А. Валдайцева, Г.Г. Климов, С.А. Шальнова, О.Г. Климова-Корсмик</i> Решение обратной задачи формирования стенки при выращивании вневакуумным электронным лучом с использованием проволоки	82
<i>Т.С. Костюченко, И.С. Новиков, Е.В. Подрябинкин, Е.А. Цымбалов, К.В. Губаев, Э.М. Макаров, А.В. Шапеев</i> Расчет термодинамических свойств материалов из первых принципов с помощью машинного обучения	95
<i>В.В. Галишиникова, В. Хунт, П.Я. Паль</i> Новый подход к полиэдральным разбиениям пространства	100
<i>Р.А. Гумеров, И.И. Потемкин</i> Водорастворимые молекулярные щетки как перспективные контейнеры для адресной доставки лекарств	108
<i>С.И. Шукин, Ю.В. Гуляев, А.В. Кобелев, А.Н. Брико, Я.Н. Липич, А. Хюлькенберг, Ч. Нго, Ш. Леонхардт</i> Проблемы создания нейромышечного интерфейса на основе электромиографии и измерений электрического импеданса для управления силомоментными параметрами реабилитационных медицинских устройств	112
<i>Н.В. Ростиславлева, А. Бауэркемпер</i> Траектории научной коллаборации: от публичной лекции к международному проекту	126
<i>Б. Менцель, А.А. Панченко</i> Культура нью-эйджа в СССР и постсоветской России	137

“RFBR Journal”

N 1–2 (109–110) January–June 2021

Welcome Address	
<i>K. Becker</i>	6
Foreword	
<i>V.Ya. Panchenko</i>	8
THEMED SECTION:	
25 YEARS OF COOPERATION OF THE RUSSIAN FOUNDATION FOR BASIC RESEARCH AND THE GERMAN RESEARCH SOCIETY (DEUTSCHE FORSCHUNGSGEMEINSCHAFT)	
<i>A.N. Sharov</i>	
RFBR – DFG: Anniversary Stage of Cooperation	10
<i>A.E. Blagov, N.V. Marchenkov, A.G. Kulikov, M. Zschornak, E.N. Ovchinnikova</i>	
Study of Changes in the Atomic-Crystal Structure of Functional Materials under the Influence of Acoustic Waves and Electric Fields	13
<i>T.S. Shamirzaev</i>	
Indirect Band Gap Heterostructures: Exciton Recombination and Spin Dynamics	23
<i>G.S. Bisnovatygi-Kogan, O.Yu. Tsupko</i>	
Russian-German Studies of the Black Hole Shadow	33
<i>A.S. Poryvaev, E. Gjuzi, D.M. Polyukhov, F. Hoffmann, M. Fröba, M.V. Fedin</i>	
Pulse Electron Paramagnetic Resonance Study of Blatter-Type Organic Radicals at Low Temperatures	38
<i>K.V. Kovtunov, I.V. Koptuyug, A.N. Pravdivtsev, J.-B. Hövener</i>	
Long-Lived Hyperpolarized Molecules for Magnetic Resonance Produced with Parahydrogen	44
<i>M.H. Bayer, M.M. Glazov, A.V. Kavokin, Yu.G. Kusraev</i>	
Coherent Manipulation of Interacting Spin Excitations in Tailored Semiconductors	54
<i>O.M. Oreshkin, L. Kreinest, D.V. Panov, V.A. Khloponin, D.V. Ushakov</i>	
Russian-German Partnership in the Field of Laser Surface Processing of Metals	74
<i>G.A. Turichin, T. Hassel, D.V. Mukin, S.L. Stankevich, E.A. Valdaytseva, G.G. Klimov, S.A. Shalnova, O.G. Klimova-Korsmik</i>	
Solution of the Inverse Problem of Additively Wall Formation during Wire Fed Non-Vacuum Electron Beam Deposition	82
<i>T.S. Kostiuchenko, I.S. Novikov, E.V. Podryabinkin, E.A. Tsymbalov, K.V. Hubaiev, E.M. Makarov, A.V. Shapeev</i>	
First Principles Calculation of Thermodynamic Properties of Materials Using Machine Learning .	95
<i>V.V. Galishnikova, W. Huhnt, P.J. Pahl</i>	
Novel Polyhedral Partitions of Space	100
<i>R.A. Gumerov, I.I. Potemkin</i>	
Water-Soluble Molecular Brushes as Promising Containers for Targeted Drug Delivery	108
<i>S.I. Shchukin, Yu.V. Gulyaev, A.V. Kobelev, A.N. Briko, Ya.N. Lipich, A. Hülkenberg, C. Ngo, S. Leonhardt</i>	
Fusion of Electromyogram and Bioimpedance (Electrical Impedance Myography) for Force-Moment Control in Medical Assisted Devices	112
<i>N.V. Rostislavleva, A. Bauerkämper</i>	
Trajectories of Scientific Collaboration: from a Public Lecture to the Joint Research Project	126
<i>B. Menzel, A.A. Panchenko</i>	
New Age Culture in USSR and Post-Soviet Russia	137

Приветствие



Дорогие читатели!

Мы очень рады, что выходит выпуск журнала «Вестник РФФИ», посвященный 25-летию партнерских отношений между Российским фондом фундаментальных исследований (РФФИ) и Немецким научно-исследовательским сообществом (Deutsche Forschungsgemeinschaft, DFG). Мы выражаем признательность РФФИ за сотрудничество в течение нескольких десятилетий и благодарим ученых, которые участвуют в наших совместных грантовых программах.

Этот юбилей не только отражает прекрасные отношения между нашими организациями, но и является важной вехой в истории научного сотрудничества Германии и России. С подписанием Соглашения в 1995 году был введен новый принцип поддержки исследований нашими странами, а именно распределение финансовых средств по заявкам на конкурсной основе без тематических ограничений. В том же году мы получили более 700 совместных заявок из двух стран в рамках первого конкурса.

За весь период было поддержано более тысячи международных проектов и несколько тысяч задействованных в них ученых. Впечатляющим документальным свидетельством сотрудничества являются разнообразные примеры исследовательских инициатив, выполненных при поддержке DFG и РФФИ, которые представлены на страницах этого журнала. В числе этих проектов, наряду со множеством инициативных грантов в области фундаментальных наук, есть и наши совместные программы по поддержке молодых ученых – так называемые аспирантские школы.

В 2020 году в DFG отметили 100-летний юбилей со дня основания организации-предшественника. Научный обмен с Россией с самого начала играл особую роль. С 2003 года DFG поддерживает развитие международного сотрудничества с помощью собственного представительства в Москве. Благодаря продолжительному присутствию DFG в России и устойчивому диалогу с РФФИ и другими российскими партнерами нам удается укреплять взаимное доверие и систематически расширять кооперацию.

Значение институционального сотрудничества невозможно переоценить, особенно в условиях кризисной ситуации и осложнившихся рамочных условий. Наука помогает строить мосты между нашими обществами – ведь это и есть ее задача! В течение 25 лет совместные программы поддержки были открыты для ученых наших стран. Мы с уверенностью и оптимизмом смотрим вперед в надежде на многие годы успешного сотрудничества с российскими партнерами!

Президент Немецкого научно-исследовательского сообщества профессор Катя Беккер

Liebe Leserinnen und Leser,

es ist uns eine große Freude, dass das 25-jährige Jubiläum der Partnerschaft zwischen der Russian Foundation For Basic Research (RFBR) und der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) Thema der vorliegenden Ausgabe des RFBR-Journals ist. Unser herzlicher Dank geht an RFBR für die jahrzehntelange Zusammenarbeit, aber natürlich auch an alle Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftler, die an unseren gemeinsamen Förderprogrammen teilnehmen.

Dieses Jubiläum ist nicht nur Ausdruck der hervorragenden Beziehungen unserer beiden Partnerorganisationen, sondern auch ein wichtiger Meilenstein in der Forschungszusammenarbeit zwischen Deutschland und Russland. Mit unserem 1995 unterzeichneten Abkommen wurde ein neues Förderprinzip zwischen unseren Ländern eingeführt: Die Mittelvergabe auf Antragsbasis im freien Wettbewerb ohne thematische Vorgaben. So erreichten uns bei unserer ersten gemeinsamen Ausschreibung noch im gleichen Jahr über 700 Kooperationsanträge aus beiden Ländern.

Seitdem konnten bis heute viele Tausende Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftler in über 1.000 Forschungsprojekten gemeinsam über unsere Ländergrenzen hinweg gefördert werden. Das vorliegende „Journal“ dokumentiert an ausgewählten Beispielen die eindrucksvolle Fülle der von DFG und RFFI finanzierten Forschungsaktivitäten. Dazu zählen neben vielen Einzelprojekten aus der Spitzenforschung auch unsere gemeinsamen Nachwuchsprogramme wie die Internationalen Graduiertenkollegs zwischen Deutschland und Russland.

Die DFG begeht in diesem Jahr 2020 das 100-jährige Bestehen seit Gründung ihrer Vorgängerorganisation. Dabei spielte der wissenschaftliche Austausch mit Russland von Anfang an eine ganz besondere Rolle. Seit 2003 unterstützt die DFG die Entwicklung der bilateralen Zusammenarbeit zudem durch eine eigene Repräsentanz in Moskau. Durch die dauerhafte Präsenz der DFG vor Ort und den ständigen Dialog mit RFBR und unseren russischen Partnern ist es gelungen, gegenseitiges Vertrauen aufzubauen und die Kooperation systematisch auszubauen.

Unsere exzellente institutionelle Zusammenarbeit kann angesichts der krisenhaften Zeiten und erschwerten Rahmenbedingungen nicht hoch genug bewertet werden. Die Wissenschaft baut Brücken zwischen unseren Gesellschaften – und sie soll es auch! Unsere gemeinsamen Förderprogramme stehen seit nun 25 Jahren allen Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftlern unserer Länder offen. Und so schauen wir mit Zuversicht und Vorfreude auf viele weitere Jahre erfolgreiche Zusammenarbeit mit unserem russischen Partnern!

*Präsidentin der Deutschen Forschungsgemeinschaft
Frau Prof. Dr. Katja Becker*

Предисловие



Россия и Германия многие годы успешно развивают научно-техническое сотрудничество. Российская Федерация рассматривает это сотрудничество в качестве одного из важнейших инструментов интеграции страны в мировое научно-техническое пространство и развития отечественной научно-технологической школы. Научно-техническое сотрудничество Российской Федерации и Федеративной Республики Германии опирается на научно-исследовательские центры, институты и университеты. При этом всё большее значение приобретают работы на установках коллективного пользования класса «мегасайенс» – таких, например, как источники синхротронного излучения в DESY, BESSY, лазер на свободных электронах XFEL, реактор ПИК.

Основы российско-германского научно-технического сотрудничества заложены в ряде двусторонних документов, одним из которых стало Соглашение между Российским фондом фундаментальных наук (РФФИ) и Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG, Немецкое научно-исследовательское сообщество), подписанное в 1995 году.

Этот выпуск журнала «Вестник Российского фонда фундаментальных исследований» посвящен юбилею – 25-летию сотрудничества РФФИ со старейшим европейским научным фондом – Немецким научно-исследовательским сообществом, отметившим в 2020 году столетие со дня основания. Развитие связей с германскими научными организациями занимает приоритетное место в международной деятельности РФФИ. Сотрудничество с DFG, одним из первых наших зарубежных партнеров, соизмеримо по времени с возрастом РФФИ. Все эти годы российские и германские ученые из ведущих университетов и научно-исследовательских центров проводят исследования по всем научным направлениям, служащие повышению научно-технического потенциала наших стран и ускорению инновационных процессов. Только с российской стороны около 10 000 ученых приняли участие в 1 050 совместных российско-германских проектах. За эти годы выросло новое поколение молодых ученых, и теперь почти 60% исполнителей проектов составляют молодые исследователи.

Статьи представляемого выпуска «Вестника РФФИ» ярко демонстрируют значительное разнообразие российско-германских исследований, финансируемых совместно РФФИ и DFG.

Тесное институциональное сотрудничество и высокая степень доверия способствуют столь плодотворному и интенсивному обмену между учеными наших стран. Научные связи выстраивают исследовательские мосты между нашими странами и служат развитию научной дипломатии.

*Председатель Совета Российского фонда
фундаментальных исследований, академик,
главный редактор журнала «Вестник РФФИ»
В.Я. Панченко*

Foreword

Russia and Germany have been successfully developing scientific and technical cooperation for many years. The Russian Federation views this cooperation as one of the most important tools for the country integration into the global scientific and technological space and the domestic scientific and technological school development. Scientific and technical cooperation between the Russian Federation and the Federal Republic of Germany is based on research centers, institutes and universities. At the same time, work on collective-use installations of the "megascience" class, such as, for example, the sources of synchrotron radiation at DESY, BESSY, the XFEL free electron laser, and the PIK reactor, are acquiring more and more importance.

The basis of Russian-German scientific and technical cooperation are laid down in a number of bilateral documents, one of which was the Agreement between the Russian Foundation for Basic Research (RFBR) and Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG, German Research Foundation), signed in 1995.

This issue of the *Russian Foundation for Basic Research Journal* is dedicated to the 25th anniversary of the RFBR's cooperation with the oldest European scientific foundation – the German Research Foundation, which in 2020 celebrated the centenary since its establishment. The development of relations with German scientific organizations is a priority in the international activities of the RFBR. Cooperation with DFG, one of our first foreign partners, is commensurate in time with the age of the RFBR. All these years, Russian and German scientists from leading universities and research centers have been conducting research in all scientific areas, serving to increase the scientific and technical potential of our countries and accelerate innovation processes. On the Russian side alone, about 10,000 scientists took part in 1,050 joint Russian-German projects. Over the years, a new generation of young scientists has grown, and now almost 60% of project executors are young researchers.

The articles of this issue of the *RFBR Journal* clearly demonstrate a significant variety of Russian-German studies funded jointly by RFBR and DFG.

Close institutional cooperation and a high degree of trust contribute to such a fruitful and intensive exchange between scientists from our countries. Scientific relations build "research bridges" between our countries and serve the development of scientific diplomacy.

*Vladislav Ya. Panchenko
Academician, Chairman of the Board
of the Russian Foundation for Basic Research,
Editor-in-Chief of "RFBR Journal"*

РФФИ – DFG: юбилейный этап сотрудничества

А.Н. Шаров

Статья посвящена истории развития сотрудничества Российского фонда фундаментальных исследований и Немецкого научно-исследовательского сообщества (Deutsche Forschungsgemeinschaft, сокр. DFG или ННИО). Показано влияние условий и процедуры проведения совместных российско-германских конкурсов фундаментальных научных исследовательских проектов, объемов финансирования и ужесточения требований к подаваемым на конкурс заявкам на рост числа российских участников конкурса. Анализируются популярность различных тематических направлений конкурса; профессиональный, географический и возрастной состав участников проектов, финансируемых совместно РФФИ и DFG. Показаны возможные пути дальнейшего расширения и углубления сотрудничества российского и немецкого фондов.

Ключевые слова: РФФИ, DFG, конкурс, проекты фундаментальных научных исследований, международное сотрудничество.

2020 год стал знаменательным в истории сотрудничества Российского фонда фундаментальных исследований с Немецким научно-исследовательским сообществом (Deutsche Forschungsgemeinschaft, DFG): 25-летие этого взаимодействия пришлось на 100-летний юбилей деятельности германского партнера.

У российского фонда есть основания гордиться таким партнерством. DFG – наиболее известная и одна из самых авторитетных организаций Германии с годовым бюджетом почти в 3.5 млрд евро, осуществляющая финансирование научных исследований, проводимых на базе университетов и государственных научно-исследовательских институтов этой страны. Одновременно DFG играет ключевую роль в обеспечении участия ФРГ в международном научном сотрудничестве, финансируя работу германских ученых в международных исследовательских проектах, их международную мобильность, научные связи национальных университетов за рубежом.

В 70-е годы прошлого столетия деятельность DFG распространилась на бывший СССР, а затем на современную Россию и постсоветское пространство, ставшее региональной зоной ответственности открывшегося в 2003 г. представительства в Москве наряду с такими же опорными пунктами, которые DFG имеет в США, Китае, Индии, Японии и Бразилии. В Европе DFG опирается на развитую систему двусторонних связей со всеми

входящими в ЕС и ассоциированными странами, а также активно пользуется многосторонним механизмом рамочных программ Европейского исследовательского пространства. В целом соглашения о двустороннем сотрудничестве DFG имеет с научно-образовательными организациями в более чем 60 странах.

В России постоянными партнерами DFG помимо РФФИ выступают Московский и Санкт-Петербургский государственные университеты, а также с недавних пор Российский научный фонд. Сотрудничество с РФФИ носит наиболее масштабный и устойчивый характер, который придает ему прежде всего его четвертьвековая продолжительность, как и то, что за этот период стороны обеспечили взаимодействие десятков тысяч ученых двух стран.

Устойчивость сотрудничества РФФИ – DFG вытекает из того, что в рамках совместных исследовательских проектов ученых двух стран между ними устанавливаются долговременные взаимовыгодные связи, как правило, продолжающиеся и после истечения срока действия проекта.

Масштабность партнерству РФФИ – DFG придает также тот факт, что оно органично переплетается с другими формами научно-технических связей двух стран на межгосударственном уровне – тематика многих поддерживаемых ими российско-германских исследований отвечает приоритетным направлениям сотрудничества, предусмотренным



ШАРОВ
Александр Николаевич
Российский фонд
фундаментальных исследований

действующим межправительственным соглашением о научно-техническом сотрудничестве от 2009 г.; утвержденной в дополнение к нему в 2018 г. Дорожной картой сотрудничества в области образования, науки, научных исследований и инноваций; а также тематике других действующих межведомственных соглашений (в таких областях, как космические, лазерные, биологические, морские и полярные исследования, с использованием имеющихся в обеих странах установок класса мегасайенс).

Главной чертой наблюдавшейся последние пять лет эволюции партнерства РФФИ с DFG было преодоление известного кризиса, который наметился в нем в связи с резким сокращением участников ежегодно проводимого конкурса двусторонних исследовательских работ – до 15 заявок, поступивших в 2013 г. По инициативе РФФИ с 2014 г. удалось изменить порядок проведения этого конкурса, установив его определенные календарные рамки – сроки начала и конца приема поступающих на него заявок. Это позволило четче организовать связанные с конкурсом процедуры – прием и экспертизу заявок, поднять интерес к нему прежде всего российских участников, многие из которых предпочитали раньше просто присоединиться к командам исследователей, получивших грант DFG.

Основной причиной выхода таких российских исследователей из тени их германских коллег стали принятые РФФИ меры, в результате которых удалось существенно нарастить абсолютные и относительные масштабы поддержки отечественных участников двусторонних исследований, подтянув его к уровню, который обеспечивает своим участникам германская сторона.

За последние пять лет (2016–2020) ежегодный объем финансирования российско-германских фундаментальных исследований со стороны РФФИ увеличился более чем в 6 раз – с 80 до 495 млн рублей. В результате средний размер гранта РФФИ по таким проектам составил в 2020 г. 4.2 млн рублей по сравнению с 2.6 млн двумя годами ранее.

В итоге указанных мер число подаваемых на конкурс заявок стало стремительно расти – с 20 в среднем в 2013–2017 гг. до 200 заявок в среднем в 2019–2021 гг.

За последние пять лет в два раза (с 29 до 60) выросло число новых проектов, отбираемых по результатам совместно проводимых ежегодных конкурсов, и в 1.5 раза (с 80 до 120) – число ежегодно финансируемых действующих проектов. При этом речь идет не о возросшей доступности грантов РФФИ – наоборот, их получение сопряжено с возросшими требованиями к поступающим на конкурс заявкам, прежде всего касающихся перспектив получения

научных результатов запрашиваемых исследований. Если в 2016 г. коэффициент успешного прохождения таких заявок на конкурс РФФИ – DFG составлял 41%, то в 2020 г. уже только 28%!

Тематика конкурса РФФИ – DFG продолжает оставаться достаточно свободной и охватывать практически все основные направления естественнонаучных исследований, а с 2017 г. и социогуманитарных исследований. Однако его результаты неизменно показывают, что участники отдают предпочтение далеко не всем из них в равной мере. Около половины поступающих заявок приходится всего на два наиболее популярных направления – «Физика и астрономия» и «Химия и науки о материалах». Гораздо меньшей популярностью пользуются остальные направления, а особенно социогуманитарные исследования, по линии которых были отобраны всего два проекта в 2020 г. из более 70 заявок, поступивших в 2017–2020 гг.

Состав получивших гранты участников проектов, поддерживаемых РФФИ и DFG, определяет основное место их занятости – учреждения академической науки, университеты и ведомственно-отраслевые научные учреждения. В последние годы (2018–2020) распределение проектов по месту работы их руководителей указывало на преобладание представителей университетов (53% с российской стороны и более 80% с немецкой стороны), далее по численности участников было представлена академическая наука (36% из институтов РАН и 15% из числа сотрудников системы институтов имени Гельмгольца и др. – с германской стороны). Наименее представлены другие типы научных учреждений обеих стран – 11% и 5% соответственно. Университетская наука Германии представлена втрое большим числом и более широкой географией вузов этой страны, чем со стороны России, где традиционно доминируют вузы Москвы и Санкт-Петербурга, в частности, МГУ и СПбГУ.

Пониманию особенности состава участников поддерживаемых РФФИ и DFG двусторонних исследовательских проектов помогает такая их характеристика, как преобладание среди них молодых ученых: в конкурсе 2016 г. их удельный вес среди российских участников (в возрасте до 35 лет) составлял 52%, а в 2020 г. – 64%. Есть основание полагать, что аналогичная картина наблюдается и среди участников из Германии. К этому следует добавить, что в их числе заметно присутствие представителей так называемой российской научной диаспоры (выходцев из России). В частности, среди соруководителей проектов с германской стороны, отобранных по итогам последних трех конкурсов (2018–2020), почти пятая часть (19%) были воспитанниками научных школ России.



Сотрудничество РФФИ с DFG на современном этапе практически не выходит за пределы двусторонних связей. Многосторонний формат практикуется лишь по линии участия в Глобальном исследовательском совете и его руководящем органе, где представители обеих организаций тесно взаимодействуют с 2011 г., когда был создан этот форум ведущих национальных научных фондов мира. Их регулярные личные контакты, прежде всего на уровне первых лиц, помогают оперативно и конструктивно решать как текущие вопросы взаимодействия, так и обсуждать пути дальнейшего движения вперед, использования всех имеющихся для этого возможностей. К ним относятся:

1. Более широкий охват областей и направлений естественнонаучных фундаментальных исследований, а также (и особенно) социогуманитарных, потенциал которых в обеих странах большой, судя по числу занимающихся ими научных учреждений и центров и работающих в них сотрудников. (DFG предлагает программу кооперации с зарубежными партнерами по созданию «Центров передовых исследований в гуманитарных и социальных науках»).

2. Совместная поддержка междисциплинарных проектов в рамках параллельно создаваемых для этого в обеих странах специализированных центров передовых научных исследований.

3. Договоренность о взаимодействии в рамках действующих и запускаемых с участием РФФИ и DFG международных многосторонних проектов и программ.

4. Координация с РФФИ сотрудничества DFG с другими российскими партнерами (путем поэтапной поддержки наиболее перспективных российско-германских проектов, запущенных совместно с РФФИ и продолженных в сотрудничестве с РФФИ; путем поддержки совместно с РАН, МГУ и СПбГУ участия молодых ученых двух стран в тематически специализированных исследовательских группах – так называемых аспирантских школах).

5. Сотрудничество в популяризации опыта и эффективного участия научных фондов, РФФИ и DFG в частности, в научной дипломатии.

25-летие сотрудничества РФФИ с DFG – хороший повод оценить тот вклад, который оно внесло в развитие российско-германских научных связей. Достигнутое к настоящему времени число поддержанных в его рамках исследовательских проектов, в каждом из которых участвуют до 10 ученых с обеих сторон, дает представление о масштабах и роли их сотрудничества в рамках этих связей. За эти годы было реализовано более 1 050 таких проектов и проведено свыше 50 двусторонних научных мероприятий. Расходы на них только со стороны РФФИ составили около 1,5 млрд рублей. Эти показатели уникальны в общей картине научных связей России с отдельными странами так называемого «дальнего зарубежья». Для РФФИ DFG также был и остается одним из главных зарубежных партнеров. По итогам 2019 г. он входил в их первую пятерку по числу совместных проектов и был на первом месте по расходам РФФИ на международные проекты.

English

RFBR – DFG: Anniversary Stage of Cooperation

Aleksandr N. Sharov

Russian Foundation for Basic Research
32A Leninskiy Ave., B-334, GSP-1, Moscow, 119334, Russia
a.sharov@rfbr.ru

Abstract

The paper deals with the latest five years long piece of the history of cooperation between the Russian Foundation for Basic Research and the German Research Community (Deutsche Forschungsgemeinschaft, abbr. DFG). It shows changes in the conditions and procedure for holding joint Russian-German competition held to select bilateral fundamental research projects, in the amount of their funding and the impact tightening requirements for applications submitted to the contest have on the number of Russian participants. The popularity of various thematic areas of the contests is analyzed, as well as professional, geographic and age distribution of the projects participants, co-financed by RFBR and DFG. Possible ways of further expansion and deepening of cooperation between Russian and German foundations are proposed.

Keywords: RFBR, DFG, science contest, fundamental research projects, international cooperation.

Изучение изменений атомно-кристаллической структуры функциональных материалов под действием акустических волн и электрических полей

А.Е. Благов, Н.В. Марченков, А.Г. Куликов, М. Жорнак, Е.Н. Овчинникова

Проект № 19-52-12029, инициированный в рамках сотрудничества Российского фонда фундаментальных исследований (РФФИ) и Немецкого научно-исследовательского сообщества (DFG), направлен на изучение влияния внешних воздействий на атомно-кристаллическую структуру функциональных материалов. В совместных работах российской и немецкой научных групп показано, что управление дефектами в пьезоэлектриках может быть использовано в качестве пути для создания новых устройств микроэлектроники. В экспериментах по исследованию трансформации решетки парателлурида (α -TeO₂) под действием электрического поля было обнаружено образование приповерхностного слоя с измененными структурными характеристиками вследствие миграции кислородных вакансий и малых смещений атомов. Расчеты методом DFT показали возможность понижения симметрии в результате атомных смещений, возникающих при однородной деформации. Парателлурид использовался в качестве модельного объекта для исследований методом резонансной дифракции рентгеновских лучей на источниках синхротронного излучения с электрическим полем и акустическими волнами. Энергетические спектры запрещенных отражений в TeO₂ вблизи L_1 -края поглощения Te были успешно измерены на станции «ФАЗА» Курчатовского источника синхротронного излучения и на станции P23 немецкого синхротрона PETRA III.

Ключевые слова: пьезоэлектрики, диффузия вакансий, рентгеновская дифракция, синхротронное излучение.

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проект № 19-52-12019).

В настоящее время значительная область исследований в области материаловедения касается разработки механизмов управления свойствами материалов для создания новейших систем хранения информации, накопления энергии и других применений. Одним из направлений является контролируемое изменение дефектной структуры и атомных смещений под действием внешних полей. В частности, такие смещения играют существенную роль в образовании магнитоэлектрических и пьезоэлектрических свойств материалов. Мотивацией для объединения в рамках совместного проекта Российского фонда

фундаментальных исследований (РФФИ) и Немецкого научно-исследовательского сообщества (нем. Deutsche Forschungsgemeinschaft – DFG) является то, что участвующие в настоящем проекте группы российских и немецких ученых давно работают над возможностью управления дефектами для разработки новых пьезоэлектрических материалов.

Совместный проект РФФИ и DFG (№ 19-52-12019) – исследования российских и немецких ученых в области исследования влияния электрических полей и акустических колебаний на свойства функциональных материалов – был



БЛАГОВ
Александр Евгеньевич
НИЦ «Курчатовский
институт»



МАРЧЕНКОВ
Никита Владимирович
Курчатовский комплекс
синхротронно-нейтронных
исследований
НИЦ «Курчатовский
институт»



КУЛИКОВ
Антон Геннадьевич
ФНИЦ «Кристаллография
и фотоника» РАН



ЖОРНАК Маттиас
Технический Университет
Горная Академия
г. Фрайберга,
Институт
экспериментальной
физики



ОВЧИННИКОВА
Елена Николаевна
Московский государственный
университет им. М.В.Ломоносова

поддержан в 2019 г. С российской стороны в проекте принимают участие: НИЦ «Курчатовский институт», ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН, физический факультет МГУ имени М.В. Ломоносова. С немецкой стороны: Институт экспериментальной физики Технического университета Горной академии г. Фрайберга. Неформальным участником проекта является центр синхротронных исследований DESY (Гамбург, Германия). Все участники проекта имеют общие научные интересы и значительный опыт в области исследований структуры и свойств конденсированных сред, методов с использованием рентгеновского излучения, а также в проведении компьютерного моделирования.

Научные группы из НИЦ «Курчатовский институт» и ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН имеют богатый опыт в области управления дефектной структурой кристаллов с помощью электрических полей и акустических колебаний. Несмотря на большое технологическое значение пьезоэлектричества, существует лишь очень ограниченный набор общедоступных пьезоэлектрических материалов. Однако внешние воздействия могут вызывать различные искажения структуры, влияя на свойства материала. Так, под воздействием электрического поля в кристаллах может происходить структурная перестройка, обусловленная миграцией и скоплением носителей заряда. В работах российских ученых в течение ряда лет проводилось изучение поведения реальной структуры кристаллов парателлурита (α -TeO₂) [1] и тетрабората лития Li₂B₄O₇ [2] под действием электрического поля и ультразвуковых нагрузок [3] с использованием высокочувствительных рентгенодифракционных методик. Также была разработана и впервые реализована рентгеновская методика картирования обратного пространства в трехосевой геометрии дифракции с временным разрешением на лабораторном источнике излучения [4]. Времяразрешающие рентгенодифракционные методики позволяют изучать протекающие в образце под влиянием внешних воздействий процессы, вызывающие обратимые деформации его кристаллической решетки, разграничивать эти процессы по кинетике, а также разделять разные виды индуцированных деформаций.

Группой немецких ученых, принимающих участие в выполнении настоящего проекта, была изучена возможность образования приповерхностных структур в титанате стронция (SrTiO₃) (STO) [5–7]. Авторы сообщили о формировании в центросимметричном SrTiO₃ пьезоэлектриче-

ски активного приповерхностного слоя, модифицированного миграцией кислородных вакансий, индуцированной электрическим полем. Этот слой можно создать, помещая STO в статическое электрическое поле на несколько часов, в результате чего происходит перераспределение кислородных вакансий по направлению к одной стороне монокристалла. Это доказывает, что миграция дефектов является эффективным и мощным инструментом контроля существующих свойств материалов, и можно создать совершенно новые пьезоэлектрики на основе материалов, симметрия которых в отсутствие дефектов запрещает существование эффекта. Величина обнаруженного пьезоэлектрического эффекта сравнима с величиной объемного пьезоэлектрического эффекта в коммерческих сегнетоэлектрических материалах. Такое искусственно сформированное дефектами пьезоэлектричество может быть важным как альтернативный путь для конструирования интеллектуальных материалов. Возникновение индуцированного миграцией дефектов пьезоэлектричества, стабилизированного электрическим полем, открывает беспрецедентные возможности дизайна и контроля свойств функциональных материалов.

Имея большой научный задел, российская и немецкая научные группы объединили свои усилия в рамках настоящего проекта для проведения дальнейших совместных исследований в интересующей области и развития новых методик, позволяющих изучать влияние внешних воздействий на дефектную структуру кристаллов. В процессе реализации проекта его участниками успешно проведено большое число исследований, которые отражены в ряде научных публикаций, в том числе совместных (работы представлены в списке литературы).

В качестве одного из объектов исследований в рамках настоящего проекта был выбран парателлурит. Кристаллы парателлурита обладают рядом уникальных физических свойств, определяющих их распространенность в современной микроэлектронике. Они используются и в военно-промышленных технологиях, и при создании современных научных инструментов – например, как частотные фильтры для телескопов. Благодаря широкой распространенности данных кристаллов и полученным экспериментальным работам, они являются хорошим модельным объектом и для разработки новых методик исследования, и для создания комбинированных решений, например, объединяющих магнитоэлектрические и пьезоэлектрические свойства. В рамках настоящего

проекта было продолжено изучение влияния внешних акустических и электрических воздействий на кристаллы TeO_2 на микроскопическом уровне. Показано, что под воздействием электрического поля в кристаллах вблизи электродов могут образоваться области, по своим физическим свойствам отличающиеся от свойств исходного материала. Образование подобных квазидвумерных структур – тонких заряженных слоев у поверхности монокристалла под воздействием внешнего электрического поля – является принципиально новым подходом к управляемому контролю физических свойств. В работах российской группы ученых изучалась динамика процесса формирования и характеристики приповерхностных структур в парателлурите с использованием *in situ* метода рентгеновской дифрактометрии и электрофизических измерений. Геометрия эксперимента представлена на рис. 1. Проведены исследования эволюции формы, положения пиков и интегральной интенсивности кривых дифракционного отражения (КДО) в процессе установления равновесного состояния при подаче электрического поля напряженностью до 1.8 кВ/мм (рис. 2) [8].

Установлено, что наблюдаемые эффекты зависят от полярности и вызваны увеличением концентрации ионов кислорода и кислородных вакансий в приповерхностных областях со стороны анода и катода образца соответственно. Для выявления анизотропии наблюдаемых эффектов измерения проведены на серии образцов со срезами 100, 110 и 001 и различными дифракционными рефлексами. В рамках настоящего проекта предложен и реализован рентгенодифракционный метод определения эффективной толщины формируемого внешним полем приповерхностного слоя с повышенной концентрацией носителей зарядов по измерению дифракционной картины от кратных порядков отражения.

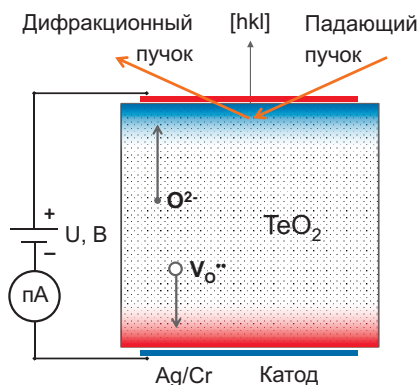


Рис. 1. Схема рентгенодифракционного эксперимента при воздействии электрического поля на образец.

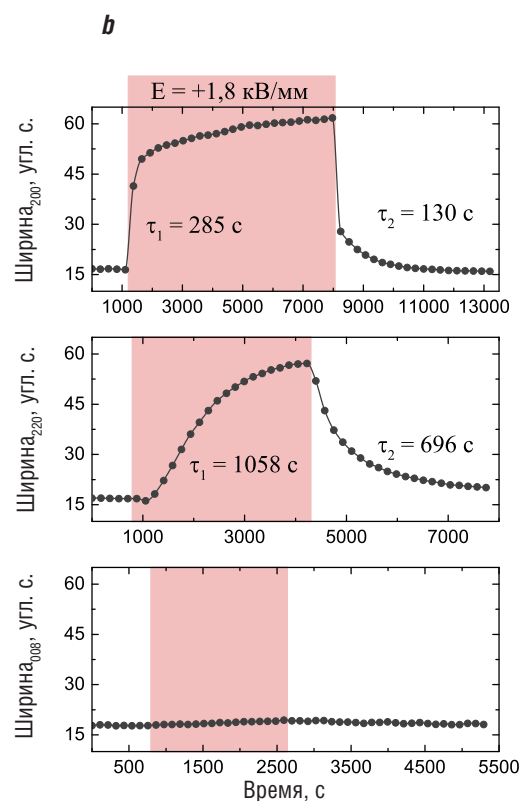
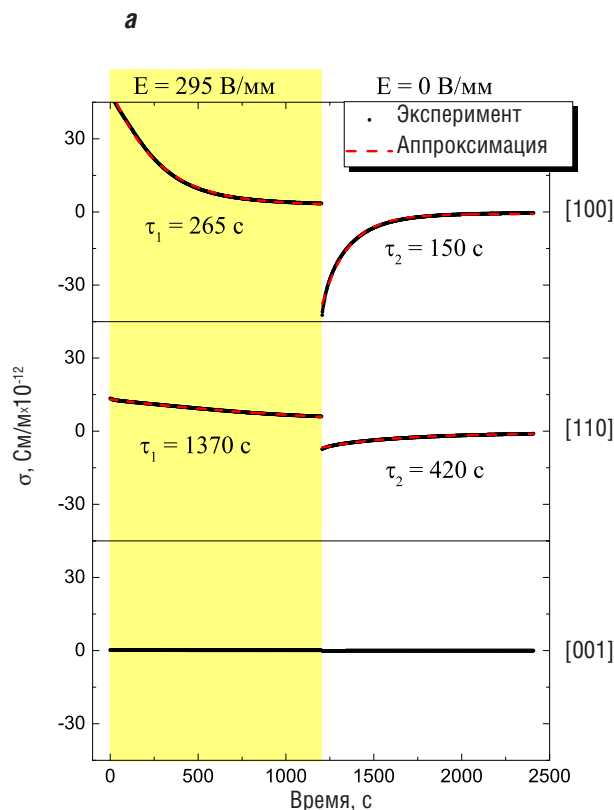


Рис. 2. а – Результаты измерения кинетики проводимости. Измерения проводились вдоль направлений 100, 110 и 001 в течение 1200 с после включения и после выключения электрического поля напряженностью 295 В/м. б – Динамика уширения дифракционного пика. τ_1 и τ_2 – характеристические времена процессов насыщения и релаксации электропроводности и полуширины дифракционных пиков.

По экспериментальным данным произведены оценки толщины электрического слоя зарядов у поверхности, которые хорошо совпадают с расчетными значениями дебаевской длины экранирования и составляют значения порядка нескольких микрон. Для описания профилей кривых дифракционного отражения использована модель, в которой кристалл представляется как набор тонких слоев идеальной структуры с различными амплитудами деформации в слоях. На рис. 3 приведены профили трех кривых дифракционного отражения в сравнении с результатами математического моделирования.

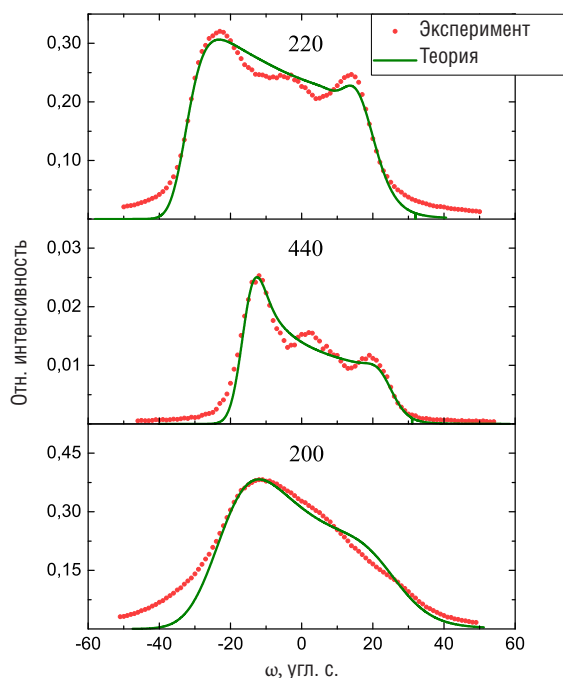


Рис. 3. Сравнение экспериментальных данных для отражений 220, 440 и 200 в парателлурите с результатами моделирования в приближении многослойной структуры, с различной амплитудой индуцированных деформаций кристаллической решетки в слоях.

Определение структурного происхождения этих явлений требует измерений *in situ* микроскопического структурного отклика под воздействием внешних полей. Поскольку ожидается, что смещения атомов очень малы, их необходимо измерять с высокой точностью, и такие возможности дают методы с использованием синхротронного излучения. В рамках настоящего проекта впервые для такого рода исследований применен метод запрещенных отражений, возникающих при энергиях падающего излучения вблизи краев поглощения атомов вещества. Были проведены измерения запрещенных отражений в парателлурите в двух экспериментах с энергиями фотонов,

близкими к L_I -краю поглощения атомов теллура ($E = 4\ 938$ эВ). Эксперименты проводились на линии P23 синхротрона PETRA III в центре синхротронного излучения DESY (Гамбург, Германия) и на станции «ФАЗА» Курчатовского источника синхротронного излучения в НИЦ «Курчатовский институт». Были измерены азимутальная зависимость (φ -сканирование) и энергетический спектр (E -сканирование) (рис. 4) отражений 100 и 002, которые возникают только при энергиях падающего излучения вблизи L_I -края поглощения теллура, но отсутствуют при других энергиях.

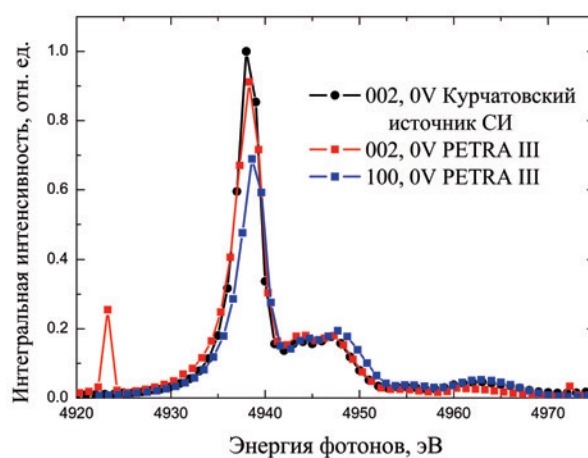


Рис. 4. Энергетические спектры запрещенных отражений 002 и 100, измеренные на станции P23 синхротрона PETRA III и станции «ФАЗА» Курчатовского источника синхротронного излучения.

Азимутальная зависимость рефлекса 002 обнаружила хорошо выраженную симметрию, соответствующую оси четвертого порядка. Это позволило определить значение азимутального угла, при котором интенсивность отражения максимальна, и найти область, свободную от многоволновых отражений Реннингера. Также был измерен энергетический спектр отражения 100. Теоретическое рассмотрение показывает, что отражение 002 возникает благодаря диполь-дипольному резонансному рассеянию синхротронного излучения, которое описывается симметричным тензором второго ранга, причем спектральная зависимость этого отражения обусловлена только одной тензорной компонентой f_{xy} [11]. Диагональные компоненты этого тензора в локальных осях координат отражают расщепление p -электронных состояний теллура в кристаллическом поле. Компоненты недиагонального тензора зависят от углов Эйлера между осями локальной анизотропии и кристаллической осью. Спек-

тральная зависимость отражения 100 обусловлена двумя тензорными компонентами f_{xy} и f_{xz} . Однако эксперименты показали, что энергетические спектры обоих отражений аналогичны (рис. 4). Анализируя интегральную интенсивность отражения 100 для различных азимутальных углов, определено соотношение между компонентами структурного тензора фактора $|F_{xz} / F_{xy}|$ (рис. 5).

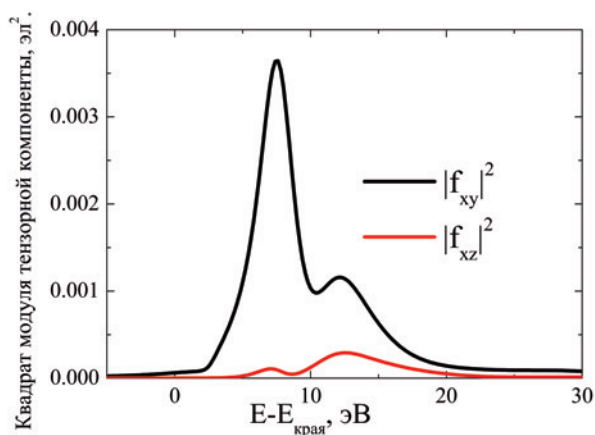


Рис. 5. Энергетические зависимости компонент тензорного атомного фактора теллура при энергии излучения вблизи L_1 -края полупроводника, полученные из анализа экспериментальных результатов.

В работах участников проекта было показано, что энергетические спектры запрещенных отражений чувствительны к ближнему окружению резонансных атомов и их малым (порядка амплитуды тепловых колебаний) смещениям [9], то есть могут меняться при внешних воздействиях, приводящих к миграции вакансий и локальным искажениям структуры. В рамках настоящего проекта раз-

работаны и апробированы на станции P23 синхротрона PETRA III методики измерения брэгговских отражений при приложении электрического поля. Исходя из особенностей пьезоэлектрических модулей в парателлурите для измерения отражений 002 и 100 использованы две схемы напыления электродов. В первой электроды напылялись на боковые поверхности 100 образца, имеющего форму параллелепипеда размером $2 \times 2 \times 3$ мм, во второй – на лицевые поверхности образца, имеющего форму пластинки среза 100, с которых снимались соответствующие симметричные брэгговские отражения. Электроды подсоединялись к высоковольтному источнику напряжения, позволяющего подавать поля до 2 кВ/мм. Экспериментальные измерения осложнялись возникновением фототока вследствие фотоэлектронной эмиссии при сканировании образца синхротронным пучком, что требовало уменьшения интенсивности излучения из-за опасности электрического пробоя. Разработанная методика позволила измерить азимутальные и энергетические зависимости двух указанных запрещенных отражений и наблюдать их трансформацию при приложении электрического поля. Немецкие партнеры принимали активное участие в проведении эксперимента на синхротроне PETRA III (рис. 6–8). Предварительно ими были выполнены расчеты с использованием DFT-подхода (метод функционала электронной плотности), которые показали, что с помощью внешних воздействий, приложенных определенным образом, можно осуществить фазовый переход из α - в γ -фазу в кристалле парателлуриата.



Рис. 6. Участники российской и немецкой научных групп во время эксперимента в центре синхротронных исследований DESY (Гамбург, Германия).



Рис. 7. А.Г. Куликов и М. Жорнак обсуждают ход эксперимента на станции P23 синхротрона PETRA III.

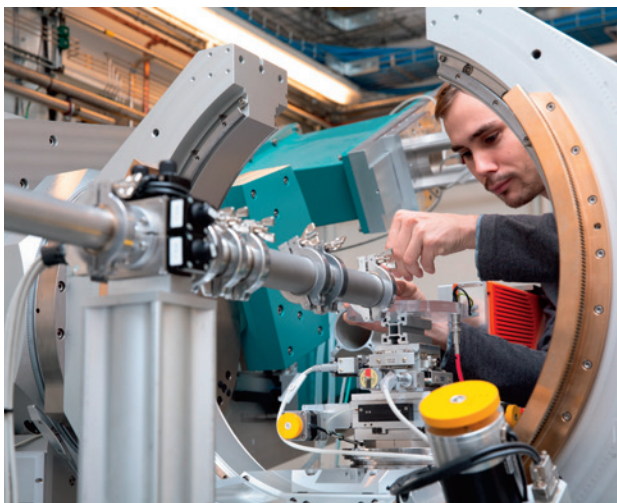


Рис. 8. А.Г. Куликов во время измерений на станции P23 синхротрона PETRA III.



Рис. 9. Участники российско-немецкого семинара в январе 2020 года Москва, ФНИЦ «Кристаллография и фотоника».

В рамках настоящего проекта также запланировано изучение влияния акустических нагрузок на свойства функциональных материалов, и, в качестве модельного объекта, на кристалл парателлуриата. В работах группы авторов, которые являются участниками данного проекта, было показано, что при воздействии интенсивного ультразвука резонансной частоты на кристалл-резонатор в последнем возникает стоячая акустическая продольная волна, которая позволяет контролируемо изменять параметр его кристаллической решетки. Были достигнуты относительные изменения параметра решетки Δ/d вплоть до $1.5 \cdot 10^{-4}$. В экспериментах, выполненных на лабораторном источнике рентгеновского излучения, было продемонстрировано, что для кристалла-резонатора парателлуриата характерен сложный многостадийный процесс изменения дефектной структуры при воздействии интенсивным ультразвуком постоянной амплитуды, характеризуемый ступенчатым увеличением относительной деформации до значений порядка $1.6 \cdot 10^{-4}$ при амплитуде сигнала 90 В/мм [12]. Также показано, что при постепенном увеличении амплитуды сигнала изменение параметра решетки происходит сначала линейно, а затем, при достижении амплитуды в 60 В/мм, наблюдается нелинейный участок, предшествующий полному

разрушению кристалла. Успешность реализации разрабатываемых в рамках данного проекта методик требует разработки соответствующих экспериментальных схем, а также модернизацию имеющегося и создание нового экспериментального оборудования. В рамках данного проекта рассмотрено несколько возможностей модернизации существующей экспериментальной схемы для реализации экспериментов с эффективной ультразвуковой модуляцией. Была создана модульная система, которую легко можно адаптировать под проведение экспериментов как на лабораторных источниках, так и на синхротронных станциях.

Подводя итог, надо отметить успешное взаимодействие российской группы с немецкими партнерами по всем направлениям: как в области теоретических расчетов, так и в экспериментальных исследованиях на синхротроне PETRA III. В январе 2020 г. в Москве был проведен совместный российско-немецкий семинар, посвященный выполнению работ по настоящему гранту (рис. 9), на котором обсуждались доклады как российских, так и немецких участников проекта, касающиеся промежуточных научных результатов. Текущие вопросы и дальнейшие планы обсуждаются в формате видеоконференций.

Литература

1. А.Г. Куликов, А.Е. Благов, Н.В. Марченков, В.А. Ломонов, А.В. Виноградов, Ю.В. Писаревский, М.В. Ковальчук *Письма в ЖЭТФ*, 2018, 107, 679. DOI: 10.7868/S0370274X18100119.
2. А.Г. Куликов, Ю.В. Писаревский, А.Е. Благов, Н.В. Марченков, В.А. Ломонов, А.А. Петренко, М.В. Ковальчук *ФТТ*, 2019, 61, 671. DOI: 10.21883/FTT.2019.04.47411.250.
3. А.Е. Благов, Ю.В. Писаревский, П.А. Просеков, А.В. Таргонский, Я.А. Элиович, А.И. Проценко, М.В. Ковальчук *Кристаллография*, 2017, 62, 870. DOI: 10.7868/S0023476117060030.
4. Н.В. Марченков, А.Г. Куликов, И.И. Аткинн, А.А. Петренко, А.Е. Благов, М.В. Ковальчук *УФН*, 2019, 189(2), 187. DOI: 10.3367/UFN.2018.06.038348.

5. B. Khanbabaee, E. Mehner, C. Richter, J. Hanzig, M. Zschornak, U. Pietsch, H. Stocker, T. Leisegang, D.C. Meyer, S. Gorfman
Appl. Phys. Lett., 2016, **109**, 222901. DOI: 10.1063/1.4966892.
6. C. Richter, M. Zschornak, D. Novikov, E. Mehner, M. Nentwich, J. Hanzig, S. Gorfman, D.C. Meyer
Nat. Commun., 2018, **9**, 178. DOI: 10.1038/s41467-017-02599-6.
7. M. Zschornak, C. Richter, M. Nentwich, H. Stöcker, S. Gemming, D.C. Meyer
Cryst. Res. Technol., 2014, **49**, 43. DOI: 10.1002/crat.201300430.
8. A.G. Kulikov, A.E. Blagov, A.S. Ilin, N.V. Marchenkov, Yu.V. Pisarevskii, M.V. Kovalchuk
J. Appl. Phys., 2020, **127**, 065106. DOI: 10.1063/1.5131369.
9. C. Richter, D.V. Novikov, E.Kh. Mukhamedzhanov, M.M. Borisov, K.A. Akimova, E.N. Ovchinnikova, A.P. Oreshko, J. Stempffer, M. Zschornak, E. Mehner, D.C. Meyer, V.E. Dmitrienko
Phys. Rev., 2014, **B89**, 094110. DOI: 10.1103/PhysRevB.89.094110.
10. А.Г. Куликов, А.Е. Благов, Н.В. Марченков, Ю.В. Писаревский, М.В. Ковальчук
ФТТ, 2020, **62**, 2120. DOI: 10.21883/FTT.2020.12.50216.087.
11. E. Ovchinnikova, D. Novikov, M. Zschornak, A. Kulikov, K. Kozlovskaya, V. Dmitrienko, A. Oreshko, A. Blagov, E. Mukhamedzhanov, N. Marchenkov, M. Borisov, A. Khadiev, A. Petrenko, Y. Pisarevsky
Crystals, 2020, **10**, 719. DOI: 10.3390/cryst10090719.
12. А.Е. Благов, Ю.В. Писаревский, А.В. Таргонский, Я.А. Элювич, М.В. Ковальчук
ФТТ, 2017, **59**(5), 947. DOI: 10.21883/FTT.2017.05.44385.367.

English

Study of Changes in the Atomic-Crystal Structure of Functional Materials under the Influence of Acoustic Waves and Electric Fields

Alexander E. Blagov
NRC “Kurchatov Institute”
1 Akademika Kurchatova Sqr.,
Moscow, 123182, Russia
Blagov_ae@nrcki.ru

Anton G. Kulikov
FSRC “Crystallography and Photonics”, RAS
59 Leninsky Ave., Moscow, 119333, Russia
ontonic@gmail.com

Elena N. Ovchinnikova
M.V. Lomonosov Moscow State University
1-2 Leninskie Gory, Moscow, 119991, Russia
en_ovchinnikova@physics.msu.ru

Nikita V. Marchenkov
Kurchatov Complex for Synchrotron
and Neutron Investigations of NRC “Kurchatov Institute”
1 Akademika Kurchatova Sqr.,
Moscow, 123182, Russia
marchenkov_nv@mail.ru

Matthias Zschornak
Technische Universität Bergakademie
Freiberg, Institute of Experimental Physics
Leipziger Str. 23, 09599 Freiberg, Germany
matthias.zschornak@physik.tu-freiberg.de

Abstract

The German-Russian program on controlled tuning of atomic structure in functional materials by acoustic waves and electric fields was initiated through the DFG and RFBR project (N19-52-12019). In a joint research cooperation of the applicants group it is shown that defect engineering could be used as a route to design new piezoelectrics. German and Russian scientific groups investigate the effects of electric fields and ultrasonic excitation on the atomic structure of crystals. In the experiments of the lattice transformation in paratellurite TeO_2 under the influence of electric fields the formation of the near-surface layer induced by oxygen vacancies migration and small atomic displacements was discovered. DFT calculations, done to estimate atomic displacements in paratellurite TeO_2 , have shown the possibility of the symmetry reduction as a result of a weak displacements under homogeneous deformation. Paratellurite TeO_2 was used as a model object to test the setup for the study of resonant X-ray diffraction with electric field and acoustic waves at the synchrotron beamlines. This method is very sensitive to small atomic displacements and defects. Two energy spectra of forbidden reflections in TeO_2 were successfully measured in the vicinity of L_1 absorption edge of Te at the Kurchatov synchrotron radiation source and P23 beamline of PETRA III.

Keywords: piezoelectrics, vacancies diffusion, X-ray diffraction, synchrotron radiation.

* The work was financially supported by RFBR and DFG (project 19-52-12019).



Images & Tables

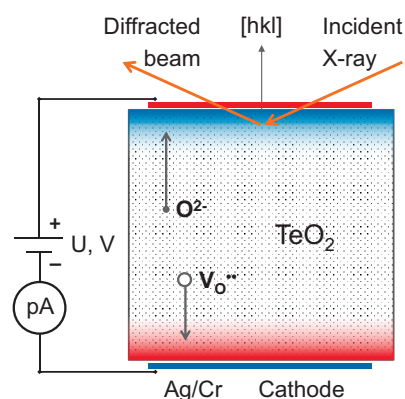


Fig. 1. The scheme of X-ray diffraction experiment with a sample under the electric field influence.

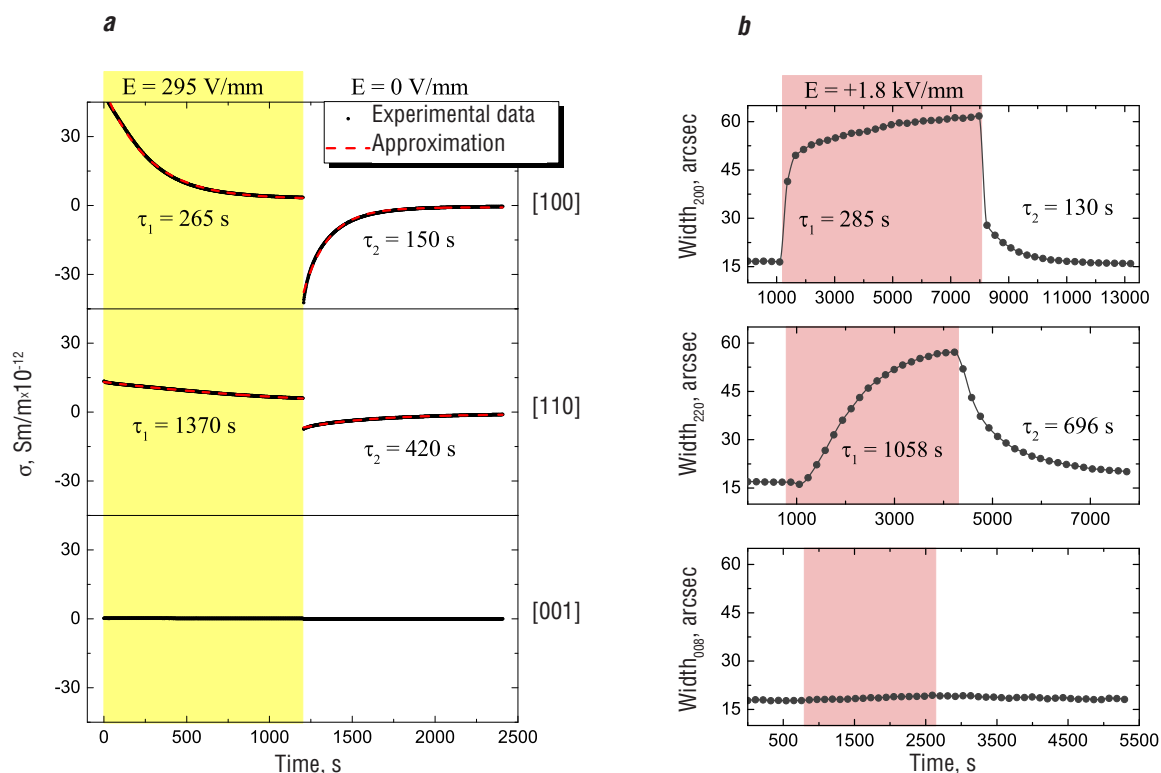


Fig. 2. a – The study of conductivity kinetics. The results of measurements along the directions 100, 110 and 001 within 1200 s after the electric field of 295 V/mm was switched on and off. b – Dynamics of the diffraction peaks broadening. τ_1 and τ_2 are the typical times describing the saturation and relaxation of conductivity and width of the diffraction peaks.

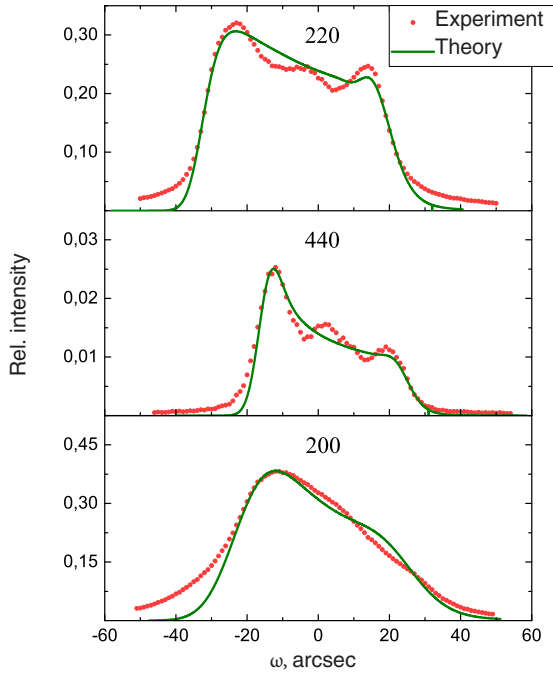


Fig.3. A comparison of the experimental data for 220, 440 and 200 reflections in paratellurite with the results of simulations in approximation of multilayer structure with different amplitudes of induced strains of the crystal lattice in the layers.

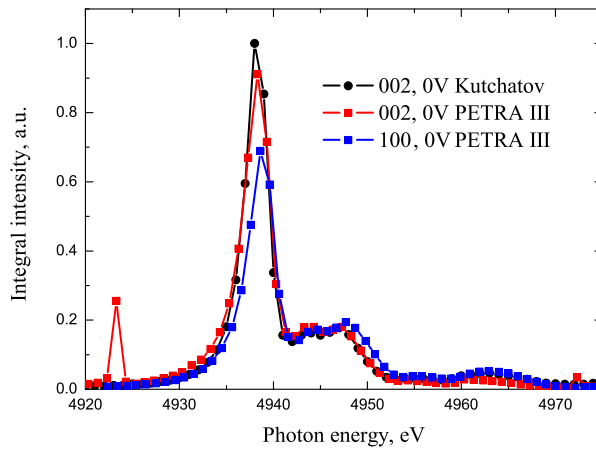


Fig. 4. Energy spectra of the forbidden reflections 002 and 100 measured at the P23 beamline of the synchrotron PETRA III and station “FAZA” of the Kurchatov synchrotron radiation source.

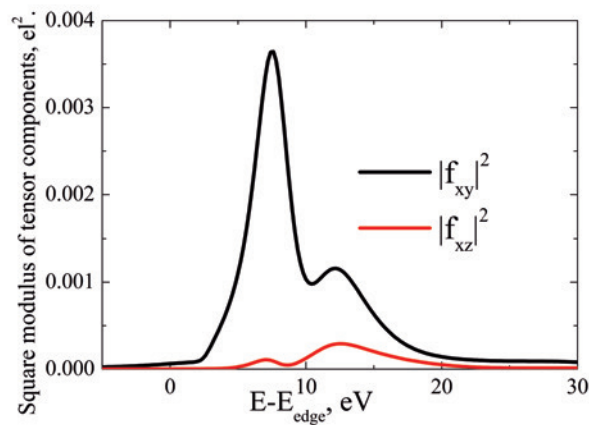


Fig. 5. Energy dependencies of the tensor atomic factor components close to the L_1 absorption edge of tellurium obtained from the analysis of experimental data.



Fig. 6. Participants of the Russian and German scientific groups during the experiment at the DESY synchrotron research center (Hamburg, Germany).



Fig. 7. A.G. Kulikov and M. Zhornak discuss the progress of the experiment at the P23 beamline of the PETRA III synchrotron.



Fig. 8. A.G. Kulikov during the measurements at the beamline P23 of the synchrotron PETRA III.



Fig. 9. Participants of the Russian-German seminar in January 2020 in Moscow, Federal Research Scientific Center "Crystallography and Photonics".

References

1. A.G. Kulikov, A.E. Blagov, N.V. Marchenkov, V.A. Lomonov, A.V. Vinogradov, Y.V. Pisarevskiy, M.V. Kovalchuk *JETP Lett.* 2018, **107**, 646. DOI: 10.1134/S002136401810012.
2. A.G. Kulikov, Y.V. Pisarevskii, A.E. Blagov, N.V. Marchenkov, V.A. Lomonov, A.A. Petrenko, M.V. Kovalchuk *Phys. Solid State*, 2019, **61**, 548. DOI: 10.1134/S1063783419040188.
3. A.E. Blagov, Yu.V. Pisarevskii, P.A. Prosekov, A.V. Targonskii, Ya.A. Eliovich, A.I. Protsenko, M.V. Kovalchuk *Crystallogr. Rep.*, 2017, **62**, 831. DOI: 10.1134/S1063774517060037.
4. N.V. Marchenkov, A.G. Kulikov, I.I. Atkin, A.A. Petrenko, A.E. Blagov, M.V. Kovalchuk *Phys. Usp.*, 2019, **62**, 179. DOI: 10.3367/UFNe.2018.06.038348.
5. B. Khanbabaee, E. Mehner, C. Richter, J. Hanzig, M. Zschornak, U. Pietsch, H. Stocker, T. Leisegang, D.C. Meyer, S. Gorfman *Appl. Phys. Lett.*, 2016, **109**, 222901. DOI: 10.1063/1.4966892.
6. C. Richter, M. Zschornak, D. Novikov, E. Mehner, M. Nentwich, J. Hanzig, S. Gorfman, D.C. Meyer *Nat. Commun.*, 2018, **9**, 178. DOI: 10.1038/s41467-017-02599-6.
7. M. Zschornak, C. Richter, M. Nentwich, H. Stöcker, S. Gemming, D.C. Meyer *Cryst. Res. Technol.*, 2014, **49**, 43. DOI: 10.1002/crat.201300430.
8. A.G. Kulikov, A.E. Blagov, A.S. Ilin, N.V. Marchenkov, Yu.V. Pisarevskii, M.V. Kovalchuk *J. Appl. Phys.*, 2020, **127**, 065106. DOI: 10.1063/1.5131369.
9. C. Richter, D.V. Novikov, E.Kh. Mukhamedzhanov, M.M. Borisov, K.A. Akimova, E.N. Ovchinnikova, A.P. Oreshko, J. Stempffer, M. Zschornak, E. Mehner, D.C. Meyer, V.E. Dmitrienko *Phys. Rev.*, 2014, **B89**, 094110. DOI: 10.1103/PhysRevB.89.094110.
10. A.G. Kulikov, A.E. Blagov, N.V. Marchenkov, Yu.V. Pisarevskii, M.V. Kovalchuk *Phys. Solid State*, 2020, **62**, 2120. DOI: 10.21883/FTT.2020.12.50216.087.
11. E. Ovchinnikova, D. Novikov, M. Zschornak, A. Kulikov, K. Kozlovskaya, V. Dmitrienko, A. Oreshko, A. Blagov, E. Mukhamedzhanov, N. Marchenkov, M. Borisov, A. Khadiev, A. Petrenko, Y. Pisarevsky *Crystals*, 2020, **10**, 719. DOI: 10.3390/cryst10090719.
12. A.E. Blagov, Yu.V. Pisarevskii, A.V. Targonskii, Ya.A. Eliovich, M.V. Kovalchuk *Phys. Solid State*, 2017, **59**, 973. DOI: 10.1134/S1063783417050055.

Непрямозонные гетероструктуры: рекомбинация и спиновая динамика экситонов

Т.С. Шамирзаев

Рассматривается поведение экситонов в гетероструктурах с непрямозонными квантовыми ямами и квантовыми точками, изученное при финансовой поддержке РФФИ и DFG. Продемонстрированы возможности: управляемого изменения времени излучательной рекомбинации экситона в диапазоне от нескольких десятков наносекунд до десятков микросекунд; экспериментального исследования спиновой динамики долгоживущих локализованных экситонов; использования квазирезонансных оптических методов для возбуждения непрямозонных экситонных состояний. Исследовано электрон-ядерное взаимодействие в непрямозонных квантовых точках (In,Al)As/AlAs. Определены значения констант сверхтонкого взаимодействия локализованного в X-долине зоны проводимости электрона с ядрами As, In и Al. Выявлен новый механизм ориентации спина локализованных электронов: динамическая спиновая поляризация экситонов, обеспечиваемая флуктуациями спина ядер через сверхтонкое взаимодействие в слабом магнитном поле.

Ключевые слова: полупроводниковые квантовые точки, спин, когерентная динамика экситонов, магнитооптика наноструктур.

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проект №№ 10-02-00240, 13-02-00073, 15-52-12012, 16-02-00242, 19-02-00098, 19-52-12001, 19-52-12043, 409810106, ICRC TRR160, YA 65/14-1 и YA 65/19-1).

Введение

Энергетическое строение низкоразмерных гетероструктур определяет распределение носителей заряда:

1. В пространстве квазиимпульсов, где могут реализоваться два варианта:

- прямозонные структуры, когда электрон и дырка расположены в одной и той же точке зоны Бриллюэна, и

- непрямозонные структуры, образующиеся, когда носители заряда имеют разное значение квазиимпульса;

2. В реальном пространстве, где также возможно два варианта:

- структуры первого рода, в которых оба носителя заряда (и электрон, и дырка) локализованы в одном из составляющих структуру полупроводников, и

- структуры второго рода, в которых электроны и дырки разделяются в реальном пространстве между слоями различных полупроводников.

Таким образом, в общем случае существуют четыре различных типа энергетического спектра низкоразмерных гетероструктур, показанных на рис. 1.

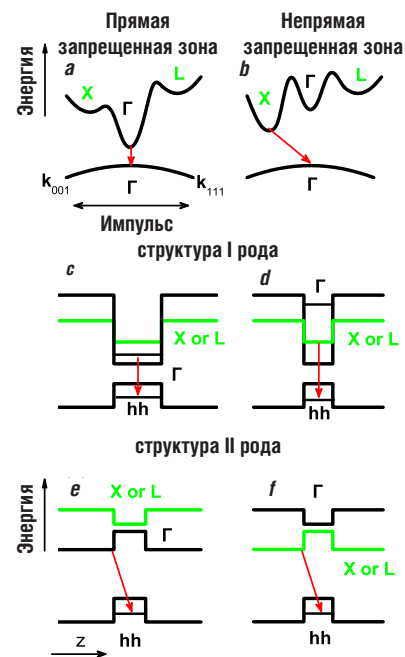


Рис. 1. Зонные диаграммы гетероструктур. В пространстве квазиимпульсов: а – прямозонные и b – непрямозонные. В реальном пространстве: с – прямозонные первого рода, d – непрямозонные первого рода, e – прямозонные второго рода, f – непрямозонные второго рода. Стрелками обозначены оптические переходы экситонов в основное состояние.

В непрямозонных структурах можно исследовать физические процессы, изучение ко-



ШАМИРЗАЕВ
Тимур Сезгирович
Институт физики полупроводников
им. А.В. Ржанова СО РАН

торых в прямозонных структурах затруднено. Характерным примером такого процесса является спиновая динамика локализованных экситонов.

Как это было показано в многочисленных теоретических работах, локализация приводит к подавлению механизмов, определяющих переворот спина свободно двигающихся электронных возбуждений, таких как механизмы Эллиота – Яфета и Дьяконова – Переля, а время жизни спиновых состояний локализованных экситонов может достигать миллисекунд [1]. Поэтому непрямозонные гетероструктуры, в которых времена жизни экситонов сравнимы со временами их спиновой релаксации, являются очень удобным объектом для экспериментального изучения спиновой динамики локализованных экситонов.

Наша совместная работа с Техническим Университетом Дортмунда по изучению полупроводниковых гетероструктур с непрямой запрещенной зоной началась в 2009 г. и продолжается поныне. В настоящее время работа поддерживается совместным грантом РФФИ – DFG № 19-52-120001. Ниже приведены основные результаты, полученные в процессе совместной работы при поддержке РФФИ.

Некогерентная динамика рекомбинации экситонов в непрямозонных гетероструктурах

Основными механизмами излучательной рекомбинации экситонов в непрямозонных гетероструктурах являются одновременное испускание фотона и фонона или смешивание электронных состояний различных долин зоны проводимости на гетерогранице, ответственное за появление в спектрах фотолюминесценции (ФЛ) линий бесфононной рекомбинации. В непрямозонных квантовых точках (КТ) первого рода основным каналом излучательных переходов экситонов является бесфононная рекомбинация (рис. 2а) [2]. Следовательно, вероятность рекомбинации экситона в таких КТ определяется структурой гетерограницы КТ/матрица, которая и определяет динамику их рекомбинации.

Динамика рекомбинации экситонов в ансамбле (In,Al)As/AlAs КТ после импульсного возбуждения для гетероструктур до и после отжига содержит два характерных участка (рис. 2с): участок относительно слабого затухания ФЛ непосредственно после импульса возбуждения, сменяющийся затуханием, описываемым степенным законом $I(t) \sim (1/t)^\alpha$. Неэкспоненциальность динамики экситонной ФЛ в ансамблях КТ обусловлена вкладом экситонов, излучающих на одной длине волны, но локализованных в КТ с разными временами излучательной рекомбинации τ , и может быть описана выражением:

$$I(t) = \int_0^\infty G(\tau) e^{-t/\tau} d\tau$$

Определенная в работе [3] функция распределения времен жизни экситонов

$$G(\tau) = \frac{C}{\tau^\gamma} e^{-\tau/\tau_0}$$

(где C – константа, $\gamma = \alpha + 1$, α – наклон кривой затухания, а τ_0 характеризует наиболее вероятное время жизни экситонов в ансамбле КТ) позволяет описывать динамику рекомбинации экситонов в широком динамическом диапазоне. Изменить атомную структуру гетерограницы КТ/матрица можно при послеростовом высокотемпературном отжиге за счет диффузии материала, из которого состоит КТ, в окружающую матрицу. Отжиг приводит к увеличению размеров КТ (рис. 2b) за счет образования размытого слоя твердого раствора $In_xAl_{1-x}As$ переменного состава (от InAlAs, соответствующего составу КТ, до чистого AlAs) на гетерогранице КТ/матрица. Толщина этого слоя определяется температурой и длительностью отжига. Параметры функции распределения зависят от условий отжига, как это показано на рис. 2d, и равны ($\gamma = 2.55$; $\tau_0 = 0.13$ мкс) и ($\gamma = 3.40$; $\tau_0 = 5.2$ мкс), для, соответственно, неотожженной и отожженной при температуре 850°C гетероструктур. Таким образом, отжиг приводит к существенному увеличению характерного времени жизни экситонов в ансамбле КТ, которое может изменяться от десятков наносекунд до десятков и даже сотен микросекунд.

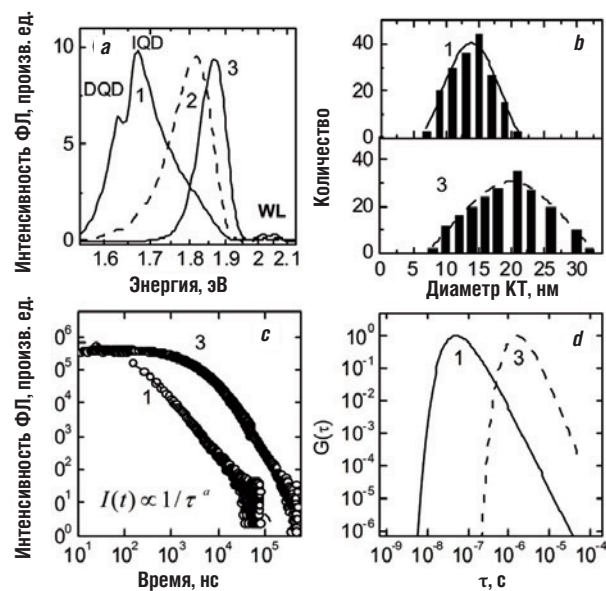


Рис. 2. а – Низкотемпературные (5 К) спектры ФЛ структур с КТ, отожженных в течении одной минуты в потоке водорода при температурах: 1 – неотожженная, 2 – 700°C, 3 – 850°C. б – Гистограммы распределения диаметров КТ в структурах до (1) и после (3) отжига при температуре 850°C. в – Динамика экситонной ФЛ (кружочки) в КТ, измеренная при температуре T=5 К в максимуме полосы ФЛ до (1) и после (3) отжига при температуре 850°C. Штриховыми линиями отмечены кинетические кривые, рассчитанные с использованием функции распределения G(tau) с параметрами, приведенными в тексте. д – Нормированные распределения G(tau) в ансамбле КТ до (1) и после (3) отжига при температуре 850°C.

Спиновая динамика экситонов в непрямозонных гетероструктурах в магнитных полях

Динамика рекомбинации и спиновая динамика экситонов в магнитных полях различной напряженности и ориентации изучалась в гетероструктурах с непрямозонными монослойными квантовыми ямами (КЯ) GaAs/AlAs. В этой системе нами получены следующие важные результаты.

1. При низкой температуре 2 К обнаружено необычное поведение неполяризованной фотолюминесценции экситонов: с ростом магнитного поля в геометрии Фарадея (продольное поле) происходит уменьшение ее интенсивности (рис. 3а) и одновременное увеличение времени рекомбинации экситонов (рис. 3б). Эффект исчезает при повышении температуры (рис. 3д) и/или при переходе к геометрии Фохта (рис. 3с).

Было показано, что наблюдаемый эффект обусловлен спиновой релаксацией экситонов в темное состояние – в больших магнитных полях это состояние становится основным и происходит возрастание его заселенности. Анализ экспериментальных данных для этих структур позволил нам определить времена излучательной рекомбинации светлого экситона и безызлучательной

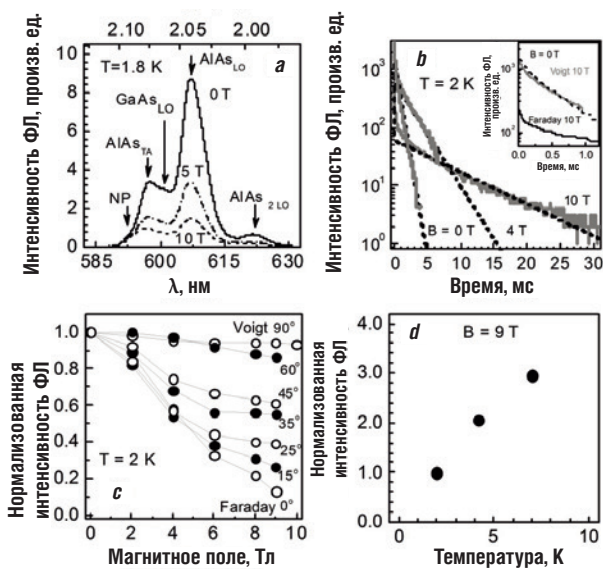


Рис. 3. а – Спектры ФЛ GaAs/AlAs КЯ в продольных магнитных полях 0, 5 и 10 Тл в геометрии Фарадея, стрелками показаны положения бесфонной полосы NP и ее фоновных повторений. б – Динамика ФЛ GaAs/AlAs КЯ в продольных магнитных полях 0, 4 и 10 Тл в геометрии Фарадея. На вставке динамика ФЛ GaAs/AlAs КЯ в полях 0 Тл (штриховая линия) и 10 Тл (черная линия – геометрия Фарадея, серая – Фохта). с – Полевые зависимости интегральной интенсивности ФЛ GaAs/AlAs КЯ при различных углах между направлением поля и волновым вектором излучаемых фотонов. д – Температурная зависимость интегральной интенсивности ФЛ GaAs/AlAs КЯ в геометрии Фарадея в поле 9 Тл.

рекомбинации темного экситона, равные, соответственно, 0.34 мс и 8.5 мс [4].

2. При изучении наведенной магнитным полем циркулярной поляризации ФЛ (ρ_c) также было обнаружено необычное поведение: в геометрии Фарадея с ростом напряженности поля степень наведенной циркулярной поляризации в малых полях возрастает (до 0.6 при 4.5 Тл), а в больших полях начинает уменьшаться (до 0.4 при 10 Тл) (рис. 4а). В то же время при отклонении направления поля от геометрии Фарадея на 30–60 градусов степень наведенной полем циркулярной поляризации ФЛ монотонно возрастает и выходит на насыщение на 0.72 при 10 Тл (рис. 4с). Температурная зависимость абсолютного значения степени наведенной магнитным полем 10 Тл поляризации $|\rho_c|$ немонотонна (рис. 4б). Она увеличивается от 0.4 до 0.6 с ростом температуры от 2 до 4 К и начинает монотонно уменьшаться при более высоких температурах. В предложенной нами модели эффекты объясняются тем, что основное состояние экситона в продольном магнитном поле является «темным» (рис. 4д).

В малых магнитных полях ФЛ, когда Зеемановское расщепление экситонных состояний невелико, степень циркулярной поляризации ФЛ возрастает из-за увеличения с ростом поля разности заселен-

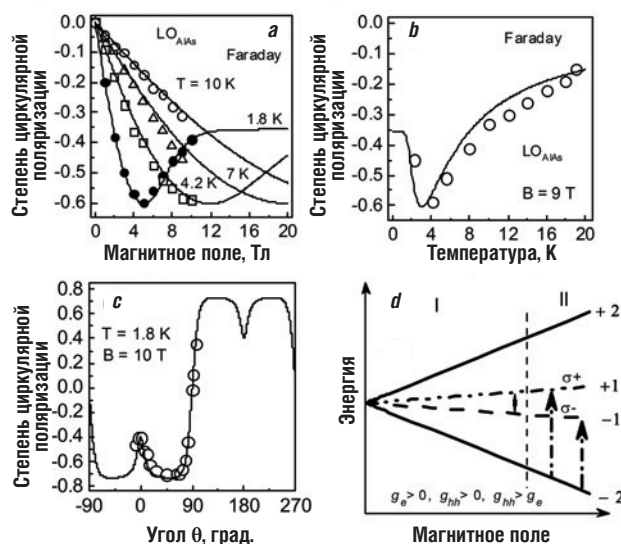


Рис. 4. Степень наведенной продольным магнитным полем циркулярной поляризации ФЛ GaAs/AlAs КЯ: а – полевая зависимость при температурах, К: 1.8, 4.2, 7, 10; б – температурная зависимость в продольном поле 9 Тл; с – зависимость от ориентации магнитного поля 10 Тл при температуре 1.8 К. д – Тонкая структура экситонных состояний в продольном магнитном поле. Цифрами показаны проекции углового момента состояний. Вертикальными стрелками обозначены переходы из оптически неактивного состояния в оптически активные, необходимые для излучательной рекомбинации в сильных магнитных полях.

ности оптически активных состояний экситона (проекция момента на ось поля ± 1). С ростом напряженности магнитного поля возрастает доля экситонов, релаксирующих за счет переворота спина электрона или дырки в оптически неактивное состояние (проекция момента на ось поля равна -2). Большая разность во времена спиновой релаксации электронов и дырок приводит к уменьшению разности в заселенности оптически активных состояний и, как следствие, к уменьшению степени циркулярной поляризации ФЛ. В наклонном магнитном поле смешивание оптически активных и неактивных состояний поперечной компонентой магнитного поля выравнивает скорости спиновой релаксации электронов и дырок, что приводит к повышению степени поляризации в сильных полях. Определены времена спиновой релаксации составляющих экситон электрона и дырки, равные, соответственно, 33 мкс и 3 мкс и g -фактор тяжелой дырки равный +3.5 [5].

3. Линейная поляризация ФЛ квантовых ям GaAs/AlAs в поперечном магнитном поле обусловлена двумя вкладками. Один из них спектрально зависим, но не зависит от температуры измерения и напряженности магнитного поля. Этот вклад определяется несимметричностью атомной структуры КЯ. Второй вклад спектрально независим, резко уменьшается с ростом температуры и связан с перемешиванием состояний тяжелых и легких дырок поперечным магнитным полем. Определены степень анизотропии и величины g -фактора дырок в плоскости КЯ. Показано, что $g_{xx} = -g_{yy} = 0.25$ [6].

Квазирезонансное возбуждение непрямозонных экситонных состояний

Слабое экситон-фотонное взаимодействие, обусловленное сохранением квазиимпульса, создает препятствия для применения резонансных методов возбуждения электронных состояний в непрямозонных гетероструктурах. Тем не менее, существует подкласс непрямозонных гетеросистем, особенности энергетического строения которых допускают резонансное оптическое возбуждение непрямых в пространстве квазиимпульсов экситонов. Одним из представителей таких систем являются квантовые точки, сформированные в гетеросистеме InAs/AlAs. В ансамблях квантовых точек (In,Al)As/AlAs с дисперсией размеров могут сосуществовать точки с нижним электронным состоянием, принадлежащим как Γ -, так и X -минимуму зоны проводимости [7]. В КТ большого размера нижний электронный уровень принадлежит Γ -минимуму зоны проводимости (рис. 1с). С уменьшением размера КТ состоя-

ние электрона в Γ -минимуме зоны проводимости смещается значительно сильнее, чем состояние электрона в X -минимуме (рис. 5а). Это приводит к тому, что при некотором размере КТ, значение которого зависит от состава твердого раствора (In,Al)As [7], уровни электронов, принадлежащие Γ - и X -минимумам зоны проводимости, пересекаются (в точке, обозначенной на рис. 5а), и состояние X -минимума становится нижним (рис. 1д), а состояние Γ – возбужденным электронным состоянием в КТ [2, 8]. Модификация энергетического спектра при изменении размера КТ отчетливо проявляется в спектральной зависимости времени затухания экситонной ФЛ, измеренной в работе [8] при нерезонансном возбуждении и показанной на рис. 5б.

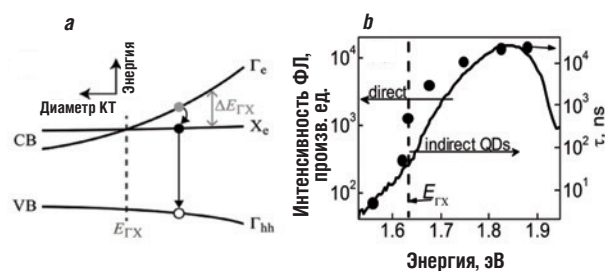


Рис. 5. а – Зонная диаграмма (In,Al)As/AlAs КТ различного размера; VB – положение потолка валентной зоны, СВ – дна зон проводимости. Разница в энергиях между электронными состояниями в Γ - и X -минимумах зоны проводимости обозначена как ΔE_{GX} . Энергия E_{GX} , соответствует пересечению уровней электронов в Γ - и X -минимумах зоны проводимости при некотором характерном размере КТ. б – Спектр ФЛ-ансамбля КТ при нерезонансном возбуждении ($\hbar\omega = 3.49$ эВ) в нулевом магнитном поле при температуре 1.8 К (сплошная линия) и спектральная зависимость времени затухания экситонной ФЛ (заполненные кружки). Вертикальная пунктирная линия отмечает спектральное положение экситонной ФЛ в КТ с совпадающими энергиями состояний электронов в Γ - и X -долинах зоны проводимости.

В низкоэнергетической области спектра ($\hbar\omega < 1.6$ эВ), соответствующей рекомбинации прямозонных экситонов в «больших» КТ, время затухания ФЛ составляет единицы наносекунд. В то же время в высокоэнергетической области спектра ($\hbar\omega > 1.7$ эВ), соответствующей рекомбинации непрямозонных экситонов в «маленьких» КТ, такое же затухание ФЛ длится десятки и даже сотни микросекунд. Подансамбль КТ с близкими значениями энергий электронов в Γ - и X -минимумах зоны проводимости излучает в области энергий $1.6 \text{ эВ} < \hbar\omega < 1.7 \text{ эВ}$.

Оптическая ориентация непрямозонных экситонов

При селективном возбуждении ансамбля (In,Al)As/AlAs КТ в приведенных на рис. 6а спектрах ФЛ появляется серия полос с шириной много меньшей, чем ширина полосы при нерезонансном возбуждении, показанная на рис. 5б.

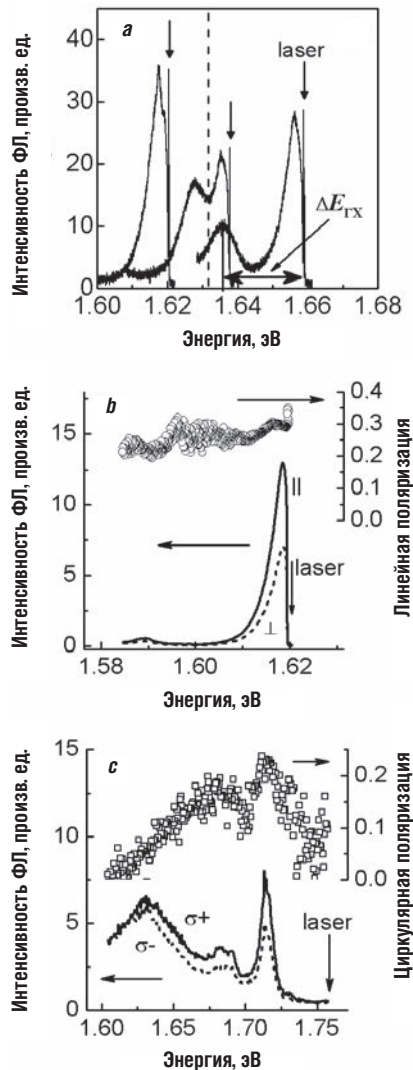


Рис. 6. а – Спектры ФЛ ансамбля (In,Al)As/AlAs КТ, измеренные в режиме селективного возбуждения, при $T=5$ К. Энергии фотонов возбуждающего лазерного излучения обозначены вертикальными стрелками. Спектры ФЛ (In,Al)As/AlAs и поляризация ФЛ при селективном лазерном возбуждении: б – линейно поляризованным светом с энергий фотонов 1.62 эВ, с – циркулярно поляризованным светом с энергий фотонов 1.76 эВ в прямозонной и непрямозонной части ансамбля КТ соответственно. Спектральные зависимости степени поляризации ФЛ показаны на правых осях рисунков.

Полоса ФЛ на рис. 6б в низкоэнергетической области спектра обусловлена резонансным возбуждением прямозонных КТ. Серия полос в спектре ФЛ при возбуждении в непрямозонной части ансамбля рис. 6с обусловлена тем, что фотоны с одной и той же энергией могут поглощаться в точках различного размера с разным энергетическим зазором $\Delta E_{ГХ}$ между возбужденным и основным состоянием. Каждая полоса соответствует рекомбинации экситонов в подансамбле КТ с близкой энергетической структурой. При резонансном возбуждении прямозонных КТ циркулярно поляризованным светом ФЛ не поляризована. Однако при возбуждении этих КТ линейно

поляризованным светом наблюдается линейная поляризация излучения (так называемое оптическое выстраивание, рис. 6б), обусловленная хорошо известным эффектом смешивания экситонных состояний анизотропным вкладом в обменное взаимодействие между электроном и дыркой в КТ, форма которых отклоняется от сферической. В непрямозонных КТ, отличающихся от прямозонных только размером, но не формой (!), напротив, при линейно поляризованном квазирезонансном возбуждении оптическое выстраивание отсутствует, а при возбуждении циркулярно поляризованным светом излучение циркулярно поляризовано (рис. 6с). Оптическая ориентация в непрямозонных КТ связана с подавлением обменного взаимодействия между электроном и дыркой, локализованными в разных точках зоны Бриллюэна. Мы показали, что анизотропное обменное расщепление экситонных состояний в непрямозонных КТ (In,Al)As/AlAs первого рода не превышает 4×10^{-8} эВ [9]. Подавление обменного взаимодействия при последовательном переходе от прямозонных к непрямозонным состояниям в КТ, экситонные состояния которых формируются из электронных состояний с Г-Х-смешиванием, было также продемонстрировано в работе [10].

Сверхтонкое взаимодействие электрона в Х-долине зоны проводимости

Поскольку при подавлении механизмов спиновой релаксации, связанных с движением квазичастиц, важную роль начинает играть взаимодействие спина электрона с ядерными спинами, сверхтонкое взаимодействие активно изучалось для экситонов и носителей заряда, локализованных в структурах с прямозонными КТ [11]. Мы измерили сверхтонкое взаимодействие для электронов в непрямых минимумах запрещенной зоны Бриллюэна, где волновые функции не являются чисто s-типом. Для экспериментального определения электрон-ядерного взаимодействия измерялась циркулярная поляризация фотолюминесценции (In,Al)As/AlAs КТ в поперечном (эффект Ханле) и продольном (эффект восстановления циркулярной поляризации PRC) магнитных полях. Фотолюминесценция непрямозонных КТ возбуждалась квазирезонансно, через возбужденные состояния электрона, принадлежащие Г-долине зоны проводимости циркулярно-поляризованным излучением. Теоретический симметричный анализ электронных блоховских амплитуд в Х-долине и микроскопический расчет методом DFT показывают, что сверхтонкое взаимодействие в Х-долине, во-первых, подавлено по сравнению с

Γ -долиной, и, во-вторых, анизотропно. Было показано, что константы сверхтонкого взаимодействия электронов в X -долине зоны проводимости с ядрами атомов In и Al заметно меньше, чем даже для дырок в Γ -долине. Впервые определены значения констант сверхтонкого взаимодействия локализованного в X -долине зоны проводимости электрона с ядрами As, In и Al [12]. Неожиданным результатом, полученным в этой работе, было более точное описание экспериментальных зависимостей теоретическими кривыми, рассчитанными для электронов в X_z -долине зоны проводимости, в то время как основными электронными состояниями в эти КТ являются состояния X_{xy} -долин зоны проводимости AlInAs [2].

Динамическая спиновая поляризация локализованных электронов

Обнаружен новый механизм спиновой ориентации локализованных электронов: динамическая спиновая поляризация электронов при взаимодействии с флуктуациями ядерного спина в слабом магнитном поле [13]. Построена теория, показывающая, что степень поляризации электронов (P_e) описывается выражением:

$$P_e = \frac{-2B_Z B_{exch}}{B_{exch}^2 + \frac{\Delta^2}{2} + B_Z^2}, \quad (1)$$

где B_Z – напряженность продольного магнитного поля, B_{exch} – обменное поле взаимодействия электрона и дырки и Δ – дисперсия поля Оверхаузера, обусловленного флуктуациями спинов ядер. Видно, что при уменьшении дисперсии степень поляризации стремится к 1.0. Теоретические расчеты подтверждаются экспериментами. Образец возбуждался импульсами неполяризованного света, который напрямую не поляризует ни ядра, ни электроны, с длительностью 1 нс и частотой повторения 1 кГц.

Динамика степени циркулярной поляризации ФЛ в продольном магнитном поле 17 мТл показана на рис. 7а. Видно, что поляризация появляется с задержкой в 15 мкс после окончания импульса возбуждения (то есть после рекомбинации светлых экситонов, в полном соответствии с предсказаниями теории) и насыщается на уровне 0.3 через 100 мкс. Зависимость степени поляризации от магнитного поля, проинтегрированная для двух временных окон, показана на рис. 7б. Степень увеличивается в слабых полях, достигает максимума в 0.3 при B_Z порядка 17 мТл, а затем монотонно уменьшается, стремясь к нулю в сильных полях. Аппроксимация этой зависимости по формуле (1) позволяет определить параметры $\Delta = 28$ мТл и $B_{exch} = 5.5$ мТл.

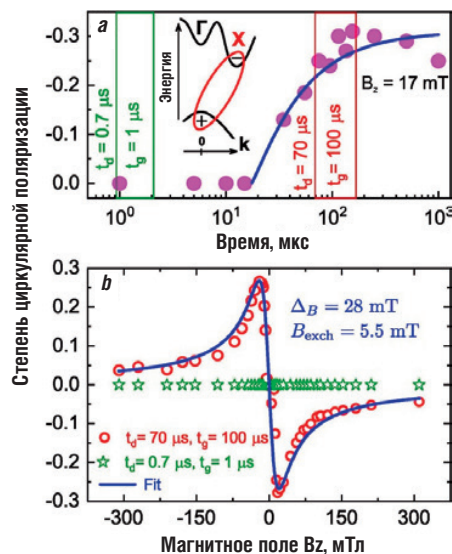


Рис. 7. а – Динамика степени круговой поляризации ФЛ, измеренная при $B_z = 17$ мТл и $T = 2$ К, время интегрирования 5 мкс. Вертикальные линии показывают окна интегрирования по времени для панели (b). На вставке показана зонная диаграмма КТ (In,Al)As/AlAs. б – Зависимости степени поляризации ФЛ от магнитного поля, измеренные при: 0.7 мкс (зеленые звезды) и 70 мкс (красные кружки) с окнами интегрирования 1 мкс и 100 мкс соответственно. Синяя линия аппроксимация по формуле (1) при $\Delta = 28$ мТл и $B_{exch} = 5.5$ мТл.

Заключение

Таким образом, несмотря на ограничения, накладываемые в непрямозонных гетероструктурах законом сохранения квазиимпульса на один из фундаментальнейших параметров экситона – время рекомбинации, существует возможность управлять временами жизни экситона в широких пределах, от десятков наносекунд до сотен микросекунд. Увеличение времени жизни экситона в квантовых ямах и квантовых точках с таким энергетическим спектром возможно за счет изменения структуры гетерограницы при ее «диффузном» размывании в процессе послеростового высокотемпературного отжига, уменьшающем смешивание волновых функций электронных состояний, принадлежащих различным минимумам зоны проводимости. Длительные времена рекомбинации делают непрямозонные гетероструктуры удобными объектами для изучения спиновой динамики локализованных экситонов, для которых подавление основных механизмов, определяющих переверт спина свободно двигающихся электронных возбуждений, драматически замедляет времена спиновой релаксации. Показано, что сверхтонкое взаимодействие электронов в X -долине, во-первых, подавлено по сравнению с Γ -долиной, и, во-вторых, анизотропно. Определены значения констант сверхтонкого взаимодействия локализованного в X -долине зоны проводимости электрона с ядрами As, In и Al. Показана возможность динамической поляризации локализованных электронов через сверхтонкое

взаимодействие с флуктуациями спина ядер в слабом магнитном поле.

Данные результаты получены благодаря финансовой поддержке РФФИ в рамках проектов №№ 10-02-00240, 13-02-00073, 15-52-12012, 16-02-00242, 19-02-00098, 19-52-12001, 19-52-12043 и DFG Projects No. 409810106, ICRC TRR160, YA 65/14-1, YA 65/19-1. Автор выражает искреннюю благодарность коллегам по совместной работе по излучению непрямозонных гетероструктур А.И. Торопову, А.К. Бакарову, Д.В. Дми-

триеву, А.К. Калагину, М.А. Путятю, синтезировавшим образцы, А.К. Гутаковскому, проводившему структурные измерения, Д.С. Абрамкину, А.В. Ненашеву, рассчитывающим энергетические спектры структур, J. Debus, D. Dunker, J. Rautert, А.М. Гилинскому за помощь при проведении измерений, В.Ф. Сапеге, Д.Р. Яковлеву, М. Байер за плодотворные обсуждения полученных результатов, Л.С. Брагинскому, Е.Л. Ивченко, М.М. Глазову, Д.С. Смирнову за теоретическую поддержку.

Литература

1. A.V. Khaetskii, Yu.V. Nazarov
Phys. Rev. B, 2001, **64**, 125316.
DOI: 10.1103/PhysRevB.64.125316.
2. T.S. Shamirzaev, A.V. Nenashev, A.K. Gutakovskii, A.K. Kalagin, K.S. Zhuravlev, M. Larsson, P.O. Holtz
Phys. Rev. B, 2008, **78**, 085323.
DOI: 10.1103/PhysRevB.78.085323.
3. T.S. Shamirzaev, J. Debus, D.S. Abramkin, D. Dunker, D.R. Yakovlev, D.V. Dmitriev, A.K. Gutakovskii, L.S. Braginsky, K.S. Zhuravlev, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2011, **84**, 155318.
DOI: 10.1103/PhysRevB.84.155318.
4. T.S. Shamirzaev, J. Debus, D.R. Yakovlev, M.M. Glazov, E.L. Ivchenko, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2016, **94**, 045411.
DOI: 10.1103/PhysRevB.94.045411.
5. T.S. Shamirzaev, J. Rautert, D.R. Yakovlev, J. Debus, A.Yu. Gornov, M.M. Glazov, E.L. Ivchenko, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2017, **96**, 035302.
DOI: 10.1103/PhysRevB.96.035302.
6. T.S. Shamirzaev, J. Rautert, D.R. Yakovlev, M.M. Glazov, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2019, **99**, 155301. DOI: 10.1103/PhysRevB.99.155301.
7. T.S. Shamirzaev, A.V. Nenashev, K.S. Zhuravlev
Appl. Phys. Lett., 2008, **92**, 213101. DOI: 10.1063/1.2917811.
8. J. Debus, T.S. Shamirzaev, D. Dunker, V.F. Sapega, E.L. Ivchenko, D.R. Yakovlev, A.I. Toropov, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2014, **90**, 125431.
DOI: 10.1103/PhysRevB.90.125431.
9. J. Rautert, T.S. Shamirzaev, S.V. Nekrasov, D.R. Yakovlev, P. Klenovsky, Yu.G. Kusrayev, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2019, **99**, 195411. DOI: 10.1103/PhysRevB.99.195411.
10. J. Rautert, M.V. Rakhlin, K.G. Belyaev, T.S. Shamirzaev, A.K. Bakarov, A.A. Toropov, I.S. Mukhin, D.R. Yakovlev, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2019, **100**, 205303. DOI: 10.1103/PhysRevB.100.205303.
11. J. Fischer, W.A. Coish, D.V. Bulaev, D. Loss
Phys. Rev. B, 2008, **78**, 155329.
DOI: 10.1103/PhysRevB.78.155329.
12. M.S. Kuznetsova, J. Rautert, K.V. Kavokin, D.S. Smirnov, D.R. Yakovlev, A.K. Bakarov, A.K. Gutakovskii, T.S. Shamirzaev, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2020, **101**, 075412. DOI: 10.1103/PhysRevB.101.075412.
13. D.S. Smirnov, T.S. Shamirzaev, D.R. Yakovlev, M. Bayer
Phys. Rev. Lett., 2020, **125**, 156801.
DOI: 10.1103/PhysRevLett.125.156801.

English

Indirect Band Gap Heterostructures: Exciton Recombination and Spin Dynamics

Timur S. Shamirzaev

Rzhanov Institute of Semiconductor Physics, RAS
13 Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russia
tim@isp.nsc.ru

Abstract

The behavior of excitons in heterostructures with indirect band gap quantum wells and quantum dots is considered with the financial support of the RFBR and DFG. The following possibilities have been demonstrated: controlled variation of the exciton radiative recombination time in the range from several tens of nanoseconds up to tens of microseconds; experimental study of the spin dynamics for long-lived localized excitons; the use of quasi-resonant optical methods for the excitation of indirect exciton states. The electron-nuclear interaction in indirect band gap quantum dots has been studied. The constants of hyperfine interaction for electron localized in the X-valley of the conduction band with As, In and Al nuclear are determined. A new mechanism of spin orientation for localized electrons is revealed: dynamic spin polarization of electrons, provided by fluctuations of the nuclear spin through hyperfine interaction in a weak magnetic field.

Keywords: semiconductor quantum dots, spin, coherent exciton dynamics, magneto-optics of nanostructures.

* The work was financially supported by RFBR and DFG (projects 10-02-00240, 13-02-00073, 15-52-12012, 16-02-00242, 19-02-00098, 19-52-12001, 19-52-12043, 409810106, ICRC TRR160, YA 65/14-1 and YA 65/19-1).

Images & Tables

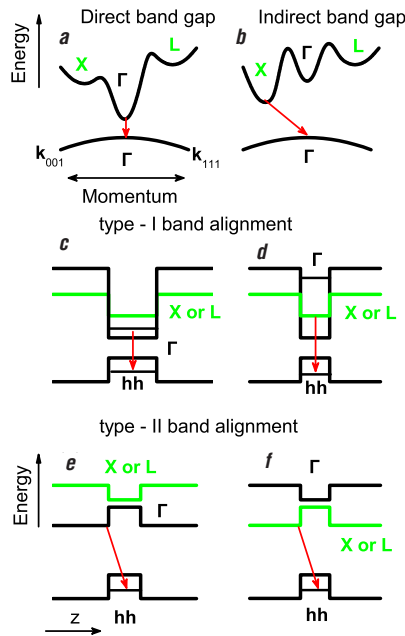


Fig. 1. Band diagrams of the heterostructures. In the momentum space: *a* – direct band gap and *b* – indirect band gap. In the real space: *c* – type I, direct band gap; *d* – type I indirect band gap; *e* – type II direct band gap; and *f* – type II indirect band gap. Arrows show the optical transitions of excitons to the ground state.

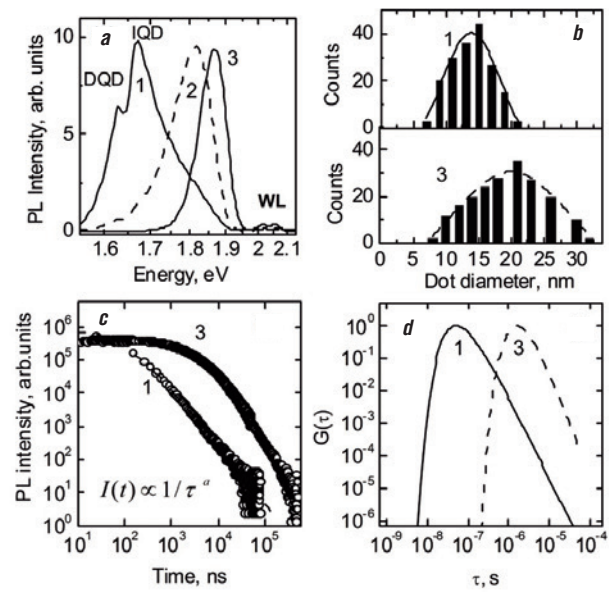


Fig. 2. *a* – Low-temperature (5 K) PL spectra of structures with QDs (1) unannealed and annealed for a minute in the hydrogen flow at temperatures of (2) 700 and (3) 850 °C. *b* – Histograms of QD diameter distribution in the structures before (1) and after (3) annealing at a temperature of 850 °C. *c* – Exciton PL dynamics in the QD (circles) measured at $T=5$ K at the IQD band maximum before (1) and after (3) annealing at a temperature of 850 °C. Dashed lines show the kinetic curves calculated using the $G(\tau)$ distribution function determined by Eq. (2) with the parameters given in the text. *d* – Normalized $G(\tau)$ distributions in the QD ensemble before (1) and after (3) annealing at 850 °C.

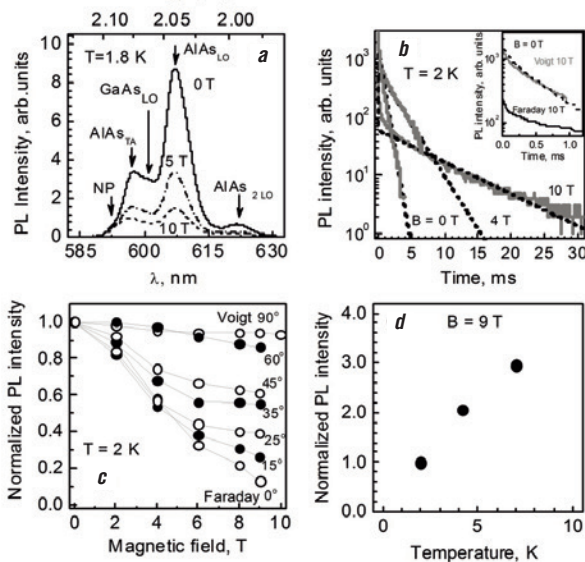


Fig. 3. *a* – PL spectra of the GaAs/AlAs QWs in longitudinal magnetic fields of 0, 5, and 10 T in the Faraday geometry; arrows show the positions of the NP no-phonon band and its phonon replicas. *b* – PL dynamics of the GaAs/AlAs QWs in longitudinal magnetic fields of 0, 4, and 10 T in the Faraday geometry. Inset: PL dynamics of the GaAs/AlAs QWs in fields of 0 T (dashed line) and 10 T (the black line is the Faraday geometry and the gray line is the Voigt geometry). *c* – Field dependences of the PL integrated intensity for the GaAs/AlAs QWs at different angles between the field directions and the wave vector of the emitted photons. *d* – Temperature dependence of the integral PL intensity of GaAs/AlAs QWs in the Faraday geometry in a field of 9 T.

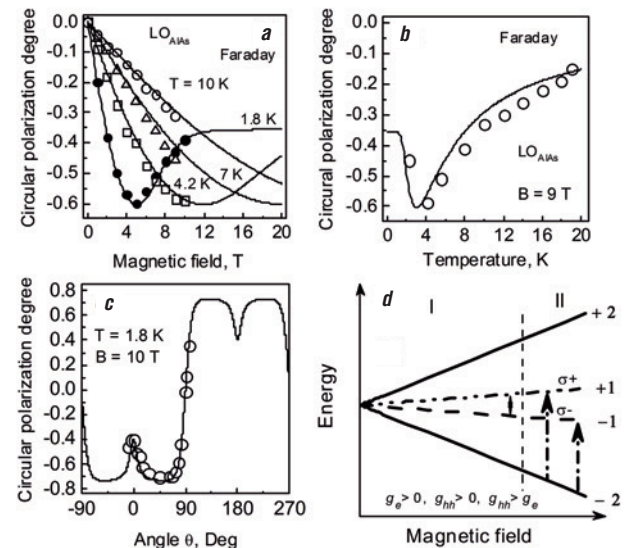


Fig. 4. Degree of the longitudinal magnetic field-induced PL circular polarization for the GaAs/AlAs QW: *a* – field dependence at temperatures of 1.8, 4.2, 7 and 10 K; *b* – temperature dependence in a longitudinal field of 9 T; and *c* – dependence on the orientation of a magnetic field of 10 T at a temperature of 1.8 K. *d* – Fine structure of the exciton states in a longitudinal magnetic field. Numerals show the projections of the angular momentum of the states. Vertical arrows show the transitions from the optically inactive to optically active states required for radiative recombination in strong magnetic fields.

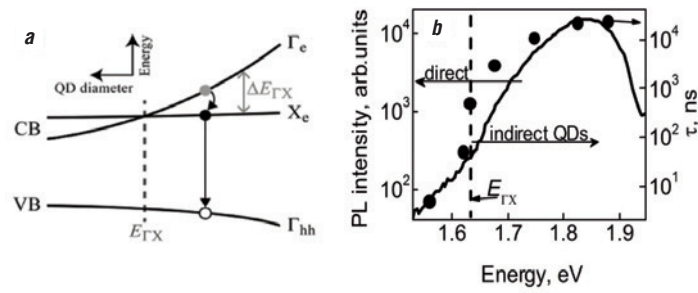


Fig. 5. a – Band diagram of the (In,Al)As/AlAs QDs of different sizes. VB is the top of the valence band and CB is the bottom of the conduction band. The energy difference between the electronic states in the Γ and X-minima of the conduction band is denoted as $\Delta E_{\Gamma X}$. The energy $E_{\Gamma X}$ corresponds to the intersection of the electron levels in the Γ and X-minima of the conduction band at a certain characteristic QD size. b – PL spectrum of a QD ensemble under nonresonant excitation ($\hbar\omega = 3.49$ eV) in zero magnetic field at a temperature of 1.8 K (solid line) and spectral dependence of the exciton PL decay time (closed circles). The vertical dashed line shows the spectral position of the exciton PL in QDs with the identical energies of the electronic states in the Γ and X-valleys of the conduction band.

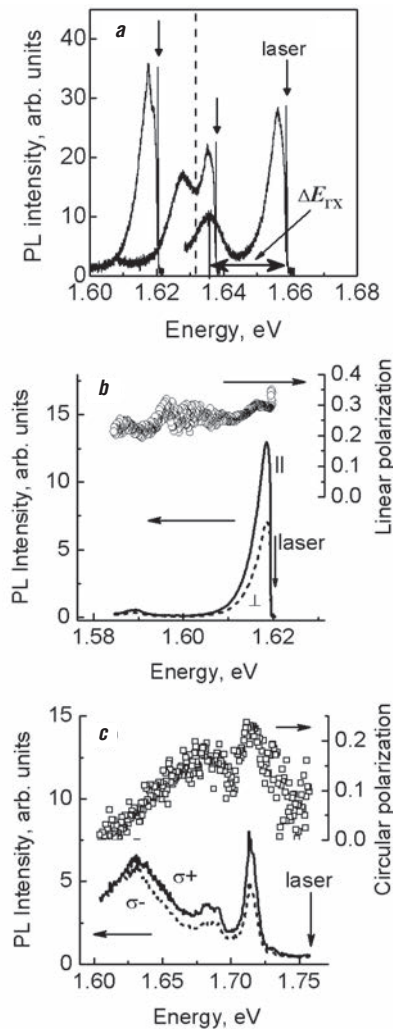


Fig. 6. a – PL spectra of the (In,Al)As/AlAs QD ensemble measured in the selective excitation mode at $T = 5$ K. The exciting laser radiation photon energies are shown by vertical arrows. The (In,Al)As/AlAs PL spectra and PL polarization under selective laser excitation: b – linearly polarized light with photon energies of 1.62 eV; c – circularly polarized light with photon energies of 1.76 eV in the direct and indirect band gap parts of the QD ensemble, respectively. Spectral dependences of the degree of PL polarization are shown on the right-hand axes.

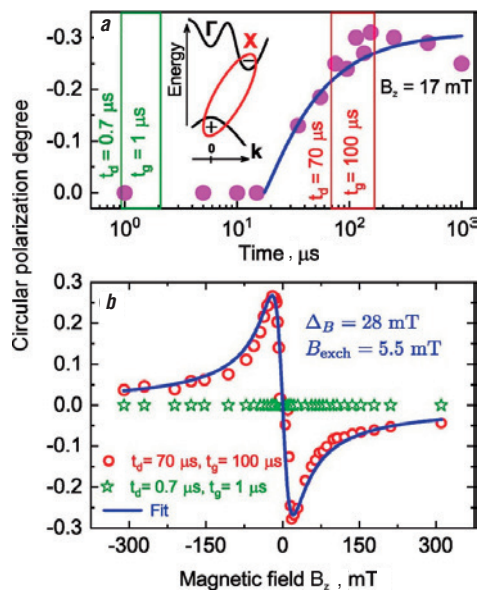


Fig. 7. a – Dynamics of PL circular polarization degree measured at $B_z = 17$ mT and $T = 2$ K; the integration time is $5 \mu\text{s}$. Vertical lines show time-integration windows for panel (b). Inset: Theoband diagram of the momentum-indirect (In,Al)As/AlAs QDs. b – Magnetic field dependencies of the polarization degree measured at $0.7 \mu\text{s}$ (green stars) and $70 \mu\text{s}$ (red circles) with the integration windows of $1 \mu\text{s}$ and $100 \mu\text{s}$, respectively. Blue line is a fit after Eq. (1) with $\Delta = 28$ mT and $B_{\text{exch}} = 5.5$ mT.

References

1. A.V. Khaetskii, Yu.V. Nazarov
Phys. Rev. B, 2001, **64**, 125316.
DOI: 10.1103/PhysRevB.64.125316.
2. T.S. Shamirzaev, A.V. Nenashev, A.K. Gutakovskii, A.K. Kalagin, K.S. Zhuravlev, M. Larsson, P.O. Holtz
Phys. Rev. B, 2008, **78**, 085323.
DOI: 10.1103/PhysRevB.78.085323.
3. T.S. Shamirzaev, J. Debus, D.S. Abramkin, D. Dunker, D.R. Yakovlev, D.V. Dmitriev, A.K. Gutakovskii, L.S. Braginsky, K.S. Zhuravlev, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2011, **84**, 155318.
DOI: 10.1103/PhysRevB.84.155318.
4. T.S. Shamirzaev, J. Debus, D.R. Yakovlev, M.M. Glazov, E.L. Ivchenko, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2016, **94**, 045411.
DOI: 10.1103/PhysRevB.94.045411.
5. T.S. Shamirzaev, J. Rautert, D.R. Yakovlev, J. Debus, A.Yu. Gornov, M.M. Glazov, E.L. Ivchenko, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2017, **96**, 035302.
DOI: 10.1103/PhysRevB.96.035302.
6. T.S. Shamirzaev, J. Rautert, D.R. Yakovlev, M.M. Glazov, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2019, **99**, 155301. DOI: 10.1103/PhysRevB.99.155301.
7. T.S. Shamirzaev, A.V. Nenashev, K.S. Zhuravlev
Appl. Phys. Lett., 2008, **92**, 213101. DOI: 10.1063/1.2917811.
8. J. Debus, T.S. Shamirzaev, D. Dunker, V.F. Sapega, E.L. Ivchenko, D.R. Yakovlev, A.I. Toropov, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2014, **90**, 125431.
DOI: 10.1103/PhysRevB.90.125431.
9. J. Rautert, T.S. Shamirzaev, S.V. Nekrasov, D.R. Yakovlev, P. Klenovsky, Yu.G. Kusrayev, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2019, **99**, 195411. DOI: 10.1103/PhysRevB.99.195411.
10. J. Rautert, M.V. Rakhlin, K.G. Belyaev, T.S. Shamirzaev, A.K. Bakarov, A.A. Toropov, I.S. Mukhin, D.R. Yakovlev, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2019, **100**, 205303. DOI: 10.1103/PhysRevB.100.205303.
11. J. Fischer, W.A. Coish, D.V. Bulaev, D. Loss
Phys. Rev. B, 2008, **78**, 155329.
DOI: 10.1103/PhysRevB.78.155329.
12. M.S. Kuznetsova, J. Rautert, K.V. Kavokin, D.S. Smirnov, D.R. Yakovlev, A.K. Bakarov, A.K. Gutakovskii, T.S. Shamirzaev, M. Bayer
Phys. Rev. B, 2020, **101**, 075412. DOI: 10.1103/PhysRevB.101.075412.
13. D.S. Smirnov, T.S. Shamirzaev, D.R. Yakovlev, M. Bayer
Phys. Rev. Lett., 2020, **125**, 156801.
DOI: 10.1103/PhysRevLett.125.156801.

Российско-немецкие исследования тени черных дыр

Г.С. Бисноватый-Коган, О.Ю. Цупко

В этой статье кратко рассказывается история сотрудничества российских и немецких ученых по исследованиям теней черных дыр. В Институте космических исследований РАН много лет проводятся исследования в разнообразных областях релятивистской астрофизики и гравитации, в том числе ученые занимаются вопросами гравитационного линзирования: проблемами, связанными с отклонением света гравитацией. Исследования авторов статьи посвящены изучению влияния плазмы на эффекты гравитационного линзирования, включая наблюдательные особенности теней черных дыр.

Ключевые слова: тень черной дыры, плазма, отклонение света, гравитационное линзирование.

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проект № 20-52-12053).

В нашей группе в Институте космических исследований РАН уже много лет проводятся исследования в разнообразных областях релятивистской астрофизики и гравитации. В конце нулевых годов мы начали заниматься вопросами гравитационного линзирования: проблемами, связанными с отклонением света гравитацией. Одной из интересовавших нас задач стало влияние плазмы на эффекты гравитационного линзирования. Лучи света в космическом пространстве распространяются через плазму, кроме того, плазма сконцентрирована вокруг космических объектов, поэтому было интересно понять, как наличие плазмы изменит эту картину.

Несмотря на наличие нескольких достаточно старых работ по сходной тематике, подробно эта тематика в то время почти никем не разрабатывалась. Нам удалось получить новые результаты, в частности, мы показали, что гравитационный угол отклонения даже в однородной плазме будет отличаться от вакуумного и зависеть от частоты фотона. Таким образом, гравитационная линза, погруженная в плазму, раскладывает свет в спектр подобно призме (рис. 1). Этот эффект мы назвали «гравитационным радиоспектрометром» и активно рассказывали о нем на различных конференциях. Мы опубликовали несколько статей, включая статьи в высокорейтинговых журналах *Monthly Notices of Royal Astronomical Society* и *Physical Review D* [1–3].

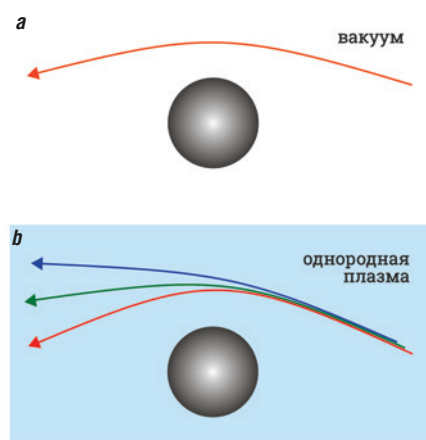
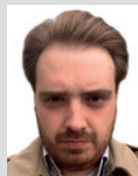


Рис. 1. Отклонение лучей света гравитирующим телом в вакууме (а) и в однородной плазме (б). Если луч света пролетает около массивного тела (например, черной дыры), он отклоняется под его гравитационным воздействием. В вакууме отклонение света ахроматично: лучи света разных частот отклоняются на один и тот же угол. В наших работах мы показали, что если окружить гравитирующее тело однородной плазмой, то гравитационный угол отклонения изменится. Угол отклонения в однородной плазме будет отличаться от вакуумного, а также зависеть от частоты фотона. Важно подчеркнуть, что этот эффект имеет место даже в однородной среде. Поэтому его следует отличать от другого хорошо известного и не связанного с гравитацией эффекта преломления – отклонения света за счет неоднородностей среды. (Рис. О.Ю. Цупко).

После нескольких лет исследований мы обнаружили в одной из последних книг по гравитации [4] главу, посвященную исследованию очень похожих вопросов – распространению лучей света в плазме в присутствии гравитации. Это была книга немецкого теоретика Фолькера Перлика (Volker Perlick), работающего в университете г. Бремена.



БИСНОВАТЫЙ-КОГАН
Геннадий Семенович
Институт космических
исследований РАН



ЦУПКО
Олег Юрьевич
Институт космических
исследований РАН



Мы послали ему нашу недавнюю статью, а на конференции в Варшаве в 2013 г. Олег Цупко познакомился с ним лично.

Так было начато наше сотрудничество, оказавшееся очень успешным. За несколько лет мы опубликовали три совместных статьи в престижном журнале *Physical Review D*. Было организовано несколько визитов друг к другу. В том числе мы получили поддержку фонда «Династия» на краткосрочный визит Фолькера Перлика в Москву, а Олег Цупко получил стипендию немецкого фонда DAAD (Немецкая служба академических обменов – Deutscher Akademischer Austauschdienst) на полугодовую стажировку в Германии. Один из студентов профессора Г.С. Бисноватого-Когана, Павел Ефремов, после получения степени магистра в МИФИ был принят в аспирантуру в университет г. Бремена, в научную группу Ф. Перлика, и успешно защитил там диссертацию на получение степени PhD.

В начале нашего сотрудничества Ф. Перлик рассказал нам о задаче исследования тени черной дыры. Считается, что в центре большинства галактик находится сверхмассивная черная дыра с огромной массой – миллионы или даже миллиарды масс Солнца. Сама черная дыра невидима, но она может быть «видима» как темное пятно на фоне других ярких источников. Такое пятно называется тенью черной дыры – black hole shadow, *рис. 2*. Как естественное продолжение наших и его исследований, Ф. Перлик предложил нам изучить, как плазма может повлиять на эту тень.

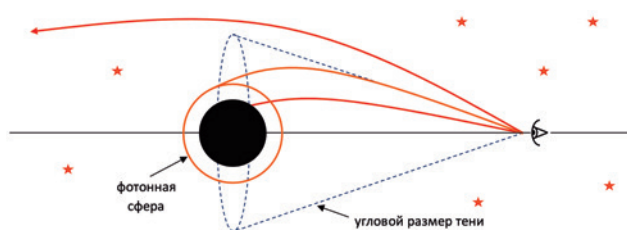


Рис. 2. Тень черной дыры. Если представить, что наблюдатель не принимает лучи, а испускает их, то все испущенные лучи можно разделить на два типа: часть лучей будет отклоняться черной дырой и направится в бесконечность, другая часть лучей будет захвачена черной дырой. Граничным случаем между этими двумя классами лучей являются лучи, которые попадают на фотонную сферу, заполненную неустойчивыми круговыми орбитами фотонов. Если теперь представить, что наблюдатель принимает лучи и вокруг расположены источники света (кроме области между черной дырой и наблюдателем), то указанный на рисунке конус будет оставаться для наблюдателя пустым. Этот пустой конус представляет собой тень черной дыры. Угловой размер тени определяется фотонами, приходящими к наблюдателю от поверхности фотонной сферы. (Рис. О.Ю. Цупко).

В нашей первой совместной работе, опубликованной в журнале *Physical Review D* в 2015 г. [5], мы исследовали, как плазма влияет на размер и форму тени шварцшильдовской черной дыры. Мы показали, что если черная дыра окружена плазмой, то ее тень имеет разный размер при наблюдениях на разных частотах (*рис. 3*). В частности, для далекого наблюдателя наличие неоднородной плазмы с профилем плотности, падающим наружу, приводит к уменьшению углового размера тени. Подобные эффекты могут быть важны при наблюдениях в радиодиапазоне.



Рис. 3. Угловой размер тени черной дыры, окруженной неоднородной плазмой со спадающей от центра плотностью, когда основным эффектом влияния плазмы является преломление лучей. Размер тени будет разным при наблюдениях на разных частотах. Изменение цвета изображения от красного к синему соответствует увеличению частоты (уменьшению длины волны) наблюдаемых фотонов. Эффект преломления в плазме со спадающей плотностью приводит к уменьшению видимого размера тени по сравнению с вакуумом и усиливается с ростом длины волны. Влияние однородной плазмы, наоборот, приводит к увеличению видимого размера тени по сравнению с вакуумом, и также усиливается с ростом длины волны (см. *рис.1*). Оба эффекта могут иметь значение для наблюдений в радиодиапазоне. (Рис. О.Ю. Цупко).

В следующей работе 2017 г. [6] мы исследовали, как плазма влияет на тень Керровской черной дыры. Эта работа стала логичным продолжением исследований теней вращающихся черных дыр, которые Фолькер Перлик осуществлял ранее с немецкими соавторами [7, 8].

В дальнейшем мы также стали совместно работать над исследованиями тени черных дыр на космологических расстояниях. Г.С. Бисноватый-Коган выдвинул идею о расчете углового размера тени с учетом расширения Вселенной. Размер тени определяется движением лучей света, и в данном случае задача вычисления становится особенно сложной: нужно учитывать как гравитацию черной дыры, так и влияние расширения Вселенной на лучи света. Участие Ф. Перлика в этих исследованиях оказалось очень важным, поскольку у него уже был опыт исследований различных математических аспектов теории относительности.

В нашей совместной работе в 2018 г. [9] мы аналитически исследовали влияние расширения Вселенной на тень черной дыры. Мы рассмотре-

ли случай, когда расширение вызвано только космологической постоянной. Был вычислен угловой радиус тени для наблюдателя, сопутствующего космологическому расширению. Мы показали, что при движении наблюдателя дальше и дальше от черной дыры ее видимый угловой размер не уменьшается до нуля, как было бы в плоском пространстве-времени, а стремится к константе.

В развитие последней работы, мы исследовали более общий случай: тень во Вселенной с современным набором космологических параметров. Мы опубликовали статью в *Physical Review D* [10], где получили аналитическое выражение для углового размера тени от сверхмассивных черных дыр в далеких галактиках, наблюдаемых при больших красных смещениях $z \geq 10$, в расширяющейся Вселенной, с учетом наблюдаемых темной материи и темной энергии. Для далеких объектов этот размер монотонно возрастает с ростом z (рис. 4).

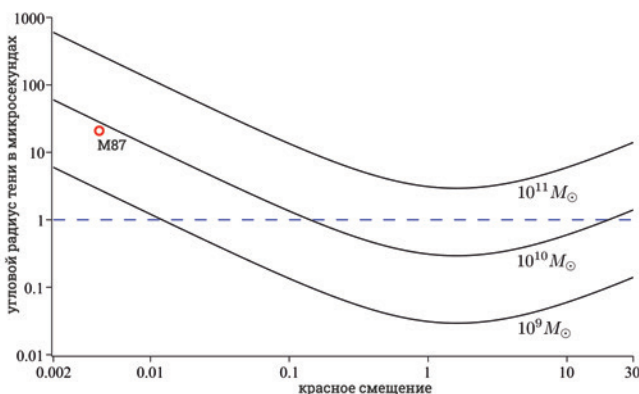


Рис. 4. Ожидаемый угловой размер тени черной дыры с учетом влияния расширения Вселенной в зависимости от красного смещения. Черными сплошными линиями показаны кривые для трех разных масс. Кривые вычислены для современного набора космологических параметров. Видно, что на больших красных смещениях угловой размер тени начинает увеличиваться и может достигать размеров тени в галактике M87 (показан для сравнения красным кружком). (Рис. О.Ю. Цупко).

Основная проблема в наблюдении тени – ее крайне малый угловой размер. Поэтому для наблюдения черной дыры нужно было достичь очень высокого углового разрешения. Как уже описано выше, в наших совместных работах по этой тематике мы изучаем тени черных дыр, находящихся на очень далеких, космологических расстояниях. Казалось бы, тени таких черных дыр должны быть очень малы в силу большого расстояния. В повседневной жизни мы привыкли к тому, что чем дальше находится объект, тем меньше его угловой размер для нас. Однако на космологических расстояниях начинает сказываться

влияние расширения Вселенной на распространение света, а именно – на распространение лучей, идущих из окрестности черной дыры к нам. Расширение Вселенной приводит к тому, что на больших расстояниях наблюдаемый угловой размер объекта начинает не уменьшаться, а увеличиваться с ростом красного смещения. Это приводит к тому, что тени от очень далеких черных дыр могут иметь достаточно большие угловые размеры, чтобы быть наблюдаемыми на следующих поколениях телескопов (рис. 4).

В то время, несколько лет назад, исследования тени черных дыр были гораздо менее известны, чем сейчас. Несмотря на существование больших международных проектов для будущего наблюдения тени сверхмассивных черных дыр, эта область считалась достаточно экзотической. Не все ученые верили, что как физические условия вокруг черных дыр, так и разрабатываемые технологии позволят такую тень действительно увидеть. Мы сталкивались с подобным отношением как в отзывах рецензентов, так и в личных беседах с людьми, занимающимися наблюдениями.

Ситуация в корне изменилась в апреле 2019 г. Ученые из проекта Event Horizon Telescope представили «фотографию» черной дыры – результаты наблюдений тени сверхмассивной черной дыры в галактике M87. После этого эта тематика стала одной из самых популярных в гравитационной «повестке дня». Однако мы начали заниматься этим на несколько лет раньше, до того, как это стало «модным».

За прошедшие годы, включая несколько лет российско-немецкого сотрудничества, нам удалось широко популяризовать исследования о влиянии плазмы в гравитационном линзировании. Многие группы в разных странах занялись вопросами влияния плазмы как на углы отклонения света, так и на размер и форму тени черной дыры. Трудно вспомнить метрику пространства-времени, для которой влияние плазмы еще не было бы кем-то рассмотрено и изучено. Суммарное цитирование наших работ по этой тематике, включая совместные российско-немецкие работы, составляет уже несколько сотен. Недавние работы по исследованиям тени в расширяющейся вселенной также вызвали интерес и активно цитируются.

Наша совместная работа продолжается. Недавно мы выиграли грант РФФИ на выполнение проекта №20-52-12053 «Распространение световых сигналов вблизи черной дыры, окруженной плазмой».

Литература

1. G.S. Bisnovaty-Kogan, O.Yu. Tsupko
Gravit. Cosmo., 2009, **15**, 20. DOI: 10.1134/S020228930901006X.
2. G.S. Bisnovaty-Kogan, O.Yu. Tsupko
Mon. Not. R. Astron. Soc., 2010, **404**, 1790.
DOI: 10.1111/j.1365-2966.2010.16290.x.
3. O.Yu. Tsupko, G.S. Bisnovaty-Kogan
Phys. Rev. D, 2013, **87**, 124009.
DOI: 10.1103/PhysRevD.87.124009.
4. V. Perlick
Ray Optics, Fermat's Principle, and Applications to General Relativity, Lecture Notes in Physics Ser., V. 61, FRG, Berlin, Springer, 2000. DOI: 10.1007/3-540-46662-2.
5. V. Perlick, O.Yu. Tsupko, G.S. Bisnovaty-Kogan
Phys. Rev. D, 2015, **92**, 104031.
DOI: 10.1103/PhysRevD.92.104031.
6. V. Perlick, O.Yu. Tsupko
Phys. Rev. D, 2017, **95**, 104003.
DOI: 10.1103/PhysRevD.95.104003.
7. A. Grenzebach, V. Perlick, C. Lämmerzahl
Phys. Rev. D, 2014, **89**, 124004.
DOI: 10.1103/PhysRevD.89.124004.
8. A. Grenzebach, V. Perlick, C. Lämmerzahl
Int. J. Mod. Phys. D, 2015, **24**, 1542024.
DOI: 10.1142/S0218271815420249.
9. V. Perlick, O.Yu. Tsupko, G.S. Bisnovaty-Kogan
Phys. Rev. D, 2018, **97**, 104062.
DOI: 10.1103/PhysRevD.97.104062.
10. G.S. Bisnovaty-Kogan, O.Yu. Tsupko
Phys. Rev. D, 2018, **98**, 084020.
DOI: 10.1103/PhysRevD.98.084020.

English

Russian-German Studies of the Black Hole Shadow

Gennady S. Bisnovaty-Kogan
Space Research Institute, RAS
84/32 Profsoyuznaya, Moscow, 117997, Russia
gkogan@iki.rssi.ru

Oleg Yu. Tsupko
Space Research Institute, RAS
84/32 Profsoyuznaya, Moscow, 117997, Russia
tsupko@iki.rssi.ru

Abstract

This article briefly describes the history of cooperation between Russian and German scientists in the study of black hole shadows. For many years, the Space Research Institute of the Russian Academy of Sciences has been conducting research in various fields of relativistic astrophysics and gravity. Scientists study inter alia the issues of gravitational lensing – problems associated with the deflection of light by gravity. The authors' investigation deals with the influence of plasma on the effects of gravitational lensing, including observational features of black holes shadows.

Keywords: black hole shadow, plasma, light deflection, gravitational lensing.

* The work was financially supported by RFBR and DFG (project 20-52-12053).

Images & Tables

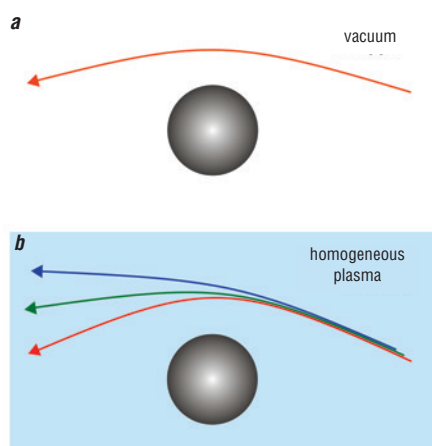


Fig. 1. The deflection of light rays by a gravitating body in a vacuum (a) and in a homogeneous plasma (b). If a light ray flies near a massive body (for example, a black hole), it is deflected under gravitational influence of this body. In a vacuum, the deflection of light is achromatic: light rays of different frequencies are deflected by the same angle. In our works, we have shown that if gravitating body is surrounded by homogeneous plasma, then the gravitational deflection angle will change. The deflection angle in homogeneous plasma will differ from the vacuum one, and also depend on the photon frequency. It is important to emphasize that this effect takes place even in homogeneous media. Therefore, it should be distinguished from another, well-known and unrelated to gravity, effect of refraction - the deflection of light due to medium inhomogeneities. (Figure by O.Yu. Tsupko).

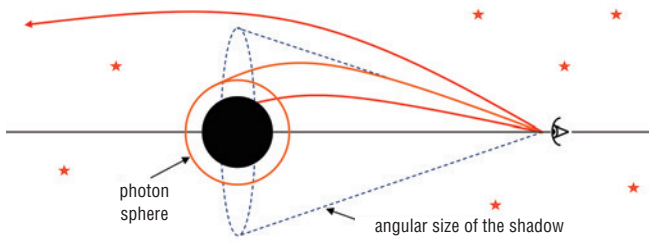


Fig. 2. Black hole shadow. If we imagine that an observer does not receive the rays, but emits them, then all the emitted rays can be divided into two classes: some of the rays will be deflected by the black hole and fly away to infinity, the other part of the rays will be captured by the black hole. The boundary case between these two classes of rays is rays that goes to the photon sphere filled with unstable circular orbits of photons. If now we imagine that the observer receives the rays and there are light sources around (except for the region between the black hole and the observer), then the cone indicated in the figure will remain empty for the observer. This empty cone is the shadow of black hole. The angular size of the shadow is determined by the photons coming to the observer from the surface of the photon sphere. (Figure by O.Yu. Tsupko).



Fig. 3. The angular size of the shadow of black hole surrounded by an inhomogeneous plasma with a density decreasing from the center, when the main effect of the plasma influence is the refraction of rays. The size of the shadow will be different when observed at different frequencies. The color of the image from red to blue corresponds to an increase in the frequency (decrease in the wavelength) of the observed photons. The refractive effect in a plasma with decreasing density leads to a decrease in the apparent size of the shadow compared to vacuum, and becomes stronger with increasing wavelength. The effect of a homogeneous plasma, on the contrary, leads to an increase in the apparent size of the shadow in comparison with a vacuum, and also becomes stronger with increasing wavelength (see Fig. 1). Both effects can be significant for radio observations. (Figure by O.Yu. Tsupko).

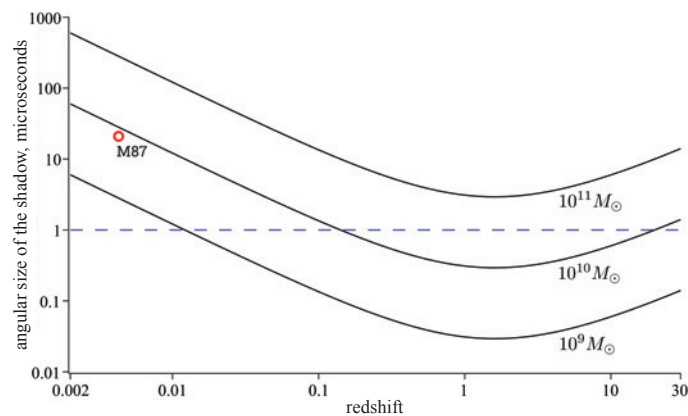


Fig. 4. The expected angular size of the black hole shadow, taking into account the influence of the expansion of the Universe, depending on the redshift. The black solid lines show the curves for three different masses. The curves are calculated for modern values of cosmological parameters. It can be seen from the figure that at large redshifts, the angular size of the shadow begins to increase and can reach the size of the shadow in the galaxy M87 (shown for comparison by a red circle). (Figure by O.Yu. Tsupko).

References

1. G.S. Bisnovatyi-Kogan, O.Yu. Tsupko *Gravit. Cosmo.*, 2009, **15**, 20. DOI: 10.1134/S020228930901006X.
2. G.S. Bisnovatyi-Kogan, O.Yu. Tsupko *Mon. Not. R. Astron. Soc.*, 2010, **404**, 1790. DOI: 10.1111/j.1365-2966.2010.16290.x.
3. O.Yu. Tsupko, G.S. Bisnovatyi-Kogan *Phys. Rev. D*, 2013, **87**, 124009. DOI: 10.1103/PhysRevD.87.124009.
4. V. Perlick *Ray Optics, Fermat's Principle, and Applications to General Relativity, Lecture Notes in Physics Ser.*, V. 61, FRG, Berlin, Springer, 2000. DOI: 10.1007/3-540-46662-2.
5. V. Perlick, O.Yu. Tsupko, G.S. Bisnovatyi-Kogan *Phys. Rev. D*, 2015, **92**, 104031. DOI: 10.1103/PhysRevD.92.104031.
6. V. Perlick, O.Yu. Tsupko *Phys. Rev. D*, 2017, **95**, 104003. DOI: 10.1103/PhysRevD.95.104003.
7. A. Grenzebach, V. Perlick, C. Lämmerzahl *Phys. Rev. D*, 2014, **89**, 124004. DOI: 10.1103/PhysRevD.89.124004.
8. A. Grenzebach, V. Perlick, C. Lämmerzahl *Int. J. Mod. Phys. D*, 2015, **24**, 1542024. DOI: 10.1142/S0218271815420249.
9. V. Perlick, O.Yu. Tsupko, G.S. Bisnovatyi-Kogan *Phys. Rev. D*, 2018, **97**, 104062. DOI: 10.1103/PhysRevD.97.104062.
10. G.S. Bisnovatyi-Kogan, O.Yu. Tsupko *Phys. Rev. D*, 2018, **98**, 084020. DOI: 10.1103/PhysRevD.98.084020.



Pulse Electron Paramagnetic Resonance Study of Blatter-Type Organic Radicals at Low Temperatures

Artem S. Poryvaev

International Tomography Center, SB RAS
3A Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russia
poryvaev@tomo.nsc.ru

Daniil M. Polyukhov

International Tomography Center, SB RAS
3A Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russia
daniil@tomo.nsc.ru

Michael Fröba

Institute of Inorganic and Applied Chemistry,
University of Hamburg
Martin-Luther-King-Platz 6, 20146, Hamburg, Germany
Michael.Froeba@chemie.uni-hamburg.de

Eva Gjuzi

Institute of Inorganic and Applied Chemistry,
University of Hamburg
Martin-Luther-King-Platz 6, 20146, Hamburg, Germany
eva.gjuzi@chemie.uni-hamburg.de

Frank Hoffmann

Institute of Inorganic and Applied Chemistry,
University of Hamburg
Martin-Luther-King-Platz 6, 20146, Hamburg, Germany
Frank.Hoffmann@chemie.uni-hamburg.de

Matvey V. Fedin

International Tomography Center, SB RAS
3A Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russia
mfedin@tomo.nsc.ru

Abstract

Blatter-type organic radicals (BTRs) draw increasing attention in different fields of chemistry due to their outstanding stability. Various BTRs were intensively investigated using continuous wave electron paramagnetic resonance (CW EPR), a routine method to obtain basic electronic properties of organic radicals. However, more advanced pulse EPR techniques were not applied to study spin dynamics and relaxation of BTRs until our recent work. In this paper we report experimental observations and insights aiding in correct acquiring and interpretation of pulse EPR data in BTRs of different local concentration, which can be useful for future investigations of solutions and solid-state assemblies of such radicals.

Keywords: EPR spectroscopy, Blatter radical, pulse EPR.

* The work was financially supported by RFBR and DFG (projects 20-53-12005 and FR 1372/26-1).

Introduction

Stable organic radicals find numerous applications in modern science, including chemistry, physics, biology and medicine [1]. Among others, such radicals are extremely useful as spectroscopic probes allowing one to obtain useful information on the surroundings of such probes. The method of choice for detection of radicals is electron paramagnetic resonance (EPR), which has an outstanding sensitivity and selectively observes paramagnetic species in the studied sample [2, 3]. For instance, a very broad application of radicals nowadays refers to spin labeling, where a properly modified stable radical is attached to the biomolecule in desired position and then probed by EPR [3, 4]. Attaching pairs of spin labels allows application of so-called pulsed dipolar EPR spectroscopy, which measures spin-spin dipolar interaction between two labels and thus provides precise measurement of spin-spin distances on the

nanometer scale [5, 6]. This becomes especially useful to resolve the local structure of biopolymers which cannot be crystallized and therefore need to be studied in disordered form and often in small concentrations of a few μM . In materials science, stable organic radicals can be added or doped without a covalent or supramolecular attachment into diamagnetic compounds. In this case, for instance, EPR study allows obtaining vital information on physical properties of materials such as polarity, viscosity, local porosity *etc.* [7–9]. In biomedicine stable organic radicals can be used, for instance, to measure local concentration of oxygen and the *pH* value in living tissues [3, 10, 11], which reflect on the carcinogenic processes, and also in EPR tomography to spatially localize such processes [11, 12].

In the above studies, continuous wave (CW) and pulse EPR are usefully applied. Most often nitroxide radicals are implemented as spin probes and spin labels, and both CW and pulse

EPR spectroscopy of these radicals are nowadays understood in great details [4]. Recently, another type of radicals – triarylmethyl (or trityl) radicals (TAMs) – is emerging as an alternative to nitroxides [13, 14]. Because the EPR spectrum of TAM radicals consists of a single narrow line, the basics of EPR spectroscopy for these radicals are also clear. In case of BTRs, significant research was accomplished already using CW EPR [15–18], but, to the best of our knowledge, the first application of pulse EPR was reported only in our recent work [19]. In that work we investigated a series of materials based on mesoporous silica decorated with BTRs and paid attention to the electron spin decoherence (or phase memory) time of BTRs. In the present work we focus more on the basic trends in the shapes of pulse EPR spectra obtained for such radicals and possible artifacts due to instantaneous diffusion that should be taken into account when studying BTRs by these methods.

Experimental section

In this work we study basic features of pulse EPR on BTRs using the same samples as in [10], namely, mesoporous SBA-15 material (Santa Barbara Amorphous type material) that was modified by attaching BTRs to the surface of SBA-15 (see structure of radical moiety in *Fig. 1*). Samples with four different concentrations of radicals were studied, where the relative ratio of radicals was approximately 1:5:10:20, and such samples are referred here as R_1 , R_5 , R_{10} and R_{20} . All samples were polycrystalline powders placed into quartz tubes and sealed off at

vacuum. EPR measurements were performed at X-band (9.7 GHz) using commercial Bruker Eleksys E580 X/Q-band EPR spectrometer equipped with temperature control system at $T = 10$ K.

Results

Figure 1 shows the structure of the studied BTR and echo-detected (ED) EPR spectra of samples R_1 , R_5 , R_{10} and R_{20} at 10 K obtained under different conditions.

In all cases we used Hahn echo sequence [$\pi/2 - \tau - \pi - \tau - \text{echo}$], but the lengths of the pulses varied from 12 to 200 ns for $\pi/2$ and, correspondingly, from 24 to 400 ns for π -pulse. The variation of pulse lengths allowed us to vary the selectivity of microwave (mw) excitation and the efficiency of such relaxation pathways as instantaneous diffusion. For uniformity, we always kept τ -delay constant and equal to 1 μs , which was suitable for the whole set of pulse lengths.

Obviously, the spectral shape drastically depends on the pulse length, which is a signature of instantaneous diffusion (*vide infra*) [20, 21]. We notice that for the long pulse delays 200/400 ns (for $\pi/2$ and π) all samples show very close shapes of the ED EPR spectra. At the same time, the use of short mw pulses leads to distortions in the central part of the spectrum, which is most evident for most concentrated sample R_{20} , and is negligible for least concentrated sample R_1 .

Figure 2 shows the complete data set of ED EPR spectra for $R_1 - R_{20}$, where the spectra are arranged *vs.* pulse length (indicated for $\pi/2$) for each particular sample. A clear trend is observed that the distortion in the central part of the spectrum progressively vanishes as the pulse length (selectivity of the mw excitation) is increased.

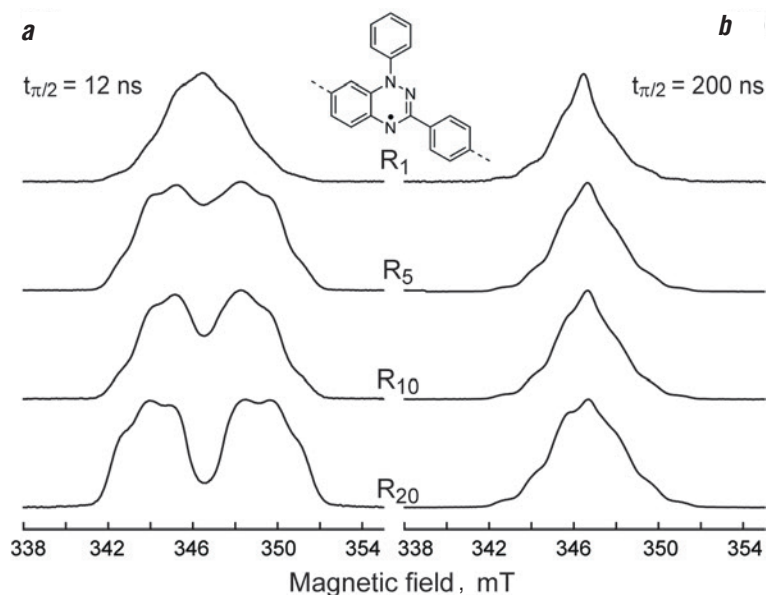


Fig. 1. X-band ED EPR spectra of $R_1 - R_{20}$ samples (indicated) obtained using short mw pulses 12/24 ns (a) and long mw pulses 200/400 ns (b). The structure of BTR, which is attached to SBA-15 via additional linkers (sketched by dotted lines), is shown on top. All spectra are normalized; $T = 10$ K.

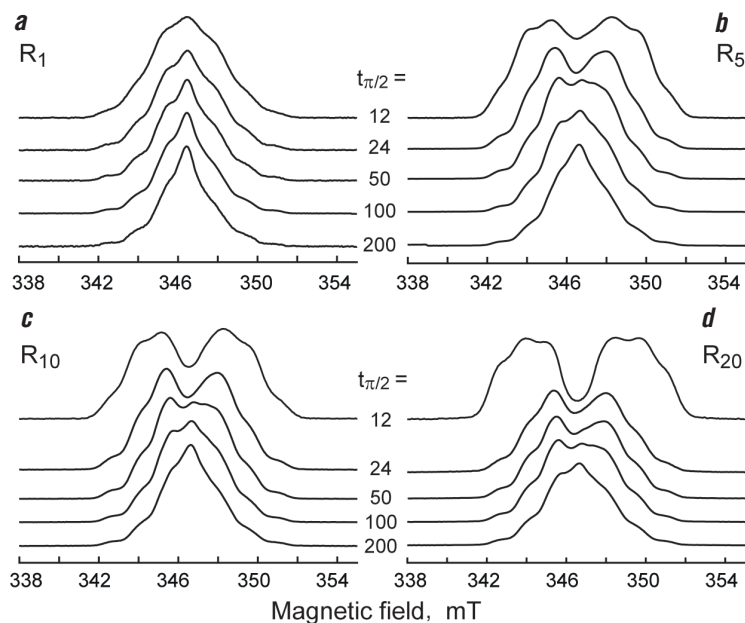


Fig. 2. The dependence of ED EPR spectral shape on the pulse length for R_1 (a), R_5 (b), R_{10} (c) and R_{20} (d) samples. Pulse length $t_{\pi/2}$ for $\pi/2$ -pulse is indicated. All spectra are normalized. $T = 10$ K.

Discussion

The trends shown in *Figures 1* and *2* are characteristic of so-called instantaneous diffusion processes [11]. In solids and frozen solutions neighboring paramagnetic species interact *via* dipole-dipole interaction; therefore the spin flip of one of the coupled spins can induce perturbation and relaxation of the other spin, and *vice-versa*. In principle, such stochastic processes are always present in equilibrium conditions, and simultaneous change of spin projections in a pair of spins (“flip-flop transitions”) is called spin diffusion. However, when an mw pulse is applied to a sample, a number of resonant spins is perturbed leading to similar effects called “instantaneous diffusion”. Depending on the concentration of spins in the sample, average spin-spin distance can be higher or lower, resulting in stronger or weaker dipolar interaction and, consequently, larger or smaller contribution of instantaneous diffusion. Therefore, one of the parameters determining the efficiency of the instantaneous diffusion is the local spin concentration in the sample.

Another parameter is the number of excited spins. In pulse EPR, as a rule (though not always) we excite only a fraction of the spectrum, *i.e.* only those spins having a certain orientation towards the magnetic field. Obviously, the larger the fraction of the excited spins is, the higher is the concentration of paramagnetic species, whose spins were flipped by the mw pulse. The short mw pulses excite a broader range of frequencies (due to the Heisenberg uncertainty principle) and thus a larger fraction of spins than the long mw pulses; that is why the short pulses are called non-selective and

the long pulses selective. Thus, by modifying the pulse length t_p we can also influence the excited fraction of spins and the efficiency of instantaneous diffusion.

Finally, the powder EPR spectrum itself is a distribution of resonance fields due to either isotropic or anisotropic interactions. In our case, the EPR spectral shape of BTR radicals is governed by anisotropic hyperfine interaction (HFI) between the unpaired electron and nuclear spins of three nitrogen atoms (major HFIs), as well as by smaller HFIs with a number of protons [19]. Thus, the intensity of the spectrum *vs.* the strength of the magnetic field essentially reflects the portion of the excited spins. In other words, by applying a mw pulse in the spectral maximum we create the largest local concentration of flipped spins and shortest average distance between such spins, whereas at the spectrum shoulder the spin concentration in similar conditions should be smaller.

All three trends for the instantaneous diffusion are perfectly observed in experiments shown in *Figures 1* and *2*. First, we observe noticeably stronger distortions for the most spin-concentrated sample R_{20} , and such distortions gradually decrease as the spin concentration gets smaller in the series R_{20} to R_1 . Second, the distortions induced by short mw pulses are obvious, whereas lengthening of the pulses leads to a gradual disappearance of distortions. Third, the distortions are observed at magnetic fields around the spectral maximum, where more spins are excited by mw pulses.

It is noteworthy how strong the distortions induced by instantaneous diffusion can be in BTR samples. The “hole” (or “dip”) in the center of short-pulse ED EPR

spectrum of the R_{20} sample has an amplitude comparable to the amplitude of the spectrum itself. The manifestations of instantaneous diffusion in nitroxide radicals are known, and, as a rule, they lead to relative suppression of the central peak ($M_1=0$) intensity compared to the intensities of the left and right peaks ($M_1=\pm 1$, where M_1 is the projection of ^{14}N nuclear spin) [22]. To the best of our knowledge, such pronounced distortions as those shown in *Figures 1* and *2* are rarely (if ever) observed for nitroxides. In case of BTRs, this is probably caused by the spectral shape itself, which stems from the underlying anisotropic HFIs with nitrogen atoms and protons.

We also would like to notice that the shape of ED EPR spectra with strong distortion (e.g. that of R_{20} with 12/24 ns pulses) is very deceptive. Such spectral shape very much resembles the Pake pattern characteristic of $S=1$ triplet states with rhombically-distorted zero-field splitting (ZFS), and it even can be nicely simulated in this model with ZFS on the order of 130 MHz. However, as we have seen in this and previous work [19], a central “dip” at short mw pulses is an artifact of instantaneous diffusion, whereas the side shoulders owe to the anisotropic HFIs with three nitrogen nuclei. Therefore, avoiding instantaneous diffusion during pulse EPR studies of BTRs is a point to take care of.

Conclusion

In this work we considered some specifics of pulse EPR application to the solids containing Blatter-type

radicals (BTRs). In particular, we have found that the manifestations of instantaneous diffusion in such systems are more pronounced compared to those known for nitroxide radicals. Interestingly, the line shape of echo-detected EPR spectra of BTRs affected by instantaneous diffusion resembles the Pake pattern characteristic of triplet states, but it is simply an interplay between anisotropic hyperfine interactions with nitrogen nuclei of BTR and instantaneous diffusion. Although in many cases such effects should be carefully avoided, in principle, they can also be induced on purpose to evaluate local spin concentration, potentially with higher precision than it can be done for the nitroxides.

Blatter-type radicals are interesting and extremely stable paramagnetic species, and we anticipate an increasing number of pulse EPR studies of such radicals, biradicals and polyradicals. Therefore, we believe that the results of this paper can serve as a useful guideline for future pulse EPR studies in this direction.

Acknowledgement

We are very thankful for supporting Russian-German scientific collaboration by joint program of Russian Foundation for Basic Research (RFBR) and Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG). This research was accomplished in a framework of RFBR (N 20-53-12005) and DFG (FR 1372/26-1) grants.

References

1. *Stable Radicals: Fundamentals and Applied Aspects of Odd-Electron Compounds*, Ed. R. Hicks, Germany, John Wiley & Sons, Ltd., 2010, 606 pp. DOI: 10.1002/9780470666975.
2. **F. Gerson, W. Huber**
Electron Spin Resonance Spectroscopy of Organic Radicals, Germany, Weinheim. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2003, 479 pp. DOI: 10.1002/3527601627.
3. **T.I. Smirnova, M.A. Voinov, A.I. Smirnov**
Spin Probes and Spin Labels, in *Encyclopedia of Analytical Chemistry*, Germany, John Wiley & Sons, Ltd., 2009. DOI: 10.1002/9780470027318.a9049.
4. **E. Bordignon**
eMagRes, 2017, **6**, 235. DOI: 10.1002/9780470034590.emrstm1513.
5. **G. Jeschke**
eMagRes, 2016, **5**, 1459. DOI: 10.1002/9780470034590.emrstm1518.
6. **O. Schiemann, T.F. Prisner**
Quart. Rev. Biophys., 2007, **40**, 1. DOI: 10.1017/S003358350700460X.
7. **Z. Vekšli, M. Andreis, B. Ravkin**
Prog. Pol. Sci., 2000, **25**, 949. DOI: 10.1016/S0079-6700(00)00025-3.
8. **S.A. Dzuba**
Spectrochim. Acta A, 2000, **56**, 227. DOI: 10.1016/S1386-1425(99)00234-6.
9. **M.Yu. Ivanov, M.V. Fedin**
Mendeleev Commun., 2018, **28**, 565. DOI: 10.1016/j.mencom.2018.11.001.
10. **A.A. Bobko, I. Dhimitruka, T.D. Eubank, C.B. Marsh, J.L. Zweier, V.V. Khramtsov**
Free Rad. Biol. Med., 2009, **47**, 654. DOI: 10.1016/j.freeradbiomed.2009.06.007.
11. **M. Tseitlin, J.R. Biller, H. Elajaili, V.V. Khramtsov, I. Dhimitruka, G.R. Eaton, S.S. Eaton**
J. Magn. Reson., 2014, **245**, 150. DOI: 10.1016/j.jmr.2014.05.013.
12. **B. Epel, H.J. Halpern**
eMagRes, 2017, **6**, 149. DOI: 10.1002/9780470034590.emrstm1512.
13. **O. Krumkacheva, E. Bagryanskaya**
In *Electron Paramagnetic Resonance*, Vol. 25, Eds. V. Chechik, D.M. Murphy, Publ. The Royal Society of Chemistry, 2017, **25**, pp. 35–60. DOI: 10.1039/9781782629436-00035.
14. **G.Yu. Shevelev, O.A. Krumkacheva, A.A. Kuzhelev, A.A. Lomzov, O.Yu. Rogozhnikova, D.V. Trukhin, T.I. Troitskaya, V.M. Tormyshev, M.V. Fedin, D.V. Pyshnyi, E.G. Bagryanskaya**
J. Amer. Chem. Soc., 2014, **136**, 9874. DOI: 10.1021/ja505122n.
15. **C.P. Constantinides, P.A. Koutentis, H. Krassos, J.M. Rawson, A.J. Tasiopoulos**
J. Org. Chem., 2011, **76**, 2798. DOI: 10.1021/jo200210s.
16. **Y. Ji, L. Long, Y. Zheng**
Mater. Chem. Front., 2020, **4**, 3433. DOI: 10.1039/d0qm00122h.
17. **P. Bartos, B. Anand, A. Pietrzak, P. Kaszyński**
Org. Lett., 2020, **22**, 180. DOI: 10.1021/acs.orglett.9b04130.
18. **N.M. Gallagher, J.J. Bauer, M. Pink, S. Rajca, A. Rajca**
J. Am. Chem. Soc., 2016, **138**, 9377. DOI: 10.1021/jacs.6b05080.
19. **A.S. Poryvaev, E. Gjuzi, D.M. Polyukhov, F. Hoffmann, M. Fröba, M.V. Fedin**
Angew. Chem. Int. Ed., 2021, **60**. DOI: 10.1002/anie.202015058.
20. **A. Schweiger, G. Jeschke**
Principles of Pulse Electron Paramagnetic Resonance, US, NY, New York, Oxford University Press, 2001, 604 pp.
21. **S.A. Dzuba, A. Kawamori**
Concepts Magn. Reson., 1996, **8**, 49. DOI: 10.1002/(SICI)1099-0534(1996)8:1<49::AID-CMR4>3.3.CO;2-8.
22. **D.A. Erilov, R. Bartucci, R. Guzzi, D. Marsh, S.A. Dzuba, L. Sportelli**
J. Phys. Chem. B, 2004, **108**, 4501. DOI: 10.1021/jp037249y.

Изучение органических радикалов блаттеровского типа методом импульсного электронного парамагнитного резонанса при низких температурах

А.С. Порываев, Э. Гжузи, Д.М. Полюхов, Ф. Хоффманн, М. Фрѐба, М.В. Федин

Органические радикалы блаттеровского типа (БР) привлекают всё большее внимание в различных областях химии благодаря своей исключительной стабильности. Различные БР интенсивно исследовались ранее с помощью стационарного электронного парамагнитного резонанса (ЭПР), одного из ключевых методов изучения электронных свойств органических радикалов. Однако до недавнего времени более передовые методы импульсного ЭПР не применялись к изучению спиновой динамики и релаксации БР. В данной статье мы обсуждаем экспериментальные наблюдения и закономерности, помогающие в корректном получении и интерпретации результатов импульсного ЭПР блаттеровских радикалов при различных концентрациях, что может быть востребовано в будущих исследованиях растворов и твердотельных образцов, содержащих этот тип радикалов.

Ключевые слова: ЭПР спектроскопия, радикал Блаттера, импульсный ЭПР.

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проекты № 20-53-12005 и FR 1372/26-1).

Изображения и таблицы

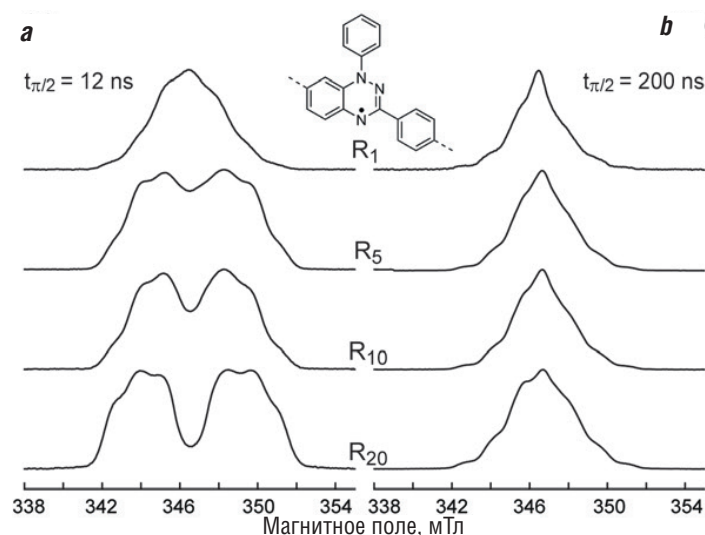


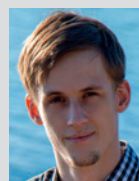
Рис. 1. Эхо-детектируемые спектры ЭПР X-диапазона образцов R_1 – R_{20} (указано на рисунке), полученные с использованием коротких микроволновых импульсов 12/24 нс (а) и длинных микроволновых импульсов 200/400 нс (б). Сверху: структура радикала (BTR), присоединенного к SBA-15 через дополнительные линкеры (показано пунктиром). Все спектры нормированы; $T = 10$ К.



ПОРЫВАЕВ
Артем Сергеевич
Международный
томографический
центр СО РАН



ГЖУЗИ Эфа
Институт неорганической
и прикладной химии,
Университет Гамбурга,
Германия



ПОЛЮХОВ
Даниил Максимович
Международный
томографический
центр СО РАН



ХОФФМАНН Франк
Институт неорганической
и прикладной химии,
Университет Гамбурга,
Германия



ФРѐБА Михаэль
Институт неорганической
и прикладной химии,
Университет Гамбурга, Гер-
мания



ФЕДИН
Матвей Владимирович
Международный
томографический
центр СО РАН

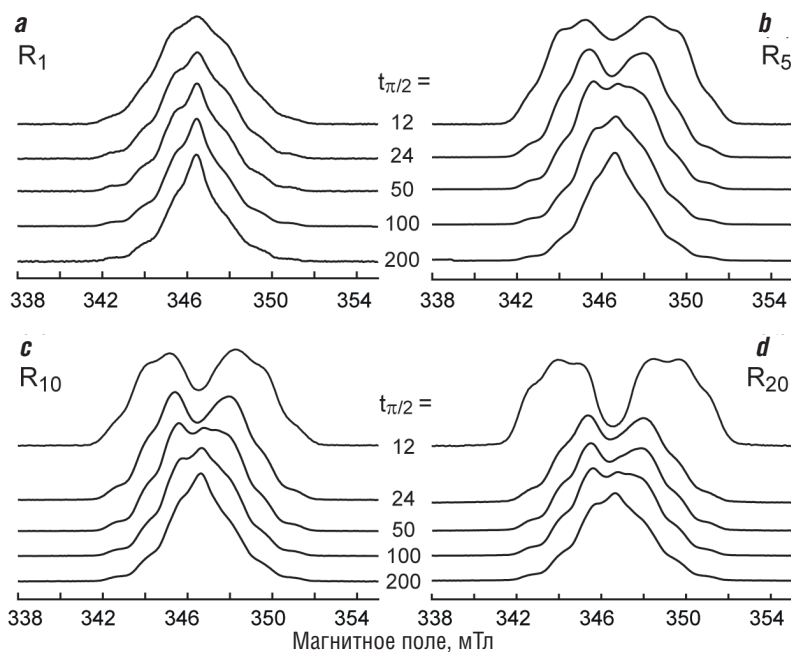


Рис. 2. Зависимость формы эхо-детектированного спектра ЭПР от длины импульса для образцов R_1 (a), R_5 (b), R_{10} (c) и R_{20} (d). Длины импульсов $t_{\pi/2}$ для $\pi/2$ -импульса указаны на рисунке. Все спектры нормированы. $T = 10$ K.

Литература

1. *Stable Radicals: Fundamentals and Applied Aspects of Odd-Electron Compounds*, Ed. R. Hicks, Germany, John Wiley & Sons, Ltd., 2010, 606 pp. DOI: 10.1002/9780470666975.
2. **F. Gerson, W. Huber**
Electron Spin Resonance Spectroscopy of Organic Radicals, Germany, Weinheim. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2003, 479 pp. DOI: 10.1002/3527601627.
3. **T.I. Smirnova, M.A. Voinov, A.I. Smirnov**
Spin Probes and Spin Labels, in Encyclopedia of Analytical Chemistry, Germany, John Wiley & Sons, Ltd., 2009. DOI: 10.1002/9780470027318.a9049.
4. **E. Bordignon**
eMagRes, 2017, **6**, 235. DOI: 10.1002/9780470034590.emrstm1513.
5. **G. Jeschke**
eMagRes, 2016, **5**, 1459. DOI: 10.1002/9780470034590.emrstm1518.
6. **O. Schiemann, T.F. Prisner**
Quart. Rev. Biophys., 2007, **40**, 1. DOI: 10.1017/S003358350700460X.
7. **Z. Vekšli, M. Andreis, B. Rakvin**
Prog. Pol. Sci., 2000, **25**, 949. DOI: 10.1016/S0079-6700(00)00025-3.
8. **S.A. Dzuba**
Spectrochim. Acta A, 2000, **56**, 227. DOI: 10.1016/S1386-1425(99)00234-6.
9. **M.Yu. Ivanov, M.V. Fedin**
Mendeleev Commun., 2018, **28**, 565. DOI: 10.1016/j.mencom.2018.11.001.
10. **A.A. Bobko, I. Dhimitruka, T.D. Eubank, C.B. Marsh, J.L. Zweier, V.V. Khrantsov**
Free Rad. Biol. Med., 2009, **47**, 654. DOI: 10.1016/j.freeradbiomed.2009.06.007.
11. **M. Tseitlin, J.R. Biller, H. Elajaili, V.V. Khrantsov, I. Dhimitruka, G.R. Eaton, S.S. Eaton**
J. Magn. Reson., 2014, **245**, 150. DOI: 10.1016/j.jmr.2014.05.013.
12. **B. Epel, H.J. Halpern**
eMagRes, 2017, **6**, 149. DOI: 10.1002/9780470034590.emrstm1512.
13. **O. Krumkacheva, E. Bagryanskaya**
B Electron Paramagnetic Resonance, Vol. 25, Eds. V. Chechik, D.M. Murphy, Publ. The Royal Society of Chemistry, 2017, 25, pp. 35–60. DOI: 10.1039/9781782629436-00035.
14. **G.Yu. Shevelev, O.A. Krumkacheva, A.A. Kuzhelev, A.A. Lomzov, O.Yu. Rogozhnikova, D.V. Trukhin, T.I. Troitskaya, V.M. Tormyshev, M.V. Fedin, D.V. Pyshnyi, E.G. Bagryanskaya**
J. Amer. Chem. Soc., 2014, **136**, 9874. DOI: 10.1021/ja505122n.
15. **C.P. Constantinides, P.A. Koutentis, H. Krassos, J.M. Rawson, A.J. Tasiopoulos**
J. Org. Chem., 2011, **76**, 2798. DOI: 10.1021/jo200210s.
16. **Y. Ji, L. Long, Y. Zheng**
Mater. Chem. Front., 2020, **4**, 3433. DOI: 10.1039/d0qm00122h.
17. **P. Bartos, B. Anand, A. Pietrzak, P. Kaszyński**
Org. Lett., 2020, **22**, 180. DOI: 10.1021/acs.orglett.9b04130.
18. **N.M. Gallagher, J.J. Bauer, M. Pink, S. Rajca, A. Rajca**
J. Am. Chem. Soc., 2016, **138**, 9377. DOI: 10.1021/jacs.6b05080.
19. **A.S. Poryvaev, E. Gjuzi, D.M. Polyukhov, F. Hoffmann, M. Fröba, M.V. Fedin**
Angew. Chem. Int. Ed., 2021, **60**. DOI: 10.1002/anie.202015058.
20. **A. Schweiger, G. Jeschke**
Principles of Pulse Electron Paramagnetic Resonance, US, NY, New York, Oxford University Press, 2001, 604 pp.
21. **S.A. Dzuba, A. Kawamori**
Concepts Magn. Reson., 1996, **8**, 49. DOI: 10.1002/(SICI)1099-0534(1996)8:1<49::AID-CMR4>3.3.CO;2-8.
22. **D.A. Erilov, R. Bartucci, R. Guzzi, D. Marsh, S.A. Dzuba, L. Sportelli**
J. Phys. Chem. B, 2004, **108**, 4501. DOI: 10.1021/jp037249y.



Long-Lived Hyperpolarized Molecules for Magnetic Resonance Produced with Parahydrogen

Kirill V. Kovtunov

International Tomography Center, SB RAS
3A Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russia
kovtunov@tomo.nsc.ru

Igor V. Koptyug

International Tomography Center, SB RAS
3A Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russia
koptyug@tomo.nsc.ru

Andrey N. Pravdivtsev

Section Biomedical Imaging, MOIN CC, University of Kiel
Am Botanischen Garten 14, D-24118 Kiel, Germany
andrey.pravdivtsev@rad.uni-kiel.de

Jan-Bernd Hövener

Section Biomedical Imaging and MOIN CC,
Emmy Noether Group: Molecular and Metabolic MRI – M3
Am Botanischen Garten 14, D-24118 Kiel, Germany
jan.hoeverner@rad.uni-kiel.de

Abstract

Achieving significant signal enhancement in NMR and MRI is one of the priorities of contemporary science. Parahydrogen-based methods, such as parahydrogen-induced polarization (PHIP), reversible hydrogen-complex-ligand exchange (SABRE), ligand-to-substrate polarization transfer by hydrogen exchange (SABRE-RELAY), compare favorably with more expensive methods of creating nuclear spin hyperpolarization such as dynamic nuclear polarization and optical pumping of noble gases. However, parahydrogen primarily yields hyperpolarization of ^1H nuclei, which has a relatively short lifetime. Research conducted by the Russian and German teams within the framework of a joint RFBR – DFG project aims to develop new and unique methods for achieving long-lived hyperpolarization of important amino acids (alanine, aspartic acid, glutamic acid, glycine, phenylalanine, valine). The transfer of hyperpolarization to heteronuclei (^{13}C , ^{15}N) and the use of long-lived spin states can significantly increase the polarization lifetime, which is essential for MRI of biologically active compounds and their enzymatic transformations.

Keywords: MRI, spin hyperpolarization, parahydrogen, long-lived spin states, amino acids.

* The work was financially supported by RFBR and DFG (projects 19-53-12013 and HO 4604/3-1).

The goals of the global concept of sustainable development of society include, inter alia, the health and well-being for people, and highly efficient, safe, and clean chemical production as the key elements. Without doubt, the future of human civilization will be largely dependent on both the green and efficient industrial production of a wide range of chemicals and materials, and the quality of affordable medicine including medical diagnostics.

It would not be an exaggeration to say that catalysis makes the world a better place [1]. Indeed, catalysis is a major cornerstone of the modern chemical industry: over 80% of all manufactured products rely on catalytic processes at some stage of their processing, and *ca.* 30% of the gross domestic product in European economies requires catalysis. Moreover, the role of catalysis in achieving the sustainable future is enormous, ranging from automotive exhaust purification and wastewater remediation to clean energy and sustainable food production, advanced medical care, and more.

In modern medicine, magnetic resonance imaging (MRI) is one of the leading technologies in routine diagnostic practice to detect a wide range of diseases and pathologies. Every day, countless clinics around the world carry out numerous MRI procedures to examine human organs and tissues and to identify various kinds of health problems. In addition, magnetic resonance spectroscopy (MRS) is being increasingly used to monitor reporter molecules after they are injected into the body, or to detect a number of metabolites in organs and tissues *in vivo*. In fact, over the past 15 years magnetic resonance is rapidly entering a new era of "molecular and cellular imaging", defined as the visualization and quantitative assessment of processes at the cellular and sub-cellular level in living organisms. This development opens up new possibilities for detecting various pathologies as well as the response to their controlled treatment at the very early stages, well before morphological changes become apparent.

The joint research efforts of the Russian and German teams (Figure 1) are directed toward combining modern catalysis and magnetic resonance for solving the sensitivity problems of modern magnetic resonance and advancing its novel applications. In particular, the NMR-based techniques such as MRI and MRS are limited by their low sensitivity due to a weak interaction of nuclear spins with a magnetic field, making them quite reluctant to achieve an oriented state. As a result, nuclear magnetization of a sample (e.g., human body in MRI) is weak even in the strong magnetic fields of a few Tesla of modern imaging instruments, so that the signal intensities and thus the signal-to-noise (SNR) and contrast-to-noise (CTN) ratios in MRI are relatively low. This poses a major obstacle for developing advanced techniques of medical diagnostics.



Fig. 1. Cooperation between the research teams from Novosibirsk and Kiel on the development of parahydrogen-based signal enhancement techniques for NMR and MRI. (Collage by A.I. Svyatova).

Numerous technical improvements have been proposed to address this challenge since the introduction of MRI in everyday medical practice. In particular, higher magnetic fields have been successfully implemented, along with the development and utilization of more efficient methods of NMR signal detection such as parallel imaging, compressed sensing, etc. However, most of these advances make the equipment even more expensive, while the achieved signal enhancements are in the range of single digits.

There is, however, a way of providing a dramatically higher signal enhancement in NMR and MRI. The central idea is to force the nuclear spins in a sample under study to orient temporarily

in the same direction. This way, depending on the nucleus addressed, the applied magnetic field, and other experimental parameters, the sensitivity enhancements of 10,000- to 100,000-fold and even more have been achieved.

This possibility has been recognized early in the history of the development of magnetic resonance, but gained significant attention [2, 3] in recent years once its potential in biomedical MRI and MRS has been established. Today, these techniques are known collectively as spin hyperpolarization. Currently, the interest in the application of hyperpolarized contrast agents in magnetic resonance (MR) is growing at an accelerating pace. Two general strategies may be distinguished: one involves the use of gaseous agents, e.g. for inhalation and lung imaging, while another utilizes small molecules in solution for injection. For the latter, there are two general ways for their use *in vivo*. The first one relies on the use of hyperpolarized compounds that are retained in the bloodstream for a relatively long time (minutes or more). They are used, in particular, to study tissue perfusion and accumulation upon inflammation as well as to rapidly acquire angiographic images of blood vessels with high spatial resolution after intravenous injection of a hyperpolarized solution [4]. The second one is based on the hyperpolarization of compounds that occur naturally in a living organism and are metabolized on the time scale of tens of seconds, *i.e.*, within the lifetime of hyperpolarization. When a molecule is metabolized, its hyperpolarization is inherited by the newly formed metabolic products [5]. This makes it possible to map metabolic conversions in a living organism with temporal and spatial resolution in an organ- or tissue-specific manner. Thus, a real-time monitoring of important dynamic metabolic processes *in vivo* and a quantitative study of their kinetics can be performed in a non-invasive manner. These possibilities have been demonstrated both under normal conditions and for various pathologies. The importance of such measurements relies on the fact that normal cellular metabolism is perturbed in essentially all abnormal states of tissues and organs. Usually, the associated specific alteration of metabolism can be used as a marker for detecting a pathology or disease at a very early stage of development before the onset of macroscopic morphological changes and for establishing their nature. Equally important is the early detection of the response to therapy. All this provides a major driving force for modern research in this area.

The leading hyperpolarization technique, dynamic nuclear polarization (DNP), has been already used to demonstrate the production of about

40 hyperpolarized metabolites potentially suitable for *in vivo* applications. Polarization levels of 10–60% were achieved for ^{13}C , ^{15}N and ^{31}P nuclei, which translates to SNR enhancements of 4–5 orders of magnitude. Most of the published studies are aimed at gaining insight into the metabolic transformation pathways of pyruvate using ^{13}C -detected MRI/MRS [5]. This hyperpolarized compound is already used in clinical trials in patients with prostate cancer [6] and other pathologies. After intravenous injection, ^{13}C -labeled pyruvate is rapidly distributed in the body and is actively transported to the cells of most organs, where it is rapidly metabolized with the inclusion of a hyperpolarized ^{13}C label in the products of its metabolic conversion. In the cytosol of a living cell, pyruvate is converted to lactate by the enzyme lactate dehydrogenase (LDH) and transaminated to L-alanine by alanine aminotransferase (ALT). In mitochondria, pyruvate is converted to CO_2 and acetyl-coenzyme A (acetyl-CoA), the latter being one of the access points to the tricarboxylic acid cycle. Dynamic spectra and maps of the distribution of hyperpolarized pyruvate and its main metabolites (alanine, lactate, and bicarbonate) in organs and tissues of humans as well as laboratory animals were obtained in *in vivo* studies [5, 6]. In the vast majority of studies performed, an increased lactate/pyruvate ratio was consistently observed in tumors compared with normal tissues. In addition, the lactate signal was found to respond much earlier to treatment than common indicators such as tumor size [7]. Examples of metabolic studies using other hyperpolarized substrates [5] include alanine, glutamate, lactate, acetate, fructose, fumarate and ascorbic acid.

The above examples highlight the potential of hyperpolarized contrast agents in combination with *in vivo* MRI/MRS for developing novel tools for the medical diagnostics of tomorrow. At the same time, despite the significant advances achieved with the DNP technique, the latter has some major disadvantages as well. In particular, the DNP technique is technically rather sophisticated, requires expensive instrumentation (superconducting magnets, microwave sources, cryopumps), and often involves high operational costs, as well as low throughput in terms of the production times and delivered amounts of the hyperpolarized samples.

A much faster progress toward much wider clinical trials and subsequent introduction into routine medical practice await the development of alternative hyperpolarization techniques. Such techniques would preferably be much less expensive and more efficient in the production of hyperpolarized contrast agents. One such alternative technique [8]

is based on the use of parahydrogen, one of the two modifications of H_2 with zero combined nuclear spin of its two H atoms. Hydrogenation of a suitable precursor molecule with parahydrogen results in the hyperpolarization of the product molecule at the levels comparable to those obtained with DNP. At the same time, the parahydrogen-induced polarization (PHIP) technique is drastically simpler and less expensive than DNP.

This is where catalysis chimes in. Since parahydrogen has no nuclear spin, it is useless in magnetic resonance unless and until it is activated. As H_2 is a rather unreactive molecule, efficient catalysts are required for breaking the H–H bond. Catalytic hydrogenation reactions are important transformations for both petrochemical and fine chemical industries. It is estimated that 25% of all chemical transformations include at least one hydrogenation step [9]. In particular, polymer-grade alkenes such as ethylene, propylene and butene [10] are produced by cracking of larger hydrocarbons from a variety of oil feedstocks, with subsequent removal of minute amounts of alkynes and dienes by their selective catalytic semihydrogenation. Molecular hydrogen activation is also a key ingredient in hydroprocessing of oil fractions used in oil refining, in the industrial-scale synthesis of ammonia by the Haber–Bosch process, in the Fischer–Tropsch synthesis of liquid hydrocarbons from syngas, in methanation, production of methanol and formic acid, and more.

Catalysis is thus a key ingredient of the PHIP technique. An unsaturated substrate with a double or triple carbon-carbon bond is hydrogenated with parahydrogen over a transition-metal-based catalyst, which yields a reaction product with a dramatically enhanced NMR signal (*Figure 2*). With an appropriate choice of substrates, this may be suitable for biomedical applications of MRI/MRS. One limitation of this approach for producing biocompatible hyperpolarized contrast agents is the requirement of the availability of an unsaturated precursor which, upon hydrogenation, would give the desired hyperpolarized substance. Such compounds are not always available, or can be unstable. For instance, pyruvate, which can be readily hyperpolarized by DNP and which currently dominates in the *in vivo* studies, is impossible to produce by a single-step hydrogenation process. A practical solution was introduced by Aime *et al.* for the hyperpolarization of ^{13}C nuclei of carboxylic acids and is known as side-arm hydrogenation [11, 12]. In this case, a homogeneous hydrogenation of an unsaturated ester (*e.g.*, propargyl pyruvate) with

parahydrogen is carried out, then hyperpolarization is transferred from ^1H to ^{13}C nuclei of the carboxyl group, after which the ester group is hydrolyzed with an aqueous alkali solution. As a result, a solution of sodium pyruvate with hyperpolarized ^{13}C nuclei is obtained. It was also shown that hyperpolarized pyruvate can be separated from a homogeneous catalyst by extraction *via* phase separation.

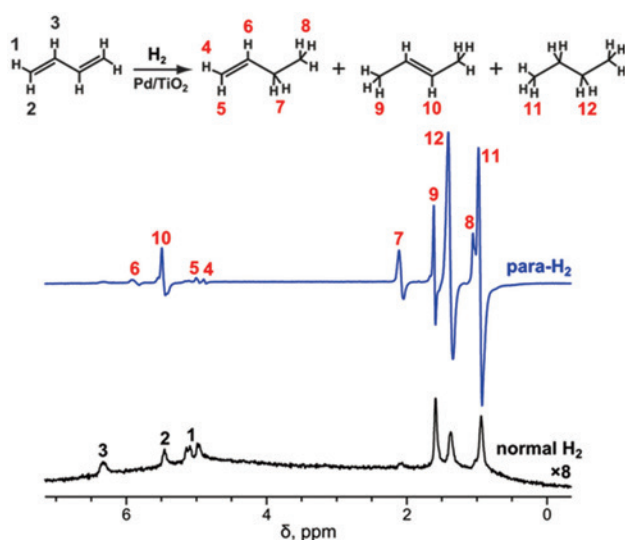


Fig. 2. The reaction scheme of 1,3-butadiene hydrogenation to butenes and butane over Pd/TiO₂ catalyst and the ^1H NMR spectra obtained with parahydrogen (top) and normal hydrogen (bottom) exhibiting pronounced signal enhancements for all reaction products. The bottom spectrum was scaled up by 8-fold for a better presentation.

Another possibility to expand the range of molecules that can be hyperpolarized with parahydrogen was disclosed by Duckett *et al.* [13]. The method is based on the transfer of polarization from parahydrogen activated on a catalytically active center to a ligand coordinated to the same metal complex under conditions of continuous ligand exchange. As such, this process does not involve an incorporation of hydrogen into a polarized product, *i.e.*, the substrate is not chemically modified as a result of this hyperpolarization scheme. This method was dubbed SABRE (Signal Amplification by Reversible Exchange). The first observation of SABRE hyperpolarization was reported for the protons of pyridine through the interaction of a cationic iridium metal complex with hydrogen. It is believed that the spontaneous transfer of polarization from the coordinated para-H₂ to the ligand occurs due to the coherent redistribution of the spin polarization, which is effective in weak magnetic fields. However, other methods of polarization transfer have recently been proposed in the SABRE experiments in strong magnetic fields [14] (Figure 3), which indicates a more complex and versatile nature of the SABRE effect. The most recent extension

of the SABRE technique, SABRE-RELAY, makes the range of molecules that can be hyperpolarized with parahydrogen even larger. It uses SABRE to hyperpolarize an exchanging ligand which possesses exchangeable hydrogen atoms in its structure (*e.g.*, an amine). Subsequent hydrogen exchange of this hyperpolarized molecule with the suitable target molecule transfers polarized hydrogen atoms to the latter. This approach is deemed particularly promising for hyperpolarizing amino acids.

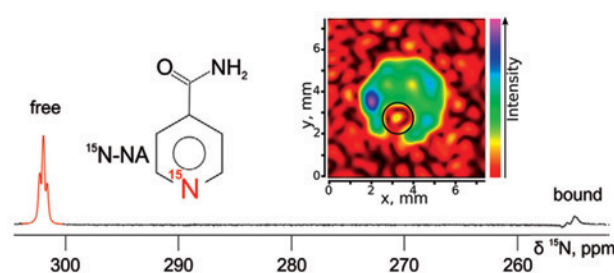


Fig. 3. ^{15}N NMR spectrum of ^{15}N -nicotinamide in CD₃OD hyperpolarized at high magnetic field (9.4 T) with the use of parahydrogen. The NMR signals of free and catalyst-bound ^{15}N -NA are enhanced 834-fold compared to their normal intensity. The inset shows the ^{15}N MR image of this sample in a glass tube. The signal void (circle) in the image corresponds to the capillary that supplies parahydrogen to the sample to achieve the signal enhancement. (Adapted from ref. [14] with permission of WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim).

As hyperpolarization is not a thermal equilibrium state of nuclear spins, it has a limited lifetime. In particular, the use of parahydrogen provides primary hyperpolarization on ^1H nuclei, which for most molecules in solution have typical relaxation times of the order of 3–10 s. This significantly limits the lifetime of spin hyperpolarization and is obviously insufficient for *in vivo* studies as hyperpolarization would disappear before the delivery and metabolic transformation of a hyperpolarized contrast agent can take place. Therefore, the development of approaches to increase the lifetime of hyperpolarization for MR applications is a fundamentally important and urgent task.

Compared to hydrogen atoms, heteronuclei such as ^{13}C , ^{15}N , ^{29}Si and some other nuclei usually have significantly longer nuclear spin relaxation times. For instance, relaxation times of ^{13}C nuclei are of the order of tens of seconds even under *in vivo* conditions. Therefore, the transfer of hyperpolarization to heteronuclei can be used to increase hyperpolarization lifetime and provide the sufficient time window for the preparation, characterization, administration and transport of a hyperpolarized sample to the cells where its metabolic transformation can be monitored. The transfer of parahydrogen-induced polarization to heteronuclei also provides a significant increase in sensitivity and contrast for the detection of these

metabolites in a background-free manner. In certain cases, the transfer of hyperpolarization to heteronuclei can occur spontaneously, but the efficiency of such transfer is usually low and uncontrollable. Targeted and controlled transfer of hyperpolarization from protons to heteronuclei can be performed using various radio-frequency pulse sequences. A large library of pulse sequences for ^1H -to-heteronuclei hyperpolarization transfer is currently known. However, further work in this direction is required to achieve optimized hyperpolarization transfer for a broad range of experimental conditions and metabolites.

Another approach to the transfer of hyperpolarization to heteronuclei is to place a molecule in an ultralow magnetic field ($\sim 1 \mu\text{T}$ or lower), with a subsequent adiabatic increase in the magnetic field to Earth's field. Technically, this can be done by placing the sample in a magnetic mu-metal shield and then relatively slowly extracting it into the Earth's magnetic field, or by slowly increasing the magnetic field in the shield using additional electromagnetic coils. With this approach, hyperpolarization of ^{13}C nuclei of up to 25% has been achieved. It was also shown that this approach is suitable for the transfer of ^1H polarization to other heteronuclei, for example, ^{19}F and ^{15}N . While polarization transfer with pulse trains can be more efficient, the undoubted advantage of the approach with magnetic field variation is its technical simplicity and scalability.

Yet another possibility to significantly prolong the hyperpolarization lifetime is the utilization of the so-called long-lived spin states (LLSS). For a long time, a common perception in magnetic resonance was that a non-equilibrium spin state cannot have a characteristic lifetime longer than nuclear spin relaxation time (T_1) of the nuclei under study. So it came as a complete surprise to many that the lifetime of certain spin states can be significantly longer. The most dramatic example of LLSS is that of parahydrogen, the singlet state of the two nuclear spins which survives for months under normal conditions, while the T_1 time of H_2 is in the millisecond range (!). In PHIP and SABRE, the singlet spin order of para- H_2 can be transferred to other nuclei of the product or substrate where it can be transformed into a LLSS. Storing hyperpolarization in such states with a subsequent recovery at a later time allows one to increase the effective lifetime of hyperpolarization by at least an order of magnitude [15], which is very important for *in vivo* applications. Another advantage of this approach is that it works well for protons which can be interrogated on any medical imaging instrument, while heteronuclear capability is seldom available in the clinical practice.

Another major issue that needs to be solved in this field is associated with the requirement to utilize

organometallic complexes to perform hydrogenation or exchange processes with parahydrogen. PHIP and SABRE methods use different organometallic complexes with Ru, Rh, Ir metal atoms which are considered toxic and carcinogenic. Therefore, developing methods for removing organometallic complexes from the hyperpolarized solution is required. Importantly, in 2008, the Russian team demonstrated the fundamental possibility to observe the PHIP effects in the gas-phase hydrogenation of propylene to propane over a supported metal heterogeneous catalyst $\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ [16]. A large number of studies followed, which demonstrated the possibility to use a broad range of heterogeneous catalysts for producing hyperpolarized substances in hydrogenation reactions with parahydrogen [17]. This, among other things, can be used to create highly sensitive methods for the detection of reactive intermediates of the corresponding chemical transformations and establishing the detailed mechanisms of the processes occurring at the molecular level. This, in turn, is essential to achieve an increased efficiency of large-scale industrial processes, to reduce their cost and, ultimately, to transfer these processes to the rails of green chemistry.

The efforts of the Russian and German groups participating in the joint RFBR-DFG project are directed toward the development of parahydrogen-based signal enhancement in MR. A more specific goal of the project is to identify, optimize and apply new classes of hyperpolarized molecular agents for MRI. It is expected that as a result of these joint efforts, new hyperpolarized agents will become available for molecular imaging at a much lower cost than available today with more sophisticated and expensive techniques. Both German and Russian research teams have more than 10 years of experience in this research field, reflected by a total of >80 articles on this topic, three of which were published jointly [12, 14, 18]. Each team provides unique and complementary expertise that is necessary for this strongly interdisciplinary project. The Russian team (Figure 4) is focused more on the chemical aspects of the involved processes, including the synthesis of new substrates and catalysts, and the analysis of hydrogenation reaction pathways. The German team (Figure 5) tends to focus on the important physical aspects, including the theoretical description of hyperpolarization phenomena, the polarizer hardware as well as the development of pulse sequences for polarization transfer and *in vivo* applications. A strong synergy effect expected from the cooperation between the Russian and the German teams provides a strong basis for advancing the field of parahydrogen-based hyperpolarization significantly, bringing it closer to the goal of fast, low-cost and reliable metabolic and molecular MRI *in vivo*.



Fig. 4. The Russian team, Laboratory of Magnetic Resonance Microimaging, International Tomography Center, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences (left to right): Dr. Ivan V. Skovpin, Elisaveta S. Kononenko, Dr. Kirill V. Kovtunov, Dudari B. Burueva, Prof. Igor V. Koptug, Ekaterina V. Pokochueva, Dr. Nikita V. Chukanov, Alexandra I. Svyatova, and Dr. Oleg G. Salnikov.



Fig. 5. The German team, Section Biomedical Imaging, Molecular Imaging North Competence Center (MOIN CC), Department of Radiology and Neuroradiology, University Medical Center Kiel, Kiel University, Kiel, Germany (left to right): Frowin Ellermann, Dr. Kolja Them, Prof. Jan-Bernd Hövener, and Dr. Andrey N. Pravdivtsev.

In this joint project, we specifically address the SABRE parahydrogen-based hyperpolarization method mentioned above, including its new variant SABRE-RELAY, which enables the hyperpolarization of a new class of biomolecules in their native state that was not possible before, including amino acids.

So far, the range of molecules appropriate for SABRE was largely limited to heterocyclic organic compounds that can be coordinated to Ir metal center *via* a nitrogen atom. Therefore, it was not possible to polarize many biologically relevant compounds. Recently, it was shown that with SABRE-RELAY ammonia can be used to transfer hyperpolarization to other molecules (e.g. amines, amides, carboxylic acids) *via* proton

exchange at a low magnetic field (~ 5 mT). An efficient use of SABRE approach requires a detailed understanding of the underlying physical and chemical mechanisms and a theoretical description of the entire process. Work is currently in progress to refine and improve the mathematical model of the process and to verify it by comparing with experimental observations.

Several amino acids (L-alanine, L-aspartic acid, L-glutamic acid, glycine, L-valine, L-phenylalanine) are considered for their use as target molecules. Importantly, the synthesis of these amino acids labeled with the ¹⁵N isotope is essential for the analysis of the polarization transfer efficiency and their subsequent utilization as MRI agents. In terms

of experimental advances, the goal is to develop the version of the technique where the entire polarization process, including polarization transfer from protons to heteronuclei, can be achieved entirely at the high magnetic field of an NMR or MRI instrument. At the same time, polarization transfer at ultralow (*e.g.*, microtesla and below) magnetic fields may be advantageous and may enable heteronuclear polarization of an important class of molecules such as amino acids in their native form.

As mentioned above, one particularly important direction of this research is the prolongation of hyperpolarization lifetime. In this joint project, we explore the possibility to use the CH₂ groups of amino acids to store polarization in the long-lived spin states. Indeed, the lifetime of such states of protons in a CH₂ group of amino acids can be significantly (*ca.* 45-fold) longer than their longitudinal relaxation times. Synthetic procedures and experimental schemes for creating and manipulating such LLSS are being developed in the project. Recent studies of the German team demonstrated that LLSS and zero-quantum coherences can be used as quantum filters to boost contrast for ¹H metabolomics, for example, with N-acetyl aspartate [19] (*Figure 6*).

One key aspect of this activity on the way to *in vivo* applications is the toxicity of the commonly

used catalysts comprising organometallic compounds dissolved in the reaction medium. Therefore, developing methods for removing organometallic complexes from the hyperpolarized solution is an essential part of the research that is being conducted. There are several approaches that can be implemented, including the use of heterogeneous catalysts or filtering organometallic catalysts out of the HP solution. It is believed that all these developments will make it possible to achieve the main goal – the *in vivo* application of novel hyperpolarized contrast agents.

Apart from an interesting and promising science, this cooperation promotes a closer international interaction between the researchers of the two countries. The links between the two groups go back many years. Unfortunately, the travel restrictions introduced in 2020 have so far prevented the implementation of the intended mutual visits. Nevertheless, the joint work continues and will hopefully enjoy further exchange visits in the near future.

The authors thank RFBR (No. 19-53-12013) and DFG (No. HO 4604/3-1) for the continuing financial support of this research, A.I. Svyatova for preparing the collage artwork, and all members of the two teams for their valuable contributions to these exciting and important studies.

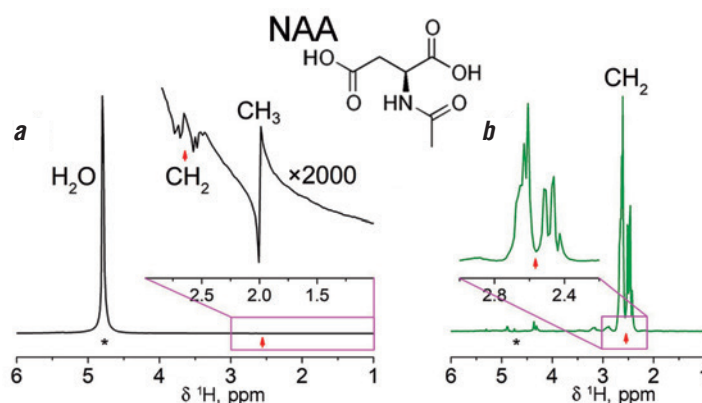


Fig. 6. ¹H NMR spectra of N-acetyl-L-aspartic acid (NAA) in H₂O: a – a conventional spectrum with the signals of metabolite largely distorted by the presence of a dramatically stronger signal of water in the spectrum; b – a spectrum filtered based on the unique properties of the long-lived spin states of the CH₂ group of the target molecule, with the signal of H₂O significantly suppressed while preserving the signal of interest. (Adapted from ref. [19]; use permitted under the Creative Commons Attribution License CC BY 4.0).

References

1. C.R. Catlow, M. Davidson, C. Hardacre, G.J. Hutchings
Phil. Trans. A, 2016, 374(2061), 20150089.
DOI: 10.1098/rsta.2015.0089.
2. J.G. Skinner, L. Menichetti, A. Flori, A. Dost, A.B. Schmidt,
M. Plaumann, F.A. Gallagher, J.-B. Hövener
Mol. Imag. Biol., 2018, 20(6), 902. DOI: 10.1007/s11307-018-1265-0.
3. P. Nikolaou, B.M. Goodson, E.Y. Chekmenev
Chem. Eur. J., 2015, 21(8), 3156. DOI: 10.1002/chem.201405253.
4. J.H. Ardenkjaer-Larsen, C. Laustsen, S. Bowen, R. Rizi
Magn. Reson. Med., 2014, 71, 50. DOI: 10.1002/mrm.25033.
5. K.M. Brindle
J. Am. Chem. Soc., 2015, 137, 6418. DOI: 10.1021/jacs.5b03300.

6. S.J. Nelson, J. Kurhanewicz, D.B. Vigneron, P.E.Z. Larson, A.L. Harzstark, M. Ferrone, M. van Criekinge, J.W. Chang, R. Bok, I. Park, G. Reed, L. Carvajal, E.J. Small, P. Munster, V.K. Weinberg, J.H. Ardenkjaer-Larsen, A.P. Chen, R.E. Hurd, L.-I. Odegardstuen, F.J. Robb, J. Tropp, J.A. Murray
Sci. Transl. Med., 2013, 5, 198ra108.
DOI: 10.1126/scitranslmed.3006070.
7. S. Hu, A. Balakrishnan, R.B.A. Bok, B. Anderton, P.B.E.Z. Larson, S.B.J. Nelson, J. Kurhanewicz, D.B.B. Vigneron, A. Goga
Cell Metab., 2011, 14, 131. DOI: 10.1016/j.cmet.2011.04.012.
8. J. Natterer, J. Bargon
Prog. Nucl. Magn. Reson. Spectrosc., 1997, 31, 293.
DOI: 10.1016/S0079-6565(97)00007-1.
9. G. Vile, D. Albani, N. Almora-Barrios, N. Lopez, J. Perez-Ramirez
ChemCatChem, 2016, 8, 21. DOI: 10.1002/cctc.201501269.
10. L. Zhang, M. Zhou, A. Wang, T. Zhang
Chem. Rev., 2020, 120, 683. DOI: 10.1021/acs.chemrev.9b00230.
11. F. Reineri, T. Boi, S. Aime
Nature Comm., 2015, 6, 5858. DOI: 10.1038/ncomms6858.
12. B. Joalland, A. Schmidt, M.S.H. Kabir, N.V. Chukanov, K.V. Kovtunov, I.V. Koptiug, J. Hennig, J.-B. Hövener, E.Y. Chekmenev
Anal. Chem., 2020, 92, 1340. DOI: 10.1021/acs.analchem.9b04501.
13. R.W. Adams, J.A. Aguilar, K.D. Atkinson, M.J. Cowley, P.I.P. Elliott, S.B. Duckett, G.G.R. Green, I.G. Khazal, J. Lopez-Serrano, D.C. Williamson
Science, 2009, 323(5922), 1708. DOI: 10.1126/science.1168877.
14. A. Svyatova, I.V. Skovpin, N.V. Chukanov, K.V. Kovtunov, E.Y. Chekmenev, A.N. Pravdivtsev, J.-B. Hövener, I.V. Koptiug
Chem. Eur. J., 2019, 25, 8465. DOI: 10.1002/chem.201900430.
15. T.T. Theis, G.X. Ortiz, A.W.J. Logan, K.E. Claytor, Y. Feng, W.P. Huhn, V. Blum, S.J. Malcolmson, E.Y. Chekmenev, Q. Wang, W.S. Warren
Sci. Adv., 2016, 2, e1501438. DOI: 10.1126/sciadv.1501438.
16. K.V. Kovtunov, I.E. Beck, V.I. Bukhtiyarov, I.V. Koptiug
Angew. Chem. Int. Ed., 2008, 47, 1492.
DOI: 10.1002/anie.200704881.
17. K.V. Kovtunov, O.G. Salnikov, I.V. Skovpin, N.V. Chukanov, D.B. Burueva, I.V. Koptiug
Pure & Appl. Chem., 2020, 92, 1029. DOI: 10.1515/pac-2020-0203.
18. A.N. Pravdivtsev, I.V. Skovpin, A.I. Svyatova, N.V. Chukanov, L.M. Kovtunova, V.I. Bukhtiyarov, E.Y. Chekmenev, K.V. Kovtunov, I.V. Koptiug, J.-B. Hövener
J. Phys. Chem. A, 2018, 122, 9107. DOI: 10.1021/acs.jpca.8b07163.
19. A.N. Pravdivtsev, F.D. Sönnichsen, J.-B. Hövener
PLoS One, 2020, 15, e0239982. DOI: 10.1371/journal.pone.0239982.

Долгоживущие гиперполяризованные молекулы для магнитного резонанса на основе использования параводорода

К.В. Ковтунов, И.В. Коптюг, А.Н. Правдивцев, Я.-Б. Ховенер

Развитие методов, позволяющих значительно усиливать сигналы в ЯМР и МРТ, является одним из передовых направлений мировой науки. Использование методов на основе параводорода, таких как индуцированная параводородом поляризация ядер (ИППЯ), обратимое взаимодействие «водород–комплекс–лиганд» (SABRE), перенос поляризации с лиганда на субстрат за счет водородного обмена (SABRE-RELAY), выгодно отличается от более дорогих методов создания гиперполяризации ядерных спинов, таких как динамическая поляризация ядер и оптическая накачка благородных газов. Однако использование параводорода в первую очередь ведет к образованию поляризации на ядрах ^1H , что существенно ограничивает время жизни гиперполяризации. Исследования ученых их России и Германии в рамках совместного проекта РФФИ и ННИО направлены на развитие нового уникального метода гиперполяризации важнейших аминокислот (аланин, аспаргиновая кислота, глутаминовая кислота, глицин, фенилаланин и валин). Перенос гиперполяризации на гетероядра (^{13}C , ^{15}N) и использование свойств долгоживущих спиновых состояний позволит значительно увеличить время жизни поляризации для МРТ визуализации биологически активных соединений и процессов их ферментативных превращений.

Ключевые слова: МРТ, гиперполяризация спинов, параводород, долгоживущие спиновые состояния, аминокислоты.

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проекты № 19-53-12013 и HO 4604/3-1).



КОВТУНОВ
Кирилл Викторович
Международный
томографический
центр СО РАН



КОПТЮГ
Игорь Валентинович
Международный
томографический
центр СО РАН



ПРАВДИВЦЕВ
Андрей Николаевич
Секция биомедицинской
томографии, Центр
молекулярной томогра-
фии, Кильский
университет, Германия



ХОВЕНЕР Ян-Бернд
Секция биомедицинской томографии,
Центр молекулярной томографии,
Кильский университет, Германия

Изображения и таблицы



Рис. 1. Сотрудничество исследовательских групп из Новосибирска и Кия в разработке методов усиления сигнала на основе параводорода для ЯМР и МРТ (коллаж А.И. Святовой).

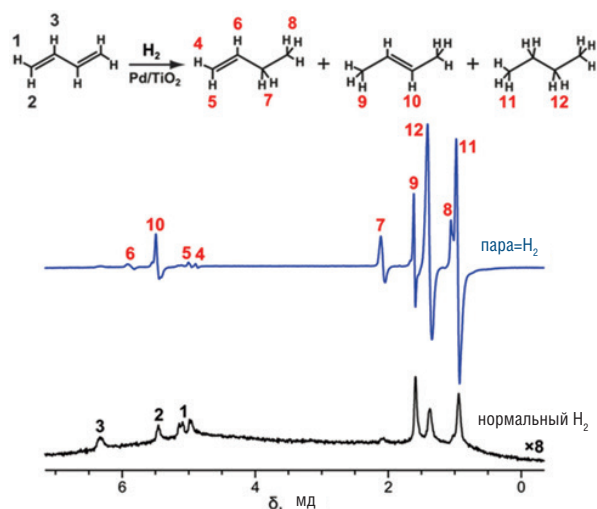


Рис. 2. Схема реакции гидрирования 1,3-бутадиена до бутенов и бутана на катализаторе Pd/TiO₂ и спектры ЯМР ¹H, полученные с параводородом (вверху) и нормальным водородом (внизу), демонстрирующие значительное усиление сигнала для всех продуктов реакции. Нижний спектр был растянут по вертикали в 8 раз для лучшего представления.

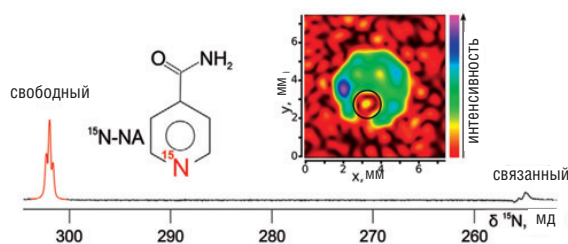


Рис. 3. Спектр ЯМР ¹⁵N-никотинамида в CD₃OD, гиперполяризованного в сильном магнитном поле (9.4 Тл) с использованием параводорода. Сигналы ЯМР свободных и связанных с катализатором молекул ¹⁵N-NA усилены в 834 раза по сравнению с их нормальной интенсивностью. На вставке показано МРТ изображение по ядрам ¹⁵N этого образца в стеклянной трубке. Область с отсутствием сигнала (кружок) на изображении соответствует капилляру, который подает параводород в образец для достижения усиления сигнала. (Адаптировано из статьи [14] с разрешения WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim).

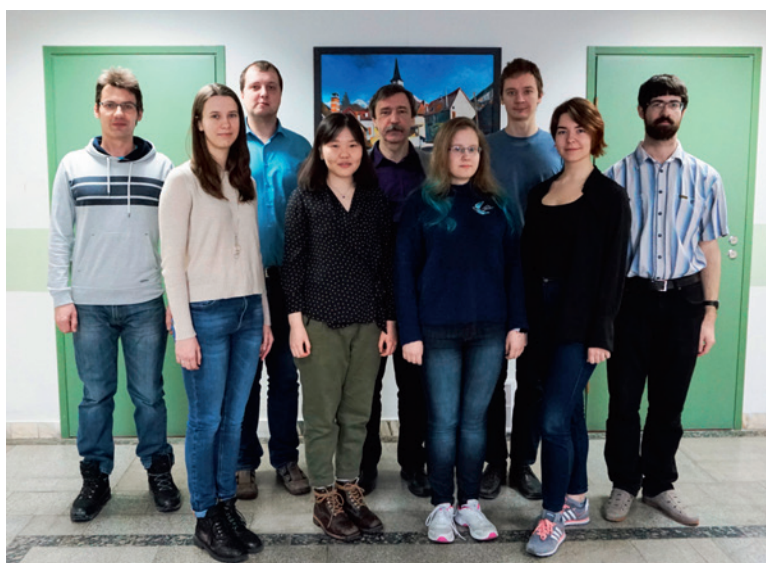


Рис. 4. Российская группа – лаборатория магнитно-резонансной микротомографии, Международный томографический центр Сибирского отделения Российской академии наук (слева направо): к. х. н. Иван Владимирович Сквопин, Елизавета Сергеевна Кононенко, д. х. н. Кирилл Викторович Ковтунов, Дударь Баировна Буруева, проф., д. х. н. Игорь Валентинович Коптюг, Екатерина Васильевна Покоцкая, к. х. н. Никита Владимирович Чуканов, Александра Игоревна Святова, к. х. н. Олег Георгиевич Сальников.

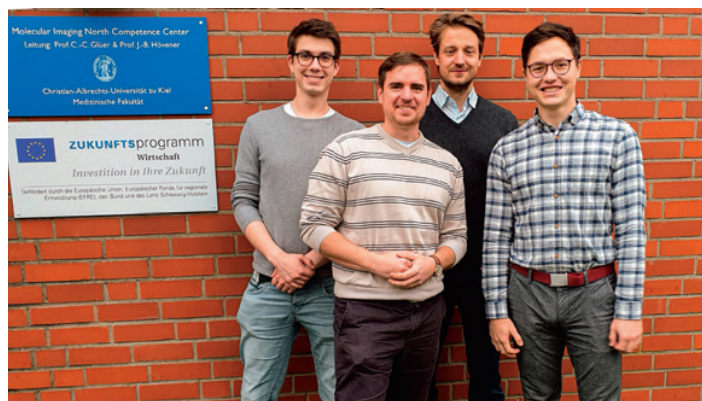


Рис. 5. Немецкая группа – секция биомедицинской визуализации, Северный центр компетенции в области молекулярной визуализации (MOIN CC), отделение радиологии и нейрорадиологии, университетский медицинский центр Киль, Кильский университет, Киль, Германия (слева направо): Фроуин Эллерманн, доктор Коля Тем, проф. Ян-Бернд Ховенер, доктор Андрей Николаевич Правдивцев.

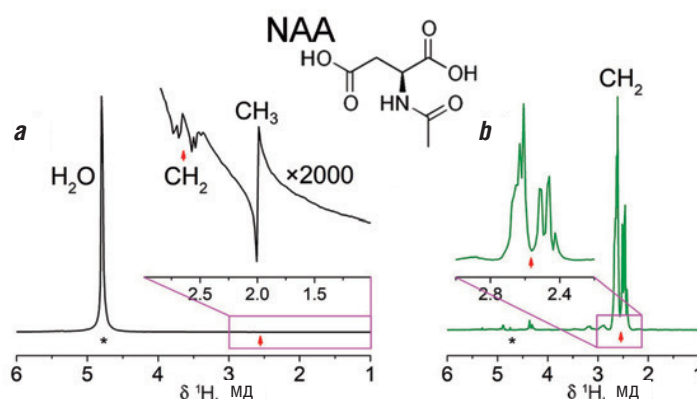


Рис. 6. Спектры ЯМР ^1H N-ацетил-L-аспарагиновой кислоты (NAA) в H_2O : а – обычный спектр с сигналами метаболита, в значительной степени искаженными присутствием в спектре значительно более сильного сигнала воды; б – спектр, отфильтрованный на основе уникальных свойств долгоживущих спиновых состояний группы CH_2 целевой молекулы, при этом сигнал H_2O значительно подавлен при сохранении представляющего интерес сигнала. (Адаптировано из статьи [19]; использование разрешено в соответствии с лицензией Creative Commons Attribution License CC BY 4.0).

Литература

- C.R. Catlow, M. Davidson, C. Hardacre, G.J. Hutchings
Phil. Trans. A, 2016, 374(2061), 20150089.
DOI: 10.1098/rsta.2015.0089.
- J.G. Skinner, L. Menichetti, A. Flori, A. Dost, A.B. Schmidt, M. Plaumann, F.A. Gallagher, J.-B. Hövener
Mol. Imag. Biol., 2018, 20(6), 902. DOI: 10.1007/s11307-018-1265-0.
- P. Nikolaou, B.M. Goodson, E.Y. Chekmenev
Chem. Eur. J., 2015, 21(8), 3156. DOI: 10.1002/chem.201405253.
- J.H. Ardenkjaer-Larsen, C. Laustsen, S. Bowen, R. Rizi
Magn. Reson. Med., 2014, 71, 50. DOI: 10.1002/mrm.25033.
- K.M. Brindle
J. Am. Chem. Soc., 2015, 137, 6418. DOI: 10.1021/jacs.5b03300.
- S.J. Nelson, J. Kurhanewicz, D.B. Vigneron, P.E.Z. Larson, A.L. Harzstark, M. Ferrone, M. van Criekinge, J.W. Chang, R. Bok, I. Park, G. Reed, L. Carvajal, E.J. Small, P. Munster, V.K. Weinberg, J.H. Ardenkjaer-Larsen, A.P. Chen, R.E. Hurd, L.-I. Odegardstuen, F.J. Robb, J. Tropp, J.A. Murray
Sci. Transl. Med., 2013, 5, 198ra108.
DOI: 10.1126/scitranslmed.3006070.
- S. Hu, A. Balakrishnan, R.B.A. Bok, B. Anderton, P.B.E.Z. Larson, S.B.J. Nelson, J. Kurhanewicz, D.B.B. Vigneron, A. Goga
Cell Metab., 2011, 14, 131. DOI: 10.1016/j.cmet.2011.04.012.
- J. Natterer, J. Bargon
Prog. Nucl. Magn. Reson. Spectrosc., 1997, 31, 293.
DOI: 10.1016/S0079-6565(97)00007-1.
- G. Vile, D. Albani, N. Almora-Barrios, N. Lopez, J. Perez-Ramirez
ChemCatChem, 2016, 8, 21. DOI: 10.1002/cctc.201501269.
- L. Zhang, M. Zhou, A. Wang, T. Zhang
Chem. Rev., 2020, 120, 683. DOI: 10.1021/acs.chemrev.9b00230.
- F. Reineri, T. Boi, S. Aime
Nature Comm., 2015, 6, 5858. DOI: 10.1038/ncomms6858.
- B. Joalland, A. Schmidt, M.S.H. Kabir, N.V. Chukanov, K.V. Kovtunov, I.V. Koptuyug, J. Hennig, J.-B. Hövener, E.Y. Chekmenev
Anal. Chem., 2020, 92, 1340. DOI: 10.1021/acs.analchem.9b04501.
- R.W. Adams, J.A. Aguilar, K.D. Atkinson, M.J. Cowley, P.I.P. Elliott, S.B. Duckett, G.G.R. Green, I.G. Khazal, J. Lopez-Serrano, D.C. Williamson
Science, 2009, 323(5922), 1708. DOI: 10.1126/science.1168877.
- A. Svyatova, I.V. Skovpin, N.V. Chukanov, K.V. Kovtunov, E.Y. Chekmenev, A.N. Pravdivtsev, J.-B. Hövener, I.V. Koptuyug
Chem. Eur. J., 2019, 25, 8465. DOI: 10.1002/chem.201900430.
- T.T. Theis, G.X. Ortiz, A.W.J. Logan, K.E. Claytor, Y. Feng, W.P. Huhn, V. Blum, S.J. Malcolmson, E.Y. Chekmenev, Q. Wang, W.S. Warren
Sci. Adv., 2016, 2, e1501438. DOI: 10.1126/sciadv.1501438.
- K.V. Kovtunov, I.E. Beck, V.I. Bukhtiyarov, I.V. Koptuyug
Angew. Chem. Int. Ed., 2008, 47, 1492.
DOI: 10.1002/anie.200704881.
- K.V. Kovtunov, O.G. Salnikov, I.V. Skovpin, N.V. Chukanov, D.B. Burueva, I.V. Koptuyug
Pure & Appl. Chem., 2020, 92, 1029. DOI: 10.1515/pac-2020-0203.
- A.N. Pravdivtsev, I.V. Skovpin, A.I. Svyatova, N.V. Chukanov, L.M. Kovtunova, V.I. Bukhtiyarov, E.Y. Chekmenev, K.V. Kovtunov, I.V. Koptuyug, J.-B. Hövener
J. Phys. Chem. A, 2018, 122, 9107. DOI: 10.1021/acs.jpca.8b07163.
- A.N. Pravdivtsev, F.D. Sönnichsen, J.-B. Hövener
PLoS One, 2020, 15, e0239982. DOI: 10.1371/journal.pone.0239982.

Когерентное управление взаимодействующими спиновыми возбуждениями в полупроводниковых гетероструктурах

М. Байер, М.М. Глазов, А.В. Кавокин, Ю.Г. Кусраев

В статье описаны основные достижения Российско-немецкого научного центра «Когерентное управление взаимодействующими спиновыми возбуждениями в полупроводниковых гетероструктурах», партнерами которого являются Санкт-Петербургский государственный университет, Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук и Технический университет Дортмунда (Германия). За пять лет активной научно-исследовательской работы центра при поддержке РФФИ и ДФГ получены прорывные результаты в области спиновой физики.

Ключевые слова: спин, спин-орбитальное взаимодействие, сверхтонкое взаимодействие, оптическая ориентация, спиновые флуктуации, спиновый резонанс.

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проекты №№ 08-02-91960, 15-52-12011, 15-52-12012, 19-52-12032, 19-52-12034, 19-52-12038, 19-52-12043, 19-52-12046, 19-52-12054, 19-52-12057, 19-52-12058, 19-52-12059, 19-52-12063, 19-52-12064, 19-52-12065 и 19-52-12066).

Введение

Первые десятилетия двадцать первого века проходят под знаменем бурного развития квантовых технологий. Поиск, исследование и разработка неклассических методов хранения, обработки и передачи информации входят в число ключевых задач, стоящих перед исследователями во всём мире. Среди всевозможных систем, которые могли бы составить альтернативу классической единице информации – биту, спин электрона занимает особое место. По всему миру ведутся масштабные экспериментальные и теоретические исследования спиновых явлений в широком круге материальных систем, в том числе в полупроводниках и полупроводниковых наноструктурах, которые являются интересными с точки зрения фундаментальной физики и перспективными для приборных применений. В этих исследова-

ниях заметную роль играют научные коллективы России и Германии.

Для поддержки и координации совместных исследований в области спиновой физики в полупроводниковых наносистемах была разработана и с 2015 г. принята к финансированию исследовательская программа Международного научного центра «Когерентное управление взаимодействующими спиновыми возбуждениями в полупроводниковых гетероструктурах» (International Collaborative Research Center ICRC TRR 160 “Coherent manipulation of interacting spin excitations in tailored semiconductors”, далее – МНЦ, Центр). МНЦ включает в себя ученых из двух российских организаций: Физико-технического института (ФТИ) им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук (Санкт-Петербург) и Санкт-Петербургского государственного университета (СПбГУ) и немецкого партнера – Тех-



БАЙЕР Манфред
Технический университет
Дортмунда, Германия



ГЛАЗОВ
Михаил Михайлович
Физико-технический институт
имени А.Ф. Иоффе РАН



КАВОКИН
Алексей Витальевич
Санкт-Петербургский
государственный
университет



КУСРАЕВ
Юрий Георгиевич
Физико-технический институт
имени А.Ф. Иоффе РАН

нического университета Дортмунда (ТУ Дортмунда) при поддержке Рурского университета в Бохуме (Германия). Руководителем МНЦ с немецкой стороны выступает Манфред Байер (Manfred Bayer, ректор Технического университета Дортмунда). Лаборатории М. Байера принадлежит ряд широко известных пионерских результатов в области спиновой динамики электронов и ядер и физики ридберговских экситонов в полупроводниках. С российской стороны соруководителями МНЦ являются Юрий Георгиевич Кусраев (руководитель отделения в ФТИ им. А.Ф. Иоффе), крупный специалист в области спиновых явлений в полупроводниках, и Алексей Витальевич Кавокин (руководитель Лаборатории оптики спина в СПбГУ), физик-теоретик с мировым именем в области оптических и спиновых явлений.

История плодотворных научных контактов между организациями-партнерами насчитывает более двух десятков лет. Основы успешного научного сотрудничества этих организаций были заложены в 90-е годы прошлого века благодаря контактам Дитмара Фрелиха (ТУ Дортмунда) и Р.В. Писарева (ФТИ им. А.Ф. Иоффе) в области нелинейной оптики систем с сильными корреляциями. Два постоянных сотрудника группы Байера (Д.Р. Яковлев и И.А. Акимов) являются выходцами из ФТИ им. А.Ф. Иоффе; они активно сотрудничают с исполнителями данного проекта с 1990-х годов, когда в ходе совместных исследований Е.Л. Ивченко и Д.Р. Яковлевым было обнаружено подавление спиновой релаксации свободных электронов магнитным полем в полупроводниковых двумерных системах, исследованы магнитооптические эффекты в спиновых сверхрешетках, изучен резонансный оптический отклик структур с квантовыми ямами и обнаружена скрытая анизотропия интерфейсов гетероструктур. В те же 1990-е годы в результате активных совместных теоретических и экспериментальных исследований электрон-дырочных комплексов в квантовых ямах Р.А. Сурица и Д.Р. Яковлев открыли комбинированный экситон-циклотронный резонанс. С начала 2000-х годов исследователи из СПбГУ активно сотрудничают с Техническим университетом Дортмунда в области изучения спиновой динамики ядер кристаллической решетки. Таким образом, выбор организаций партнеров для МНЦ был неслучайным: он опирался на значительный опыт научного сотрудничества и накопленный багаж знаний.

Исследования МНЦ финансируются на конкурсной основе Российским фондом фундамен-

тальных исследований (РФФИ) в рамках серии инициативных проектов и Немецким научно-исследовательским обществом (ННИО – DFG). Работа Центра стартовала в 2015 г., и в 2018 г. – после успешного прохождения международной экспертизы – была продлена еще на четыре года. К настоящему времени в работу МНЦ вовлечено более 100 ученых, которые на сегодняшний день осуществили более 400 обменных визитов. Был получен большой объем новых научных результатов, о чем свидетельствуют более 200 статей, опубликованных в ведущих международных журналах. Работы Центра были представлены в форме «приглашенных докладов» (invited talks) на многочисленных международных конференциях и отмечены научными премиями. Так, в 2020 г. МНЦ был отмечен премией за лучший проект в конкурсе «Россия и Германия: научно-образовательные мосты» в рамках перекрестного года научного сотрудничества наших стран.

Основные результаты

Экспериментальные и теоретические исследования МНЦ направлены на решение наиболее актуальных проблем спиновой физики полупроводников и полупроводниковых наносистем. Они разделены на три взаимосвязанные группы:

А. Изучение спиновых эффектов и управленческие спинами в нульмерных системах;

В. Разработка новых методов работы со спинами в протяженных (двумерных и трехмерных) системах;

С. Поиск и исследование новых систем (включая гибридные) для оптического управления спиновыми степенями свободы.

Остановимся подробнее на ключевых результатах, полученных в Центре.

1. Подстройка частоты электронной спиновой прецессии за счет сверхтонкого взаимодействия спинов электронов и ядер (И.А. Югова – СПбГУ; В.Л. Корнев – ФТИ им. А.Ф. Иоффе; А. Грейлих, Д.Р. Яковлев, М. Байер – ТУ Дортмунда).

Одной из актуальных проблем в спиновой физике наноструктур является разработка методов уменьшения роли неоднородности ансамбля квантовых точек: за счет неизбежного разброса геометрических параметров точек, состава и наличия случайных магнитных полей, индуцированных ядерными спинами, возникает существенный разброс частот прецессии электронных спинов в магнитном поле, что приводит к их дефазировке. В рамках российско-немецкого сотрудничества по проекту

19-52-12059 ННИО_а «Управление когерентностью сложных спиновых ансамблей в полупроводниковых наноструктурах» были исследованы режимы стабилизации электронной спиновой системы поляризованными ядерными спинами в легированных структурах ZnSe и в ансамбле квантовых точек (In,Ga)As/GaAs. Исследования показали, что влияние ядерного поля на электронную спиновую поляризацию приводит к дискретизации частот прецессии спина электрона [1]. Сильная обратная связь в электронно-ядерной спиновой системе позволяет подстраивать частоты прецессии электронного спина таким образом, чтобы они соответствовали целому или полужелтому числу частот повторения лазерного импульса. Анализ показал, что эффективное ядерное поле сильно зависит от отстройки энергии возбуждения от энергии оптического перехода в квантовой системе. Эффект дискретизации частот спиновой прецессии приводит к образованию плато в зависимости частоты прецессии от внешнего магнитного поля и реализации одномодового режима спиновой прецессии (рис. 1).

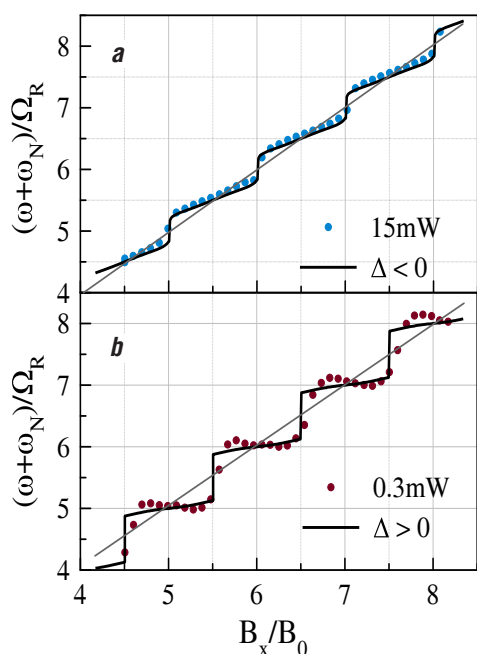


Рис.1. Полевая зависимость частоты спиновой прецессии в эпитаксиальном слое ZnSe при высокой (а) и низкой мощности возбуждения (б). Точки – экспериментальные данные из работы [1]; сплошные черные кривые – результат теоретического моделирования.

2. Кинетическая теория ядерного спинового полярона в полупроводниковых наносистемах (М.М. Глазов – ФТИ им. А.Ф. Иоффе; И. Кляйн-Йохан, А. Фишер, Ф. Андерс – ТУ Дортмунда).

Одним из важнейших проявлений сверхтонкого взаимодействия между электронными и ядерными спинами в полупроводниках

является возможность формирования коррелированного состояния – ядерного магнитного полярона, возникающего, когда спины ядер основной решетки ориентируются по отношению к спину носителя заряда так, чтобы минимизировать энергию сверхтонкого взаимодействия (см. верхнюю панель рис. 2). К началу работ отсутствовала теория этого явления, выходящая за рамки приближения среднего поля и позволяющая описать кинетику формирования ядерного спинового полярона. В рамках совместных работ по проекту 19-52-12038 ННИО_а «Теория спиновой динамики, флуктуаций и управления спинами в полупроводниковых наносистемах» такая теория была разработана благодаря сочетанию возможностей немецких партнеров по численной диагонализации гамильтониана сверхтонкого взаимодействия в модели центрального спина и опыта российской группы в решении задач спиновой кинетики. На рис. 2 представлена рассчитанная в нашей совместной работе [2] функция распределения ядерных спинов в зависимости от обратной ядерной спиновой температуры. Бифуркация в функции распределения соответствует формированию скоррелированного состояния – ядерного спинового полярона.

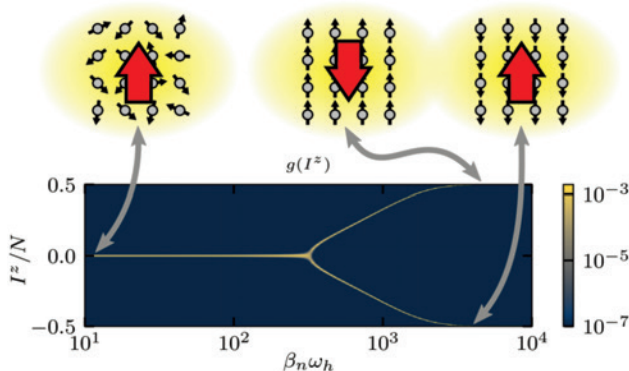


Рис.2. Верхняя панель: иллюстрация неупорядоченного состояния ядерных спинов (соответствует высоким температурам, полярон не формируется, слева) и упорядоченное распределение (низкие температуры, полярон сформировался, справа). На нижней панели приведена рассчитанная в работе [5] функция распределения ядерных спинов $g(I_z^2)$ – при различных обратных температурах ядерного спинового резервуара β_n , ω_h – параметр сверхтонкого взаимодействия.

3. Рекордное оптическое охлаждение системы ядерных спинов в полупроводниках (К.В. Кавокин, В.М. Литвяк – СПбГУ; М. Котур, Д.О. Толмачев, Д. Зутер, Д.Р. Яковлев, М. Байер – ТУ Дортмунда).

Ядерную спиновую систему полупроводника можно охладить до температур в миллионы раз ниже температуры кристаллической решетки. Это

достигается оптическим методом динамической поляризации спинов ядер за счет сверхтонкого взаимодействия со спин-ориентированными электронами.

При этом могут быть реализованы как положительные, так и отрицательные спиновые температуры. До недавнего времени были достигнуты температуры в несколько микрокельвинов [3]. Проникновение в суб-микрокельвинный диапазон ядерных спиновых температур позволит реализовать фазовый переход в состояния с ядерным магнитным порядком и, в частности, реализовать ядерный спиновый полярон в полупроводниковых наноструктурах. Первый шаг к этой цели сделан в совместной работе ТУ Дортмунда и СПбГУ (M. Kotur, D.O. Tolmachev, V.M. Litvyak, K.V. Kavokin, D. Suter, D.R. Yakovlev, and M. Bayer, "Deep Optical Cooling of Coupled Nuclear Spin-Spin and Quadrupole Reservoirs in a GaAs/(Al,Ga)As Quantum Well"; в печати), выполненной в рамках проекта 19-52-12043 ННИО_а «Воздействие охлаждения ядерных спинов на спиновую когерентность носителей». Реализовано селективное охлаждение спинов ядер мышьяка в квантовой яме GaAs/(Al,Ga)As путем оптической накачки и адиабатического размагничивания. Обратимое изменение ядерной намагниченности при сканировании поддерживающего магнитного поля с прохождением нуля было зарегистрировано оптически с помощью динамического эффекта Ханле. Были достигнуты рекордно низкие для полупроводниковых структур спиновые температуры в +0.54 и -0.57 микрокельвина (рис. 3).

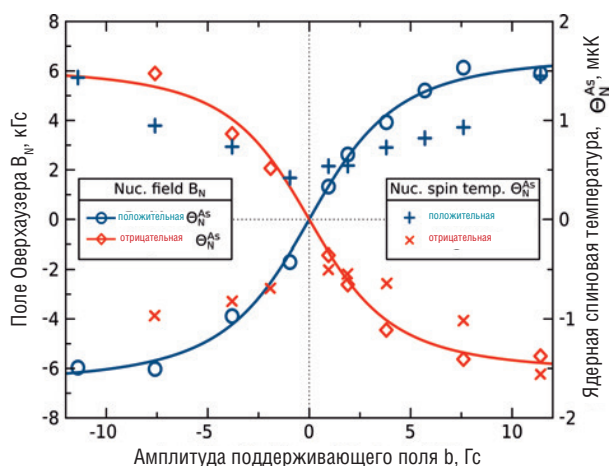


Рис. 3. Зависимость поля Оверхаузера, действующего со стороны поляризованных ядерных спинов на электроны в квантовой яме (левая шкала), и спиновой температуры ядер (правая шкала) от поддерживающего магнитного поля.

4. Спин-зависимое фотонное эхо открыло возможность исследовать прыжковую динамику электронов на микроскопическом уровне (Л.Е. Голуб, М.М. Глазов, А.Н. Косарев, Н.В. Ко-

зырев – ФТИ им. А.Ф. Иоффе; С.В. Полтавцев – СПбГУ; И.А. Акимов, Д.Р. Яковлев – ТУ Дортмунда).

В рамках проектов 19-52-12038 ННИО_а «Теория спиновой динамики, флуктуаций и управления спинами в полупроводниковых наносистемах» и 19-52-12046 ННИО_а «Динамика четырехволнового смешения с участием спинов» теоретически и экспериментально исследовалась динамика спинов резидентных электронов и спин-индуцированный эффект фотонного эха в структурах с квантовыми ямами, где возможен прыжковый транспорт носителей заряда. Была разработана общая модель, описывающая как формирование спинового сигнала керровского вращения, так и сигнала трехимпульсного фотонного эха. Показано, что время затухания спиновых биений в этих сигналах определяется разными механизмами: сигнал керровского вращения чувствителен к спиновой динамике ансамбля, поэтому прыжки электронов по локализованным состояниям приводят к замедлению спиновой дефазировки из-за эффекта динамического сужения (motional narrowing). Сигнал фотонного эха определяется спиновой поляризацией в данной точке реального и энергетического пространства и чувствителен к времени прыжка электрона между центрами локализации. Это приводит к противоположной температурной зависимости времен дефазировки спинов T_2 , извлеченных из экспериментов по методу «накачка-зондирование» и по фотонному эху. Разработанная теория описывает экспериментальные данные и позволяет определить время прыжка электрона между центрами локализации, что открывает возможность исследования транспортных эффектов оптическими методами [4].

5. Гибридные системы ферромагнетик/полупроводник и дальнедействующее взаимодействие между спиновыми системами (И.В. Калитуха, В.Л. Корнев, В.Ф. Сапега – ФТИ им. А.Ф. Иоффе; И.А. Акимов, М. Байер, Д.Р. Яковлев – ТУ Дортмунда).

С точки зрения применений особыми перспективами обладают гибридные структуры, сочетающие свойства магнитных материалов и полупроводников. В гибридной структуре ферромагнетик/полупроводниковая квантовая яма (проект 19-52-12034 ННИО_а «Ферромагнитный эффект близости в гибридной структуре ферромагнетик-полупроводник») обнаружено новое дальнедействующее обменное взаимодействие (рис. 4). В отличие от классических механизмов обменного взаимодействия, оно

не связано с перекрытием волновых функций носителей заряда в квантовой яме и в ферромагнетике. Как показал теоретический анализ и дополнительные эксперименты, взаимодействие осуществляется с помощью эллиптически поляризованных акустических фононов. Обнаруженное явление обеспечивает эффективное взаимодействие спиновых подсистем ферромагнетика и квантовой ямы и позволяет управлять намагниченностью полупроводника, сохраняя его оптические и транспортные свойства [5]. Продемонстрировано электрическое управление обменной связью в структуре, состоящей из ферромагнитного слоя Co и полупроводниковой квантовой ямы, разделенной тонким барьером [6]. Дальнейшее взаимодействие открывает путь к успешной интеграции магнетизма в полупроводниковую электронику.

6. Спиновые явления в коллоидных нанокристаллах (А.В. Родина, А.А. Головатенко, И.В. Калитуха, Е.Л. Ивченко, В.Ф. Сапега – ФТИ им. А.Ф. Иоффе; Л. Биадала, Е.В. Шорникова, Д. Кудласик, Д.Р. Яковлев, М. Байер – ТУ Дортмунда).

Полупроводниковые коллоидные нанокристаллы с характерными размерами в несколько

нанометров – важный модельный объект для исследования физических процессов в условиях сильного размерного квантования электронных состояний и их взаимодействия с поверхностью. В силу многообразия формы, размера, химического состава, свойств поверхности они находят применение в оптоэлектронике, фотовольтаике, биологии и медицине. Спин-зависимые процессы могут сильно менять оптические и магнитооптические свойства коллоидных нанокристаллов и открывать новые области для их применения [7].

Наши экспериментальные и теоретические исследования, выполненные в рамках проекта 19-52-12064 ННИО_а «Взаимодействие спинов экситонов, носителей и оборванных связей в коллоидных наноструктурах», продемонстрировали широкое разнообразие спин-зависимых явлений и эффектов в коллоидных нанокристаллах. К необычным и малоисследованным можно отнести эффекты, связанные со спинами, локализованными на поверхности нанокристаллов. Магнитные свойства, индуцированные обменными взаимодействиями экситонов с поверхностью, предположительно со спинами оборванных химических связей, были обнаружены оптическими методами как для сферических нанокристаллов CdSe диаметром 2.8 нанометров [8], так и для

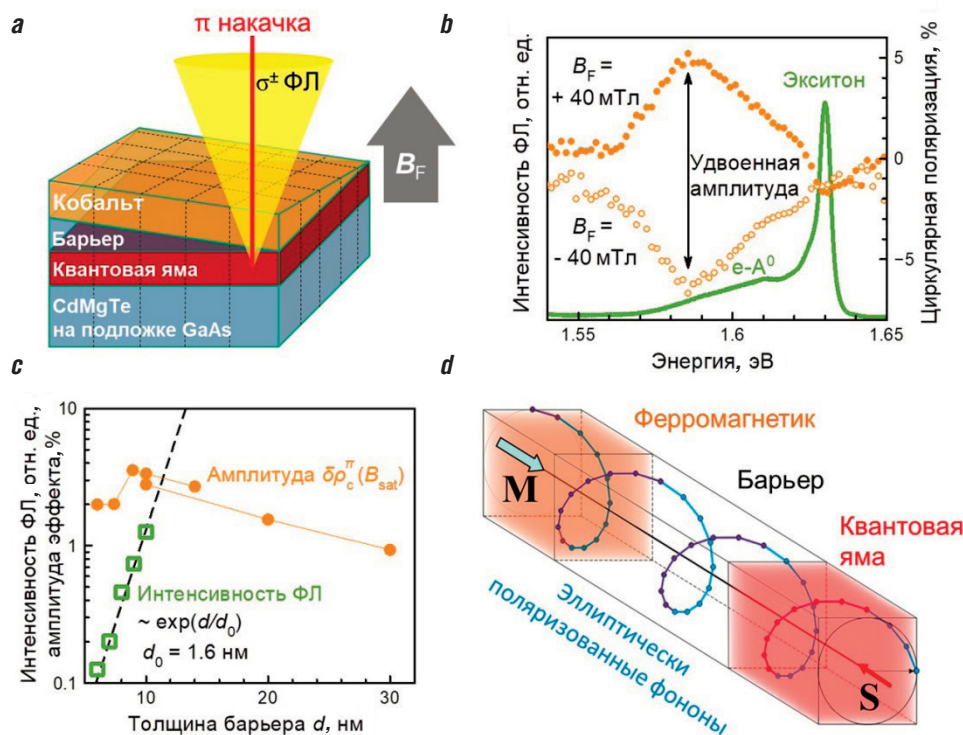


Рис. 4. а – Структура и схема эксперимента; б – наблюдаемая в эксперименте гигантская модуляция циркулярной поляризации излучения квантовой ямы за счет намагничивания Co (правая шкала); с – зависимость величины эффекта от толщины барьера; д – иллюстрация механизма эффекта, обусловленного эллиптически поляризованными фононами.

двумерных нанопластинок (наноплателетов, НП) CdSe толщиной 4 монослоя [9]. Мы показали, что при температурах жидкого гелия (4.2 К) обменное взаимодействие экситонов с парамагнитными центрами на поверхности НП определяет знак циркулярной поляризации фотолюминесценции, наведенной внешним магнитным полем. При этом характер взаимодействия зависит от условий синтеза: в случае синтеза НП в атмосфере инертного газа обменное взаимодействие усиливает поляризацию экситонов во внешнем магнитном поле, в то время как в случае синтеза НП на воздухе обменное взаимодействие уменьшает поляризацию и приводит к спин-зависимой рекомбинации экситонов [9].

Другим важным и ярким результатом стало обнаружение обменного взаимодействия экситонов с резидентными электронами в наноплателетах CdSe методом неупругого рассеяния света с переворотом спина (РСПС) [10] (рис. 5). При приложении магнитного поля в спектрах РСПС наблюдаются линии, сдвинутые на единичную и удвоенную зеемановскую энергию электрона. Они обусловлены взаимодействием экситонов с одним и двумя локализованными резидентными электронами в фотозаряженных НП. Двукратное РСПС впервые наблюдается в наноструктурах. Нами построена микроскопическая теория одно- и двукратного рассеяния, предсказывающая зависимости эффективности рассеяния от поляризации света и геометрии эксперимента, что, в частности, позволяет сделать выводы об ориентации НП на подложке, а также об анизотропии самих НП и о локализации резидентных электронов в НП [11]. Метод РСПС позволяет исследовать спиновую структуру уровней, измерять g -факторы носителей заряда и их анизотропию, изучать спин-зависимые явления и эффекты фотозарядки в коллоидных наноструктурах.

7. Сверхбыстрая магнитоакустика (А.С. Саласюк, А.Н. Поддубный – ФТИ им. А.Ф. Иоффе; А.В. Щербаков – ФТИ им. А.Ф. Иоффе и ТУ Дортмунда; Д.Р. Яковлев, М. Байер – ТУ Дортмунда; А.В. Акимов – Университет Ноттингема, Великобритания; Б.А. Главин – Институт физики полупроводников им. В.Е. Лашкарева, Киев, Украина).

Весьма перспективными с точки зрения применений в области спиновой физики являются исследования управления намагниченностью при помощи звуковых волн. История совместных исследований таких явлений насчитывает уже десятилетие. В рамках совместного исследования ФТИ им. А.Ф. Иоффе и ТУ Дортмунда (проект № 08-02-91960, финансирование РФФИ – ННИО) в 2010 г. был выполнен эксперимент [12], в котором возбужденный фемтосекундным лазерным импульсом и инжектированный в нанометровый слой ферромагнитного полупроводника пикосекундный импульс деформации (волновой пакет когерентных акустических фононов) возбуждал прецессию намагниченности. Амплитуда прецессии была достаточной для прямого детектирования с временным разрешением, а частота достигала ~ 10 ГГц, то есть соответствовала недоступному в классических магнитоакустических экспериментах высокочастотному диапазону. Этот эксперимент стал началом нового направления в физике магнетизма – сверхбыстрой магнитоакустики, в рамках которого ведется поиск быстрых и эффективных методов управления когерентными спиновыми возбуждениями в наноструктурах. С 2015 г. это направление стало частью работ, выполняемых в МНЦ: проекты DFG B6 «Сверхбыстрая акустика для модуляции намагниченности» и 19-52-12065 ННИО_а «Управление намагниченностью в наноструктурах».

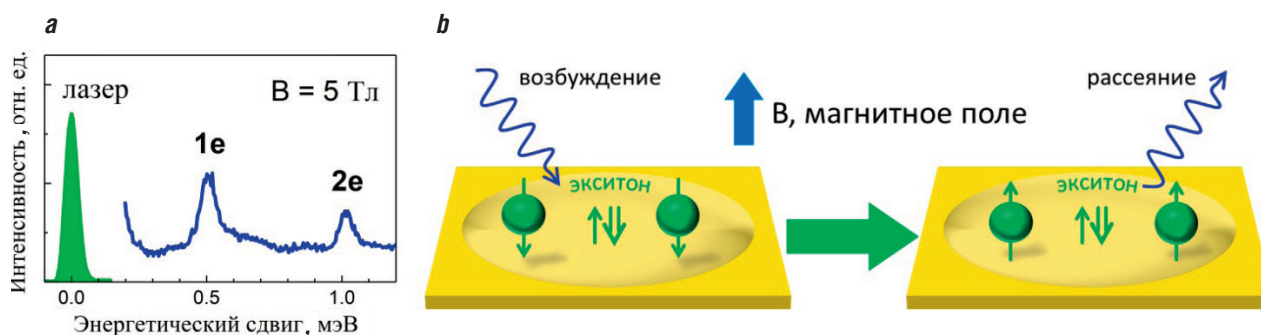


Рис. 5. а – Спектр РСПС в НП CdSe. Линии, обозначенные «1e» и «2e», соответствуют перевороту спина одного и двух электронов. б – Схема процесса переворота спинов электронов в НП CdSe (начальное и конечное состояния). Одиночными стрелками обозначены спины электронов, двойными – дырки.

турированных и двумерных магнитных средах на основе сверхбыстрых оптических и акустических методов».

В выполненных с 2010 по 2020 г. исследованиях можно выделить три основных этапа. На первом исследовались наноструктуры на основе (Ga,Mn)As, доступные благодаря сотрудничеству с Университетом Нотр-Дам (США). Намагниченность этого ферромагнитного полупроводника особенно чувствительна к деформации, что позволило всесторонне исследовать ее отклик на сверхбыстрое акустическое возбуждение. Переход к ферромагнитным металлам (сплаву железа и галлия, известного как галфенол), осуществленный на втором этапе исследований в сотрудничестве с Университетом Ноттингема (Великобритания), сделал возможными эксперименты при комнатных температурах и значительно расширил исследуемый частотный диапазон – вплоть до сотен ГГц [13]. На третьем этапе была предложена новая концепция эксперимента: основным инструментом воздействия на намагниченность стали собственные фоновые резонансы ферромагнитных наноструктур, для формирования которых использовались полупроводниковые сверхрешетки, выполняющие роль брэгговских зеркал для звука [14], и пространственное профилирование ферромагнитного слоя [15, 16], приводящее к формированию локализованных поверхностных фоновых мод. Это вызывает существенное изменение отклика намагниченности на прямое оптическое возбуждение за счет контролируемого магнитным полем резонансного взаимодействия монохроматических фононов и спиновой поляризации.

Ярким итогом 10-летнего цикла исследований стало наблюдение эффекта сильной магнитоакустической связи в пространственно-профилированной пленке галфенола [16]. Изготовленная на поверхности ферромагнитного слоя одномерная нанорешетка формирует высокочастотную поверхностную фоновую моду, а также разделяет на пространственные моды широкий магнотонный спектр (спектр магнитной прецессии). В результате селективного взаимодействия пространственно-совпадающих фоновой и магнотонной мод формируется коллективное возбуждение – магнотонный полярон. Экспериментальным подтверждением этого эффекта, казавшегося долгое время недостижимым в ферромагнитных металлах, является антипересечение в области резонанса фоновой и магнотонной мод, представленное на рис. 6. Этот результат открывает широкие перспективы для сверхбыстрой магнитоакусти-

ки: становятся возможными передача связанного с акустической волной когерентного магнитного возбуждения на значительные расстояния и контроль наномеханических резонансов магнитным полем.

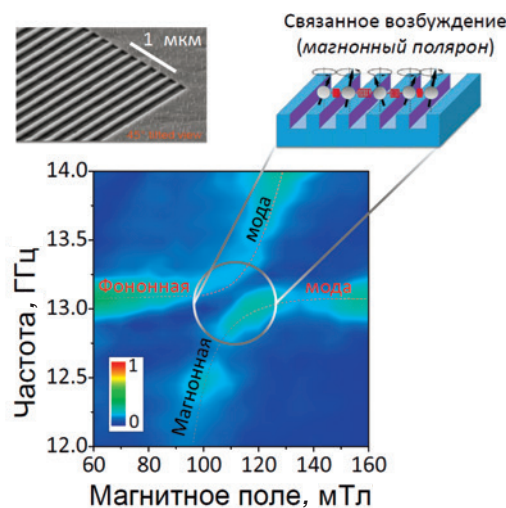


Рис. 6. Эффект сильной магнитоакустической связи в нанорешетке галфенола (Fe,Ga). Цветная двумерная карта показывает спектр оптически возбужденной прецессии намагниченности в зависимости от величины внешнего магнитного поля, приложенного в плоскости нанорешетки, СЭМ-изображение которой показано в левом верхнем углу. В спектре прецессии выделяются два характерных пика: не зависящий от внешнего магнитного поля фоновый резонанс и магнотонная мода, частота которой увеличивается с увеличением внешнего магнитного поля. В области резонанса (110 мТл) наблюдается антипересечение фоновой и магнотонной мод, подтверждающее режим сильной связи и возникновение коллективного возбуждения

8. Лазерно-индуцированные прецессия намагниченности и магнитостатические волны в структурах на основе (Fe,Ga)/GaAs (Л.А. Шелухин, Н.Е. Хохлов, П.И. Геревенков, В.Н. Кац, А.В. Азовцев, Н.А. Перцев, А.М. Калашикова – ФТИ им. А.Ф. Иоффе; А.В. Щербаков, Д.Р. Яковлев, М. Байер – ТУ Дортмунда; М. Ванг, А.В. Раифорт, А.В. Акимов – Университет Ноттингема, Великобритания; Т.Л. Линник – Институт физики полупроводников им. В.Е. Лашкарева, Киев, Украина).

Спиновые волны, или магноны – перспективные кандидаты для обработки и передачи информации в логических устройствах с низкими тепловыми потерями и расширенной функциональностью. Актуальной задачей является поиск эффективных методов генерации спиновых волн с различными волновыми векторами, управления их параметрами и считывания информации, переносимой спиновой волной. Фемтосекундные лазерные импульсы позволяют генерировать спиновые возбуждения, изменять магнитные свойства сред и детектировать

магнитную динамику на суб-пикосекундных временных масштабах [17]. Поэтому создание сверхбыстрой оптомагноники, использующей взаимодействие фемтосекундных лазерных импульсов со спиновыми волнами, является одним из перспективных направлений развития современной спинтроники.

В рамках работы МНЦ при финансовой поддержке РФФИ (проект ННИО_а 19-52-12065 «Управление намагниченностью в наноструктурированных и двумерных магнитных средах на основе сверхбыстрых оптических и акустических методов») ученые из ФТИ им. А.Ф. Иоффе и ТУ Дортмунда и их коллеги из Великобритании и Украины получили ряд новых результатов в этой области. Объектами исследования стали тонкие пленки ферромагнитного металла галфенола, выращенные на подложках GaAs. Эпитаксиальные пленки (Fe,Ga)/GaAs обладают выраженной магнитокристаллической анизотропией, что позволяет возбуждать в них прецессию намагниченности за счет сверхбыстрого лазерного нагрева и индуцированного им изменения баланса внешнего магнитного поля и полей анизотропии [18]. Широкий диапазон направлений и величин

[13], приводит к режиму сильной диссипативной связи. В результате прецессирующие намагниченности формируют две связанные моды с одинаковой частотой, но значительно отличающимися временами затухания – антисимметричную короткоживущую и симметричную долгоживущую моды [19]. Использование сверхбыстрого оптического возбуждения позволило впервые возбудить и наблюдать обе связанные моды, а также управлять параметрами связи ферромагнитных слоев за счет выбора ориентации и величины внешнего магнитного поля.

Сверхбыстрое лазерно-индуцированное изменение магнитной анизотропии было использовано и для возбуждения магнитостатических поверхностных волн в нанометровых слоях (Fe,Ga)/GaAs [20]. Продемонстрированное распространение таких волн с выраженной пространственной анизотропией на расстояние до 10 микрон (рис. 7), являющееся значительным расстоянием для магнитных металлов, позволяет включить эпитаксиальные пленки галфенола в ограниченное семейство материалов, подходящих для магнонных устройств.

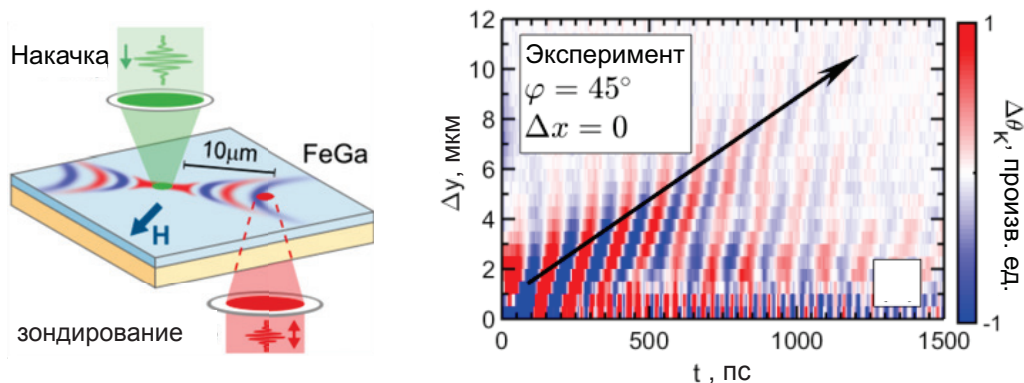


Рис. 7. Схема эксперимента по генерации и детектированию магнитостатических волн в (Fe,Ga)/GaAs и полученная в эксперименте пространственно-временная карта, показывающая распространение пакета магнитостатических волн на расстояние до 10 мкм [20].

внешнего магнитного поля, доступный при таком методе возбуждения, позволяет достигать требуемого отклика намагниченности [13, 18], что было использовано для экспериментальной реализации двух перспективных идей оптомагноники.

В спиновом затворе (Fe,Ga)/Cu/(Fe,Ga)/GaAs было впервые экспериментально реализовано оптическое возбуждение коллективной прецессии намагниченности двух ферромагнитных слоев, связанных эффектом спиновой накачки (spin pumping) [19]. Затухание прецессии за счет передачи энергии между ферромагнитными слоями, превосходящее слабое собственное затухание

9. Экситонная спектроскопия полупроводников методом генерации оптических гармоник (В.В. Павлов, Р.В. Писарев, А.В. Родина, М.А. Семина, М.М. Глазов, Е.Л. Ивченко – ФТИ им. А.Ф. Иоффе; Д.Р. Яковлев, М. Байер, Й. Мунд, В. Варкентин, А. Фаренбрух, Д. Фрелих – ТУ Дортмунда).

Генерация оптических гармоник, второй (ГВГ), третьей (ГТГ) и более высоких, в твердом теле хорошо известна и широко используется в лазерной технике. В применении к полупроводникам, ГВГ и ГТГ позволяют получить богатую информацию об электронной структуре в широком спектральном диапазоне и, в частности, о спиновых степенях свободы [21]. Продолжитель-

ное время после открытия генерации оптических гармоник экспериментальные исследования этих явлений в полупроводниках ограничивались измерениями на фиксированных лазерных линиях, когда энергии фотонов накачки и генерируемого излучения попадали в зону прозрачности кристалла. Мы расширили эти исследования на спектральную область экситонных резонансов и развили экситонную спектроскопию методом генерации оптических гармоник с использованием магнитных и электрических полей и высокого спектрального разрешения [22]. В наших исследованиях осуществлялась перестройка лазерной накачки на частоте ω таким образом, чтобы частоты 2ω или 3ω оптических гармоник находились в резонансе с экситонными состояниями, что сопровождалось резонансным усилением генерируемого излучения. Были исследованы несколько групп объемных полупроводников (таких, как диамагнитные GaAs, CdTe, ZnO, Cu₂O [22–25], разбавленные магнитные (Cd,Mn)Te, магнитные EuTe, EuSe) и проведены первые исследования методом генерации оптических гармоник квазидвумерных экситонов в структурах ZnSe/BeTe с квантовыми ямами [26]. Показано, что модификация экситонных состояний во внешнем электрическом и/или магнитном полях делает их активными для ГВГ и может существенно усилить их вклад в ГТГ. Обнаружены новые ме-

ханизмы генерации оптических гармоник, специфичные именно для экситонных состояний, и проведено микроскопическое рассмотрение этих механизмов.

На рис. 8 проиллюстрировано формирование высших гармоник на экситонных поляритонах в объемных кристаллах. В рамках проекта 19-52-12063 ННИО_а «Спин-индуцированная генерация оптических гармоник в полупроводниках и низкоразмерных структурах» проведено экспериментальное и теоретическое исследование ГТГ на экситон-поляритонных резонансах в полупроводниках с кристаллической структурой типа цинковой обманки GaAs, CdTe и ZnSe при воздействии внешнего магнитного поля. В этих полупроводниках кристаллографический вклад ГТГ разрешен в электродипольном приближении, поэтому ожидалось, что внешнее магнитное поле будет играть незначительную роль. Однако было обнаружено гигантское усиление ГТГ во внешнем магнитном поле. Наблюдалось существенное увеличение интенсивности ГТГ – порядка 50 раз для 1s экситон-поляритона в GaAs при изменении магнитного поля от 0 до 10 Тл (рис. 8). В отличие от GaAs, соответствующее увеличение ГТГ являлось весьма умеренным в CdTe и почти отсутствовало в ZnSe. Чтобы объяснить эти экспериментальные наблюдения, была разработана микроскопическая теория генерации оптических гармоник на экситон-поляритонах в полупроводниках с кристаллической структурой типа цинковой обман-

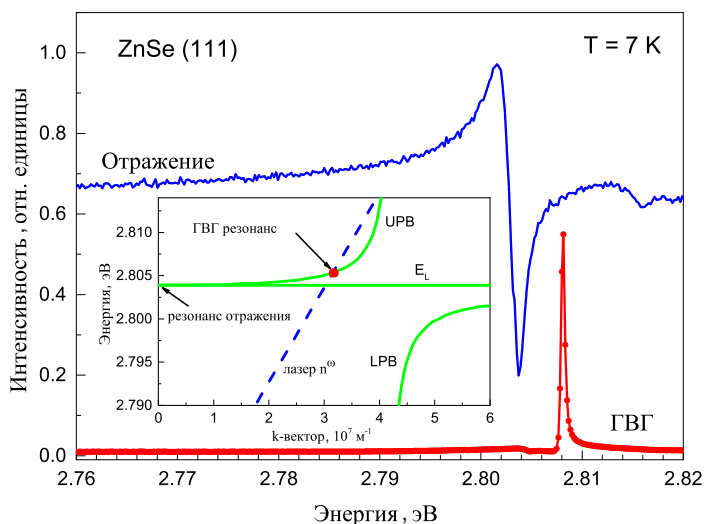
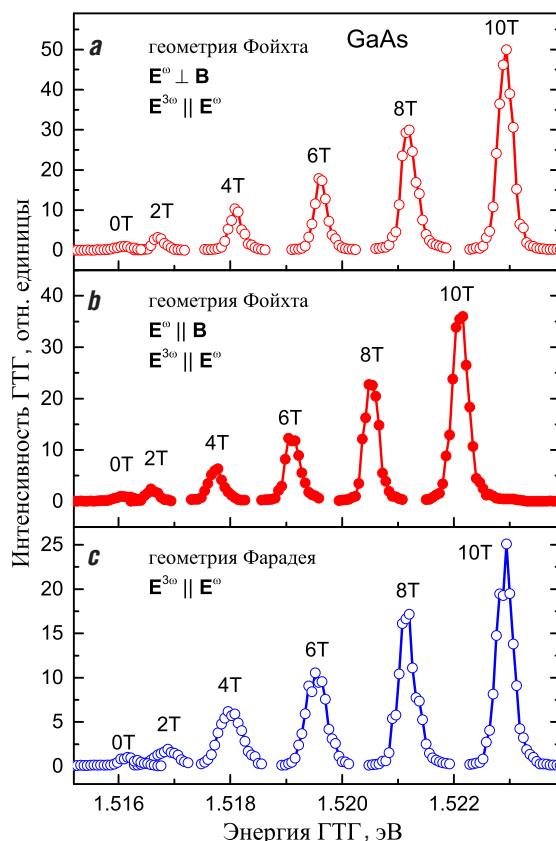


Рис. 8. Левая панель: спектры отражения света (Отражение, синий) и генерации второй гармоники (ГВГ, красный) на экситон-поляритонах в кристалле ZnSe. На вставке схематически показан спектральный сдвиг между резонансами в отражении и генерации второй гармоники. Точкой отмечено пересечение дисперсионной зависимости по лазерной накачке с верхней поляритонной ветвью (UPB), LPB – дисперсия нижней поляритонной ветви, EL – продольная ветвь. Генерации второй гармоники возбуждалась спектрально широкими лазерными импульсами длительностью 150 фс и частотой повторения 30 кГц с максимумом при энергии 1.404 эВ [21]. Справа: спектры генерации третьей гармоники для 1s экситон-поляритона в GaAs в магнитных полях 0–10 Тл для геометрий Фогта (a, b) и Фарадея (c) [23].



ки и проанализированы возможные механизмы ГТГ за счет внешнего магнитного поля. Расчеты показывают, что наибольший эффект на изменение интенсивности ГТГ в магнитном поле оказывает увеличение силы осциллятора $1s$ экситона при увеличении напряженности магнитного поля, что особенно сильно в GaAs. Слабое увеличение интенсивности ГТГ в CdTe и отсутствие эффекта в ZnSe объясняется большими энергиями связи экситонов в этих полупроводниках, что приводит к значительно меньшей модификации силы осциллятора $1s$ экситона в магнитном поле.

10. Долгоживущая спиновая спираль в полупроводниковых квантовых ямах (А.В. Пошакинский, С.А. Тарасенко – ФТИ им. А.Ф. Иоффе; Ф. Пассманн, С. Анхел, К. Рупперт, М. Бетц – ТУ Дортмунда).

Реализация долгоживущей спиновой памяти возможна не только в структурах с локализованными носителями заряда, но и в квантовых ямах, где вклады структурной и объемной инверсионной асимметрии в спиновое расщепление близки по величине. В таких системах диффузия приводит к формированию так называемой

мой долгоживущей спиновой спирали (persistent spin helix) – осциллирующего в пространстве распределения спиновой поляризации. В рамках работ по проектам 15-52-12012 ННИО_а «Теория спиновой когерентности в полупроводниках» и 19-52-12038 ННИО_а «Теория спиновой динамики, флуктуаций и управления спинами в полупроводниковых наносистемах» описано распространение спиновых флуктуаций и формирование спиновой спирали в структурах с квантовыми ямами. Разработанное теоретическое описание применено к экспериментам, выполненным на структурах с квантовыми ямами GaAs и CdTe в ТУ Дортмунда. Сопоставление теории и экспериментов (рис. 9) позволило определить основные параметры спин-орбитального взаимодействия и коэффициент спиновой диффузии. Экспериментаторами было изучено влияние внешних электрического и магнитного полей на эволюцию спиновой спирали. Также была обнаружена и объяснена зависимость пространственного периода и времени жизни спиновой спирали от интенсивности импульса накачки [27, 28].

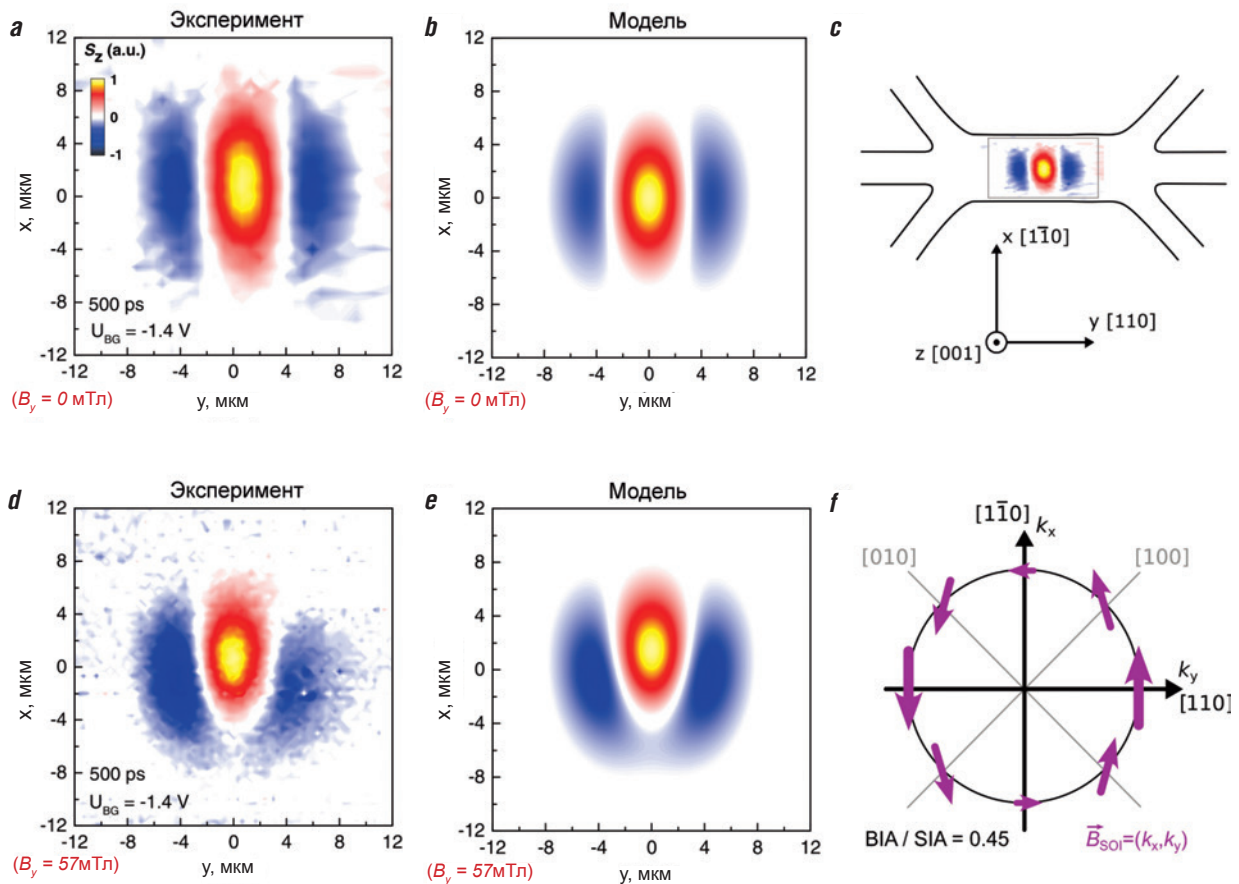


Рис. 9. Измеренные и рассчитанные пространственные распределения спиновой поляризации в процессе диффузионного распространения электронов (a, b – без магнитного поля, d, e – при наличии внешнего магнитного поля). c – Схема образца; f – эффективное магнитное поле, действующее на электроны.

11. Асимметричное рассеяние электронов на киральных спиновых текстурах (К.С. Денисов, Н.С. Аверкиев – ФТИ им. А.Ф. Иоффе).

Формирование в магнитной среде киральных спиновых текстур, таких, как магнитные скирмионы, оказывает существенное влияние на кинетику носителей заряда. Обменное взаимодействие между подвижными носителями и локализованными электронами магнитных центров, образующих киральную текстуру, приводит к асимметричному рассеянию и дополнительному вкладу в холловское сопротивление. До недавнего времени отсутствовала теория этого явления, актуальная для полупроводниковых систем и учитывающая точным образом как величину обменного взаимодействия, так и структуру кирального спинового рассеивателя. В рамках проекта 19-52-12066 ННИО_а «Спиновые взаимодействия между носителями и магнитными ионами» была разработана последовательная теория рассеяния электронов на киральных спиновых текстурах произвольной формы, учитывающая также наличие дополнительного электростатического потенциала примеси [29]. На рис. 10 представлена рассчитанная диаграмма направленности рассеяния в двух предельных случаях слабого и сильного обменного взаимодействия. Рассеяние носит асимметричный характер, причем в режиме сильной связи реализуется спиновый эффект Холла, а в режиме слабой связи, напротив, асимметрия рассеяния имеет спиннезависимый характер. Эксперименты, направленные на проверку теоретических предсказаний, запланированы нашими немецкими партнерами.

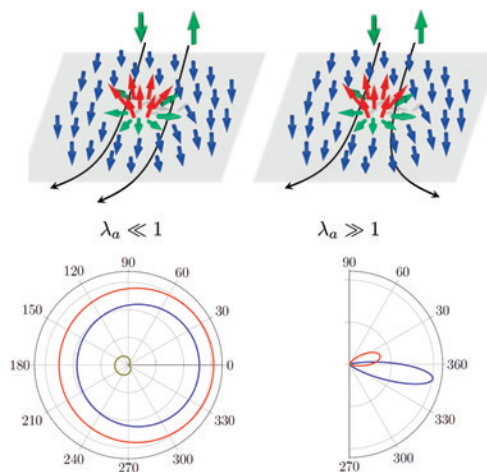


Рис. 10. Верхняя панель: иллюстрация асимметричного рассеяния электрона на киральной спиновой текстуре в режиме слабой (слева) и сильной (справа) связи. Нижняя панель: рассчитанные в [29] диаграммы направленности рассеяния, соответствующие двум предельным режимам.

12. Магнитное управление распространением света в гибридных плазмонных наноструктурах (А.Н. Поддубный, В.Ф. Сапега –

ФТИ им. А.Ф. Иоффе; Ф. Шпицер, И.А. Акимов, Д.Р. Яковлев, М. Байер – ТУ Дортмунда).

Одним из перспективных направлений спиновой физики являются исследования взаимосвязи между спином носителей заряда и угловым моментом света. Процессы оптической ориентации электронов, спиновые эффекты Фарадея и Керра активно используются для изучения спиновой динамики носителей тока в полупроводниках и полупроводниковых наноструктурах. Особенный интерес представляют гибридные системы, где излучение квантовой ямы или массива квантовых точек происходит в резонансную плазмонную моду, формирующуюся на интерфейсе «металл–полупроводник». В совместных экспериментально-теоретических работах, выполненных в ходе реализации проектов 15-52-12011 ННИО_а «Трехмерно-структурированные магнитные материалы» и 19-52-2038 ННИО_а «Теория спиновой динамики, флуктуаций и управления спинами в полупроводниковых наносистемах», была продемонстрирована возможность управлять направлением распространения плазмона путем изменения циркулярной поляризации излучателя (рис. 11). В зависимости от знака циркулярной поляризации излучателя, которая в эксперименте контролировалась внешним магнитным полем, направление распространения света изменялось на противоположное. Эффект значительно усиливался в структурах, где вблизи квантовой ямы была нанесена металлическая решетка, поддерживающая распространение поверхностного плазмона. Направленность излучения достигала более 60% в магнитном поле 5 Тл [30].

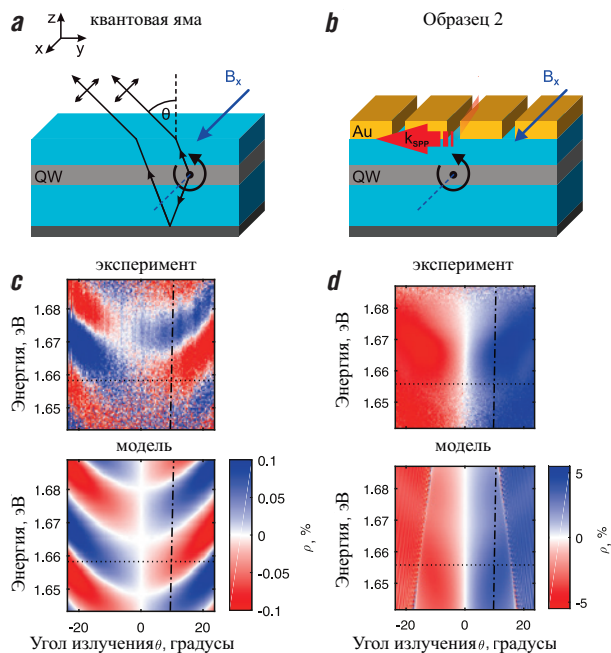


Рис. 11. а, b – Механизмы управления распространением излучения в структуре с квантовой ямой (а) и с плазмонной решеткой (b). Измеренные (с) и рассчитанные (d) распределения направленности излучения [30].

13. Оптически детектируемый спиновый резонанс в широкозонных полупроводниках (SiC, алмаз) (А.Н. Анисимов, П.Г. Баранов, Р.А. Бабунц – ФТИ им. А.Ф. Иоффе; Д. Зутер, Х. Сингх – ТУ Дортмунда).

Исследование спиновых центров в широкозонных полупроводниках методами магнитного резонанса позволяет получить фундаментальную информацию об электронных и ядерных спинах полупроводниковой системы и, в частности, исследовать процессы спиновой динамики, происходящие в вакансионных центрах в алмазе (NV-центр) и карбиде кремния (дивакансия со спином $S=1$, кремниевая вакансия со спином $S=3/2$) при комнатной температуре. Протекающие процессы характеризуются длинными временами спиновой релаксации, что возможно использовать для создания кубитов, работающих при комнатных температурах. Это удастся сделать благодаря уникальному эффекту оптического выстраивания спиновой системы при комнатной температуре. В рамках двустороннего сотрудничества (проект 19-52-12058 ННИО_а «Спиновый резонанс: ЭПР-ЯМР с оптическим детектированием») были созданы изотопно-модифицированные кристаллы 6H-SiC и изучены спиново-динамические процессы вакансии кремния со спином $3/2$ [31] (рис. 12). Мы продолжаем активно изучать эффекты влияния изотопной модификации кристаллов SiC на спиновую динамику вакансионных центров в SiC, перспективных для применения в сенсорике с субмикронным пространственным разрешением [32] и квантовой информатике.

В настоящей статье невозможно сколько-нибудь подробно охватить все научные работы, проводимые в рамках МНЦ. Кратко упомянем плодотворное сотрудничество М. Ассманна и А. Кавокина в рамках проекта 19-52-12032 ННИО_а «Бозонный спиновый транспорт в поляритонных конденсатах» в области исследования резервуара темных экситонов [33] и оптического спинового эффекта Холла [34] в полупроводниковых микрорезонаторах. Также ведутся масштабные работы по изучению спиновых флуктуаций в полупроводниковых наносистемах (работа группы В.С. Запасского в СПбГУ над проектом 19-52-12054 ННИО_а «Фундаментальные проблемы формирования сигнала спинового шума» и А. Грейлиха в ТУ Дортмунда при теоретической поддержке Д.С. Смирнова и М.М. Глазова в ФТИ им. А.Ф. Иоффе); исследования эффекта спиновой инерции (теория: Д.С. Смирнов – ФТИ им. А.Ф. Иоффе, эксперимент: Е.А. Жуков, А. Грейлих – ТУ Дортмунда) и ридберговских экситонов в записи меди и других полупроводниках (эксперименты: М. Байер, Д. Фрелих – ТУ Дортмунда и группа И.В. Игнатъева – СПбГУ, теория: М.А. Семина, М.М. Глазов – ФТИ им. А.Ф. Иоффе); исследования группы Ю.Г. Кусраева (ФТИ им. А.Ф. Иоффе) с коллегами из Дортмунда по спиновой динамике в полумагнитных наноструктурах (проект 19-52-12066 ННИО_а «Спиновые взаимодействия между носителями и магнитными ионами») и совместные работы группы А.А. Торопова (ФТИ им. А.Ф. Иоффе) с зарубежными партнерами по изучению спиновой динамики в нитридах (проект 19-52-12057 ННИО_а «Спин-зависимые свойства Ш-N-наногетероструктур») и многие другие.

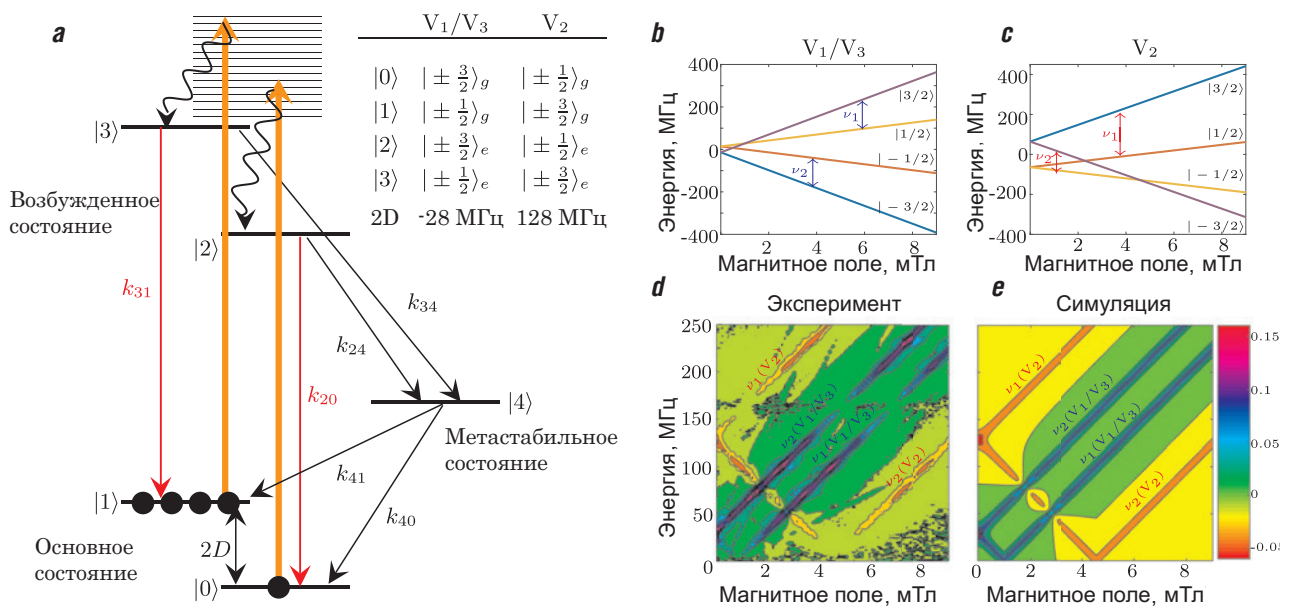


Рис. 12. а – Иллюстрация механизма оптического выстраивания спинов вакансионных центров с $S=3/2$ в карбиде кремния при комнатной температуре. б, с – Схема зеемановских уровней для трех типов спиновых центров с $S=3/2$: V_1/V_3 (b) и V_2 (c) во внешнем магнитном поле B для ориентации магнитного поля вдоль оси c ($B//c$). д, е – Эксперимент (d) и симуляция (e) положения и интенсивности сигналов ОДМР V_1/V_3 и V_2 спиновых центров в магнитном поле при комнатной температуре в ориентации $B//c$.

Результаты исследований спиновых систем полупроводниковых структур зачастую приобретали более широкий физический смысл, выходя за рамки указанного круга объектов. В качестве примера можно привести совместные исследования учеными из СПбГУ и ТУ Дортмунда механизма формирования сигнала спинового шума в ансамбле полупроводниковых квантовых точек. Развитие этих исследований позволило впервые наблюдать магнитный резонанс в диэлектрических кристаллах методом спектроскопии спиновых шумов [35]. Эта пионерская работа реализует концептуально новый подход к радиоспектроскопии твердых парамагнетиков. На *рис. 13* представлена одна из первых записей шумового спектра магнитного резонанса кристалла флюорита, активированного трехвалентным неодимом.

Заключение

Помимо несомненных научных достижений – результаты исследований под эгидой МНЦ опубликованы в более чем двух сотнях статей в рецензируемых научных журналах, включая наиболее престижные (*Nature, Physical Review* и *Physical Review Letters*), – Центр «Когерентное

управление взаимодействующими спиновыми возбуждениями в полупроводниковых гетероструктурах» достиг значительных успехов в воспитании молодых исследователей и аспирантов. Идет непрерывный обмен аспирантами между организациями – участниками МНЦ, проводятся научные семинары для молодых ученых. Регулярно организуются общие встречи в рамках МНЦ, которые включают в себя широкую научную программу: доклады приглашенных ученых с мировым именем, отчетные доклады участников Центра, а также неформальные обсуждения научных задач (*рис. 14*). Нельзя не упомянуть и шуточные научные исследования, например, эксперименты по изучению эффекта оптической ориентации в красном и белом вине (и обсуждение, на основе полученных данных, значимой разницы между этими напитками), а также «внеаучную» деятельность, включая совместные спортивные соревнования, посещение спортивных матчей, в том числе футбольной лиги чемпионов, организацию фотовыставок «Свет» в ТУ Дортмунда, посадку деревьев, гриль и создание граффити-эмблемы МНЦ (*рис. 14*).

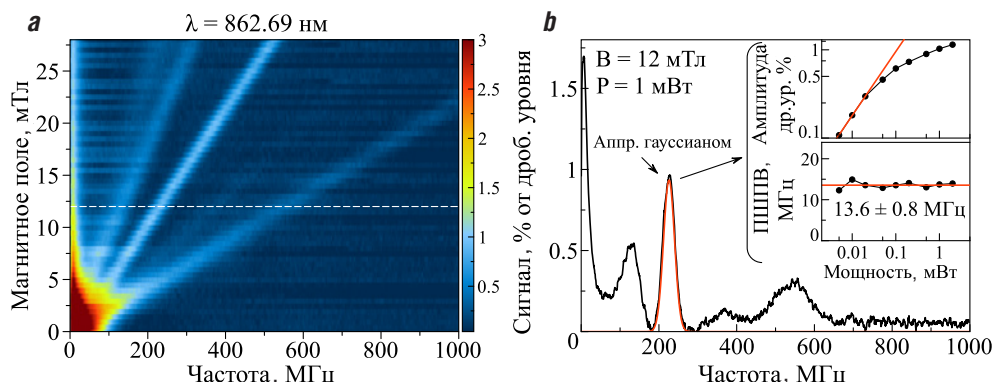


Рис. 13. а – Спектры плотности спиновых шумов (шумов вращения плоскости поляризации пробного пучка) в кристалле $\text{CaF}_2:\text{Nd}^{3+}$ как функция магнитного поля (отложено по оси ординат). б – Одна из записей в фиксированном магнитном поле (сечение верхнего рисунка) [35].



Рис. 14. Заседание международного научного центра и обсуждения участников проектов. Внизу – граффити, нанесенное на стены лабораторий ТУ Дортмунда и символизирующее сотрудничество между Санкт-Петербургом и Дортмундом в рамках МНЦ «Когерентное управление взаимодействующими спиновыми возбуждениями в полупроводниковых гетероструктурах».

Можно уверенно заключить, что в результате работы центра сложились тесные дружеские отношения между учеными двух стран

и открылись дальнейшие горизонты для совместных плодотворных научных исследований.

Литература

1. E.A. Zhukov, E. Kirstein, N.E. Kopteva, F. Heisterkamp, I.A. Yugova, V.L. Korenev, D.R. Yakovlev, A. Pawlis, M. Bayer, A. Greilich *Nat. Commun.*, 2018, **9**, 1941. DOI: 10.1038/s41467-018-04359-6.
2. A. Fischer, I. Kleinjohann, F.B. Anders, M.M. Glazov *Phys. Rev. B*, 2020, **102**(16), 165309. DOI: 10.1103/PhysRevB.102.165309.
3. M. Vladimirova, S. Cronenberger, D. Scalbert, I.I. Ryzhov, V.S. Zapasskii, G.G. Kozlov, A. Lemaitre, K.V. Kavokin *Phys. Rev. B*, 2018, **97**, 041301. DOI: 10.1103/PhysRevB.97.041301.
4. A.N. Kosarev, S.V. Poltavtsev, L.E. Golub, M.M. Glazov, M. Salewski, N.V. Kozryev, E.A. Zhukov, D.R. Yakovlev, G. Karczewski, S. Chusnutdinov, T. Wojtowicz, I.A. Akimov, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2019, **100**, 121401. DOI: 10.1103/PhysRevB.100.121401.
5. V.L. Korenev, M. Salewski, I.A. Akimov, V.F. Sapega, L. Langer, I.V. Kalitukha, J. Debus, R.I. Dzhiyev, D.R. Yakovlev, D. Müller, C. Schröder, H. Hövel, G. Karczewski, M. Wiater, T. Wojtowicz, Yu.G. Kusrayev, M. Bayer *Nat. Phys.*, 2016, **12**, 85. DOI: 10.1038/nphys3497.
6. V.L. Korenev, I.V. Kalitukha, I.A. Akimov, V.F. Sapega, E.A. Zhukov, E. Kirstein, O.S. Ken, D. Kudlacik, G. Karczewski, M. Wiater, T. Wojtowicz, N.D. Ilyinskaya, N.M. Lebedeva, T.A. Komissarova, Yu.G. Kusrayev, D.R. Yakovlev, M. Bayer *Nat. Commun.*, 2019, **10**, 2899. DOI: 10.1038/s41467-019-10774-0.
7. A.B. Родина, Д.Р. Яковлев *Природа*, 2018, №9(1237), 22. DOI: 10.31857/S0032874X0000887-4.
8. L. Biadala, E.V. Shornikova, A.V. Rodina, D.R. Yakovlev, B. Siebers, T. Aubert, M. Nasilowski, Z. Hens, B. Dubertret, A.L. Efron, M. Bayer *Nat. Nanotechnol.*, 2017, **12**, 569. DOI: 10.1038/nnano.2017.22.
9. E.V. Shornikova, A.A. Golovatenco, D.R. Yakovlev, A.V. Rodina, L. Biadala, G. Qiang, A. Kuntzmann, M. Nasilowski, B. Dubertret, A. Polovitsyn, I. Moreels, M. Bayer *Nat. Nanotechnol.*, 2020, **15**, 277. DOI: 10.1038/s41565-019-0631-7.
10. D. Kudlacik, V.F. Sapega, D.R. Yakovlev, I.V. Kalitukha, E.V. Shornikova, A.V. Rodina, E.L. Ivchenko, G.S. Dimitriev, M. Nasilowski, B. Dubertret, M. Bayer *Nano Lett.*, 2020, **20**, 517. DOI: 10.1021/acs.nanolett.9b04262.
11. A.V. Rodina, E.L. Ivchenko *Phys. Rev. B*, 2020, **102**, 235432. DOI: 10.1103/PhysRevB.102.235432.
12. A.V. Scherbakov, A.S. Salasyuk, A.V. Akimov, X. Liu, M. Bombeck, C. Bruggemann, D.R. Yakovlev, V.F. Sapega, J.K. Furdyna, M. Bayer *Phys. Rev. Lett.*, 2010, **105**, 117204. DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.117204.
13. A.V. Scherbakov, A.P. Danilov, F. Godejohann, T.L. Linnik, B.A. Glavin, L. A. Shelukhin, D.P. Pattnaik, M. Wang, A.W. Rushforth, D.R. Yakovlev, A.V. Akimov, M. Bayer *Phys. Rev. Appl.*, 2019, **11**, 031003. DOI: 10.1103/PhysRevApplied.11.031003.
14. J.V. Jäger, A.V. Scherbakov, B.A. Glavin, A.S. Salasyuk, R.P. Campion, A.W. Rushforth, D.R. Yakovlev, A.V. Akimov, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2015, **92**, 020404. DOI: 10.1103/PhysRevB.92.020404.
15. A.S. Salasyuk, A.V. Rudkovskaya, A.P. Danilov, B.A. Glavin, S.M. Kukhtaruk, M. Wang, A.W. Rushforth, P.A. Nekudova, S.V. Sokolov, A.A. Elistratov, D.R. Yakovlev, M. Bayer, A.V. Akimov, A.V. Scherbakov *Phys. Rev. B*, 2018, **97**, 060404. DOI: 10.1103/PhysRevB.97.060404.
16. F. Godejohann, A.V. Scherbakov, S.M. Kukhtaruk, A.N. Poddubny, D.D. Yaremkevich, M. Wang, A. Nadzeyka, D.R. Yakovlev, A.W. Rushforth, A.V. Akimov, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2020, **102**, 144438. DOI: 10.1103/PhysRevB.102.144438.
17. П.Г. Баранов, А.М. Калашиникова, В.И. Козуб, В.Л. Корнев, Ю.Г. Кусраев, П.В. Писарев, В.Ф. Санага, И.А. Акимов, М. Байер, А.В. Шербакос, Д.Р. Яковлев *УФН*, 2019, **189**, 849. DOI: 10.3367/UFNr.2018.11.038486.
18. V.N. Kats, T. L. Linnik, A.S. Salasyuk, A.W. Rushforth, M. Wang, P. Wadley, A.V. Akimov, S. A. Cavill, V. Holy, A.M. Kalashnikova, A.V. Scherbakov *Phys. Rev. B*, 2016, **93**, 214422. DOI: 10.1103/PhysRevB.93.214422.
19. A.P. Danilov, A.V. Scherbakov, B.A. Glavin, T.L. Linnik, A.M. Kalashnikova, L.A. Shelukhin, D.P. Pattnaik, A.W. Rushforth, C.J. Love, S.A. Cavill, D.R. Yakovlev, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2018, **98**, 060406. DOI: 10.1103/PhysRevB.98.060406.
20. N.E. Khokhlov, P.I. Gerevenkov, L.A. Shelukhin, A.V. Azovtsev, N.A. Pertsev, M. Wang, A.W. Rushforth, A.V. Scherbakov, A.M. Kalashnikova *Phys. Rev. Appl.*, 2019, **12**, 044044. DOI: 10.1103/PhysRevApplied.12.044044.
21. Д.Р. Яковлев, В.В. Павлов, А.В. Родина, П.В. Писарев, J. Mund, W. Warkentin, M. Bayer *ФТТ*, 2018, **60**, 1463. DOI: 10.21883/FTT.2018.08.46335.16Gr.
22. J. Mund, D. Fröhlich, D.R. Yakovlev, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2018, **98**, 085203. DOI: 10.1103/PhysRevB.98.085203.
23. W. Warkentin, J. Mund, D.R. Yakovlev, V.V. Pavlov, R.V. Pisarev, A.V. Rodina, M.A. Semina, M.M. Glazov, E.L. Ivchenko, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2018, **98**, 075204. DOI: 10.1103/PhysRevB.98.075204.
24. A. Farenbruch, J. Mund, D. Fröhlich, D.R. Yakovlev, M. Bayer, M.A. Semina, M.M. Glazov *Phys. Rev. B*, 2020, **101**, 115201. DOI: 10.1103/PhysRevB.101.115201.
25. J. Mund, D.R. Yakovlev, M.A. Semina, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2020, **102**, 045203. DOI: 10.1103/PhysRevB.102.045203.
26. J. Mund, A. Farenbruch, D.R. Yakovlev, A.A. Maksimov, A. Waag, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2020, **102**, 125433. DOI: 10.1103/PhysRevB.102.125433.
27. S. Anghel, F. Passmann, A. Singh, C. Ruppert, A.V. Poshakinskiy, S.A. Tarasenko, J.N. Moore, G. Yusa, T. Mano, T. Noda, X. Li, A.D. Bristow, M. Betz *Phys. Rev. B*, 2018, **97**, 125410. DOI: 10.1103/PhysRevB.97.125410.
28. F. Passmann, S. Anghel, C. Ruppert, A.D. Bristow, A.V. Poshakinskiy, S.A. Tarasenko, M. Betz *Semicond. Sci. Technol.*, 2019, **34**, 093002. DOI: 10.1088/1361-6641/ab3158.
29. K.S. Denisov *J. Phys.: Condens. Matter*, 2020, **32**, 415302. DOI: 10.1088/1361-648X/ab966e.
30. F. Spitzer, A.N. Poddubny, I.A. Akimov, V.F. Sapega, L. Klomp maker, L.E. Kreilkamp, L.V. Litvin, R. Jede, G. Karczewski, M. Wiater, T. Wojtowicz, D.R. Yakovlev, M. Bayer *Nat. Phys.*, 2018, **14**, 1043. DOI: 10.1038/s41567-018-0232-7.
31. H. Singh, A.N. Anisimov, S.S. Nagalyuk, E.N. Mokhov, P.G. Baranov, D. Suter *Phys. Rev. B*, 2020, **101**, 134110. DOI: 10.1103/PhysRevB.101.134110.
32. A.N. Anisimov, V.A. Soltamov, I.D. Breev, R.A. Babunts, E.N. Mokhov, G.V. Astakhov, V. Dyakonov, D.R. Yakovlev, D. Suter, P.G. Baranov *AIP Adv.*, 2018, **8**(8), 085304. DOI: 10.1063/1.5037158.
33. D. Schmidt, B. Berger, M. Kahlert, M. Bayer, C. Schneider, S. Hofling, E.S. Sedov, A.V. Kavokin, M. Assmann *Phys. Rev. Lett.*, 2019, **122**, 047403. DOI: 10.1103/PhysRevLett.122.047403.
34. D. Schmidt, B. Berger, M. Bayer, C. Schneider, S. Hofling, E. Sedov, A. Kavokin, M. Assmann *Phys. Solid State*, 2018, **60**, 1606. DOI: 10.1134/S1063783418080206.
35. A.N. Kamenskii, A. Greilich, I.I. Ryzhov, G.G. Kozlov, M. Bayer, V.S. Zapasskii *Phys. Rev. Res.*, 2020, **2**, 023317. DOI: 10.1103/PhysRevResearch.2.023317.



English

Coherent Manipulation of Interacting Spin Excitations in Tailored Semiconductors

Manfred H. Bayer

Technische Universität Dortmund
August-Schmidt-Straße 1, D-44221 Dortmund, Germany
manfred.bayer@tu-dortmund.de

Alexey V. Kavokin

Snt. Petersburg State University
7/9 Universitetskaya Emb., Saint Petersburg, 199034, Russia
a.kavokin@soton.ac.uk

Mikhail M. Glazov

Ioffe Physical-Technical Institute, RAS
26 Politekhnicheskaya Str., Saint Petersburg, 194021, Russia
glazov@coherent.ioffe.ru

Yury G. Kusraev

Ioffe Physical-Technical Institute, RAS
26 Politekhnicheskaya Str., Saint Petersburg, 194021, Russia
kusrayev@orient.ioffe.ru

Abstract

The paper reports on the main achievements of the Russian-German scientific collaborative center “Coherent manipulation of interacting spin excitations in tailored semiconductors” based on the partnership of St. Petersburg State University, Ioffe Institute of the Russian Academy of Sciences, and Technical University of Dortmund (Germany). Five years of active scientific research of the center supported by the RFBR and DFG yielded breakthrough results in the field of the spin physics.

Keywords: spin, spin-orbit coupling, hyperfine coupling, optical orientation, spin noise, spin resonance.

* The work was financially supported by RFBR and DFG (projects 08-02-91960, 15-52-12011, 15-52-12012, 19-52-12032, 19-52-12034, 19-52-12038, 19-52-12043, 19-52-12046, 19-52-12054, 19-52-12057, 19-52-12058, 19-52-12059, 19-52-12063, 19-52-12064, 19-52-12065 and 19-52-12066).

Images & Tables

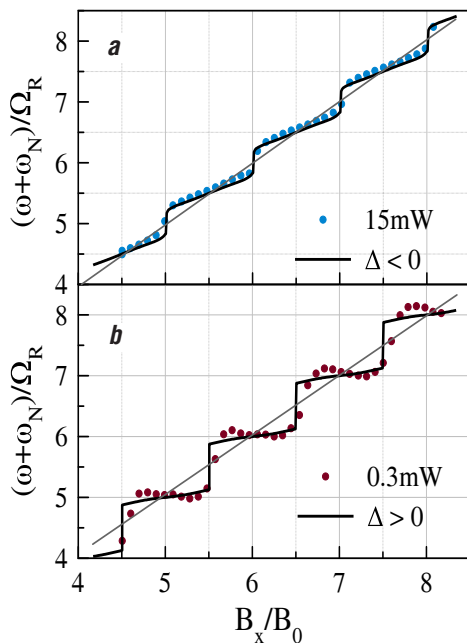


Fig. 1. Field dependence of the spin precession frequency in the epitaxial ZnSe layer at the high (a) and low (b) excitation power. Points show the experimental data from [1]; solid black curves show the result of theoretical modelling.

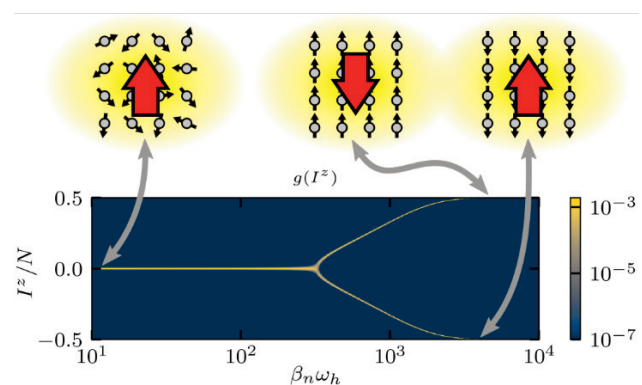


Fig. 2. Top panel: illustration of disordered nuclear spin state (corresponds to high temperatures, no polaron formation, left) and ordered distribution (low temperatures, polaron has formed, right). At the lower panel the distribution function $g(I_z)$ calculated in [5] for different reciprocal temperatures of the nuclear spin reservoir β_r , ω_h is the hyperfine interaction parameter.

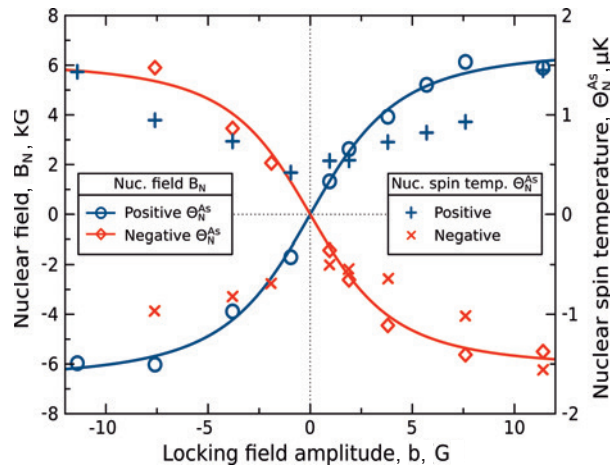


Fig. 3. Magnetic field dependence of the Overhauser field acting from the polarized nuclear spins on quantum well electrons (left scale) and nuclear spin temperature (right scale).

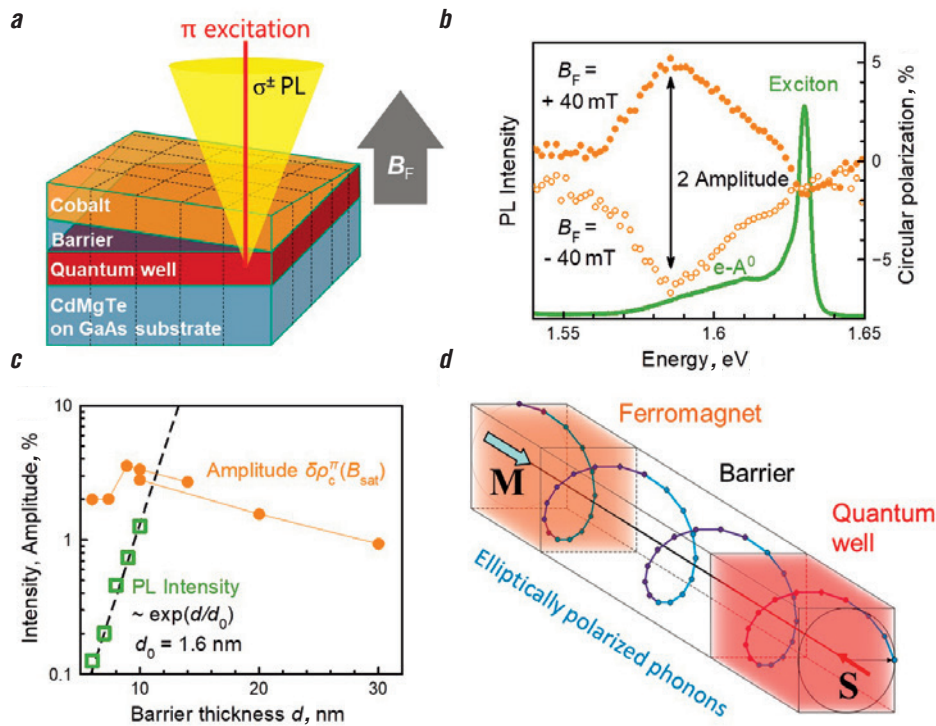


Fig. 4. a – Structure and scheme of the experiment; b – experimentally observed giant modulation of the quantum well circular polarization caused by the Co magnetization (right scale); c – barrier thickness dependence of the effect magnitude; d – illustration of the mechanism of the effect related to the elliptically polarized phonons.

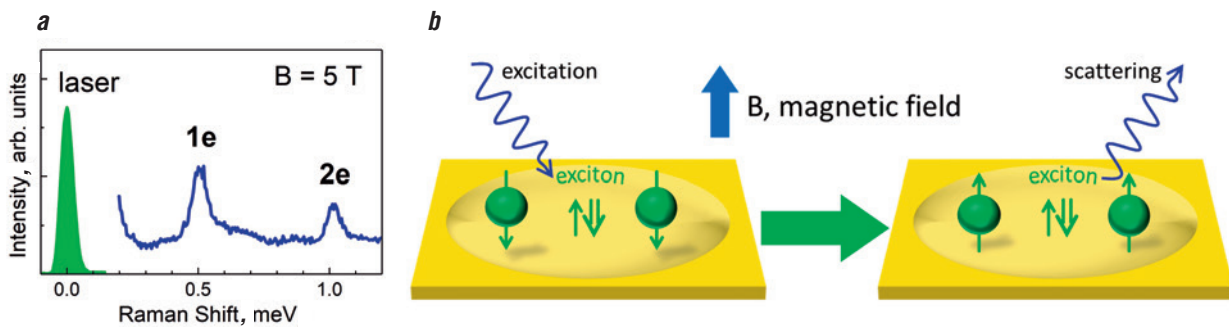


Fig. 5. a – Spectrum of resonant spin-flip Raman scattering in CdSe nanoplatelet. Lines denoted as “1e” and “2e” correspond of the single- and double-electron spin flip. b – Scheme of the spin flip process in CdSe nanoplatelet (initial and final states). Single arrows denote electron spins, double arrows denote the hole spins.

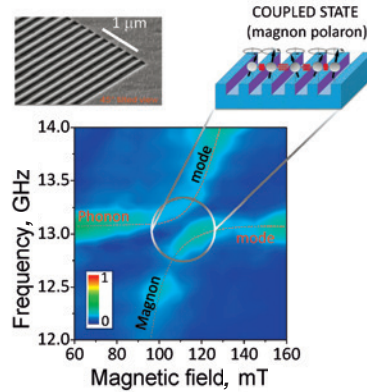


Fig. 6. Effect of the strong magneto-acoustic coupling in galfenol (Fe,Ga) nanograting. Two-dimensional color map shows the spectrum of optically excited magnetization precession as a function of the external magnetic field applied in the nanograting plane, whose TEM-image is shown in the left top corner. Spin precession spectrum shows two characteristic peaks: field-independent phonon resonance and magnon mode whose frequency increases with increasing the field. In the vicinity of the resonance (110 mT) the anticrossing of the phonon and magnon modes is shown confirming the strong coupling regime and formation of the collective excitation.

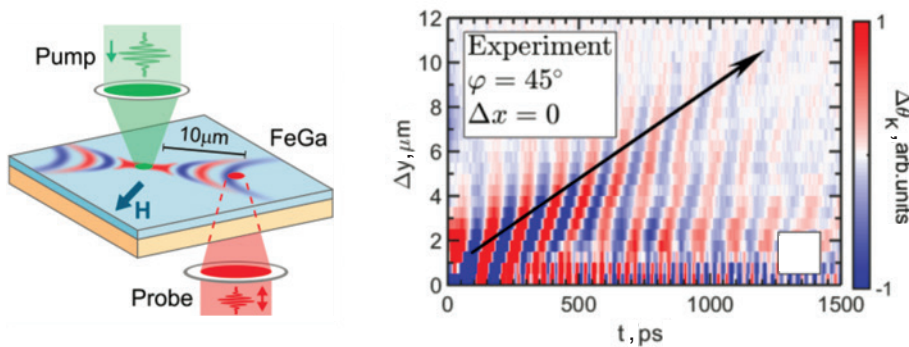


Fig. 7. Scheme of the experiment on generation and detection of magnetostatic waves in (Fe,Ga)/GaAs and experimentally measured space-time map showing the propagation of the magnetostatic wave packet by 10 microns.

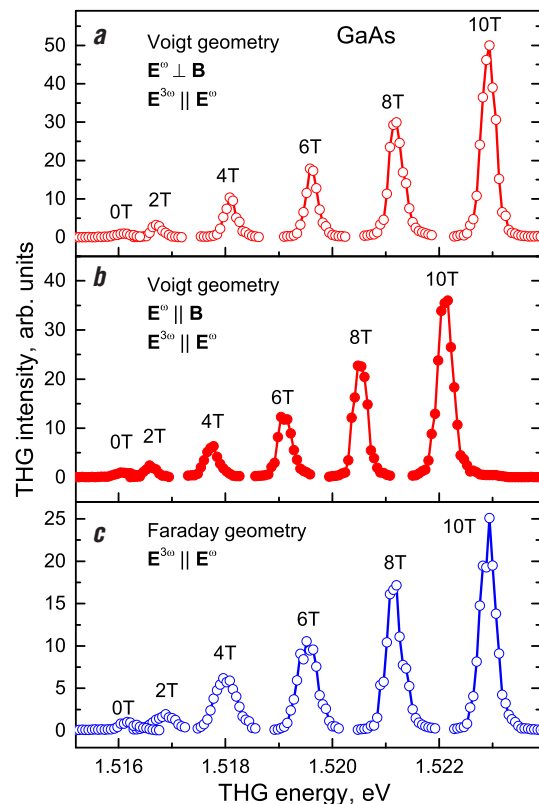
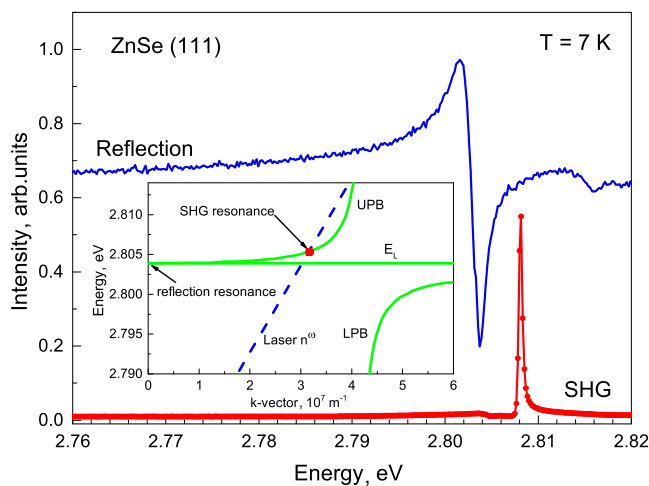


Fig. 8. Left panel: reflection spectra (blue) and second harmonic generation (SHG, red) at exciton-polaritons in ZnSe crystal. Inset schematically shows the spectral shift between the resonances in the reflectivity and second harmonic generation. Dot shows the intersection of the dispersion dependence of $n\omega$ of the laser pump with the upper polariton branch (UPB), LPB is the lower polariton branch dispersion, EL is the longitudinal branch. Second harmonic was excited by spectrally broad laser pulses of 150 fs duration, repetition frequency of 30 KHz with the peak energy of 1.404 eV [28]. Right: spectra of the third harmonic generation at 1s exciton-polariton in GaAs in magnetic fields of 0–10 T in the Voigt geometry (a,b) and Faraday geometry (c) [30].

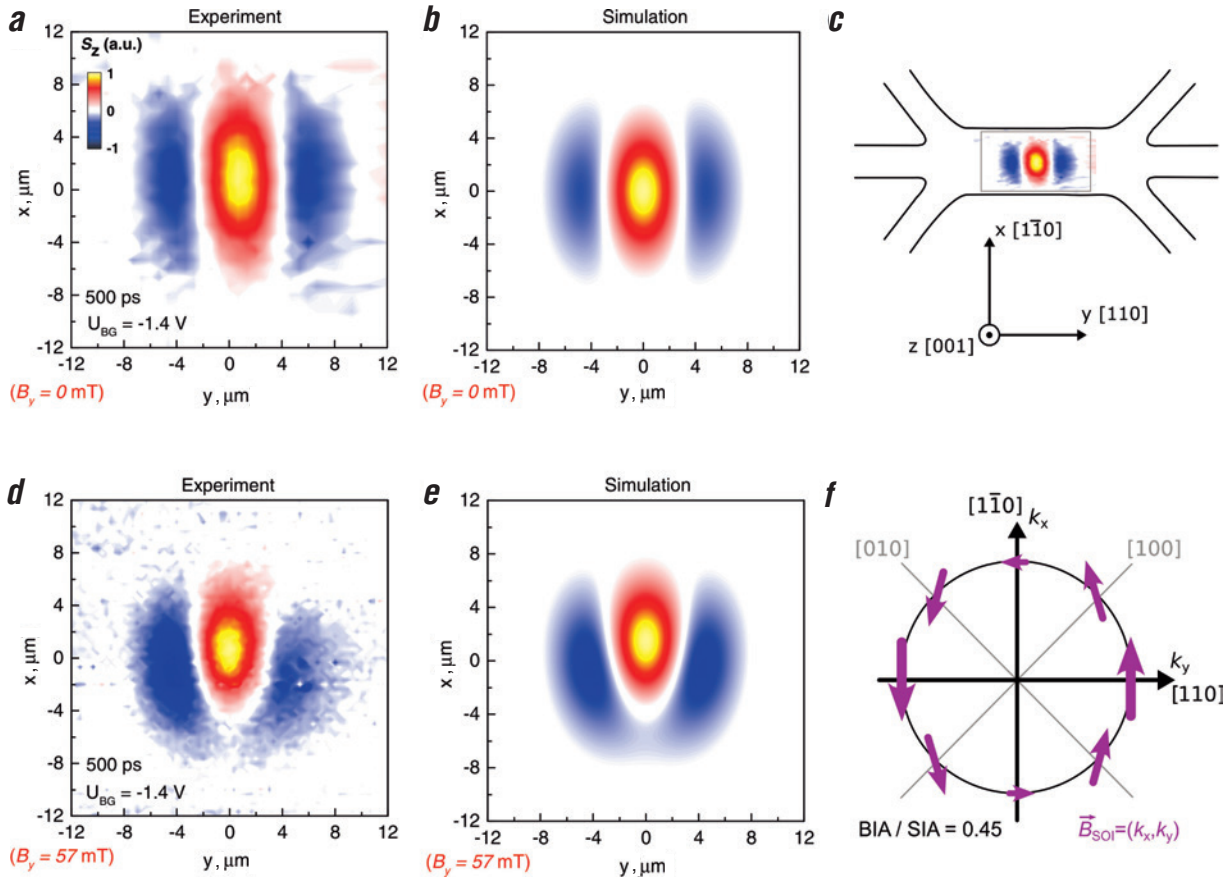


Fig. 9. Measured and calculated spatial distributions of the spin polarization in the course of electron diffusion (a, b – in the absence of magnetic field; d, e – in the presence of the field). c – Sample scheme; f – effective magnetic field acting on the electrons.

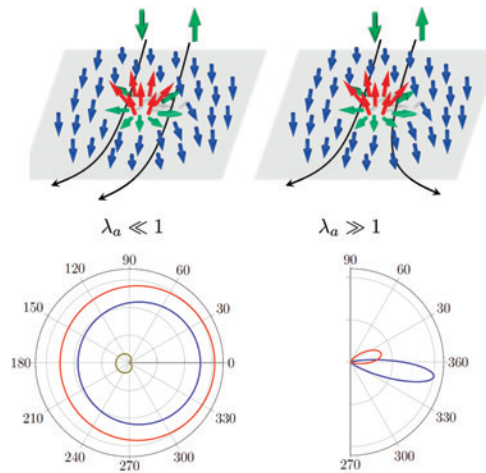


Fig. 10. Top panel: illustration of the asymmetric scattering of electrons by a chiral spin texture in the weak (left) and strong (right) coupling regimes. Lower panel: scattering diagrams in the two limits calculated in [29].

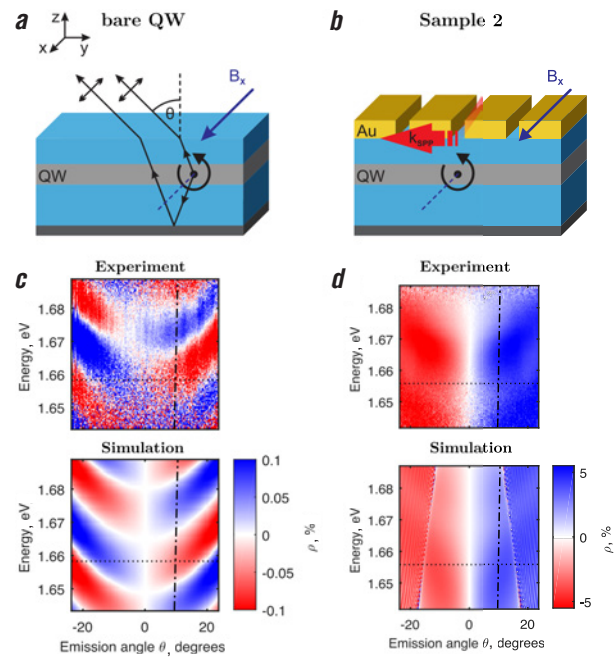


Fig. 11. a, b – Mechanisms of the light routing control in quantum well structure (a) and in the structure with plasmonic grating (b). Measured (c) and calculated (d) distributions of the directionality of light propagation [30].

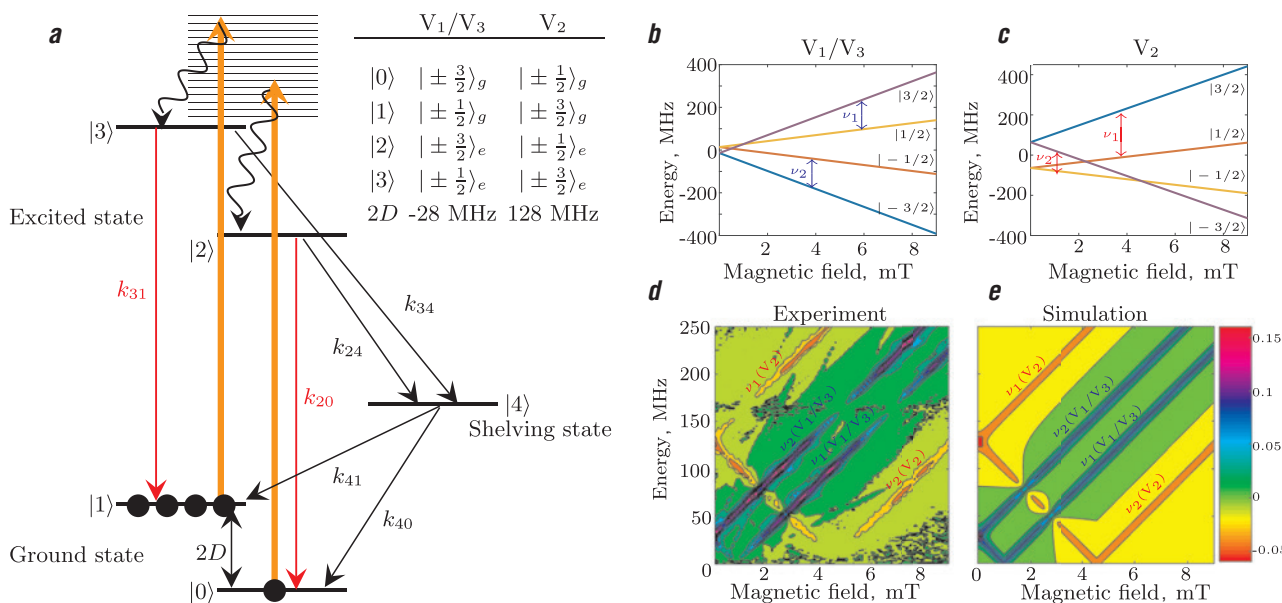


Fig. 12. a – Illustration of the optical alignment mechanism of spins of vacancy centers with $S=3/2$ in SiC at room temperature. b, c – Scheme of the Zeeman levels for three types of spin centers with $S=3/2$: V_1/V_3 (b) and V_2 (c) in the external magnetic field B/c . d, e – Experiment (d) and simulation (e) of the position and intensity of the ODMR signals of the V_1/V_3 and V_2 spin centers in magnetic field at the room temperature with B/c .

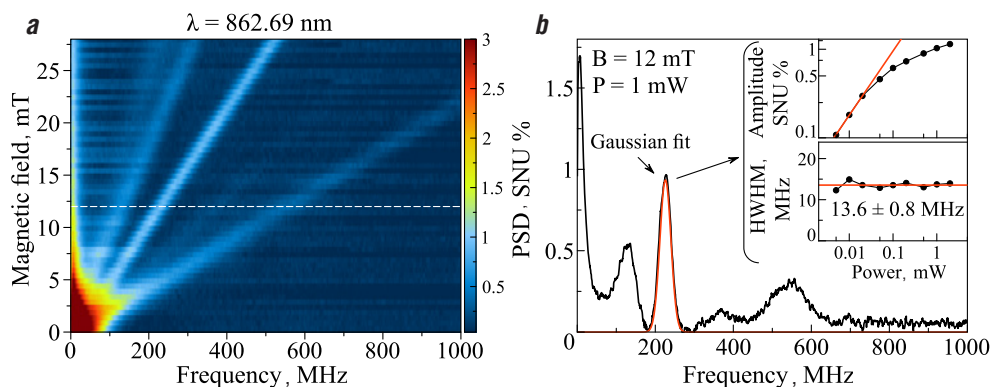


Fig. 13. a – Spectra of spin noise power density (noise of polarization plane rotation of the probe beam) in $\text{CaF}_2:\text{Nd}^{3+}$ crystal as function of magnetic field (along the ordinate axis). b – One of the spectra recorded in the fixed magnetic field (cross-section of the top panel) [35].



Fig. 14. Meeting of the international research collaborative center and the project participants discussions. Bottom panel shows graffiti on the walls of the labs at TU-Dortmund which symbolizes collaboration between St. Petersburg and Dortmund in the frame of the International Collaborative Research Center.

References

- E.A. Zhukov, E. Kirstein, N.E. Kopteva, F. Heisterkamp, I.A. Yugova, V.L. Korenev, D.R. Yakovlev, A. Pawlis, M. Bayer, A. Greilich *Nat. Commun.*, 2018, **9**, 1941. DOI: 10.1038/s41467-018-04359-6.
- A. Fischer, I. Kleinjohann, F.B. Anders, M.M. Glazov *Phys. Rev. B*, 2020, **102**(16), 165309. DOI: 10.1103/PhysRevB.102.165309.
- M. Vladimirova, S. Cronenberger, D. Scalbert, I.I. Ryzhov, V.S. Zapasskii, G.G. Kozlov, A. Lemaitre, K.V. Kavokin *Phys. Rev. B*, 2018, **97**, 041301. DOI: 10.1103/PhysRevB.97.041301.
- A.N. Kosarev, S.V. Poltavtsev, L.E. Golub, M.M. Glazov, M. Salewski, N.V. Kozlyev, E.A. Zhukov, D.R. Yakovlev, G. Karczewski, S. Chusnutdinov, T. Wojtowicz, I.A. Akimov, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2019, **100**, 121401. DOI: 10.1103/PhysRevB.100.121401.
- V.L. Korenev, M. Salewski, I.A. Akimov, V.F. Sapega, L. Langer, I.V. Kalitukha, J. Debus, R.I. Dzhioev, D.R. Yakovlev, D. Müller, C. Schröder, H. Hövel, G. Karczewski, M. Wiater, T. Wojtowicz, Yu.G. Kusrayev, M. Bayer *Nat. Phys.*, 2016, **12**, 85. DOI: 10.1038/nphys3497.
- V.L. Korenev, I.V. Kalitukha, I.A. Akimov, V.F. Sapega, E.A. Zhukov, E. Kirstein, O.S. Ken, D. Kudlacik, G. Karczewski, M. Wiater, T. Wojtowicz, N.D. Ilyinskaya, N.M. Lebedeva, T.A. Komissarova, Yu.G. Kusrayev, D.R. Yakovlev, M. Bayer *Nat. Commun.*, 2019, **10**, 2899. DOI: 10.1038/s41467-019-10774-0.
- A.V. Rodina, D.R. Yakovlev *Priroda J. [Nature Rus.]*, 2018, №9(1237), 22 (in Russian). DOI: 10.31857/S0032874X0000887-4.
- L. Biadala, E.V. Shornikova, A.V. Rodina, D.R. Yakovlev, B. Siebers, T. Aubert, M. Nasilowski, Z. Hens, B. Dubertret, A.L. Efros, M. Bayer *Nat. Nanotechnol.*, 2017, **12**, 569. DOI: 10.1038/nnano.2017.22.
- E.V. Shornikova, A.A. Golovatenko, D.R. Yakovlev, A.V. Rodina, L. Biadala, G. Qiang, A. Kuntzmann, M. Nasilowski, B. Dubertret, A. Polovitsyn, I. Moreels, M. Bayer *Nat. Nanotechnol.*, 2020, **15**, 277. DOI: 10.1038/s41565-019-0631-7.
- D. Kudlacik, V.F. Sapega, D.R. Yakovlev, I.V. Kalitukha, E.V. Shornikova, A.V. Rodina, E.L. Ivchenko, G.S. Dimitriev, M. Nasilowski, B. Dubertret, M. Bayer *Nano Lett.*, 2020, **20**, 517. DOI: 10.1021/acs.nanolett.9b04262.
- A.V. Rodina, E.L. Ivchenko *Phys. Rev. B*, 2020, **102**, 235432. DOI: 10.1103/PhysRevB.102.235432.
- A.V. Scherbakov, A.S. Salasyuk, A.V. Akimov, X. Liu, M. Bombeck, C. Bruggemann, D.R. Yakovlev, V.F. Sapega, J.K. Furdyna, M. Bayer *Phys. Rev. Lett.*, 2010, **105**, 117204. DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.117204.
- A.V. Scherbakov, A.P. Danilov, F. Godejohann, T.L. Linnik, B.A. Glavin, L. A. Shelukhin, D.P. Pattnaik, M. Wang, A.W. Rushforth, D.R. Yakovlev, A.V. Akimov, M. Bayer *Phys. Rev. Appl.*, 2019, **11**, 031003. DOI: 10.1103/PhysRevApplied.11.031003.
- J.V. Jäger, A.V. Scherbakov, B.A. Glavin, A.S. Salasyuk, R.P. Campion, A.W. Rushforth, D.R. Yakovlev, A.V. Akimov, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2015, **92**, 020404. DOI: 10.1103/PhysRevB.92.020404.
- A.S. Salasyuk, A.V. Rudkovskaya, A.P. Danilov, B.A. Glavin, S.M. Kukhtaruk, M. Wang, A.W. Rushforth, P.A. Nekludova, S.V. Sokolov, A.A. Elistratov, D.R. Yakovlev, M. Bayer, A.V. Akimov, A.V. Scherbakov *Phys. Rev. B*, 2018, **97**, 060404. DOI: 10.1103/PhysRevB.97.060404.
- F. Godejohann, A.V. Scherbakov, S.M. Kukhtaruk, A.N. Poddubny, D.D. Yaremkevich, M. Wang, A. Nadzeyka, D.R. Yakovlev, A.W. Rushforth, A.V. Akimov, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2020, **102**, 144438. DOI: 10.1103/PhysRevB.102.144438.
- P.G. Baranov, A.M. Kalashnikova, V.I. Kozub, V.L. Korenev, Yu.G. Kusrayev, R.V. Pisarev, V.F. Sapega, I.A. Akimov, M. Bayer, A.V. Scherbakov, D.R. Yakovlev *Physics-Uspeski*, 2019, **62**, 795. DOI: 10.3367/UFNe.2018.11.038486.
- V.N. Kats, T.L. Linnik, A.S. Salasyuk, A.W. Rushforth, M. Wang, P. Wadley, A.V. Akimov, S.A. Cavill, V. Holy, A.M. Kalashnikova, A. V. Scherbakov *Phys. Rev. B*, 2016, **93**, 214422. DOI: 10.1103/PhysRevB.93.214422.
- A.P. Danilov, A.V. Scherbakov, B.A. Glavin, T.L. Linnik, A.M. Kalashnikova, L.A. Shelukhin, D.P. Pattnaik, A.W. Rushforth, C.J. Love, S.A. Cavill, D.R. Yakovlev, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2018, **98**, 060406. DOI: 10.1103/PhysRevB.98.060406.
- N.E. Khokhlov, P.I. Gerevenkov, L.A. Shelukhin, A.V. Azovtsev, N.A. Pertsev, M. Wang, A.W. Rushforth, A.V. Scherbakov, A.M. Kalashnikova *Phys. Rev. Appl.*, 2019, **12**, 044044. DOI: 10.1103/PhysRevApplied.12.044044.
- D.R. Yakovlev, V.V. Pavlov, A.V. Rodina, R.V. Pisarev, J. Mund, W. Warkentin, M. Bayer *Phys. Solid State*, 2018, **60**, 1471. DOI: 10.1134/S1063783418080231.
- J. Mund, D. Fröhlich, D.R. Yakovlev, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2018, **98**, 085203. DOI: 10.1103/PhysRevB.98.085203.
- W. Warkentin, J. Mund, D.R. Yakovlev, V.V. Pavlov, R.V. Pisarev, A.V. Rodina, M.A. Semina, M.M. Glazov, E.L. Ivchenko, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2018, **98**, 075204. DOI: 10.1103/PhysRevB.98.075204.
- A. Farenbruch, J. Mund, D. Fröhlich, D.R. Yakovlev, M. Bayer, M.A. Semina, M.M. Glazov *Phys. Rev. B*, 2020, **101**, 115201. DOI: 10.1103/PhysRevB.101.115201.
- J. Mund, D.R. Yakovlev, M.A. Semina, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2020, **102**, 045203. DOI: 10.1103/PhysRevB.102.045203.
- J. Mund, A. Farenbruch, D.R. Yakovlev, A.A. Maksimov, A. Waag, M. Bayer *Phys. Rev. B*, 2020, **102**, 125433. DOI: 10.1103/PhysRevB.102.125433.
- S. Anghel, F. Passmann, A. Singh, C. Ruppert, A.V. Poshakinskiy, S.A. Tarasenko, J.N. Moore, G. Yusa, T. Mano, T. Noda, X. Li, A.D. Bristow, M. Betz *Phys. Rev. B*, 2018, **97**, 125410. DOI: 10.1103/PhysRevB.97.125410.
- F. Passmann, S. Anghel, C. Ruppert, A.D. Bristow, A.V. Poshakinskiy, S.A. Tarasenko, M. Betz *Semicond. Sci. Technol.*, 2019, **34**, 093002. DOI: 10.1088/1361-6641/ab3158.
- K.S. Denisov *J. Phys.: Condens. Matter*, 2020, **32**, 415302. DOI: 10.1088/1361-648X/ab966e.
- F. Spitzer, A.N. Poddubny, I.A. Akimov, V.F. Sapega, L. Klompmaker, L.E. Kreilkamp, L.V. Litvin, R. Jede, G. Karczewski, M. Wiater, T. Wojtowicz, D.R. Yakovlev, M. Bayer *Nat. Phys.*, 2018, **14**, 1043. DOI: 10.1038/s41567-018-0232-7.
- H. Singh, A.N. Anisimov, S.S. Nagalyuk, E.N. Mokhov, P.G. Baranov, D. Suter *Phys. Rev. B*, 2020, **101**, 134110. DOI: 10.1103/PhysRevB.101.134110.
- A.N. Anisimov, V.A. Soltamov, I.D. Breev, R.A. Babunts, E.N. Mokhov, G.V. Astakhov, V. Dyakonov, D.R. Yakovlev, D. Suter, P.G. Baranov *AIP Adv.*, 2018, **8**(8), 085304. DOI: 10.1063/1.5037158.
- D. Schmidt, B. Berger, M. Kahler, M. Bayer, C. Schneider, S. Hofling, E.S. Sedov, A.V. Kavokin, M. Assmann *Phys. Rev. Lett.*, 2019, **122**, 047403. DOI: 10.1103/PhysRevLett.122.047403.
- D. Schmidt, B. Berger, M. Bayer, C. Schneider, S. Hofling, E. Sedov, A. Kavokin, M. Assmann *Phys. Solid State*, 2018, **60**, 1606. DOI: 10.1134/S1063783418080206.
- A.N. Kamenskii, A. Greilich, I.I. Ryzhov, G.G. Kozlov, M. Bayer, V.S. Zapasskii *Phys. Rev. Res.*, 2020, **2**, 023317. DOI: 10.1103/PhysRevResearch.2.023317.

Российско-немецкое сотрудничество в области лазерной поверхностной обработки металлов

О.М. Орешкин, Л. Крайнест, Д.В. Панов, В.А. Хлопонин, Д.В. Ушаков

Статья посвящена совместной работе сотрудников Рейнско-Вестфальского технологического университета (Аахен, Германия) и Национального исследовательского ядерного университета МИФИ (Москва, Россия) в области лазерной поверхностной обработки металлов. Раскрывается принцип лазерного текстурирования модулированным лазерным излучением. Показаны результаты работ по созданию и уменьшению структур на поверхности металлов. Подчеркивается важность совместной работы немецких и российских коллег для выполнения поставленных в исследовании задач.

Ключевые слова: текстурирование, амплитудная модуляция лазерного излучения, уменьшение волнистости, лазерная обработка, обработка поверхности.

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проект № 19-58-12006).

Сотрудничество немецких и российских исследователей в области лазерной поверхностной обработки металлов началось в 2013 г. Важной вехой сотрудничества в 2019 г. явилось начало совместной работы по проекту РФФИ – DFG «Структурирование текстуры металлических поверхностей путем переплавления с помощью лазерного излучения для уменьшения либо создания волнистости».

Российскую сторону представляет коллектив лазерного центра НИЯУ МИФИ, руководителем проекта является к. т. н. Орешкин Олег Михайлович. Немецкую сторону представляет коллектив Рейнско-Вестфальского технологического университета (RWTH Aachen) под руководством профессора Йоханнеса Шляйфенбаума, заведующего кафедрой цифрового аддитивного производства RWTH.

Инициатива совместного проекта исходила от российской стороны. RWTH совместно с Фраунгоферовским институтом лазерной техники (Fraunhofer ILT), также расположенном в Аахене, является одним из ведущих мировых

исследователей лазерной обработки материалов, в частности в области 3D-печати металлов (SLM – Selective Laser Melting, DMD – Direct Metal Deposition). Ученые из Аахена являются основоположниками технологии лазерного текстурирования переплавлением [1]. В свою очередь, российская сторона привнесла в проект компетенции по разработке системы измерения морфологии поверхности, а также опыт по обработке лазером поверхности титановых сплавов и покрытий [2, 3].

Основными целями настоящего проекта являются:

1. Решение обратной задачи текстурирования: поверхность, морфология которой известна, обработать лазерным лучом так, чтобы уменьшить структуры на поверхности материала.
2. Расширение границ процесса текстурирования переплавлением, текстурирование трехмерных поверхностей.

Физический принцип лазерного текстурирования переплавлением можно описать сле-



ОРЕШКИН

Олег Михайлович

Национальный исследовательский ядерный университет «Московский инженерно-физический институт»
ООО «Научно-техническое объединение «ИРЭ-Полус»»



КРАЙНЕСТ Лаура

Рейнско-Вестфальский
Технологический
Университет, Германия



ПАНОВ

Даниил Вячеславович

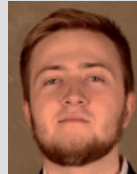
Национальный исследовательский ядерный университет «Московский инженерно-физический институт»



ХЛОПОНИН

Вячеслав Анатольевич

ОАО «Национальный институт авиационных технологий»



УШАКОВ

Денис Владиславович

Национальный исследовательский ядерный университет «Московский инженерно-физический институт»

дующим образом. Под воздействием лазерного излучения на поверхности формируется ванна расплава. Если мощность излучения постоянна, то при движении ванны расплава фронт затвердевания будет двигаться вдоль линии, образующей форму поверхности. Если же амплитуда мощности лазерного излучения модулирована, то размер ванны расплава также изменяется пропорционально изменению мощности излучения. При изменении размера ванны расплава фронт затвердевания движется по отношению к линии, образующей форму поверхности, под неким углом, формируя на поверхности структуры, соответствующие закону модуляции лазерного излучения (рис. 1).

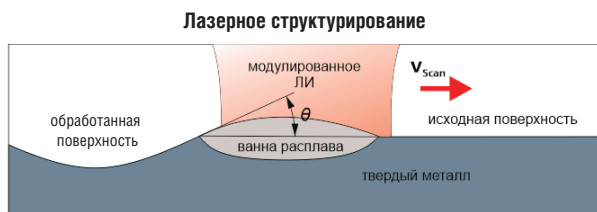


Рис. 1. Схематическое представление процесса лазерного структурирования переплавлением.

В результате такой обработки на поверхности металла можно формировать произвольные структуры высотой от 1 до 500 мкм с латеральной длиной волны от 0.03 до 10 мм в зависимости от режима обработки. Примеры получаемых текстур показаны на рис. 2. Подробнее с методом текстурирования переплавлением можно ознакомиться в работах [4, 5].

Уменьшение волнистости является разновидностью процесса текстурирования поверхностей, в которой решается обратная задача: при известной исходной топографии поверхности необходи-

мо задать модуляцию мощности лазерного луча таким образом, что уже имеющиеся на поверхности текстуры, определяющие волнистость, после переплавления будут уменьшаться (рис. 3).

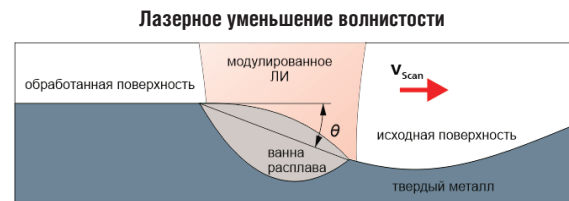


Рис. 3. Схематическое представление процесса лазерного активного уменьшения волнистости.

Наши исследования показали, что в результате лазерной обработки модулированным излучением волнистость поверхности можно уменьшить на 80–90% (рис. 4) [6].

Наши научные коллективы, как в России, так и в Германии, проводят работы по нескольким направлениям:

- математическое моделирование процесса текстурирования поверхностного слоя переплавлением;
- исследования термофизических параметров, влияющих на генерацию текстуры поверхности, в частности, влияние температурного расширения на морфологию поверхности, а также исследование отклонения текстуры от заданной формы;
- разработка системы измерения волнистости и включение измерения морфологии поверхности в технологический цикл обработки.

В рамках проекта исследуются отклонения текстуры от заданной формы и предлагаются способы для коррекции модуляции лазерного

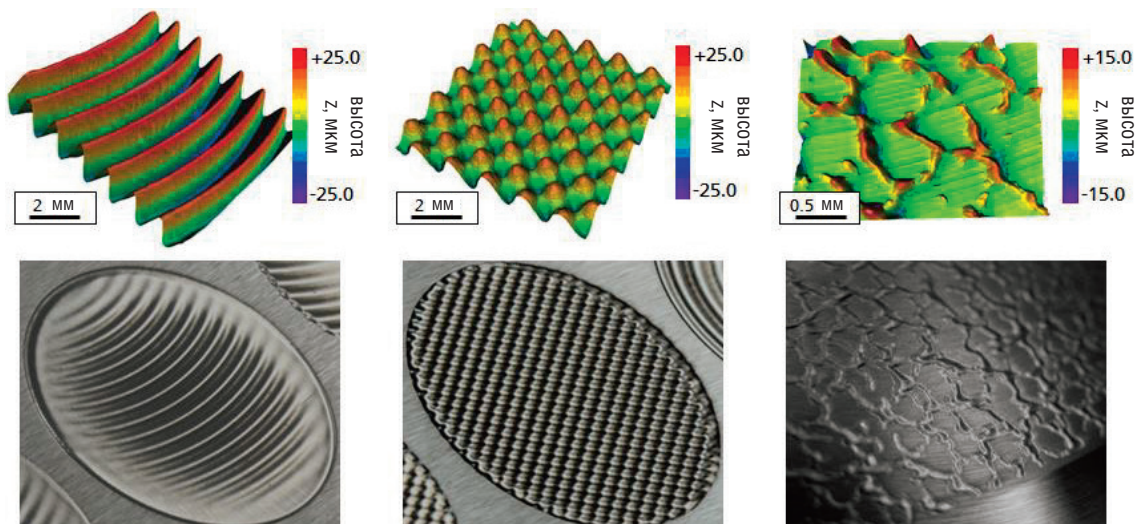


Рис. 2. Примеры структур, полученных лазерным текстурированием переплавлением.

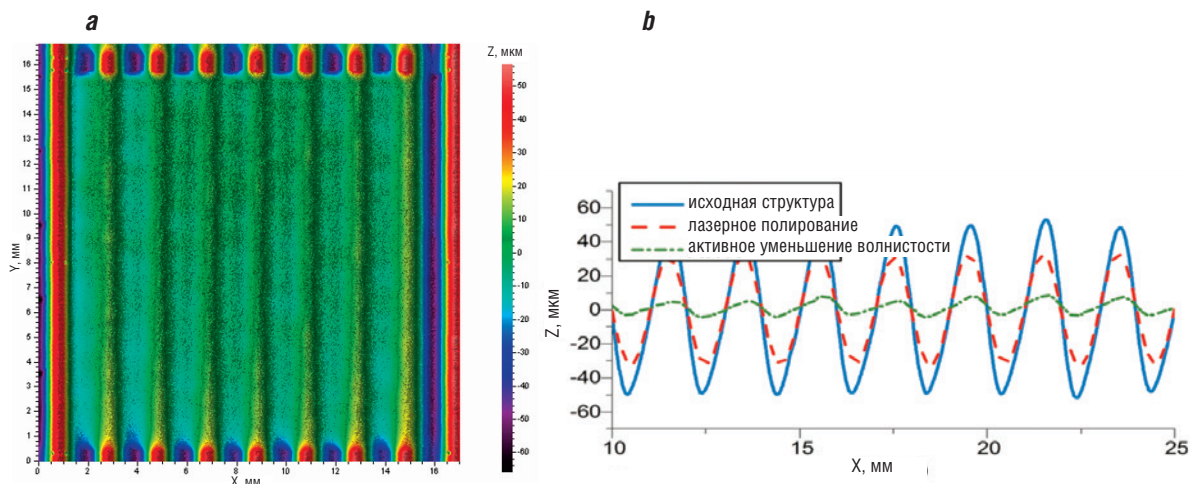


Рис. 4. а – 3D-топограмма участка текстуры, подвергшегося лазерному уменьшению волнистости; б – профили поверхностей: исходной (синяя линия), после лазерного полирования (красная линия), после лазерного уменьшения волнистости (зеленая линия).

излучения. В предыдущих исследованиях показано, что, если модуляция лазерного излучения задается симметричным сигналом (например, синусоидальными колебаниями мощности излучения), структуры в общем случае получают асимметричные: фронт нарастания структуры получается более пологим либо более крутым, чем задний фронт. В ходе исследования нами обнаружено влияние изменения диаметра ванны расплава на симметрию получаемых структур, а также разработан способ получения симметричных структур. Он заключается в том, чтобы задаваемый сигнал мощности сделать асимметричным путем задания угла асимметрии θ для компенсации несимметричности структур (рис. 5).

В рамках работ по уменьшению волнистости впервые были проведены работы по исследованию режимов для титановых (ВТ6) и железоникелевых (инконель-718) сплавов. Пример уменьшения волнистости показан на рис. 6. Для образцов из спла-

ва ВТ6 удалось уменьшить исходную волнистость структур с пространственной длиной волны 2 мм на 8.7% (среднее арифметическое отклонение профиля R_a исходной структуры составляет 15.8 мкм, после уменьшения волнистости – 1.62 мкм). При обработке немодулированным лазерным излучением волнистость уменьшилась только на 4.3% (до $R_a = 15.2$ мкм). Аналогично для образцов из сплава инконель-718 удалось уменьшить исходную волнистость структур с пространственной длиной волны 2 мм на 77.5%.

Для уменьшения волнистости необходимо знать распределение структур по поверхности детали. Причем очень важно измерять морфологию поверхности непосредственно на установке для лазерной обработки перед обработкой: так резко уменьшается время на измерение детали и увеличивается точность обработки – ведь ее не нужно дополнительно позиционировать на установке после измерения – распределение структур уже известно в координатах

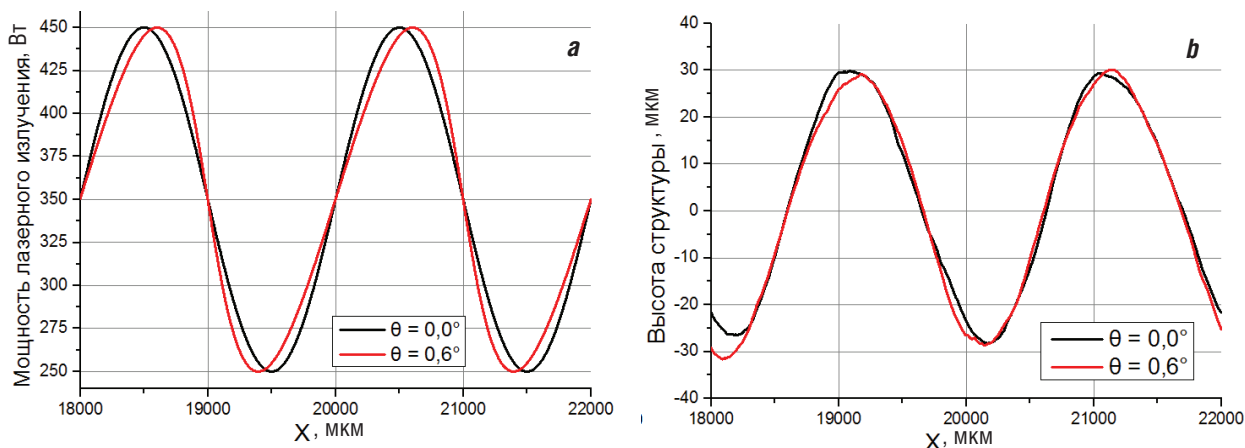


Рис. 5. а – Сигнал модуляции лазерного излучения: исходный ($\theta = 0.0^\circ$) и асимметричный ($\theta = 0.6^\circ$); б – структуры на поверхности из сплава ВТ6: асимметричная исходная ($\theta = 0.0^\circ$) и симметричная при использовании асимметричного сигнала ($\theta = 0.6^\circ$).

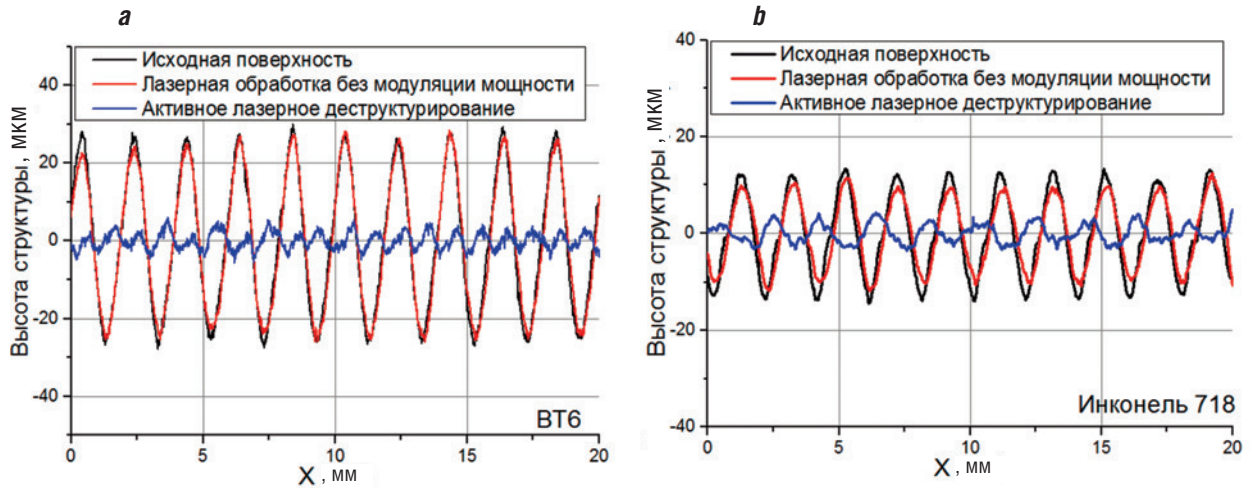


Рис. 6. Исходная текстура, лазерная обработка без модуляции мощности и активное лазерное уменьшение волнистости на поверхности детали из сплавов ВТ6 (а) и инконель-718 (б).

установки. Для решения задачи по определению волнистости разработана бесконтактная система измерения на основе оптического повторителя: видеокамера фиксирует отклонения лазерного луча от нормального положения из-за волнистости поверхности. Система позволяет проводить измерения на большом удалении от поверхности над газозащитной камерой на расстоянии до 200 мм от детали (рис. 7, 8).

Глобальной задачей нашего исследования является изучение влияния возмущающих факторов при текстурировании поверхности с целью определения возможных ограничений процесса структурирования. Лучшее понимание процессов, происходящих в ванне расплава при лазерном текстурировании и уменьшении волнистости, приблизит нас к созданию структур, кото-

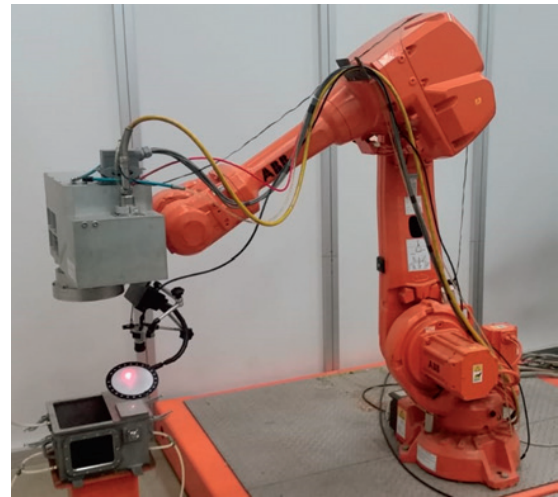


Рис. 7. Роботизированная установка лазерной обработки поверхности с размещенной на ней опытным образом системы измерения волнистости (Лазерный центр НИЯУ МИФИ).

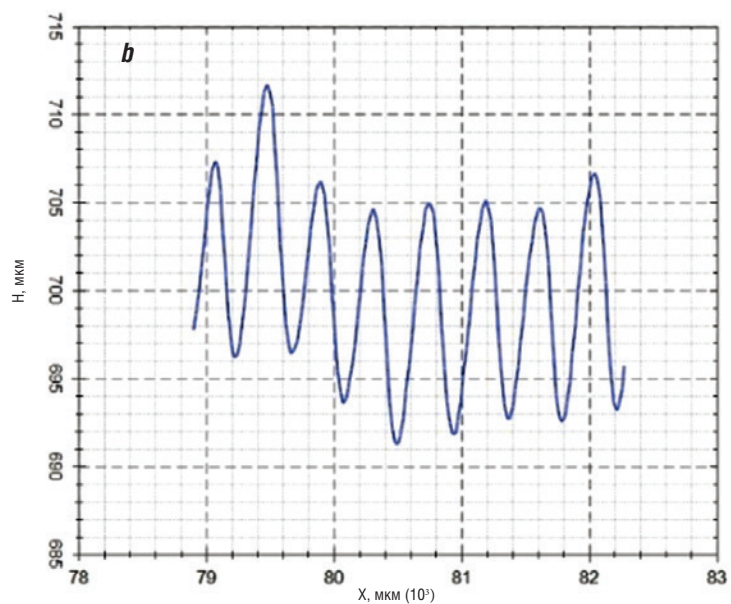
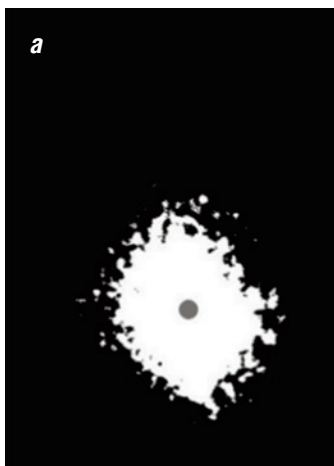


Рис. 8. а – Вид сигнала, получаемого видеокамерой системы измерения; б – пример профиля волнистости, регистрируемого системой измерения.

рые можно создавать в том числе и на поверхностях сложной формы, таких как поверхности штампов. Лазерное текстурирование поверхности может занять нишу генерации либо сокращения текстур большой длины волны, например, при изготовлении пресс-форм или финишной обработки деталей, выращенных с помощью 3D-печати.

Вышеуказанные результаты удалось получить благодаря тесной совместной работе сотрудников НИЯУ МИФИ и RWTH Aachen.

И хотя 2020 год внес коррективы в наши планы гостевых визитов на исследовательские площадки в Москве и Аахене, дистанционный характер встреч не помешал активному обмену мнениями. Коллектив выражает искреннюю признательность фондам РФФИ и DFG, благодаря которым стало возможно сотрудничество немецких и российских ученых и получение фундаментальных результатов в области лазерного текстурирования переплавлением.

Литература

1. **A. Temmler**
Doc. Sc. Thes. (Natural Sciences), RWTH Aachen University, Germany, Aachen, Shaker Verlag, 2012, 160 pp.
2. **O. Oreshkin, V. Plikhuno**
J. Laser Appl., 2017, **29**, 011704. DOI: 10.2351/1.4975783.
3. **О.М. Орешкин**
Дис. канд. тех. наук, Национальный институт авиационных технологий, РФ, Москва, 2017, 134 с.
4. **A. Temmler, M. Küpper, M. Walochnik, A. Lanfermann, T. Schmickler, A. Bach, T. Greifenberg, O. Oreshkin, E. Willenborg, K. Wissenbach, R. Poprawe**
J. Laser Appl., 2017, **29**, 012015. DOI: 10.2351/1.4972414.
5. **A. Temmler, N. Pirch**
App. Surf. Sci., 2020, **526**, 146393.
DOI: 10.1016/j.apsusc.2020.146393.
6. **O. Oreshkin, M. Küpper, A. Temmler, E. Willenborg**
J. Laser Appl., 2015, **27**, 022004. DOI: 10.2351/1.4906622.

English

Russian-German Partnership in the Field of Laser Surface Processing of Metals

Oleg M. Oreshkin

National Research Nuclear University "Moscow Engineering Physics Institute"
31 Kashirskoe Highway, Moscow, 115409, Russia
LLC "Scientific & Technical Association «IRE-Polus»"
1-3 Academician Vvedensky Sqr., Fryazino, 141195, Russia
olegoreshkin@rambler.ru

Daniil V. Panov

National Research Nuclear University "Moscow Engineering Physics Institute"
31 Kashirskoe Highway, Moscow, 115409, Russia
pdv005@campus.mephi.ru

Denis V. Ushakov

National Research Nuclear University "Moscow Engineering Physics Institute"
31 Kashirskoe Highway, Moscow, 115409, Russia
dushakov@mephi.ru

Laura Kreinest

RWTH Aachen University
73 Campus-Boulevard, 52074 Aachen, Germany
laura.kreinest@dap.rwth-aachen.de

Vyacheslav A. Khloponin

JSC National Institute of Aviation Technologies
3 Kirowogradskaya Str., Moscow, 117587, Russia
khloponinva@gmail.com

Abstract

The project "Structuring by laser remelting for removing waviness or generation of structures on metallic surfaces" has been funded in 2019 both by RFBR in Russia and DFG in Germany.

The project has two overarching objectives:

- 1) Solving the "inverse problem of structuring by laser remelting" for metallic materials in order to create predetermined desired structures or to eliminate existing undesirable structures by "destructive interference", and
- 2) Gaining an extended process understanding and extension of the process limits of structuring by laser remelting with regard to structures that can be generated, and 3D surfaces structuring.

Our studies in MEPHI, Moscow, as well as in RWTH, Aachen, are directed to fundamental development of laser structuring by remelting.

The first results achieved within the project:

– Waviness measurement system has been developed and built which can be implemented in the waviness destruction process;

– For the first time, the destructuring on Ti-6Al-4V and Inconel alloys has been shown;

– A method for reducing the asymmetry of structures is proposed.

We hope that this collaborative work helps to understand the process limits of structuring by remelting and brings us closer to better management of surface morphology.

Keywords: texturing, amplitude modulation of laser radiation, waviness reduction, laser processing, surface processing.

* The work was financially supported by RFBR and DFG (project 19-58-12006).

Images & Tables

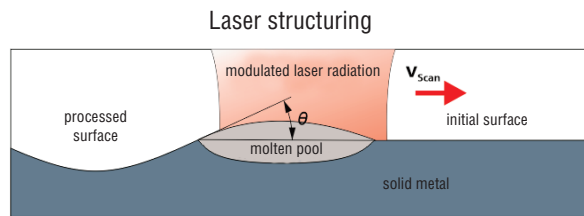


Fig. 1. Schematic representation of the laser structuring by remelting.

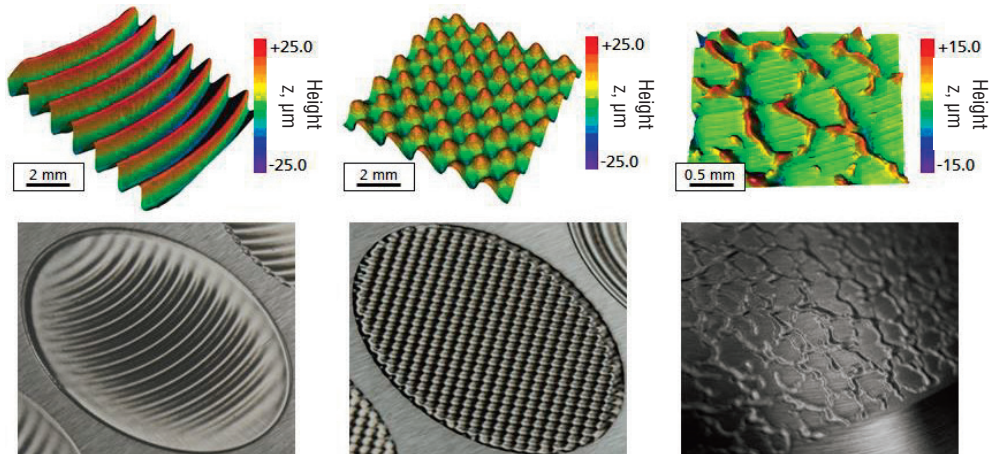


Fig. 2. Examples of structures, obtained by the laser structuring by remelting.

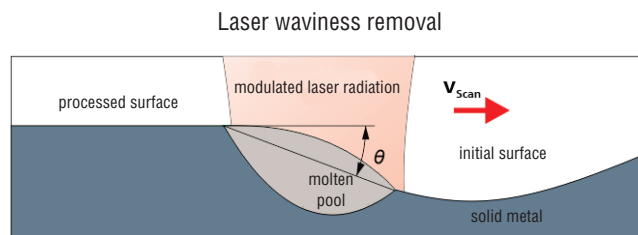


Fig. 3. Schematic representation of the laser waviness removal.

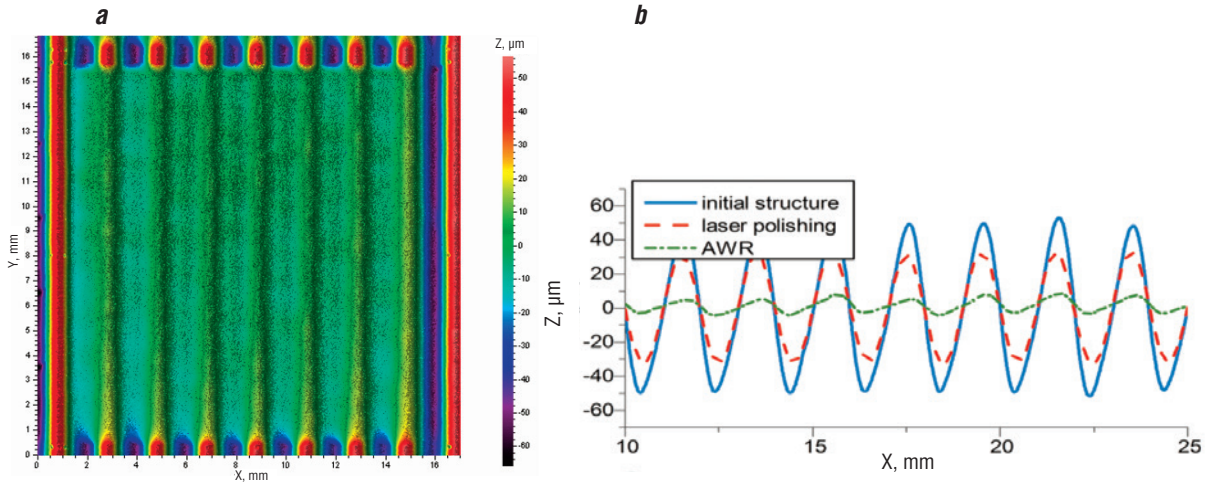


Fig. 4. a – 3D-topogram of the surface area processed by laser waviness removal; b – surface profiles: original (blue line), after laser polishing (red line), after laser waviness removal (green line).

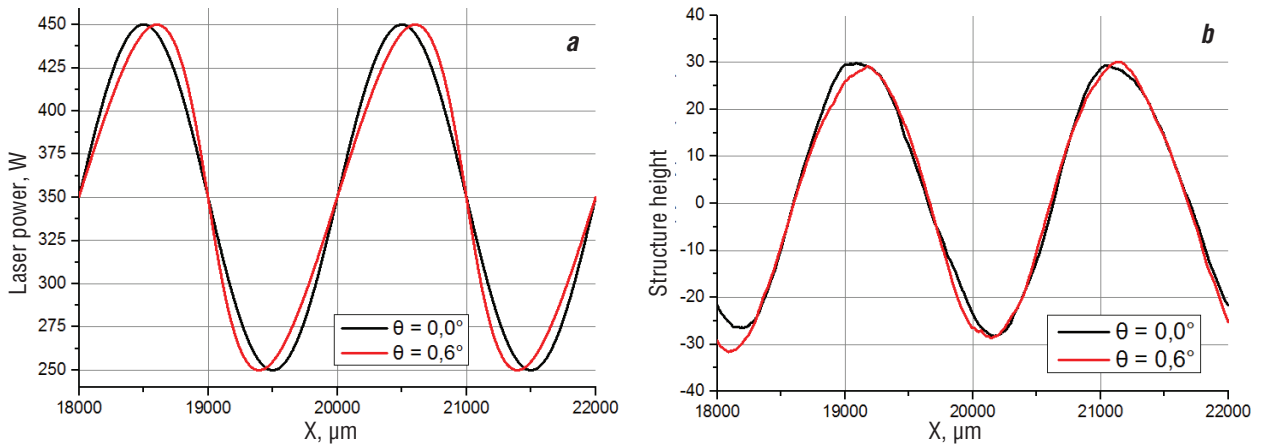


Fig. 5. a – Laser power modulation signal: original ($\theta = 0.0^\circ$) and asymmetric ($\theta = 0.6^\circ$); b – structures on the surface of Ti-6Al-4V alloy: initial asymmetric ($\theta = 0.0^\circ$) and symmetric when using an asymmetric signal ($\theta = 0.6^\circ$).

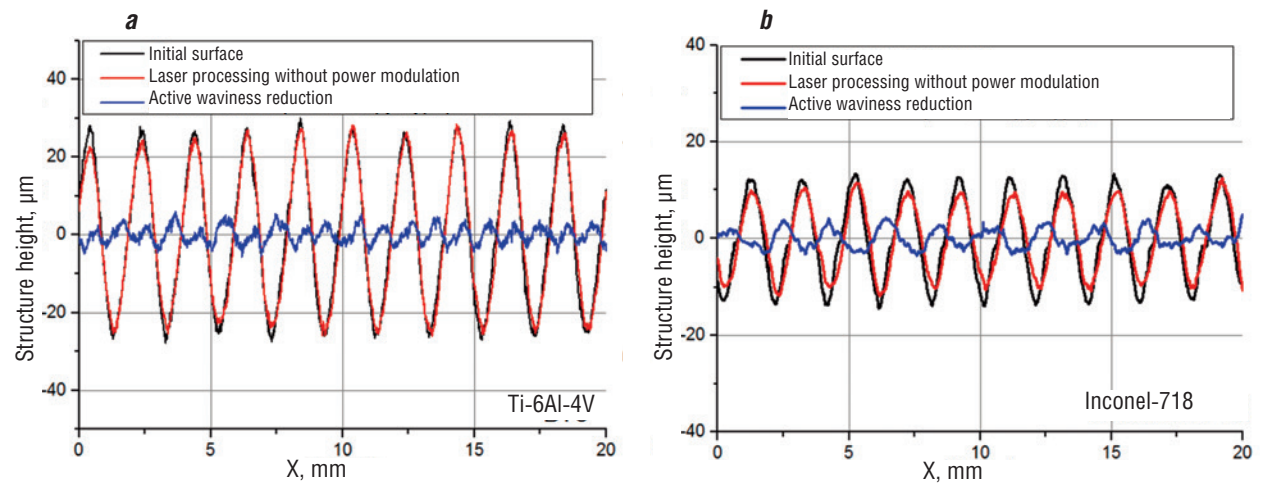


Fig. 6. Initial texture, laser processing without power modulation and active laser waviness removal on the part made of Ti-6Al-4V (a) and Inconel-718 (b).

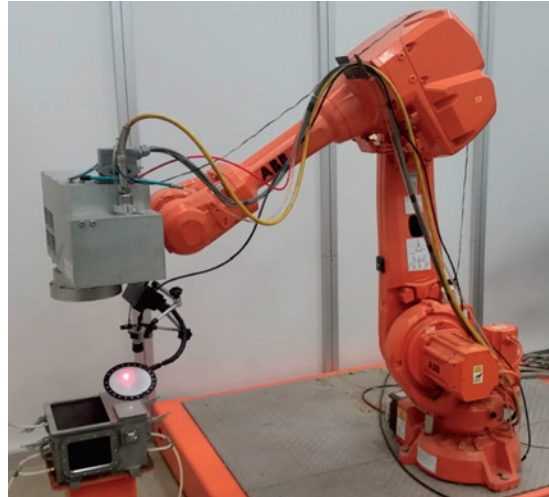


Fig. 7. Robot for laser processing with installed prototype of waviness measurement system (Laser Centre, MEPhI).

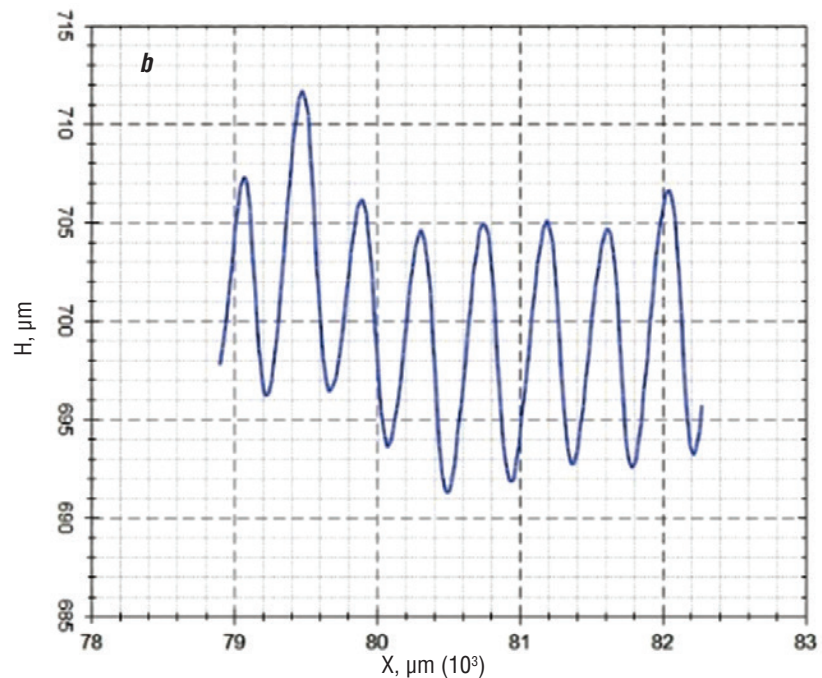
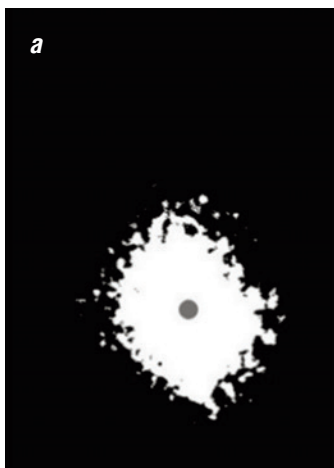


Fig. 8. a – signal received by the measurement system camera; b – example of a waviness profile recorded by a measurement system.

References

1. A. Temmler
Doc. Sc. Thes. (Natural Sciences), RWTH Aachen University, Germany, Aachen, Shaker Verlag, 2012, 160 pp.
2. O. Oreshkin, V. Plikhunov
J. Laser Appl., 2017, **29**, 011704. DOI: 10.2351/1.4975783.
3. O.M. Oreshkin
PhD Thes. (Engineering Sciences) [Dissertation for the degree of the Candidate of Engineering Sciences], National Institute of Aviation Technologies, RF, Moscow, 2017, 134 pp.
4. A. Temmler, M. Küpper, M. Walochnik, A. Lanfermann, T. Schmickler, A. Bach, T. Greifenberg, O. Oreshkin, E. Willenborg, K. Wissenbach, R. Poprawe
J. Laser Appl., 2017, **29**, 012015. DOI: 10.2351/1.4972414.
5. A. Temmler, N. Pirch
App. Surf. Sci., 2020, **526**, 146393. DOI: 10.1016/j.apsusc.2020.146393.
6. O. Oreshkin, M. Küpper, A. Temmler, E. Willenborg
J. Laser Appl., 2015, **27**, 022004. DOI: 10.2351/1.4906622.

Решение обратной задачи формирования стенки при выращивании вневакуумным электронным лучом с использованием проволоки

Г.А. Туричин, Т. Хассель, Д.В. Мукин, С.Л. Станкевич, Е.А. Валдайцева, Г.Г. Климов, С.А. Шальнова, О.Г. Климова-Корсмик

Уровень развития технологий аддитивного производства уже позволяет использовать их в различных отраслях промышленности, таких, как авиакосмическая промышленность, судостроение и двигателестроение. Для изготовления изделий из меди и медных сплавов наиболее перспективными являются вневакуумные электронно-лучевые источники тепла, поскольку они не обладают недостатками, присущими лазерному излучению, а также не требуют создания вакуума в отличие от традиционных электронно-лучевых технологий. Важным этапом для понимания технологических процессов является их математическое моделирование, результаты которого позволяют определить оптимальные параметры технологических режимов и достичь стабильности процесса аддитивного производства.

В данной работе предложен алгоритм определения технологических параметров процесса выращивания высокоточных заготовок с использованием вневакуумной электронно-лучевой наплавки присадочной проволокой, обеспечивающий получение заданных геометрических размеров выращенных стенок, ширины и высоты наплавляемого слоя. Данный алгоритм основан на методе решения обратной задачи и может быть использован для предварительного выбора значений технологических параметров процесса выращивания.

Ключевые слова: прямое вневакуумное электронно-лучевое выращивание, аддитивные технологии, температурные циклы, медные сплавы.

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проекты № 19-51-12010 и HA 5843/15-1).

Введение

На данный момент аддитивные технологии уже используются в современном производстве как в авиакосмической и судостроительной отраслях, так и в ремонтно-восстановительных

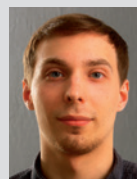
работах [1]. Из наиболее производительных и перспективных следует выделить процессы выращивания деталей посредством прямого ввода энергии и материала в рабочую зону (DED – direct energy deposition). Согласно стандарту ASTM F2792–12A, DED представляет собой тех-



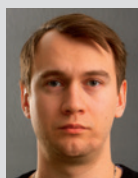
ТУРИЧИН
Глеб Андреевич
Санкт-Петербургский
государственный морской
технический университет



ХАССЕЛЬ Томас
Центр подводных
технологий Ганноверского
университета им. Готфрида
Вильгельма Лейбница,
Германия



МУКИН
Дмитрий Вячеславович
Санкт-Петербургский
государственный морской
технический университет



СТАНКЕВИЧ
Станислав Леонидович
Санкт-Петербургский
государственный морской
технический университет



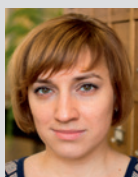
ВАЛДАЙЦЕВА
Екатерина Александровна
Санкт-Петербургский
политехнический
университет Петра Великого



КЛИМОВ
Георгий Геннадьевич
Ганноверский университет
им. Готфрида Вильгельма
Лейбница, Германия



ШАЛЬНОВА
Светлана Александровна
Санкт-Петербургский
государственный морской
технический университет



КЛИМОВА-КОРСМИК
Ольга Геннадьевна
Санкт-Петербургский государственный
морской технический университет,
Санкт-Петербургский политехнический
университет Петра Великого

нологии или процесс соединения материала, при котором происходит послойное создание объекта по заданной цифровой трехмерной модели [2]. Направление DED объединяет несколько технологий, главным отличием которых является источник нагрева и форм-фактор модельного материала. В качестве источника энергии может использоваться электрическая дуга, плазма, лазерный и электронный луч, а присадочный материал, как правило, имеет вид металлического порошка или проволоки, в качестве материалов которых может быть использован широкий спектр сплавов: стали, алюминиевых, титановых, медных и никелевых сплавов [1, 3–6].

Каждая из технологий DED имеет как свои преимущества, так и недостатки. Так, при изготовлении изделий из меди и ее сплавов предпочтительнее использовать технологии вневакуумного электронно-лучевого выращивания с использованием проволоки. Вневакуумная электронно-лучевая технология использует практически то же оборудование, что и вакуумная, за исключением того, что электронная пушка имеет в своей конструкции систему газодинамических окон, обеспечивающую ей возможность работы в атмосфере [7–9]. Следует отметить, что электронный луч имеет большой коэффициент полезного действия, порядка 70–80%, в сравнении, например, с лазерным излучением с длиной волны 1 мкм и больше. Соответствующий таким длинам волн коэффициент поглощения лазерного излучения для меди и ее сплавов составляет порядка 3–5% для твердого состояния и 8–13% для жидкого состояния [10, 11], что крайне неэффективно при использовании данных сплавов в качестве присадочного материала.

Математическое моделирование процесса выращивания

Математическое моделирование процесса выращивания, в частности вневакуумного электронно-лучевого выращивания, необходимо для полного понимания отношений и зависимостей между сложными физическими процессами, определяющими результаты процесса выращивания. В результате такого моделирования появляется возможность теоретического определения влияния параметров режима на формирование наплавленных слоев, что позволяет прогнозировать результат изготовления изделия.

В процессе прямого выращивания в результате действия движущегося источника тепла образуется жидкая ванна расплава, которая движется вместе с источником тепла. Под воздействием

источника тепла наблюдается быстрый нагрев, плавление и затвердевание материала. При этом по мере наплавления новых слоев материал многократно подвергается процессу «нагрев–охлаждение», что существенным образом влияет на его локальную микроструктуру и свойства, остаточные напряжения и деформации.

С другой стороны, в процессе прямого выращивания с использованием проволоки на качество конечного изделия также влияет механизм переноса жидкого металла присадочной проволоки в ванну расплава. В работах [12, 13] было показано, что при струйном характере переноса металла присадочной проволоки в ванну расплава процесс формирования стенки изделия более устойчив по сравнению с капельным переносом.

Поддержание стабильных температуры и размеров ванны расплава является ключевым средством управления стабильностью процесса. В целом качество выращенного изделия (форма, размер наплавленного слоя и его микроструктура) очень чувствительно к условиям и параметрам процесса, таким как скорость наплавки, скорость подачи присадочной проволоки и ее позиционирование, мощность электронного луча и характер ее распределения.

В качестве одного из способов контроля размеров ванны расплава может быть использовано моделирование процесса нестационарного теплопереноса в трехмерном пространстве. Однако моделирование трехмерного нестационарного температурного поля требует большого объема вычислений из-за сложных сопутствующих физических процессов, происходящих при выращивании: гидродинамика ванны расплава, тепло-массообмен между жидкой и твердой фазами на границе расплава, кристаллизация, фазовые превращения и т. д. Вследствие сложности совместного решения таких задач чаще всего используют различные численные методы, однако, приняв некоторые допущения, о которых будет сказано ниже, можно свести трехмерное нестационарное нелинейное уравнение теплопроводности к трехмерному линейному квазистационарному виду и использовать аналитический подход, который и был реализован в работе [14].

Таким образом, создание математической модели позволит глубже изучить используемую технологию, выявить влияние основных технологических параметров процесса, таких, как скорость наплавки, скорость подачи проволоки и мощность электронного луча, на формирование и динамику температурного поля в выращиваемом

изделии, что в конечном счете определяет его геометрические характеристики. Решение задачи в такой постановке будет иметь не только научное, но и практическое инженерное значение.

Современный уровень развития компьютерной техники и технологий позволяет существенно расширить класс решаемых прикладных задач. Одной из таких задач является проблема поиска решений обратной задачи, с помощью которых можно, в частности, определить параметры режима выращивания по требуемым геометрическим размерам стенки. Такая задача является наиболее важной с точки зрения ее практического применения.

Для реализации алгоритма решения обратной задачи сделаем следующие физические допущения:

- физические свойства подложки и материала присадочной проволоки (удельная теплоемкость c , плотность ρ , теплопроводность λ , коэффициент температуропроводности a , коэффициент полной поверхности теплоотдачи α) не зависят от температуры T ;

- краевые эффекты в начале и в конце наплавляемого слоя не учитываются;

- перенос металла проволоки в жидкую ванну осуществляется в струйном режиме;

- нагрев изделия электронным лучом в атмосфере описывается как действие поверхностного нормально распределенного эллиптического источника;

- скорость подачи проволоки w постоянна.

Для получения температурного поля в выращиваемой стенке необходимо решить линейное квазистационарное уравнение теплопроводности в декартовой системе координат (x, y, z) :

$$\lambda \left(\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right) + v \frac{\partial T}{\partial x} = 0,$$

где λ – коэффициент теплопроводности; c – удельная теплоемкость; ρ – плотность; v – скорость процесса наплавки.

Граничное условие на лицевой поверхности расчетной области:

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial n} = q_e(x, y),$$

где $q_e(x, y)$ – плотность теплового потока источника тепла.

Нагрев изделия вневакуумным электронным лучом описывается как результат действия поверхностного эллиптического источника с плотностью мощности $q_e(x, y)$. В плоскости (x, y) распределение плотности мощности описывают функцией Гаусса (нормальным законом):

$$q_e(x, y) = \frac{Q \cdot \eta}{\pi \cdot R_E^2} \sin \gamma \cdot \exp \left(- \frac{(x \sin \gamma)^2 + y^2}{R_E^2} \right),$$

где Q – мощность электронного луча; η – тепловой КПД источника тепла; R_E – эффективный радиус электронного луча; γ – угол наклона луча к оси x .

Решение уравнения теплопроводности в такой постановке хорошо известно и описано в [15]. Тогда, воспользовавшись данным фундаментальным решением, получим приращение температуры dT в точке с координатами (x, y, z) в результате действия источника, действующего по бесконечно малой области $dF = dxs \cdot dys$ в точке (xs, ys) :

$$dT(x, y, z, xs, ys) = \frac{2q_e(xs, ys) dxs dys}{4\pi\lambda R(x, y, z, xs, ys)} \times \exp \left(- \frac{v}{2a} (R(x, y, z, xs, ys) + x - xs) \right),$$

где $q_e(xs, ys)$ – мощность теплового источника в точке с координатами (xs, ys) ; λ – коэффициент теплопроводности материала; R – расстояние от источника теплоты до рассматриваемой точки тела; v – скорость движения источника; a – коэффициент температуропроводности материала, равный $a = \lambda / (c \cdot \rho)$; c – теплоемкость материала; ρ – плотность материала.

Температурное поле, обусловленное нормально распределенным эллиптическим источником тепла $q_e(x, y)$, может быть найдено путем интегрирования всех бесконечно малых источников на поверхности расчетной области, подвергнутой нагреву. Полная схема расчета температурных полей в процессе выращивания подробно изложена в работе [14].

Постановка обратной задачи моделирования

Для решения обратной задачи необходимо определить входные и выходные параметры. В случае прямого выращивания в качестве входных параметров целесообразно выбрать геометрические параметры стенки, такие, как ширина стенки B и высота слоя H_L (рис. 1). Помимо геометрических параметров, в настоящей работе скорость подачи проволоки w (м/мин) также рассматривается как входной параметр. Включение скорости подачи проволоки во входные параметры задачи позволяет, во-первых, существенно облегчить ее решение, во-вторых, определить производительность процесса выращивания. Выходными параметрами являются мощность источника тепла Q и скорость наплавки v . Отнесем данные параме-

тры к аргументам функции определения температурного поля стенки T_w , тогда получим функцию $T_w(x, y, z, B, X', Q, v)$, имеющую семь неизвестных, где x, y, z – координаты точки стенки; B – ширина стенки; X' – параметр перекрытия части источника тепла присадочной проволокой (рис. 2); Q – мощность источника тепла; v – скорость наплавки.

Скорость наплавки и мощность источника ка определяют ширину стенки. Очевидно, что ширина стенки B совпадает с точкой минимума функции $T_w(x, y, z, B, X', Q^*, v^*)$, а также совпадает с точкой максимального удаления изотермы температуры плавления T_{liq} от оси x (см. рис. 2), имеющей координату (x_m, y_m) . Таким образом, получим первое уравнение:

$$T_{liq} = T_w(x_m, \frac{B}{2}, 0, B, X', Q, v).$$

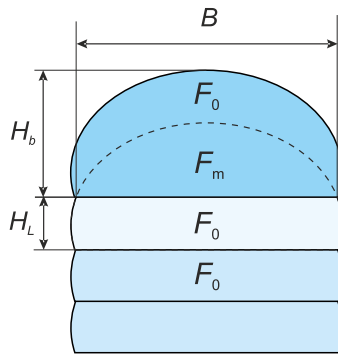


Рис. 1. Схема наложения слоев при выращивании (B – ширина стенки; H_L – высота слоя; H_b – высота валика; F_0 – площадь, наплавляемая за один проход; F_m – площадь, переплавляемая при нанесении очередного слоя).

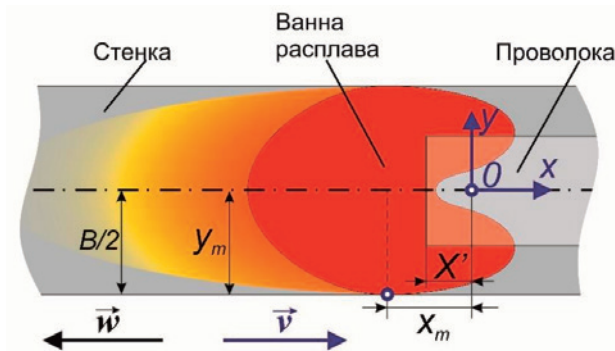


Рис. 2. Схема определения параметров ванны расплава в процессе выращивания с использованием проволоки (B – ширина стенки; (x_m, y_m) – точка максимального удаления изотермы T_{liq} от оси x ; X' – координата торца проволоки по оси x).

Площадь наплавленного в единицу времени присадочного металла F_0 рассчитывается из условия равенства количества расплавленного и наплавленного присадочного металла:

$$F_0 = \pi \cdot R_w^2 \cdot \frac{w}{v},$$

где w – скорость подачи проволоки; v – скорость процесса наплавки. Также из равенства количества расплавленного и наплавленного материала очевидно соотношение:

$$H_L = \frac{F_0(v, w)}{B}. \quad (1)$$

Введем переменную, равную отношению скоростей подачи проволоки и наплавки $W = w/v$, тогда легко получить

$$W = \frac{H_L \cdot B}{\pi \cdot R_w^2}.$$

Отсюда следует, что можно однозначно определить отношение скоростей, тем самым определив скорость наплавки v .

Для определения мощности источника тепла необходимо решить следующее трансцендентное уравнение:

$$T_{liq} = T_w(x_m, \frac{B}{2}, 0, B, X', Q^*, \frac{w}{W}). \quad (2)$$

Координата точки x_m является неизвестной величиной. Исходя из вышесказанного, для ее нахождения необходимо решить задачу оптимизации, которая сводится к определению точки (x_m, y_m) локального минимума целевой функции $T_w(x, y, z, B, X', Q, v)$ при ограничении

$$T_w(x_m, y_m, 0, B, X', Q, v) \Big|_{y_m \rightarrow \frac{B}{2}} = T_{liq}.$$

Математически данную задачу можно представить в виде системы

$$\begin{cases} T_w(x_m, y_m, 0, B, X', Q^*, \frac{w}{W}) \Big|_{y_m \rightarrow \frac{B}{2}} = \min T_w(x, y, 0, B, X', Q^*, \frac{w}{W}) \\ T_w(x_m, y_m, 0, B, X', Q^*, \frac{w}{W}) \Big|_{y_m \rightarrow \frac{B}{2}} = T_{liq} \end{cases} \quad (3)$$

Параметр X' является также неизвестным, поскольку неизвестными являются мощность и скорость подачи проволоки. Для определения параметра перекрытия источника X' воспользуемся решением, определяющим температурное поле в присадочной проволоке, полученным в работе [16].

Для определения требуемой мощности Q^* будем использовать алгоритм последовательных приближений, сходящихся к решению системы уравнений (3). Блок-схема алгоритма расчета мощности источника тепла показана на рис. 3. При расчете может возникнуть ситуация, когда X' примет большое по абсолютной величине отрицательное значение. Это приведет к тому, что проволока перекроет такую часть источника, что на поверхности стенки не будет формироваться ванна расплава. Для решения данной особенно-

сти последовательно уменьшим по абсолютной величине X' с некоторым шагом dX' , пока не будет образовываться ванна расплава.

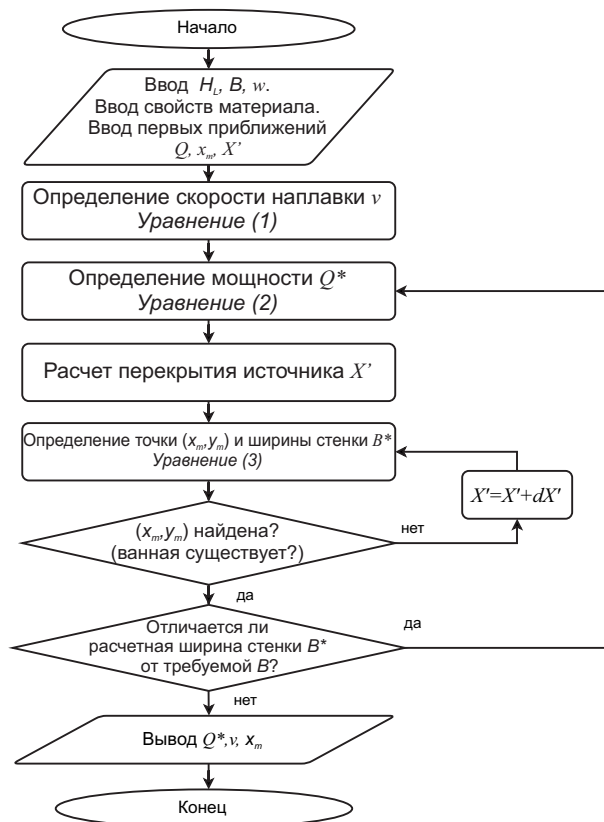


Рис. 3. Блок-схема алгоритма поиска мощности и скорость наплавки.

Экспериментальная проверка

Для калибровки математической модели был выполнен эксперимент по созданию образцов с целью измерения распределения температурных полей.

Экспериментальное исследование процесса выращивания стенки с использованием проволоки проводилось на установке PTR NV-EBW 25–175 TU (PTR Prazisionstechnik GmbH, Germany) с термоэлектронной эмиссией для

электронно-лучевой сварки в атмосфере (рис. 4) на базе Ганноверского университета имени Лейбница в Германии.

Данная установка имеет следующие характеристики:

- максимальная мощность луча – 24.5 кВт;
- максимальный ток луча – 140 мА;
- ускоряющее напряжение – 175 кВ.

Установка оснащена системой числового программного управления, которая позволяет выполнять линейные перемещения установкой и подвижным столом. Сам источник электронного луча может перемещаться только вдоль вертикальной оси z со скоростью до 10 м/мин. Для перемещения по осям x и y обрабатываемая деталь (подложка/стенка) располагается под выпускным отверстием (соплом) электронно-лучевой пушки на движущемся столе, который может двигаться со скоростью до 20 м/мин.

Эксперимент заключался в измерении температуры в подложке при наплавке стенки высотой 3 см проволокой из сплава CuSi_3 диаметром 1.2 мм на стальную пластину толщиной 8 мм. На рис. 5 представлена схема расположения термопар с размерами образца подложки. Параметры процесса следующие: мощность электронного луча $Q = 2600$ Вт, скорость наплавки $v = 3$ м/мин, скорость подачи проволоки $w = 2300$ м/мин. Для регистрации температуры использовались термопары типа k (NiCr–Ni), прикрепленные к поверхности подложки с помощью контактной точечной сварки, а получение данных осуществлялось с частотой 5 Гц. Результаты сравнения экспериментальных и расчетных термических циклов представлены на рис. 6–9. Расчеты термических циклов не производились в точках 1 и 3 ввиду симметрии процесса (см. рис. 5). Как видно из рисунков, совпадение кривых вполне удовлетворительное.



Рис. 4. Фото рабочего инструмента и стола.

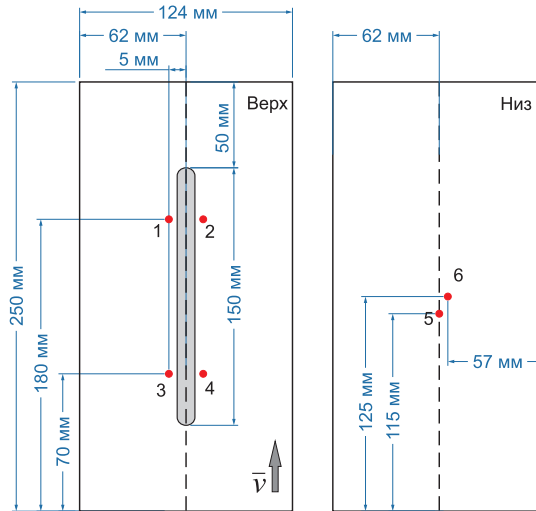


Рис. 5. Схема расположения термопар.

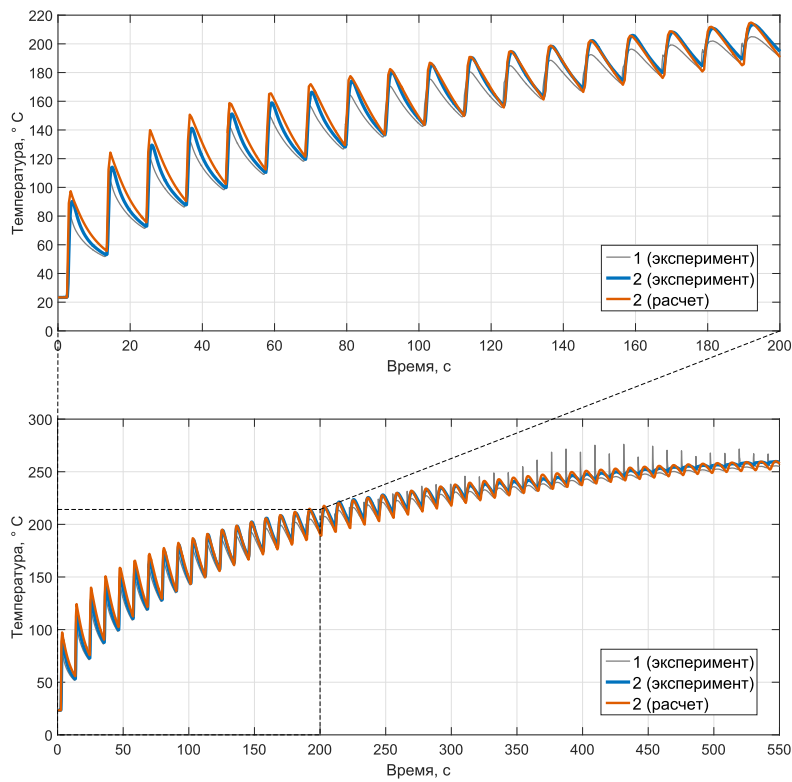


Рис. 6. Термические циклы при выращивании стенки из 50 слоев для термопар 1 и 2.

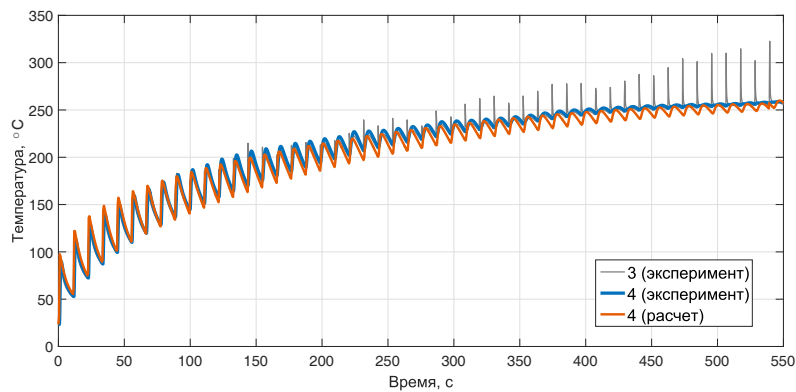


Рис. 7. Термические циклы при выращивании стенки из 50 слоев для термопар 3 и 4.

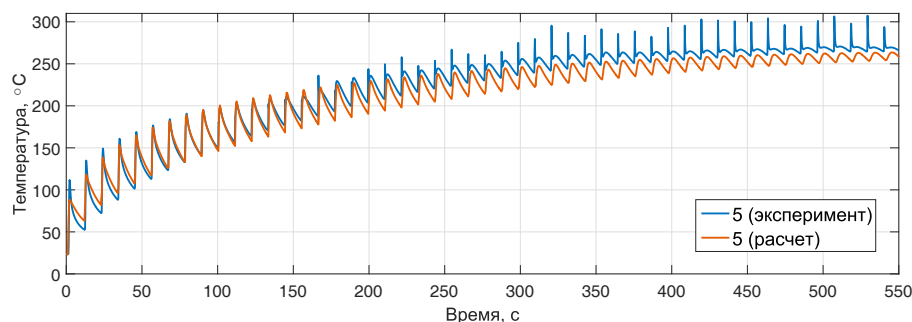


Рис. 8. Термические циклы при выращивании стенки из 50 слоев для термопары 5.

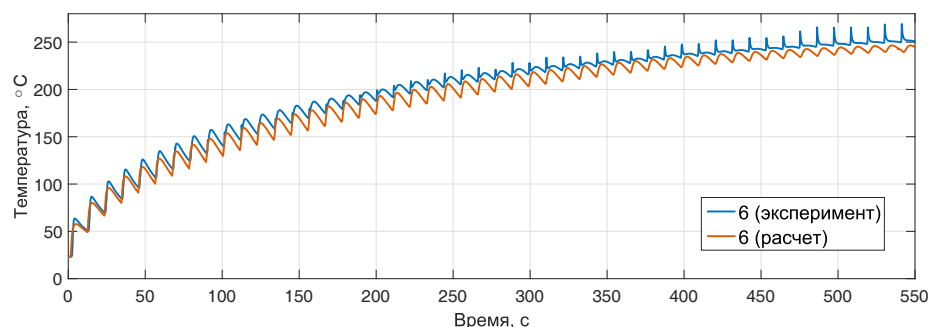


Рис. 9. Термические циклы при выращивании стенки из 50 слоев для термопары 6.

Также для проверки предложенного алгоритма решения обратной задачи сравним полученные значения мощности источника и скорости наплавки с экспериментальными данными, используемыми в процессе выращивания одиночных стенок с использованием электронного луча и проволоки из медных сплавов $CuSi_3$ и $CuSn_6$ диаметром также 1.2 мм.

В ходе предварительных испытаний были выбраны режимы выращивания, обеспечивающие стабильное формирование наплавляемого слоя

с непрерывной струйной подачей присадочного материала проволоки в ванну расплава. Режимы выращивания одиночных стенок представлены в таблице 1. Ускоряющее напряжение электронно-лучевой установки составляет 175 кВ. Присадочная проволока подавалась под углом $\theta_{feed} = 20^\circ$. Диаметр проволоки составляет 1.2 мм. Рабочее расстояние равнялось 10 мм. Одиночная стенка наплавлялась на стальную подложку. На рис. 7 показан шлиф поперечного сечения стенки, полученной из проволоки $CuSn_6$ на режиме № 4.

Таблица 1. Режимы выращивания одиночных стенок

Параметр	Режим №				
	1	2	3	4	5
Материал	$CuSi_3$	$CuSi_3$	$CuSi_3$	$CuSn_6$	$CuSn_6$
Ширина стенки, мм	2.94	3.64	2.54	2.28	1.88
Высота слоя, мм	0.62	0.60	0.57	0.84	0.80
Скорость подачи проволоки, м/мин	4.0	2.8	3.7	2.8	2.3
Мощность луча, Вт	3 300	3 150	2 600	2 100	2 000
Расчетная мощность луча, Вт	2 920	2 926	2 747	1 853	2 184
Относительное отклонение мощности, %	12	7	-3	11	-9
Скорость наплавки, м/мин	2.50	1.50	3.00	1.50	1.70
Расчетная скорость наплавки, м/мин	2.48	1.45	2.90	1.62	1.69
Относительное отклонение скорости, %	1	3	3	-8	1

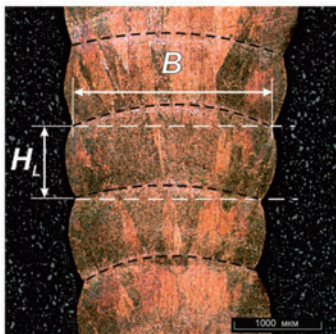


Рис. 10. Шлиф поперечного сечения образца № 4, изготовленного из сплава CuSn_6 .

На рис. 10 наблюдается увеличение ширины стенки B по мере увеличения количества слоев. Это прежде всего связано с разными условиями теплоотвода, вызванными накоплением тепла в стенке (и подложке) в начальный период выращивания, и повышением температуры стенки. После достижения установившегося состояния процесса выращивания температура стенки (и подложки) перестает расти (см. рис. 6–9) и, как следствие, перестает расти ширина стенки B .

Сравнивая экспериментальные и расчетные значения, можно установить, что предложенный алгоритм решения обратной задачи с удовлетворительной точностью определяет значения технологических параметров процесса электронно-лучевого выращивания с использованием проволоки в атмосфере. Согласно представленным

данным относительная погрешность расчетных данных не превышает 12%. Таким образом, данный алгоритм решения обратной задачи может быть использован для предварительного выбора значений технологических параметров процесса выращивания.

Выводы

В ходе работы были проведены эксперименты по выращиванию электронным лучом в атмосфере одиночных стенок с использованием проволоки из медных сплавов, а также снятию термических циклов, отражающих процесс «нагрев – охлаждение» стенки при выращивании. Расчетные значения термических циклов показали приемлемое совпадение с экспериментальными данными.

В работе был предложен алгоритм поиска технологических параметров процесса выращивания с использованием проволоки, обеспечивающий выращенной стенке такие заданные геометрические размеры, как ширина стенки и высота слоя в установившемся состоянии процесса выращивания. Относительная погрешность расчетных данных не превышала 12%. Таким образом, данный алгоритм решения обратной задачи может быть использован для предварительного выбора значений технологических параметров процесса выращивания при заданных геометрических параметрах одиночной стенки.

Литература

1. H.D. Carlton, A. Haboub, G.F. Gallegos, D.Y. Parkinson, A.A. MacDowell
Mater. Sci. Engin.: A, 2016, **651**, 406.
DOI: 10.1016/j.msea.2015.10.073.
2. ASTM F2792–12a. *Standard Terminology for Additive Manufacturing Technologies*. Rapid Manufacturing Association, ASTM International, 2013, 3 pp.
3. M. Froend, S. Riekehr, N. Kashaev, B. Klusemann, J. Enz
J. Manuf. Process., 2018, **34**, 721.
DOI: 10.1016/j.jmapro.2018.06.033.
4. Y. Zhai, H. Galarraga, D.A. Lados
Procedia Engineer., 2015, **114**, 658.
DOI: 10.1016/j.proeng.2015.08.007.
5. O. Klimova-Korsmik, G. Turichin, E. Zemlyakov, K. Babkin, P. Petrovsky, A. Travyanov
Physica Proc., 2016, **83**, 716. DOI: 10.1016/j.phpro.2016.08.073.
6. P. Sreeramagiri, A. Bhagavatam, A. Ramakrishnan, H. Alrehaili, G. Dinda
J. Mater. Sci. Technol., 2020, **47**, 20.
DOI: 10.1016/j.jmst.2020.01.041.
7. A. Beniyash, N. Murray, G. Klimov, T. Hassel
В Сб. мат. докл. II Межд. конф. «Электронно-лучевая сварка и смежные технологии» (РФ, Москва, 14–17 ноября, 2017), РФ, Москва, Изд. МЭИ, 2017, с. 349–376 (in English).
(<http://ebw2017.mpei.ru/Pages/default.aspx>).
8. С.Ю. Корнилов, Н.Г. Реме
Доклады ТУСУРа, 2017, **20**(3), 46.
DOI: 10.21293/1818-0442-2017-20-3-46-61.
9. A. Hershcovitch
Nucl. Instrum. Meth. B, 2005, **241**(1–4), 854.
DOI: 10.1016/j.nimb.2005.07.142.
10. A. Blom, P. Dunias, P. van Engen, W. Hoving, J. de Kramer
Proc. SPIE 4977, Photon Processing in Microelectronics and Photonics II, 2003, 493. DOI: 10.1117/12.478612.
11. A. Hess, R. Schuster, A. Heider, R. Weber, T. Graf
Physics Proc., 2011, **12**(Part A), 88.
DOI: 10.1016/j.phpro.2011.03.012.
12. T.E. Abioye, J. Folkes, A.T. Clare
J. Mater. Process. Technol., 2013, **213**(12), 2145.
DOI: 10.1016/j.jmatprotec.2013.06.007.
13. M. Motta, A.G. Demir, B. Previtali
Additive Manufacturing, 2018, **22**, 497.
DOI: 10.1016/j.addma.2018.05.043.
14. D. Mukin, E. Valdaytseva, T. Hassel, G. Klimov, S. Shalnova
Mater. Today-Proc., 2020, **30**, 373.
DOI: 10.1016/j.matpr.2019.12.380.
15. Н.Н. Рыкалин
Расчеты тепловых процессов при сварке, СССР, Москва, МАШГИЗ, 1951, 296 с.
16. D.V. Mukin, S.Yu. Ivanov, E.A. Valdaytseva, G.A. Turichin, A.E. Beniash
Key Eng. Mater., 2019, **822**, 431.
DOI: 10.4028/www.scientific.net/KEM.822.431.

English

Solution of the Inverse Problem of Additively Wall Formation during Wire Fed Non-Vacuum Electron Beam Deposition

Gleb A. Turichin

Saint-Petersburg State Marine Technical University
3 Lotsmanskaya Str., Saint Petersburg, 190121, Russia
gleb@ltc.ru

Dmitrii V. Mukin

Saint-Petersburg State Marine Technical University
3 Lotsmanskaya Str., Saint Petersburg, 190121, Russia
mukin.dv@gmail.com

Ekaterina A. Valdaitseva

Peter the Great Snt. Petersburg Polytechnic University
29 Politehnicheskaya Str., 195251, Saint Petersburg, 195251, Russia
valdaitseva@mail.ru

Svetlana A. Shalnova

Saint-Petersburg State Marine Technical University
3 Lotsmanskaya Str., Saint Petersburg, 190121, Russia
sveta-net07@mail.ru

Thomas Hassel

Underwater Technology Centre, Leibniz University Hannover
Lise-Meitner-Straße 1, 30823 Garbsen, Germany
hassel@iw.uni-hannover.de

Stanislav L. Stankevich

Saint-Petersburg State Marine Technical University
3 Lotsmanskaya Str., Saint Petersburg, 190121, Russia
s.stankevich@ilwt-stu.ru

Georgy G. Klimov

Leibniz University Hannover
Lise-Meitner-Straße 1, 30823 Garbsen, Germany
klimov@iw.uni-hannover.de

Olga G. Klimova-Korsmik

Saint-Petersburg State Marine Technical University
3 Lotsmanskaya Str., Saint Petersburg, 190121, Russia
Peter the Great Snt. Petersburg Polytechnic University
29 Politehnicheskaya Str., 195251, Saint Petersburg, 195251, Russia
o.klimova@ltc.ru

Abstract

Additive manufacturing technologies are already used in various industries, such as aerospace and marine industries. For manufacturing products of pure copper and copper alloys the non-vacuum electron-beam heat sources seem to be the most promising solution. Non-vacuum electron-beams do not have the disadvantages inherent in laser radiation, and do not require the creation of a vacuum in contrast to traditional electron-beam technologies. An important stage for understanding the technological processes is their mathematical modeling, the results of which help to determine the optimal technological parameters of the regime, and in general to predict process stability.

In this article, we propose an algorithm for theoretical determination of technological parameters of the additive process using filler wire, which provides the build-up walls with the specified geometric dimensions, such as the width and height of the deposited layer. This algorithm for solving the inverse problem can be used for preliminary selection of values of technological parameters of the deposition process.

Keywords: direct none vacuum electron beam deposition, additive manufacturing, thermal cycles, copper alloys.

* The work was financially supported by RFBR and DFG (projects 19-51-12010 and HA 5843/15-1).

Images & Tables

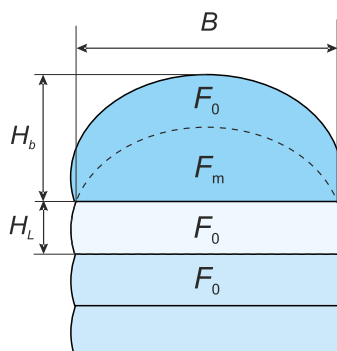


Fig. 1. Scheme of layers (B – wall width; H_L – layer height; H_b – bead height; F_0 – deposited area in one pass; F_m – remelted area when applying the next layer).

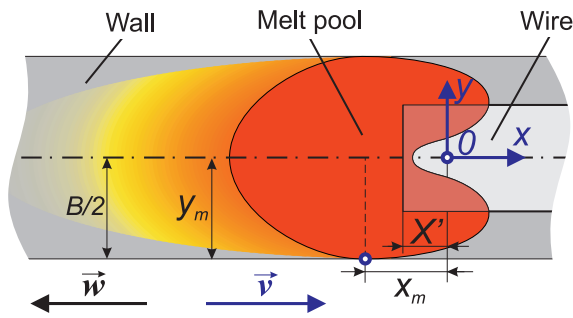


Fig. 2. Scheme for determining the parameters of the molten pool in the process of DED using wire (B – wall width; (x_m, y_m) – the point of maximum removal of the isotherm T_{liq} from the x ; X' – the coordinate of the wire end along the x axis).

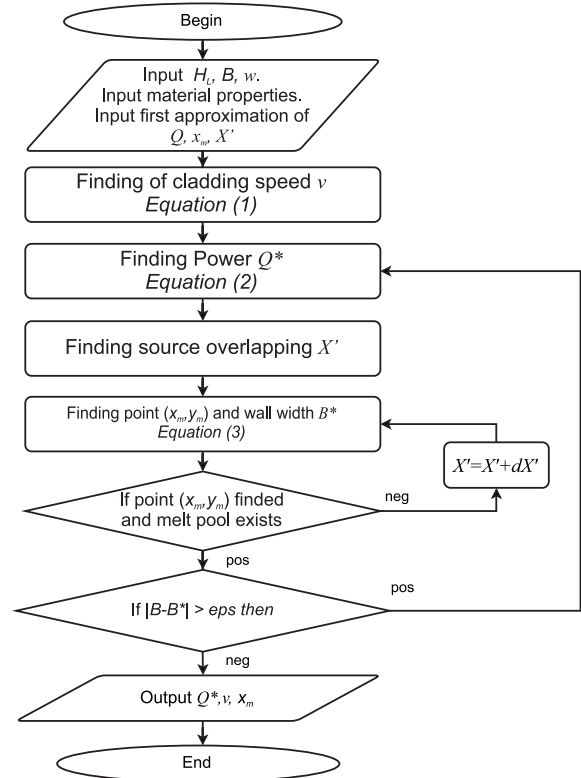


Fig. 3. A block scheme of the algorithm for searching power and speed of the process.

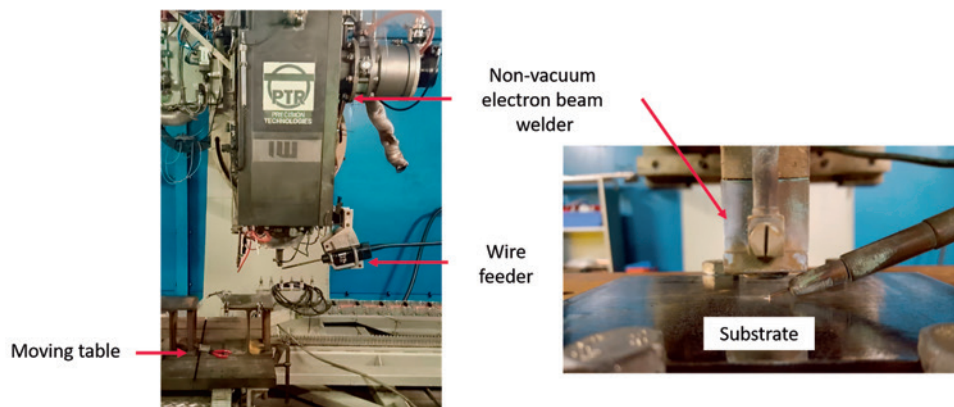


Fig. 4. Working tool and table.

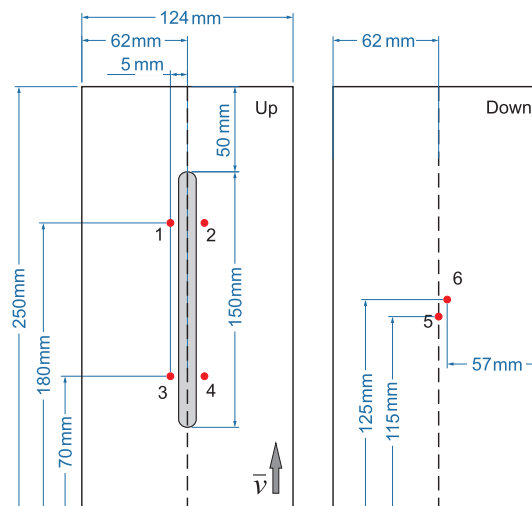


Fig. 5. Scheme of the thermocouples position.

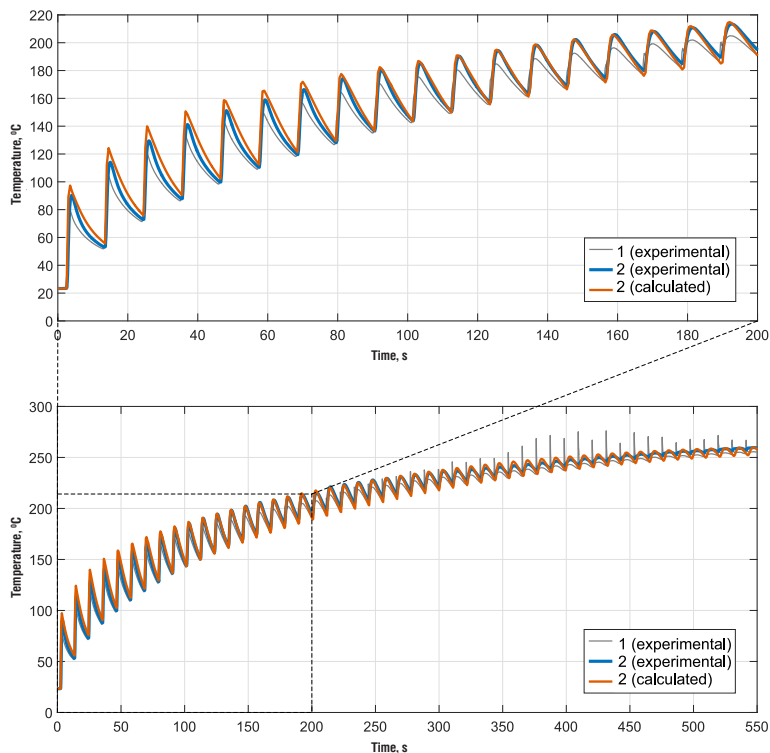


Fig. 6. Thermal cycles obtained during the deposition of a wall of 50 layers for thermocouples 1 and 2.

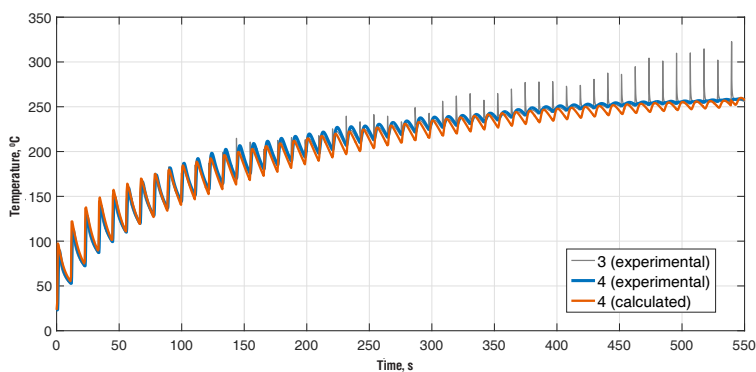


Fig. 7. Thermal cycles obtained during the deposition of a wall of 50 layers for thermocouples 3 and 4.

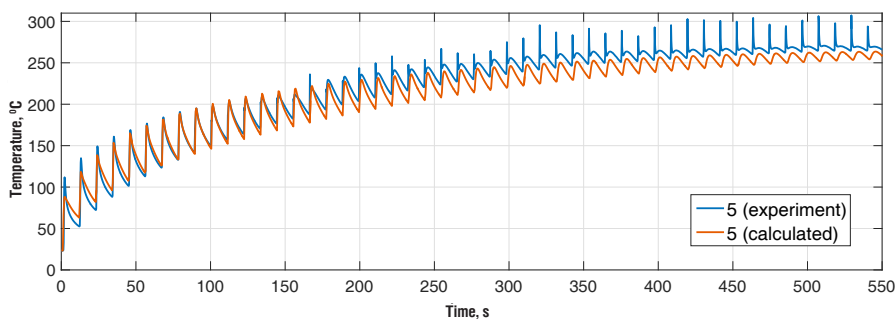


Fig. 8. Thermal cycles obtained during the deposition of a wall of 50 layers for thermocouple 5.

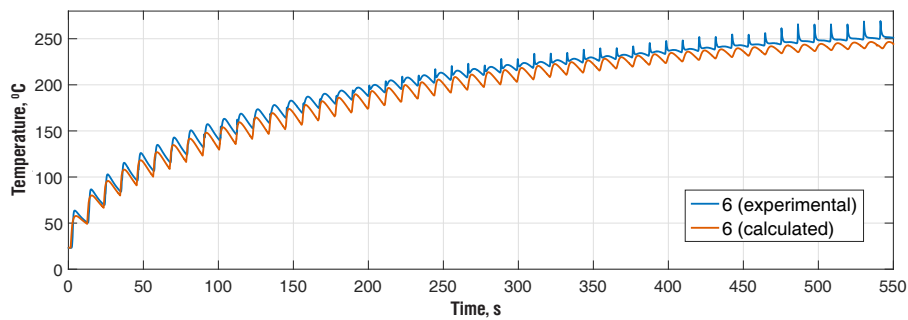


Fig. 9. Thermal cycles obtained during the deposition of a wall of 50 layers for thermocouple 6.

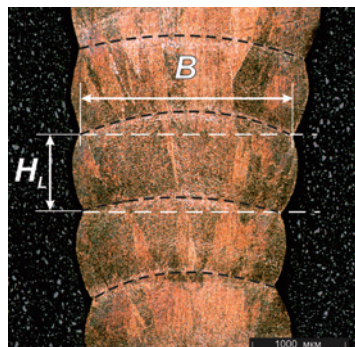


Fig. 10. Sample №4 (CuSn_6 alloy) in cross-section direction.

Table 1. Deposition modes for walls

Parameter	Mode				
	1	2	3	4	5
Material	CuSi_3	CuSi_3	CuSi_3	CuSn_6	CuSn_6
Wall width, mm	2.94	3.64	2.54	2.28	1.88
Layer height, mm	0.62	0.60	0.57	0.84	0.80
Wire feeding, m/min	4.0	2.8	3.7	2.8	2.3
Beam power, W	3 300	3 150	2 600	2 100	2 000
Calculated beam power, W	2 920	2 926	2 747	1 853	2 184
Deviation of power, %	12	7	-3	11	-9
Cladding speed, m/min	2.50	1.50	3.00	1.50	1.70
Calculated cladding speed, m/min	2.48	1.45	2.90	1.62	1.69
Deviation of speed, %	1	3	3	-8	1

References

- H.D. Carlton, A. Haboub, G.F. Gallegos, D.Y. Parkinson, A.A. MacDowell
Mater. Sci. Engin.: A, 2016, **651**, 406.
DOI: 10.1016/j.msea.2015.10.073.
- ASTM F2792–12a. *Standard Terminology for Additive Manufacturing Technologies*. Rapid Manufacturing Association, ASTM International, 2013, 3 pp.
- M. Froend, S. Riekehr, N. Kashaev, B. Klusemann, J. Enz
J. Manuf. Process., 2018, **34**, 721.
DOI: 10.1016/j.jmapro.2018.06.033.
- Y. Zhai, H. Galarraga, D.A. Lados
Procedia Engineer., 2015, **114**, 658.
DOI: 10.1016/j.proeng.2015.08.007.
- O. Klimova-Korsmik, G. Turichin, E. Zemlyakov, K. Babkin, P. Petrovsky, A. Travyanov
Physics Proc., 2016, **83**, 716. DOI: 10.1016/j.phpro.2016.08.073.
- P. Sreeramagiri, A. Bhagavatam, A. Ramakrishnan, H. Alrehaili, G. Dinda
J. Mater. Sci. Technol., 2020, **47**, 20.
DOI: 10.1016/j.jmst.2020.01.041.
- A. Beniyash, N. Murray, G. Klimov, T. Hassel
In *Proc. 2nd Int. Conf. "Electron Beam Welding and Related Technologies"* (RF, Moscow, 14–17 November, 2017), RF, Moscow, MPEI Publ., 2017, pp. 349–376.
(<http://ebw2017.mpei.ru/Pages/default.aspx>).



8. **S.Yu. Kornilov, N.G. Rempе**
Doklady TUSUR [TUSUR University Reports], 2017, **20**(3), 46 (in Russian).
DOI: 10.21293/1818-0442-2017-20-3-46-61.
9. **A. Hershcovitch**
Nucl. Instrum. Meth. B, 2005, **241**(1-4), 854.
DOI: 10.1016/j.nimb.2005.07.142.
10. **A. Blom, P. Dumas, P. van Engen, W. Hoving, J. de Kramer**
Proc. SPIE 4977, Photon Processing in Microelectronics and Photonics II, 2003, 493. DOI: 10.1117/12.478612.
11. **A. Hess, R. Schuster, A. Heider, R. Weber, T. Graf**
Physics Proc., 2011, **12**(Part A), 88.
DOI: 10.1016/j.phpro.2011.03.012.
12. **T.E. Abioye, J. Folkes, A.T. Clare**
J. Mater. Process. Technol., 2013, **213**(12), 2145.
DOI: 10.1016/j.jmatprotec.2013.06.007.
13. **M. Motta, A.G. Demir, B. Previtali**
Additive Manufacturing, 2018, **22**, 497.
DOI: 10.1016/j.addma.2018.05.043.
14. **D. Mukin, E. Valdaytseva, T. Hassel, G. Klimov, S. Shalnova**
Mater. Today-Proc., 2020, **30**, 373.
DOI: 10.1016/j.matpr.2019.12.380.
15. **N.N. Rykalin**
Temperature Field Calculation in Welding Process [Raschety teplovyh processov pri svarke], USSR, Moscow, MASHGIZ Publ., 1951, 296 pp. (in Russian).
16. **D.V. Mukin, S.Yu. Ivanov, E.A. Valdaytseva, G.A. Turichin, A.E. Beniash**
Key Eng. Mater., 2019, **822**, 431.
DOI: 10.4028/www.scientific.net/KEM.822.431.

Расчет термодинамических свойств материалов из первых принципов с помощью машинного обучения

*Т.С. Костюченко, И.С. Новиков, Е.В. Подрябинкин, Е.А. Цымбалов,
К.В. Губаев, Э.М. Макаров, А.В. Шапеев*

При успешном сотрудничестве российского и немецкого коллективов была разработана методология исследования материалов со сложной структурой из первых принципов. Методология основана на применении аппроксимируемых машинообучаемых потенциалов, которые позволяют значительно ускорить квантово-механические расчеты. Она позволяет исследовать фазовое пространство материалов и на основе расчета свободной энергии оценить устойчивость и рассчитать их термодинамические свойства. Представленные машинообучаемые потенциалы позволяют учитывать колебательные и магнитные степени свободы.

На примере железа с объемно-центрированной кристаллической решеткой было проведено исследование фононных спектров для парамагнитного и ферромагнитного состояний и молекулярно-динамическое моделирование с учетом флуктуаций магнитных моментов. Было проведено исследование устойчивости и ближнего порядка в эквипериметральном сплаве VCoNi. Показано, что предложенная модель воспроизводит ангармонические эффекты для двумерных материалов, а также разработана методология построения фазовых диаграмм оксидов переходных металлов.

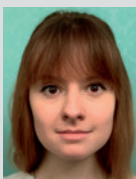
Все результаты, полученные на основе предложенной методологии, согласуются с экспериментальными данными, что свидетельствует о том, что она может служить точным инструментом для планирования и дополнения эксперимента.

Ключевые слова: машинообучаемые потенциалы, квантово-механические расчеты, высокоэнтропийные сплавы, свободная энергия, магнитный момент.

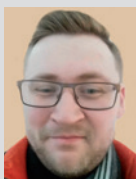
** Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проект № 20-53-12012).*

Совместное российско-германское сотрудничество началось в 2017 г. с электронного письма Фрица Кермана (Fritz Körmann), руководителя лаборатории в Институте исследования железа Общества Макса Планка (Max-Planck-Institut für Eisenforschung GmbH, Institute for Iron Research

of the Max Planck Society, MPIE), впоследствии ставшего соруководителем немецкого коллектива совместного проекта, профинансированного грантом РФФИ – ННИО (20-53-12012 ННИО_а), Александру Васильевичу Шапееву, профессору Сколковского института науки и техноло-



КОСТЮЧЕНКО
Татьяна Сергеевна
Сколковский институт
науки и технологий



НОВИКОВ
Иван Сергеевич
Сколковский институт
науки и технологий



ПОДРЯБИНКИН
Евгений Викторович
Сколковский институт
науки и технологий



ЦЫМБАЛОВ
Евгений Алексеевич
Российский
исследовательский институт
Huawei



ГУБАЕВ
Константин Вадимович
Институт материаловедения,
Университет Штутгарта,
Германия



МАКАРОВ
Эдгар Михайлович
Сколковский институт
науки и технологий



ШАПЕЕВ
Александр Васильевич
Сколковский институт
науки и технологий

гий (Skoltech, Сколтех), ставшему руководителем российского коллектива проекта. В письме Ф. Керман интересовался, можно ли применить разработанный недавно А.В. Шапеевым метод к исследованию устойчивости высокоэнтропийных сплавов. Такая постановка вопроса, собственно, и послужила основой сотрудничества. Немецкая команда во главе с Фрицем Керманом и Блаже Грабовски (профессор, университет Штутгарта, University of Stuttgart), состоящая главным образом из физиков и материаловедов, имеет уникальный опыт экспертизы в квантово-механическом (первопринципном) моделировании устойчивости и термодинамических свойств материалов, а российская сторона во главе с Александром Шапеевым успешно разрабатывает методы ускорения квантово-механических расчетов с помощью машинообучаемых потенциалов. Современными квантово-механическими методами несложно рассчитывать энергию кристаллических фаз материалов, однако для расчета энтропии требуется много вычислений с целью оценки вклада термического беспорядка в свойства материала. Именно для ускорения таких расчетов и необходима методология, разрабатываемая в Сколтехе.

Устойчивость различных состояний вещества (фаз) определяется свободной энергией – чем ниже свободная энергия при заданной температуре, тем более устойчивой является данная фаза. При высоких температурах свободная энергия определяется двумя конкурирующими вкладками – внутренней энергией (для простоты изложения мы игнорируем различие между энтальпией и внутренней энергией) и энтропией. Например, при комнатной температуре большинство сплавов имеют кристаллическую структуру, в которой ниже внутренняя энергия, однако при высокой температуре мы наблюдаем расплав, так как у него выше энтропия (а значит – ниже свободная энергия).

Цель проекта состоит в исследовании свойств различных материалов со сложной структурой при больших температурах и определении вкладов различных видов энтропии в эти свойства с помощью машинообучаемых потенциалов межатомного взаимодействия. В частности, планируется рассчитать свободную энергию различных материалов с учетом различных механизмов возбуждения, соответствующих вибрационной, конфигурационной и магнитной видам энтропии. Точный расчет свободной энергии позволяет определять ряд таких важных термодинамических свойств и явлений в материалах, как температура плавления, фазовые переходы, устойчивость фаз, теплоемкость и коэффициент теплового расширения. Следует отметить,

что различные механизмы возбуждения в различной мере влияют на те или иные термодинамические свойства, а также могут быть связаны между собой. Поэтому в дальнейшем планируется исследовать взаимное влияние этих механизмов возбуждения на вышеупомянутые свойства материалов, что позволит лучше понимать область применимости этих материалов и перспективы их использования в науке и технике.

Для решения задач описания свойств материалов со сложной структурой в последнее время всё чаще прибегают к так называемым машинообучаемым потенциалам. Это модели аппроксимации, построенные при помощи алгоритмов, которые на основе точных квантово-механических расчетов (также называемых первопринципными) для атомных систем подбирают параметры этой модели. Точность расчетов с применением обученных потенциалов должна практически совпадать с точностью квантово-механических расчетов (в частности, точность расчета свободной энергии должна быть порядка одного или нескольких мэВ/атом, $1 \text{ мэВ} = 1.602 \cdot 10^{-21} \text{ Дж}$). Достижение заявленной точности за разумное время невозможно без разработки новых методик и инструментов, поэтому в ходе проекта будут разработаны/развиты:

- метод расчета свободной энергии с учетом конфигурационной энтропии на основе канонического метода Монте-Карло и малоранговых потенциалов (Low-Rank Potentials, LRP) «на (кристаллической) решетке»;
- новый тип машинообучаемого МТР-потенциала (magnetic Moment Tensor Potentials (mMTP)), который включает в себя магнитные моменты в качестве дополнительных степеней свободы, наряду с позициями атомов (что позволит рассчитывать магнитную энтропию);
- метод расчета свободной энергии на основе метода термодинамического интегрирования (two-stage upsampled thermodynamic integration using Langevin dynamics – TU-TILD) и машинообучаемых МТР-потенциалов, что позволит рассчитывать свободную энергию с учетом вибрационной энтропии при конечной температуре с точностью квантово-механических вычислений за разумное время.

На основе разработанных алгоритмов будет исследовано влияние различных механизмов возбуждения на свободную энергию и термодинамические свойства материалов.

Еще до начала реализации авторами совместного российско-немецкого проекта были опубликованы две статьи, обосновывающие принципиальную реализуемость данного проекта. В

первой было показано, что с помощью решеточных потенциалов LRP принципиально возможно ускорение квантово-механических расчетов, достаточное для оценки конфигурационной энтропии в многокомпонентных материалах [1]. Во второй статье, в свою очередь, было показано, что возможно аналогичное ускорение для эффективного расчета вибрационной энтропии с помощью потенциалов МТР [2]. К моменту написания данной статьи прошел один год с начала реализации проекта российской стороной и всего пара месяцев – с момента начала работы над проектом немецкой стороны: по правилам ННИО датой начала реализации проекта считается дата найма первого сотрудника на бюджетные средства проекта, а задержка найма была связана с ограничениями на фоне пандемии вируса COVID-19. Групповая фотография российского и немецкого коллективов представлена на *рис. 1*.

В 2020 г. малоранговые потенциалы были применены в качестве модели межатомного взаимодействия для исследования устойчивости экваториального сплава VCoNi с гранецентрированной кубической (ГЦК) решеткой. Были получены температуры фазового перехода «порядок – беспорядок», близкие к экспериментальным. Также была исследована структура, образующаяся вследствие фазового перехода, где одна из четырех подрешеток структуры с ГЦК-решеткой полностью оккупирована ванадием. Последний результат также согласуется с экспериментом [4]. В 2021 г. планируется применить LRP для изучения влияния конфигурационной энтропии на фазовую стабильность, удельную теплоемкость и ближний порядок в экваториальных сплавах AlNbTiV с ОЦК-решеткой.

Наконец, в отчетном году было показано, что МТР (без учета магнитных степеней свободы) способен хорошо воспроизводить ангармонические эффекты (на примере исследования аномально низкого коэффициента термического расширения (invar-эффект) и слабой температурной зависимости постоянных упругости (elinvvar-эффект) при высокой температуре фазы титана с ОЦК-решеткой) [5], с его помощью возможно рассчитывать гармонические и ангармонические силовые постоянные для двумерных материалов класса MSi_2N_4 , где $M = Mo, W, V, Nb, Ta, Ti, Zr, Hf, Cr$, которые, в свою очередь, были использованы для расчета теплопроводности этих материалов [6], а также на основе МТР была разработана методология построения фазовых диаграмм оксидов переходных металлов и применена к исследованию сосуществования фаз в системе $(Co_xMn_{1-x})_3O_4$ [7] и предсказанию пределов растворимости [8]. В частности, была проведена количественная оценка роли колебательной и магнитной энтропий.

В следующем году реализации проекта будет разработан алгоритм TU-TILD+MTR для расчета свободной энергии. Для оценки эффективности данного алгоритма будут проведены расчеты для ряда сплавов: от однокомпонентных до пятикомпонентных тугоплавких высокоэнтропийных систем на основе Nb-Mo-Ta-W-V, а также машинообучаемый потенциал будет использован в молекулярно-динамических расчетах для изучения постоянных упругости многокомпонентных сплавов на основе титана и их взаимосвязи со стабильностью структуры ОЦК-фазы титана.

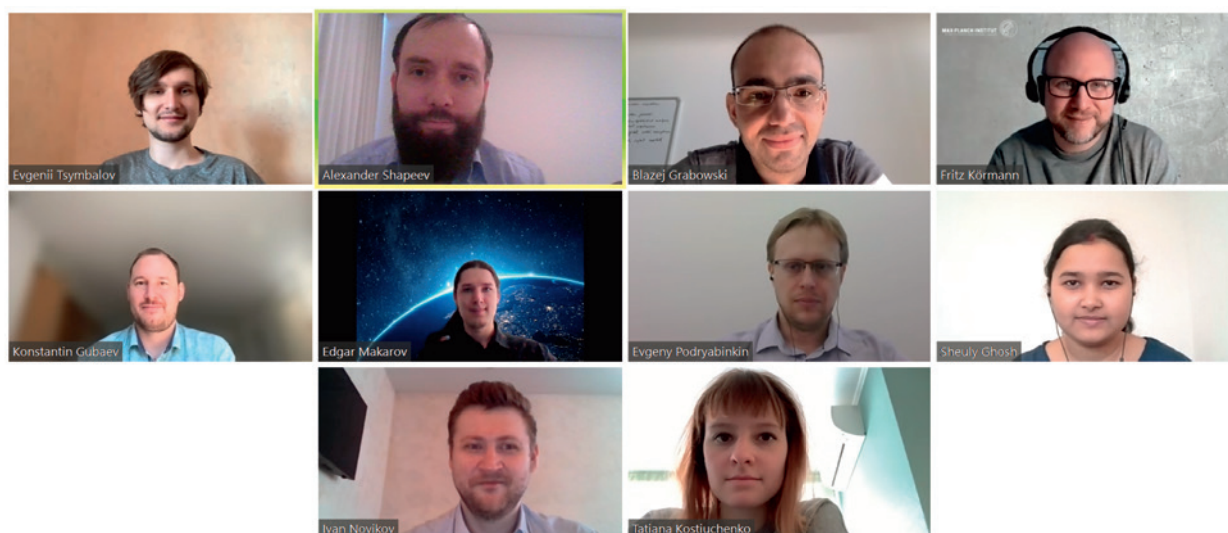


Рис. 1. Групповая фотография российского и немецкого научных коллективов. Из-за ограничений, связанных с пандемией вируса COVID-19, все совещания коллективов проходили в программе Zoom.

Литература

1. T. Kostiuchenko, F. Körmann, J. Neugebauer, A. Shapeev
npj Comput. Mater., 2019, 5(1), 55.
DOI: 10.1038/s41524-019-0195-y.
2. B. Grabowski, Y. Ikeda, P. Srinivasan, F. Körmann, C. Freysoldt, A.I. Duff, A. Shapeev, J. Neugebauer
npj Comput. Mater., 2019, 5(1), 80.
DOI: 10.1038/s41524-019-0218-8.
3. I. Novikov, B. Grabowski, F. Körmann, A. Shapeev
arXiv preprint, 2020, arXiv:2012.12763, submitted to *Physical Review Letters*.
4. T. Kostiuchenko, A.V. Ruban, J. Neugebauer, A. Shapeev, F. Körmann
Phys. Rev. Materials, 2020, 4(11), 113802.
DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.4.113802.
5. A.V. Shapeev, E.V. Podryabinkin, K. Gubaev, F. Tasnádi, I.A. Abrikosov
New J. Phys., 2020, 22(11), 113005.
DOI: 10.1088/1367-2630/abc392.
6. B. Mortazavi, B. Javvaji, F. Shojaei, T. Rabczuk, A.V. Shapeev, X. Zhuang
Nano Energy, 2020, 82, 105716.
DOI: 10.1016/j.nanoen.2020.105716.
7. S.K. Wallace, A. van Roekeghem, A.S. Bochkarev, J. Carrasco, A. Shapeev, N. Mingo
Phys. Rev. Research, 2021, 3(1), 013139.
DOI: 10.1103/PhysRevResearch.3.013139.
8. S.K. Wallace, A.S. Bochkarev, A. van Roekeghem, J. Carrasco, A. Shapeev, N. Mingo
Phys. Rev. Materials, 2021, 5(3), 035402.
DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.5.035402.

English

First Principles Calculation of Thermodynamic Properties of Materials Using Machine Learning

Tatiana S. Kostiuchenko

Skolkovo Institute of Science and Technology
30 Bolshoy Blvd., Moscow, 143026, Russia
Tatiana.Kostiuchenko@skoltech.ru

Evgeny V. Podryabinkin

Skolkovo Institute of Science and Technology
30-1 Bolshoy Blvd., Moscow, 121205, Russia
e.podryabinkin@skoltech.ru

Kostiantyn V. Hubaiev

Institut für Materialwissenschaft Universität Stuttgart
Pfaffenwaldring 55, 70569, Stuttgart, Germany
kostiantyn.hubaiev@imw.uni-stuttgart.de

Alexander V. Shapeev

Skolkovo Institute of Science and Technology
30-1 Bolshoy Blvd., Moscow, 121205, Russia
A.Shapeev@skoltech.ru

Ivan S. Novikov

Skolkovo Institute of Science and Technology
30 Bolshoy Blvd., Moscow, 143026, Russia
ivan.novikov0590@gmail.com

Evgeny A. Tsymbalov

Huawei Russian Research Institute
1-1 Marshal Biryuzov Str., Moscow, 123298, Russia
etsymbalov@gmail.com

Edgar M. Makarov

Skolkovo Institute of Science and Technology
30-1 Bolshoy Blvd., Moscow, 121205, Russia
edgar.makarov@skoltech.ru

* The work was financially supported by RFBR and DFG (project 20-53-12012).

Abstract

The Russian and German teams jointly developed a methodology for studying materials with a complex structure from first principles. The proposed methodology is based on the use of machine-learning potentials, which can significantly speed up quantum-mechanical calculations. It allows one to investigate the phase space of materials and estimate the stability and thermodynamic properties. The presented machine-learning potentials allow us taking into account vibrational and magnetic degrees of freedom.

We studied the phonon spectra for the paramagnetic and ferromagnetic states on the example of iron with a body-centered crystal lattice. We showed the importance of taking into account fluctuations of magnetic moments in molecular dynamic modeling. The stability and short-range order were studied in the equiatomic VCoNi alloy. The proposed model reproduces anharmonic effects for two-dimensional materials, and the methodology for constructing phase diagrams of transition metal oxides was developed.

All the results obtained with our methodology are in agreement with experiments, it indicates that it can serve as an accurate tool for planning and complementing the experiment.

Keywords: machine-learning potentials, quantum-mechanical calculations, high-entropy alloys, free energy, magnetic moment.

Images & Tables

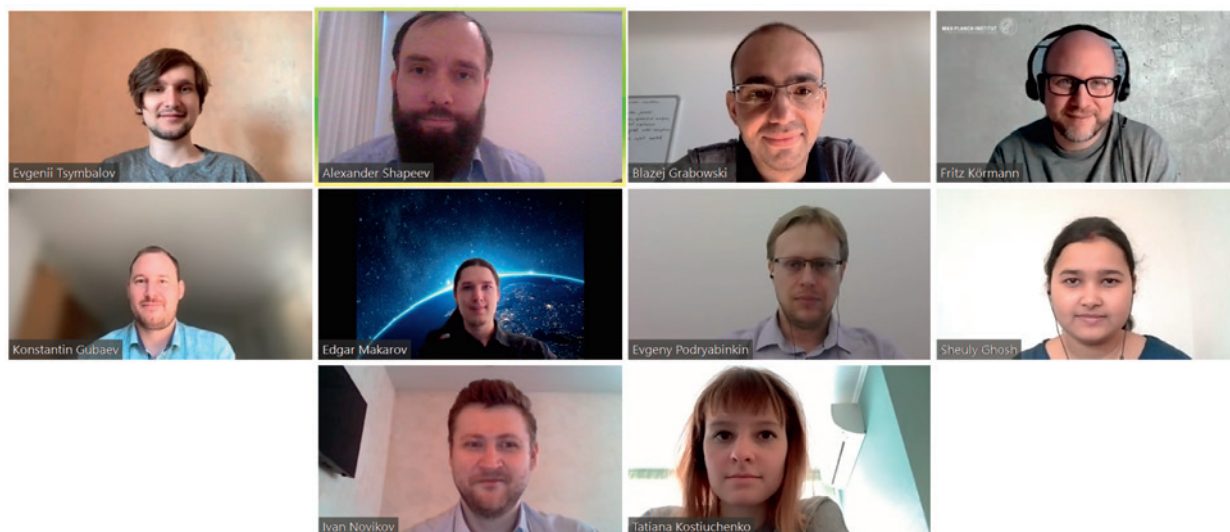


Fig. 1. Group photo of Russian and German research teams. Due to the limitations of the COVID-19 pandemic, all team meetings were held in the form of the Zoom conference.

References

1. T. Kostiuhenko, F. Körmann, J. Neugebauer, A. Shapeev
npj Comput. Mater., 2019, 5(1), 55.
DOI: 10.1038/s41524-019-0195-y.
2. B. Grabowski, Y. Ikeda, P. Srinivasan, F. Körmann, C. Freysoldt,
A.I. Duff, A. Shapeev, J. Neugebauer
npj Comput. Mater., 2019, 5(1), 80.
DOI: 10.1038/s41524-019-0218-8.
3. I. Novikov, B. Grabowski, F. Körmann, A. Shapeev
arXiv preprint, 2020, arXiv:2012.12763, submitted to *Physical
Review Letters*.
4. T. Kostiuhenko, A.V. Ruban, J. Neugebauer, A. Shapeev, F. Körmann
Phys. Rev. Materials, 2020, 4(11), 113802.
DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.4.113802.
5. A.V. Shapeev, E.V. Podryabinkin, K. Gubaev, F. Tasnádi, I.A. Abrikosov
New J. Phys., 2020, 22(11), 113005.
DOI: 10.1088/1367-2630/abc392.
6. B. Mortazavi, B. Javvaji, F. Shojaei, T. Rabczuk, A.V. Shapeev,
X. Zhuang
Nano Energy, 2020, 82, 105716.
DOI: 10.1016/j.nanoen.2020.105716.
7. S.K. Wallace, A. van Roekeghem, A.S. Bochkarev, J. Carrasco,
A. Shapeev, N. Mingo
Phys. Rev. Research, 2021, 3(1), 013139.
DOI: 10.1103/PhysRevResearch.3.013139.
8. S.K. Wallace, A.S. Bochkarev, A. van Roekeghem, J. Carrasco,
A. Shapeev, N. Mingo
Phys. Rev. Materials, 2021, 5(3), 035402.
DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.5.035402.

Novel Polyhedral Partitions of Space

Vera V. Galishnikova

Peoples' Friendship University of Russia
6 Miklukho-Maklay Str., Moscow, 117198, Russia
galishnikova-vv@rudn.ru

Peter Jan Pahl

Technische Universität Berlin
Straße des 17. Juni 135, 10623 Berlin, Germany
peter-jan.pahl@tu-berlin.de

Wolfgang Huhnt

Technische Universität Berlin
Straße des 17. Juni 135, 10623 Berlin, Germany
wolfgang.huhnt@tu-berlin.de

Abstract

All branches of science and engineering face the challenge of creating and applying digital models of objects and processes. Our research addresses problems that have been encountered in the transition from static two-dimensional line drawings of models on paper to operational three-dimensional models in digital devices, such as collisions and gaps during assembly of model components, restricted code-dependent specification of topology and geometry, inability to model unbounded space and inefficiency in navigation. We replace component assembly by partitioning of space. Our model is constructed by adding, splitting and merging edges, faces and cells in simple work steps. The model platform automatically constructs an associated core model with highly efficient geometric and topological methods based on novel concepts and theories.

Keywords: partition, polyhedron, topology, geometry, unbounded, split, multiply-connected.

* *The work was financially supported by RFBR and DFG (project 20-57-12006).*

Polyhedra have fascinated humanity since ancient times. The Egyptian pharaohs chose to be buried in pyramids. Greek thinkers discovered the five convex regular polyhedra in *Figure 1* that are named after the philosopher Platon. The flat polygonal faces of a regular polyhedron are congruent. Kepler and Poinot discovered the four non-convex regular polyhedra. Sets of polyhedra have played a significant role in theories of chemistry and crystallography. Polyhedral elements became a popular feature of modern architecture such as the new entrance to the Louvre Museum. The historic development raises the question “Which role can theories and applications of polyhedra play in our time?”

Many of the artifacts that we create today are complex polyhedra. Typical examples are everyday buildings with interior and exterior surfaces that are flat and bounded by polygons. Curved surfaces are readily approximated by polyhedral surfaces using triangulation. The polyhedra which scientists, architects and engineers treat in our time are much more complex than the traditional polyhedra, for which a highly developed literature exists. The topology and geometry of a polyhedral building, such as a high rise office building, is described with many thousands of nodes, edges and faces which define a multitude of cells. The faces and cells are frequently not convex and not simply-connected. A domain is simply-

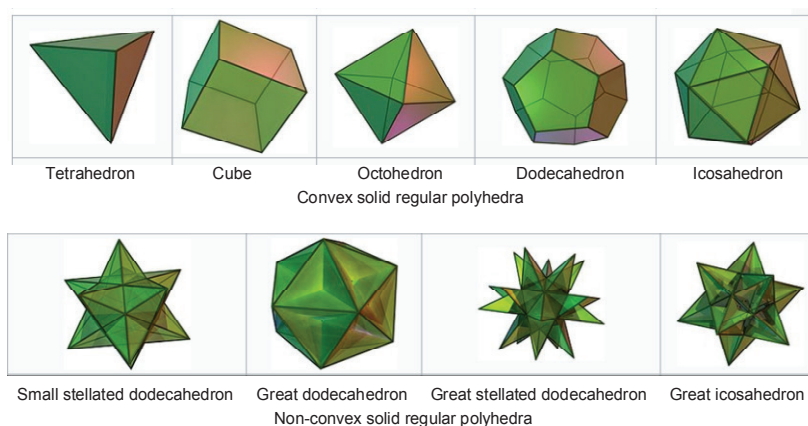


Fig. 1. The complete set of regular solid polyhedra (source: https://en.wikipedia.org/wiki/Regular_polyhedron; last visited 2021-04-11).

connected if every closed curve in the domain can be contracted continuously to a point. New theories and the capacity of digital environments are necessary to treat such complexity efficiently and reliably.

It is amazing that traditionally architects and engineers have not used the polyhedral nature of objects significantly when presenting the shape and topology of their projects in planning, design and construction. Since the middle ages, the topology and geometry of buildings have mainly been described with two-dimensional plans, elevations and sections. In rare cases, the projects have been illustrated with perspectives. Only part of the data required for complete three-dimensional models are contained explicitly in the drawings. Because many attributes are missing in the drawings, implicit information must be added to the explicit information by the person “reading” the drawing. The union of the explicit and the implicit information permits the mental construction of a complete model, and thus an understanding of the project. The reliability of the implicit information and of the reading facility depends on the background, knowledge and experience of the reader. The traditional drawings are static: automated processing of the data contained in these drawings is not possible.

When computers were spread throughout the world, drawing with pencil on paper was replaced by computer-aided design on graphic displays. The models became operational: some of the information in the drawings could now be transformed and communicated with automated procedures. While the drawing tool changed, the intrinsic nature of the method of modelling the topology and the geometry of the objects did not change. The information continued to consist of line drawings of plane sections. Implicit information and reading skills remained a potential source of error.

Significant advances were achieved later on with the object-oriented method of programming. An object contains data in the form of attributes and procedural code in the form of methods. The originals of built facilities can conveniently be mapped to such objects in computer models. Object-oriented modelling has been applied extensively in building information modelling by defining Industry Foundation Classes. An instance of an industry foundation class not only describes the topology and geometry of an original such as a stair case or a window, but also defines material, functional and other properties. By mapping components of constructed facilities to instances of Industry Foundation Classes, the software platforms which are currently in use have made some of the information explicit which before was implicit. This has greatly contributed to their success.

The original hope, that the Industry Foundation Classes would make the software products of the various

vendors compatible, has unfortunately not materialized. This great draw-back can partly be attributed to the fact that a general theory for efficient and reliable treatment of the topology and geometry of complex polyhedral objects and their relationships in constructed facilities was not created. Instead, the description of the topology and geometry of classes of constructed objects became the subject of very extensive standardization efforts which are still ongoing. The theories and methods of topology and geometry which are employed in the Industry Foundation Classes are traditional.

Models based on the Industry Foundation Classes are constructed by step-wise assembly of their components. The first component is constructed and positioned in an initially empty space. In each subsequent step of construction, another component is created and added to the model, or an existing component is modified, or a component is removed from the model. Inadequate knowledge of the original, inaccuracies in the model construction methods and tools as well as human error can lead to collision of a new component with existing components of the model and to unintended gaps between components. In order to ensure that a new component does not intersect with any existing component or form an unintentional gap with it, its location relative to each of the existing components of the model must be determined. Various methods have been devised to reduce the effort for this voluminous task, but the basic problem persists.

Conventional models as a rule are not images of unbounded space. Instead a compact box is defined in space which contains all components of the original that are to be modelled. Only the box and its contents are mapped to the model. This approach avoids unbounded model components, but requires special theories and methods at the boundary of the box. Physical phenomena such as damping of sound and vibration depend on modelling of unbounded space. Our model is unbounded.

The aim of the research project funded by the Russian Foundation for Basic Research and the German Research Foundation is the development of a general theory that permits the complete description of the topology and geometry of highly complex polyhedral objects using only the explicit information contained in the models. Such a theory will make it possible to complete the transition from the historic two-dimensional static drawings described above to entirely operational and explicit three-dimensional models including unbounded space and utilizing the full potential of their digital environment. The uncertainties associated with implicit information are removed.

In order to avoid the annoying problem of collisions and unintended gaps, the models that are



based on the novel theory are not constructed as assemblies of components. Instead, the models are defined by splitting the three-dimensional Euclidean space stepwise into cells without gaps. These models are called polyhedral partitions of space and are implemented on the *PPSpace* platform. Some of the cells of a partition will necessarily be unbounded. The split operations are designed such that the tests for collisions and gaps can be restricted to the component of the partition that is being split. Two neighboring components can be merged to form a single component. The topological and geometric tests in the merge operation are restricted to the two components that are being merged.

The concept of our novel approach to polyhedral partitions of space is illustrated in *Figure 2*. A partition model consists of a user model and an associated core model. The user model treats the geometry of the partition model in the conventional manner. Two neighboring cells have a common face f which is part of the surface of both cells. They also have common edges e_1 to e_p , as well as common nodes n_1 to n_4 . The geometry of the model is determined by the coordinates of the nodes. The elements of the user model are not topologically oriented. The user of a *PPSpace* platform interacts exclusively with the user model and need not be aware of the core model or the properties of its components.

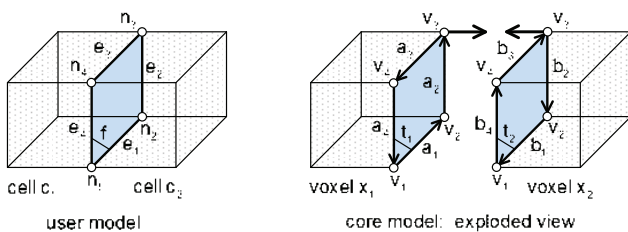


Fig. 2. Cells of the user model and their child voxels in the core model.

The core model derived from the user model treats the topology of the partition model in a novel manner. In order to distinguish explicitly between the two models, the point sets which are denoted as node, edge, face and

cell in the user model are denoted as vertex, arrow, facet and voxel in the core model. An element y of the core model whose point set equals that of an element x of the user model is called a child of x . Element x is called the parent of y . In *Figure 2* cells c_1 and c_2 are mapped to voxels x_1 and x_2 , face f is mapped to twin facets t_1 and t_2 , edge e_k is mapped to twin arrows a_k and b_k and nodes n_1 to n_4 are mapped to vertices v_1 to v_4 .

Neighboring voxels share vertices. In contrast with a cell (which shares each of its faces with another cell of the user model) a voxel does not share any of its facets with any other voxel of the core model. Each facet belongs to a specific voxel. The normal vectors of twin facets with the same parent face point in opposite directions. By definition the normal vector of a facet points to the outside of the voxel to which it belongs. The facet is oriented by its normal vector.

In contrast with a face (which shares each of its edges with at least one other face of the user model) a facet does not share any of its arrows with any other facet of the core model. Each arrow belongs to a specific facet. The two arrows of twin facets with a common parent edge point in opposite directions. The direction of the normal vector of a facet determines the positive direction of the arrows in its boundary. If m faces meet at an edge of a partition, the mapping of the edge to the core model creates two arrow bundles containing m arrows each. The bundles point in opposite directions. Each arrow of a bundle belongs to a specific facet. The facets associated with the arrows of a bundle form a facet bundle.

The shape of a facet is defined by the shape of its boundary. Multiply-connected facets are defined by the boundary illustrated in *Figure 3*. The boundary consists of exactly one outer closed polygonal curve and an arbitrary number of inner closed polygonal curves which do not intersect. The interior of the outer polygon is bounded. The interior of each inner polygon is unbounded. The intersection of the interiors of the polygons is the interior of the multiply-connected facet.

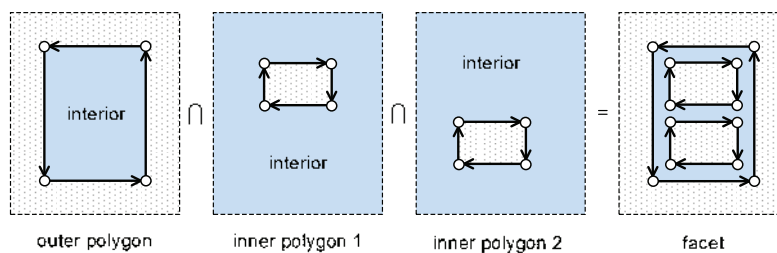


Fig. 3. Definition of a multiply-connected face.

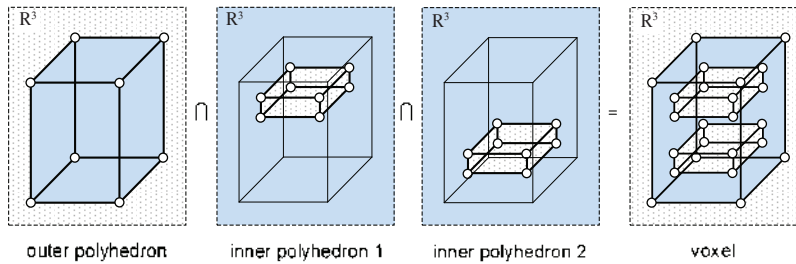


Fig. 4. Definition of a multiply-connected voxel.

The shape of a voxel is defined by the shape of its surface. The most general surface of a voxel in a polyhedral partition is illustrated in Figure 4. It consists of exactly one outer closed polyhedral surface and an arbitrary number of inner closed polyhedral surfaces which do not intersect. The interior of the outer polyhedron is bounded. The interior of each inner polyhedron is unbounded. The intersection of the interiors of the polyhedra is the interior of the multiply-connected voxel.

The treatment of unbounded edges, faces and cells of partition models in unbounded space is a special challenge in polyhedral theory. How can we model an unbounded edge that does not have a node at each end? For the geometry, it is sufficient to describe the unbounded edge with one node and a direction vector. To describe the topology of a partition in such a manner that the theory and algorithms apply to both bounded and unbounded components, it is, however, necessary to retain all nodes, edges and faces as model components.

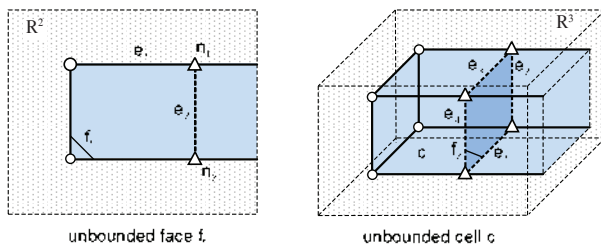


Fig. 5. Unbounded face and unbounded cell with imaginary components.

The problem has been solved in our research by defining imaginary nodes, edges and faces as shown in Figure 5. Contrary to the real nodes, edges and faces, the imaginary components do not have a fixed geometric location or a shape. Their location and shape in the figure have been chosen arbitrarily. Their topological attributes relate them to other components of the partition. Every imaginary node lies on exactly one unbounded edge. If a second edge were to pass through the node, the point of intersection of the two edges would by definition of partitions be a real node.

In Figure 5 the imaginary node n_1 of face f_1 “is part of” the unbounded edge e_1 . The imaginary edge e_2 “connects” the imaginary nodes n_1 and n_2 . The imaginary face f_2 “is part of” the unbounded cell c , and is “bounded” by the imaginary edges e_1 to e_4 .

Once the novel concepts had been discovered in the research project, they were applied to describe the geometric and the topological structure of the polyhedral partition. The methods of the model use the attributes of both the real and the imaginary components to operate on the partition model as required. The partition is defined completely by its explicit attributes.

The coordinates of the nodes are the only essential geometric attributes of the partition model. The normal vector of a facet can be derived by constructing a vector normal to the facet geometrically and using the direction of the vectors of the outer arrow polygon of the facet to determine the direction of the normal vector of the facet. Because the normal vectors are used frequently in the algorithms, it may be decided to compute them only once and to store them in the core model as auxiliary variables.

The topological structure of the core model is described with twins, polygons and dihedral cycles. Closed arrow polygons describe the boundaries of the facets. A dihedral cycle at an edge describes the sequence in which facets of the partition at the edge are encountered if a line is rotated about the edge. There are two dihedral cycles at each edge as shown in Figure 6, each containing the arrows of one arrow bundle. The associated facets are sorted in a cyclic list with increasing angle of rotation about the edge. The arrows of the bundle form a corresponding list. The twins, polygons and dihedral cycles form an explicit description of the complete topology of a three-dimensional partition.

The user defines the model stepwise with simple split and merge operations on edges, faces and cells in the user model. When a new model is defined, its unbounded space is automatically subdivided by the PPSpace platform into a reference system consisting of eight unbounded cells corresponding to the octants of the global coordinate system.



The sequence of the work steps in model construction is systematized by ranking the model components. The rank of a component equals its dimension before it is embedded in three-dimensional space. Thus the rank of nodes, edges, faces and cells is 0, 1, 2 and 3 respectively. The concept of rank greatly simplifies the specification of the input commands for the user.

Exactly one component is split in a work step. If the split of a component A of rank r requires splits of some of its components, these all have rank less than r and are split before A is split. At least one component of rank $r-1$ is added to the interior of A to complete the split. In Figure 7, edges e_1 and e_2 of face f_1 are split with nodes n_1 and n_2 before node n_3 as well as edges e_7 and e_8 are added to the interior of

face f_1 to split that face into the concave face f_2 and the convex face f_3 .

A simply-connected component of rank r can be added to the interior of a component of rank r to split it into a multiply-connected and a simply-connected component. Addition of edges e_1 to e_4 and nodes n_1 to n_4 to the interior of face f_1 in Figure 8 splits the face into a multiply-connected face f_2 and a simply-connected face f_3 .

Splits of three-dimensional voxels are performed in a similar manner. Figure 9 shows the split of a cell c_1 into cells c_2 and c_3 . In work steps 1 to 3 edges e_1 to e_3 are split by adding nodes n_1 to n_3 . In work steps 4 to 6 faces f_1 to f_3 are split by adding edges e_{10} to e_{12} . In work step 7 the addition of face f_{10} splits cell c_1 into cells c_2 and c_3 .

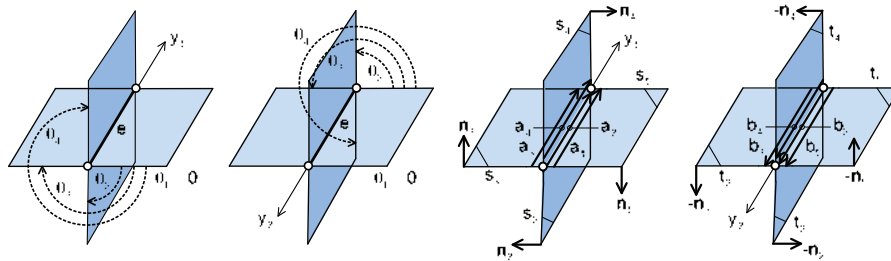


Fig. 6. Dihedral cycles of facets and arrows at an edge e of a partition.

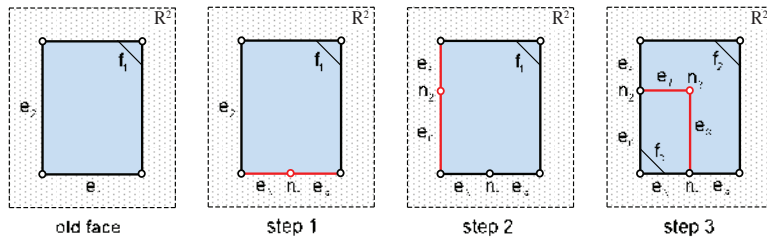


Fig. 7. Work steps for a face split.

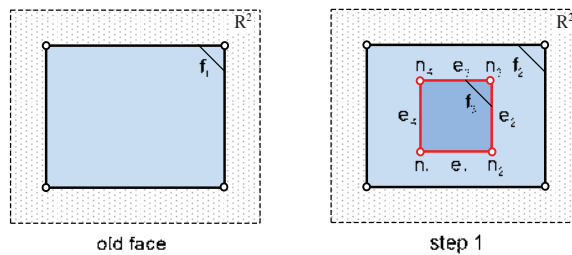


Fig. 8. Construction of a multiply-connected face by a face split.

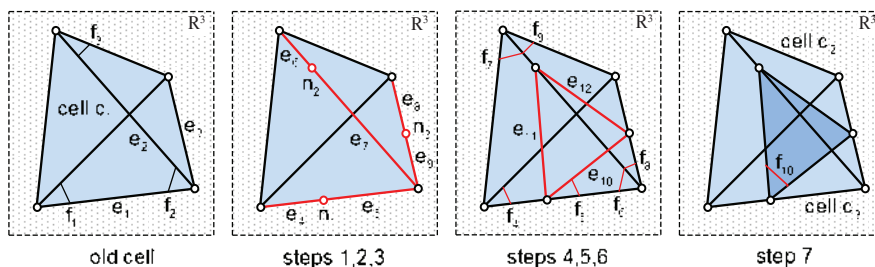


Fig. 9. Work steps for a cell split.

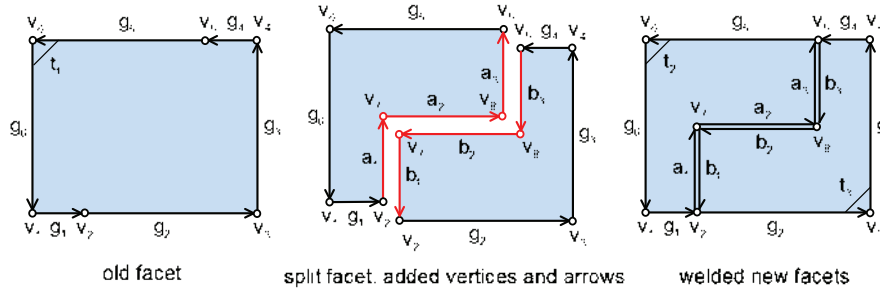


Fig. 10. Split of facet t_1 into facets t_2 and t_3 .

At run time the *PPSpace* platform interprets and checks the user commands. The new objects and the created objects are added to the user model and split objects are removed. Added nodes are mapped to new vertices in the core model, added faces to new facets and edges of added faces to new arrows. The pointers of the twins, polygons and dihedral cycles describing the topological structure are updated. At the end of a work step, both the user model and the core model are in a proper current state. *Figure 10* illustrates the split of a facet t_1 into facets t_2 and t_3 by addition of vertices v_7 and v_8 , arrows a_1 to a_3 and arrows b_1 to b_3 .

The geometric tests which verify the input data are not treated in this publication. The *PPSpace*

platform is at present being implemented and tested systematically. The topological functionality is treated before the geometric functionality. A graphical analysis tool that is essential for full scale testing of the platform and of its components is being implemented.

The partition model can be extended to a large variety of models for particular fields of application, each with its own semantics. Materials and functions can be attributed to the components of the model and the required methods can be added. The explicit information and methods contained in the particular models of the field define their functionality and their benefit. The topology and the geometry of all models remain unified.

Новый подход к полиэдральным разбиениям пространства

В.В. Галишникова, В. Хунт, П.Я. Паль

Перед всеми отраслями науки и техники стоит задача создания и применения цифровых моделей объектов и процессов. В настоящем исследовании рассматриваются проблемы, возникшие при переходе от статических двумерных линейных чертежей моделей на бумаге к оперативным трехмерным моделям в цифровых устройствах, такие как столкновения и разрывы при сборке компонентов модели, ограниченная кодозависимая спецификация топологии и геометрии, невозможность моделирования неограниченного пространства и неэффективность навигации. Авторы заменяют сборку компонентов разбиением пространства. Модель строится путем добавления, разбиения и слияния ребер, граней и ячеек в простых рабочих шагах. При этом вычислительная платформа автоматически создает соответствующую базовую модель с помощью высокоэффективных геометрических и топологических методов, основанных на новых концепциях и теориях.

Ключевые слова: разбиение, многогранник, топология, геометрия, неограниченный, расщепление, многосвязный.

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проект № 20-57-12006).



ГАЛИШНИКОВА
Вера Владимировна
Российский университет
дружбы народов



ХУНТ Вольфганг
Берлинский технический
университет, Германия



ПАЛЬ
Петер Ян
Берлинский технический
университет, Германия

Изображения и таблицы

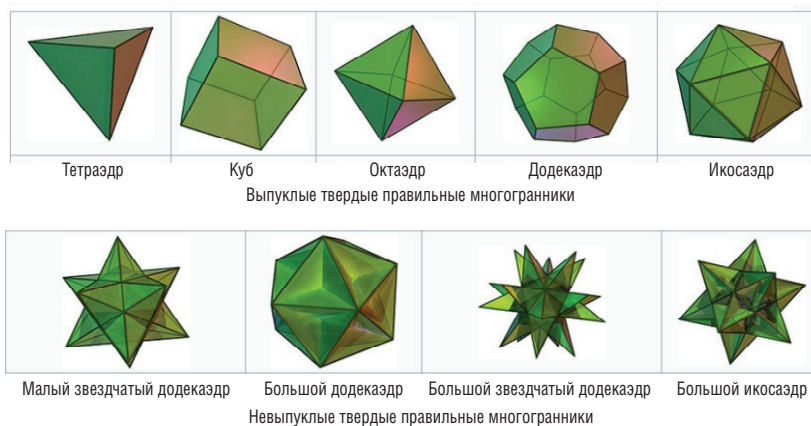


Рис. 1. Полное множество правильных трехмерных многогранников: тетраэдр, куб, октаэдр, додекаэдр, икосаэдр (ист.: https://en.wikipedia.org/wiki/Regular_polyhedron).

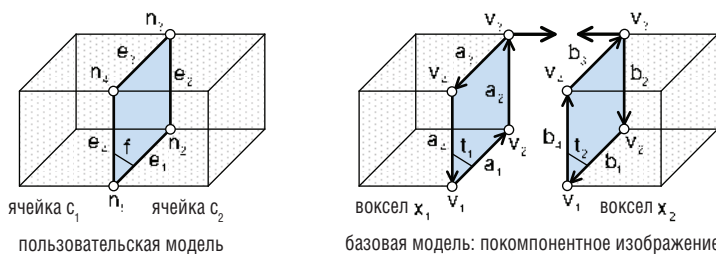


Рис. 2. Ячейки пользовательской модели и их дочерние воксели базовой модели.

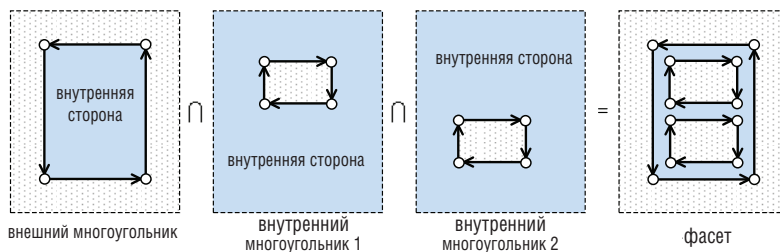


Рис. 3. Определение многосвязной грани.

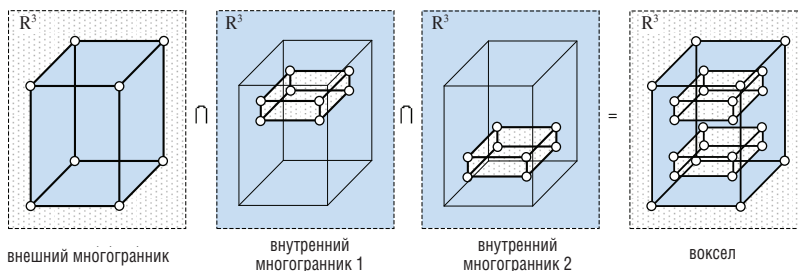


Рис. 4. Определение многосвязного вокселя.

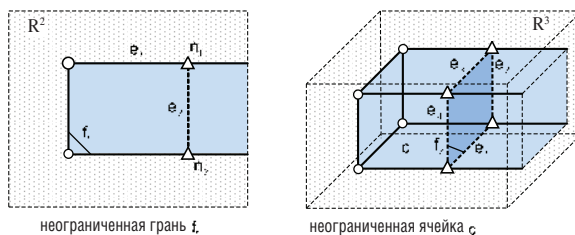


Рис. 5. Неограниченная грань и неограниченная ячейка с мнимыми компонентами.

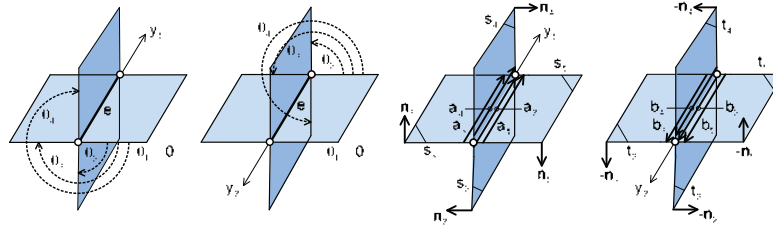


Рис. 6. Дидральные циклы фасетов и стрелок в ребре e разбиения.

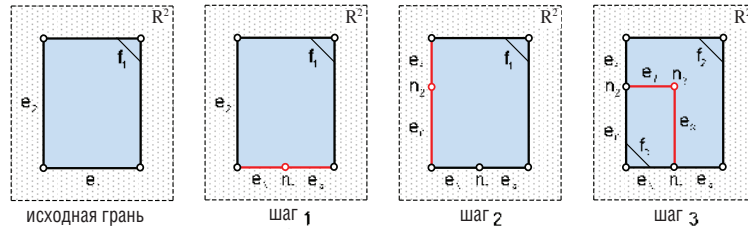


Рис. 7. Рабочие шаги разбиения грани.

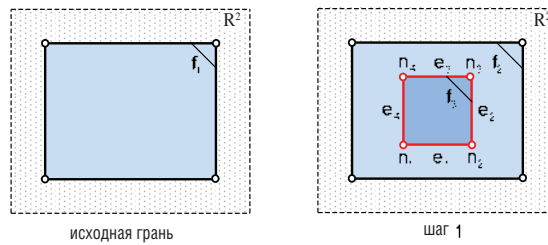


Рис. 8. Построение многосвязной грани методом разбиения грани.

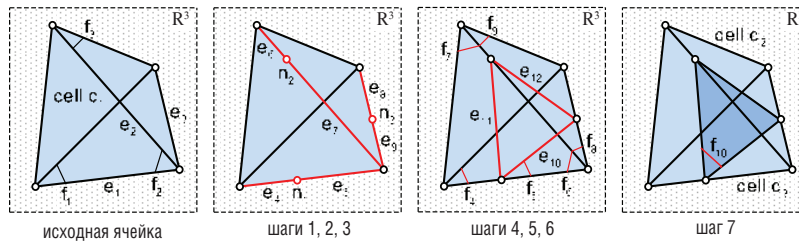


Рис. 9. Рабочие шаги разбиения ячейки.

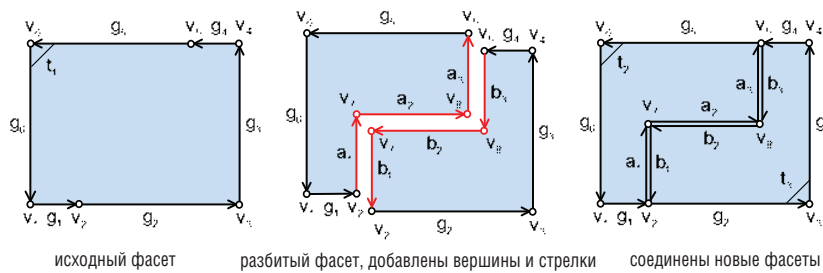


Рис. 10. Разбиение фасета t_1 на фасеты t_2 и t_3 .

Водорастворимые молекулярные щетки как перспективные контейнеры для адресной доставки лекарств

Р.А. Гумеров, И.И. Потемкин

Молекулярные щетки являются классом разветвленных полимеров с высокой плотностью ветвления. Особенность молекулярной архитектуры обеспечивает им несферическую форму в растворителе и устойчивость к агрегации, а возможность широкой вариации их химического состава позволяет получать макромолекулы на основе водорастворимых и биосовместимых полимеров, которые в том числе могут быть восприимчивы к внешним воздействиям. Данные особенности позволяют рассматривать молекулярные щетки как высокомолекулярные соединения, обладающие высоким потенциалом применения в наномедицине. В рамках данной статьи проведен краткий обзор успехов в использовании разветвленных полимеров в качестве молекулярных контейнеров для адресной доставки лекарств.

Ключевые слова: молекулярные щетки, водорастворимость, биосовместимость, восприимчивость, наномедицина, доставка лекарств.

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проект № 20-53-12023).

Введение

Современные методы синтеза высокомолекулярных соединений позволяют получать всё более сложные системы с уникальными химическими и физическими свойствами. К ним, в частности, относятся молекулярные щетки – подвид гребнеобразных полимеров (макромолекул, состоящих из цепи-остова и боковых цепей меньшей длины) с высокой плотностью пришивки боковых цепей, которая может достигать 100% [1]. Отличительной особенностью таких полимеров является увеличенная (наведенная) персистентная длина в хорошем растворителе вследствие стерического отталкивания между боковыми цепями, что обеспечивает макромолекулам цилиндрическую форму при небольшой длине остова или же червеобразную форму в остальных случаях [2, 3]. Боковые цепи и основная цепь обычно отличны друг от друга по химическому составу и могут характеризоваться различной растворимостью и (не)совместимостью друг с другом. Более того, сами боковые цепи могут быть двух и более сортов, и таким образом, аналогично амфифильным блок-сополимерам, при определенных условиях молекулярные щетки могут самоорганизо-

вываться в мицеллы или везикулы в селективном растворителе. Вместе с тем в состав макромолекул можно включать также различные функциональные группы, что позволяет наделять щетки восприимчивостью к различного рода внешним воздействиям (температуре, pH, свету и т. д. [4]) и тем самым изменять их конформации *in vivo*. Данное свойство может быть использовано в различных приложениях и, в частности, в адресной доставке лекарств [5]. В рамках данной статьи будет проведен краткий обзор последних успехов в разработке и применении молекулярных щеток в качестве наноконтейнеров для различного рода лекарственных средств.

Биосовместимость

Главным требованием, выдвигаемым к полимерным наноконтейнерам, является их встраиваемость в организм пациента и разлагаемость в нем для минимизации побочных эффектов от терапии [6]. В случае молекулярных щеток, где цепь-остов является обычно гидрофобной, а боковые цепи – гидрофильными, наиболее распространенными являются сополимерные щетки на основе полилактида (ПЛА) и полиэтиленгликоля (ПЭГ)



ГУМЕРОВ
Рустам Анрикович
Московский государственный
университет им. М.В. Ломоносова



ПОТЕМКИН
Игорь Иванович
Московский государственный
университет им. М.В. Ломоносова

[7–10]. В последнее время научный интерес вызывают разветвленные сополимеры на основе полиоксазолинов – класса полимеров, обладающих исключительной биосовместимостью вследствие их химического подобия белкам, и растворимость в воде которых может регулироваться путем выбора мономера с заданной функциональной группой [11–14]. В частности, щетки с боковыми цепями из поли-2-этилоксазолина (ПЭО) будут обладать нижней критической температурой растворения (НКТР), примерно равной 70 °С, в то время как это значение будет в два раза меньшим (~35 °С) для щеток на основе изопропилоксазолина (ПИО) [12], а НКТР щеток с остовом из ПИО и боковыми цепями из ПЭО будет иметь промежуточное значение (~40 °С) [14]. Таким образом, возможен синтез амфифильных и восприимчивых молекулярных щеток, состоящих, по сути, из соединений одного гомологического ряда.

Методы загрузки

По способу загрузки лекарств контейнеры на основе молекулярных щеток могут быть разделены на два типа – физические и химические. В первом случае молекулы лекарства, являющиеся в большинстве случаев нерастворимыми в водной среде, концентрируются в контейнере за счет гидрофобных взаимодействий. Здесь важную роль играет архитектура разветвленных макромолекул, поскольку она будет определять как вместимость контейнера, так и его устойчивость в кровотоке (см. ниже) [2, 15–17]. Во втором случае происходит ковалентное связывание молекул лекарств с контейнером (как правило, с остовом) посредством конъюгации, и амфифильность контейнера не будет являться необходимой условием для связывания. При этом число лекарственных средств может быть больше одного. Например, в недавней работе [10] была продемонстрирована возможность одновременной загрузки щеток ПЛА-ПЭГ молекулами гидрофобного паклитаксела и гидрофильного гемцитабина для комбинированной противоопухолевой терапии, эффективность которой была продемонстрирована *in vivo*. Тем не менее, диапазон доставляемых таким образом лекарств является ограниченным. В качестве альтернативы возможен смешанный метод доставки [8], где щетки с привитыми молекулами одного вещества поглощают молекулы второго и тем самым самоорганизуются в везикулу-контейнер.

Влияние архитектуры на самоорганизацию

Основные виды архитектур молекулярных щеток с линейным остовом, применяемые в адресной

доставке лекарств, приведены на *рис. 1*. Первый вид полимеров, где гидрофильные гомополимерные цепи привиты к остову с произвольной водорастворимостью (*рис. 1a*), применяется в основном при химической загрузке. В зависимости от плотности пришивки и длины остова загруженные щетки будут претерпевать либо агрегацию [8, 10], либо существовать в виде одиночных макромолекул [16]. В последнем случае увеличение длины остова или его жесткости (и, как следствие, увеличение асферичности) будет приводить к уменьшению времени циркуляции контейнера в кровотоке и более быструю реакцию системы мононуклеарных фагоцитов [16]. Также возможна и физическая загрузка гомополимерных щеток при малой плотности шшивки, однако поскольку объемная доля остова всегда значительно меньше доли боковых цепей, то общая вместимость такого контейнера будет меньше, чем в случае сополимерных щеток (*рис. 1b–d*).

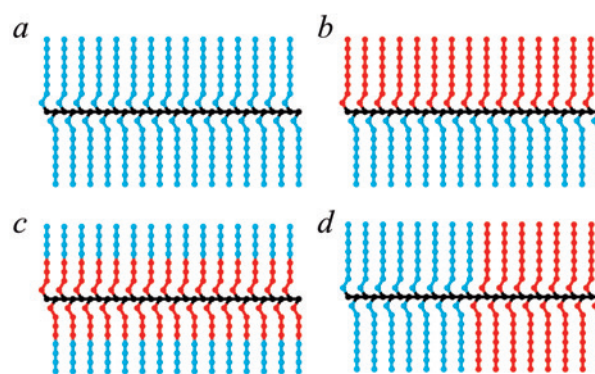


Рис. 1. Виды архитектур гомо- (a) и сополимерных (b–d) молекулярных щеток. Красным цветом показаны гидрофобные боковые цепи (блоки), синим – гидрофильные.

Для разветвленных сополимеров, содержащих гидрофильные и гидрофобные боковые цепи, агрегационная способность будет в первую очередь зависеть от расположения гидрофобных групп. Для блочной архитектуры (*рис. 1d*) будет характерно формирование сферических мицелл, причем их устойчивость будет более высокой, чем для линейных диблок-сополимеров аналогичной композиции [7]. В свою очередь, для щеток с чередующимися боковыми цепями (*рис. 1b*) [9, 17] или с цепями в виде диблок-сополимеров (*рис. 1c*) [15, 18] возможно существование мономолекулярных мицелл несферической формы, для которых агрегационная способность будет подавлена даже после физической загрузки лекарств, что достигается при больших длинах остова и гидрофильных блоков, а также при плотности пришивки, стремя-



щейся к 100%. Можно утверждать, что эффективность доставки контейнерами такой формы будет бóльшей по сравнению со сферическими агрегатами за счет более направленного движения в кровотоке и устойчивости структуры [1].

Чувствительность к внешним воздействиям

Способы высвобождения лекарственных средств из наноконтейнеров также подразделяются на физические и химические. В последнем случае контейнер разлагается посредством гидролиза или ферментации, что является реакцией на изменение свойств среды (температуры или уровня *pH*) или на внешнее воздействие (например, светом) [8]. При этом физическое высвобождение будет осуществляться за счет диффузии молекул лекарств из объема контейнера, и при наличии чувствительности к внешним стимулам скорость диффузии может контролироваться извне путем изменения конформации молекулярных щеток [15, 18]. Это позволит уменьшить побочные эффекты и повысить точность адресной доставки. Кроме того, применение восприимчивых разветвленных полимеров делает возможным физическую загрузку лекарств посредством негидрофобных взаимодействий. Например, в недавней работе [18] была показана возможность поглощения фото-

термического агента IR780 щетками с боковыми цепями из диблок-сополимера полиакриловой кислоты – полиэтиленгликоля (ПА-ПЭГ) за счет электростатического притяжения, а последующее высвобождение агента производилось путем нейтрализации заряженных групп при повышении уровня *pH* вблизи опухолевой клетки.

Заключение

Можно ожидать, что исследования систем на основе молекулярных щеток для адресной доставки лекарств будут активно проводиться в ближайшие десятилетия. На сегодняшний день основной упор исследований по-прежнему заключается в разработке биосовместимых и биоразлагаемых полимерных архитектур, обладающих сильным откликом на внешние воздействия. В данном обзоре были рассмотрены щетки на основе синтетических полимеров. Помимо этого, в последнее время идет активное развитие систем молекулярных щеток на основе биополимеров [19], что позволит существенно расширить диапазон доставляемых лекарственных средств. Можно надеяться, что фокус исследований в дальнейшем будет смещаться в сторону *in vitro* и *in vivo* экспериментов, что в скором времени приведет к успешным клиническим испытаниям молекулярных контейнеров и их внедрению в медицинскую практику.

Литература

1. G. Xie, M.R. Martinez, M. Olszewski, S.S. Sheiko, K. Matyjaszewski *Biomacromolecules*, 2019, **20**, 27. DOI: 10.1021/acs.biomac.8b01171.
2. Т.М. Бирштейн, О.В. Борисов, Е.Б. Жулина, А.П. Хохлов, Т.А. Юрасова *Высокомолекулярное соед.*, 1987, **A29**(6), 1169.
3. G.H. Fredrickson *Macromolecules*, 1993, **26**, 2825. DOI: 10.1021/ma00063a029.
4. H. Lee, J. Pietrasik, S.S. Sheiko, K. Matyjaszewski *Prog. Polym. Sci.*, 2010, **35**, 24. DOI: 10.1016/j.progpolymsci.2009.11.002.
5. R. Verduzco, X. Li, S.L. Pesek, G.E. Stein *Chem. Soc. Rev.*, 2015, **44**, 2405. DOI: 10.1039/C4CS00329B.
6. R. Tong, J. Cheng *Polym. Rev.*, 2007, **47**, 345. DOI: 10.1080/15583720701455079.
7. R. Fenyves, M. Schmutz, I.J. Horner, F.V. Bright, J. Rzaev *J. Am. Chem. Soc.*, 2014, **136**, 7762. DOI: 10.1021/ja503283r.
8. Y. Yuan, Z. Wang, P. Cai, J. Liu, L.-D. Liao, M. Hong, X. Chen, N. Thakor, B. Liu *Nanoscale*, 2015, **7**, 3067. DOI: 10.1039/c4nr06420h.
9. M. Szymusiak, J. Kalkowski, H. Luo, A.J. Donovan, P. Zhang, C. Liu, W. Shang, T. Irving, M. Herrera-Alonso, Y. Liu *ACS Macro Lett.*, 2017, **6**, 1005. DOI: 10.1021/acsmacrolett.7b00490.
10. H. Sun, L. Yan, M. Y. Z. Chang, K.A. Carter, R. Zhang, L. Slyker, J.F. Lovel, Y. Wu, C. Cheng *Nanoscale Adv.*, 2019, **1**, 2761. DOI: 10.1039/c9na00282k.
11. R. Luxenhofer, Y. Han, A. Schulz, J. Tong, Z. He, A.V. Kabanov, R. Jordan *Macromol. Rapid Commun.*, 2012, **33**, 1613. DOI: 10.1002/marc.201200354.
12. D. Gieseler, R. Jordan *Polym. Chem.*, 2015, **6**, 4678. DOI: 10.1039/C5PY00561B.
13. P.A.J.M. de Jongh, A. Mortiboy, G.S. Sulley, M.R. Bennett, A. Anastasaki, P. Wilson, D.M. Haddleton, K. Kempe *ACS Macro Lett.*, 2016, **5**, 321. DOI: 10.1021/acsmacrolett.5b00904.
14. J.-J. Kang, K. Shehu, C. Sachse, F.A. Jung, C.-H. Ko, L.C. Barnsley, R. Jordan R, C.M. Papadakis *Colloid Polym. Sci.*, 2021, **299**, 193. DOI: 10.1007/s00396-020-04704-6.
15. P. Zhao, L. Liu, X. Feng, C. Wang, X. Shuai, Y. Chen *Macromol. Rapid. Commun.*, 2012, **33**, 1351. DOI: 10.1002/marc.201200172.
16. M. Müllner, S.J. Dodds, T.-H. Nguyen, D. Senyschyn, C.J.H. Porter, B.J. Boyd, F. Caruso *ACS Nano*, 2015, **9**, 1294. DOI: 10.1021/nn505125f.
17. E.A. Garcia, H. Luo, C.E. Mack, M. Herrera-Alonso *Soft Matter*, 2020, **16**, 8871. DOI: 10.1039/D0SM01190H.
18. H. Li, H. Liu, T. Nie, Y. Chen, Z. Wang, H. Huang, L. Liu, Y. Chen *Biomaterials*, 2018, **178**, 620. DOI: 10.1016/j.biomaterials.2018.03.032.
19. A.P. Blum, D.A. Nelles, F.J. Hidalgo, M.A. Touve, D.S. Sim, A.A. Madrigal, G.W. Yeo, N.C. Gianneschi *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2019, **58**, 15646. DOI: 10.1002/anie.201904894.

English

Water-Soluble Molecular Brushes as Promising Containers for Targeted Drug Delivery

Rustam A. Gumerov

Lomonosov Moscow State University
1–2 Leninskie Gory, Moscow, 119991, Russia
gumerov@polly.phys.msu.ru

Igor I. Potemkin

Lomonosov Moscow State University
1–2 Leninskie Gory, Moscow, 119991, Russia
igor@polly.phys.msu.ru

Abstract

Molecular brushes are the class of branched polymers with high branching density. The peculiarity of the molecular architecture provides them with a non-spherical shape in a solvent and the resistance to aggregation, and the possibility of a wide variation of their chemical composition makes it possible to obtain macromolecules based on water-soluble and biocompatible polymers, which, *inter alia*, can be sensitive to external stimuli. These features allow to consider the molecular brushes as high-molecular compounds with high potential for application in nanomedicine. Within the scope of this article, we give a quick review on the advances in the use of branched polymers as molecular containers for targeted drug delivery.

Keywords: molecular brushes, water solubility, biocompatibility, susceptibility, nanomedicine, drug delivery.

* The work was financially supported by RFBR and DFG (project 20-53-12023).

Images & Tables

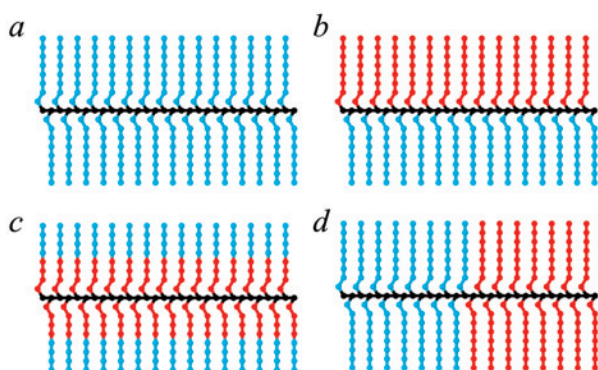


Fig. 1. Types of architectures of homo- (a) and copolymer (b–d) molecular brushes. Hydrophilic side chains are shown in blue while the hydrophobic ones are shown in red.

References

- G. Xie, M.R. Martinez, M. Olszewski, S.S. Sheiko, K. Matyjaszewski *Biomacromolecules*, 2019, 20, 27. DOI: 10.1021/acs.biomac.8b01171.
- T.M. Birshtein, O.V. Borisov, E.B. Zhulina, A.R. Khokhlov, T.A. Yurasova *Polym. Sci. USSR*, 1987, 29, 1293. DOI: 10.1016/0032-3950(87)90374-1.
- G.H. Fredrickson *Macromolecules*, 1993, 26, 2825. DOI: 10.1021/ma00063a029.
- H. Lee, J. Pietrasik, S.S. Sheiko, K. Matyjaszewski *Prog. Polym. Sci.*, 2010, 35, 24. DOI: 10.1016/j.progpolymsci.2009.11.002.
- R. Verduzco, X. Li, S.L. Pesek, G.E. Stein *Chem. Soc. Rev.*, 2015, 44, 2405. DOI: 10.1039/C4CS00329B.
- R. Tong, J. Cheng *Polym. Rev.*, 2007, 47, 345. DOI: 10.1080/15583720701455079.
- R. Fenyves, M. Schmutz, I.J. Horner, F.V. Bright, J. Rzaev *J. Am. Chem. Soc.*, 2014, 136, 7762. DOI: 10.1021/ja503283r.
- Y. Yuan, Z. Wang, P. Cai, J. Liu, L.-D. Liao, M. Hong, X. Chen, N. Thakor, B. Liu *Nanoscale*, 2015, 7, 3067. DOI: 10.1039/c4nr06420h.
- M. Szymusiak, J. Kalkowski, H. Luo, A.J. Donovan, P. Zhang, C. Liu, W. Shang, T. Irving, M. Herrera-Alonso, Y. Liu *ACS Macro Lett.*, 2017, 6, 1005. DOI: 10.1021/acsmacrolett.7b00490.
- H. Sun, L. Yan, M. Y. Z. Chang, K.A. Carter, R. Zhang, L. Slyker, J.F. Lovel, Y. Wu, C. Cheng *Nanoscale Adv.*, 2019, 1, 2761. DOI: 10.1039/c9na00282k.
- R. Luxenhofer, Y. Han, A. Schulz, J. Tong, Z. He, A.V. Kabanov, R. Jordan *Macromol. Rapid Commun.*, 2012, 33, 1613. DOI: 10.1002/marc.201200354.
- D. Gieseler, R. Jordan *Polym. Chem.*, 2015, 6, 4678. DOI: 10.1039/C5PY00561B.
- P.A.J.M. de Jongh, A. Mortiboy, G.S. Sulley, M.R. Bennett, A. Anastasaki, P. Wilson, D.M. Haddleton, K. Kempe *ACS Macro Lett.*, 2016, 5, 321. DOI: 10.1021/acsmacrolett.5b00904.
- J.-J. Kang, K. Shehu, C. Sachse, F.A. Jung, C.-H. Ko, L.C. Barnsley, R. Jordan, C.M. Papadakis *Colloid Polym. Sci.*, 2021, 299, 193. DOI: 10.1007/s00396-020-04704-6.
- P. Zhao, L. Liu, X. Feng, C. Wang, X. Shuai, Y. Chen *Macromol. Rapid Commun.*, 2012, 33, 1351. DOI: 10.1002/marc.201200172.
- M. Müllner, S.J. Dodds, T.-H. Nguyen, D. Senyschyn, C.J.H. Porter, B.J. Boyd, F. Caruso *ACS Nano*, 2015, 9, 1294. DOI: 10.1021/nn505125f.
- E.A. Garcia, H. Luo, C.E. Mack, M. Herrera-Alonso *Soft Matter*, 2020, 16, 8871. DOI: 10.1039/D0SM01190H.
- H. Li, H. Liu, T. Nie, Y. Chen, Z. Wang, H. Huang, L. Liu, Y. Chen *Biomaterials*, 2018, 178, 620. DOI: 10.1016/j.biomaterials.2018.03.032.
- A.P. Blum, D.A. Nelles, F.J. Hidalgo, M.A. Touve, D.S. Sim, A.A. Madrigal, G.W. Yeo, N.C. Gianneschi *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2019, 58, 15646. DOI: 10.1002/anie.201904894.

Проблемы создания нейромышечного интерфейса на основе электромиографии и измерений электрического импеданса для управления силомоментными параметрами реабилитационных медицинских устройств

С.И. Шукин, Ю.В. Гуляев, А.В. Кобелев, А.Н. Брико, Я.Н. Липич,
А. Хюлькенберг, Ч. Нго, Ш. Леонхардт

В работе представлены результаты исследований, направленных на качественное и количественное описание процессов и параметров, влияющих на амплитудные и временные характеристики электроимпедансной миограммы. Определены процессы изменения толщин и форм биологических тканей конечности при мышечном сокращении. Показано, что при прижатии электродной системы сначала утоньшается кожно-жировой слой, затем мышечные ткани; получены зависимости электрического импеданса в покое и при мышечном сокращении от давления прижатия. Приведены результаты пилотных *in-vivo* исследований величины и степени анизотропии электрической проводимости мышц в покое и при выраженном сокращении. Показано незначительное влияние дыхания и пульсового кровенаполнения на проводимость покоящейся мышцы. Уточнены задачи последующих исследований.

Ключевые слова: электрический импеданс, электромиограмма, нейромышечный интерфейс.

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проекты №№ 20-58-12006 и LE 817/41-1).

Введение

Сегодня общепризнано, что в ближайшем будущем будет возрастать дефицит медицинского персонала, осуществляющего уход за людьми с физическими недостатками, причем особенно в домашних условиях [1]. Способность человека двигаться необходима для выполнения основных повседневных задач, поэтому расстройства движений значительно снижают качество жизни. Рас-

стройства движений верхних конечностей особенно ограничивают независимость и самообслуживание. Количество пациентов, нуждающихся в физической реабилитации верхней конечности, постоянно растет. В случае неврологических расстройств положительный результат физической реабилитации в значительной степени зависит от продолжительности, интенсивности и целенаправленности обучения [1, 2], а также от состояния здоровья пациента, внимания и усилий [3].



ШУКИН
Сергей Игоревич
Московский государственный
технический университет
им. Н.Э. Баумана
(национальный исследова-
тельский университет)



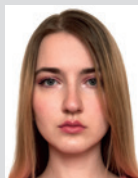
ГУЛЯЕВ
Юрий Васильевич
Институт радиотехники
и электроники
им. В.А. Котельникова РАН



КОБЕЛЕВ
Александр Викторович
Московский государственный
технический университет
им. Н.Э. Баумана
(национальный исследова-
тельский университет)



БРИКО
Андрей Николаевич
Московский государственный
технический университет
им. Н.Э. Баумана
(национальный исследова-
тельский университет)



ЛИПИЧ
Ярослава Николаевна
Московский государственный
технический университет
им. Н.Э. Баумана
(национальный исследова-
тельский университет)



ХЮЛЬКЕНБЕРГ
Альфред
Институт биомедицинских
технологий им. Г. Гельмгольца
Рейнско-Вестфальский
технический университет
Ахена, Германия



НГО
Чьюнг
Институт биомедицинских
технологий им. Г. Гельмгольца
Рейнско-Вестфальский
технический университет
Ахена, Германия



ЛЕОНХАРДТ
Штеффен
Институт биомедицинских
технологий им. Г. Гельмгольца
Рейнско-Вестфальский
технический университет
Ахена, Германия

По экономическим причинам продолжительность первичной реабилитации становится всё короче [4]. Эти проблемы усугубятся в будущем с ростом продолжительности жизни, которая сопровождается распространением как умеренных, так и тяжелых двигательных нарушений среди пожилого населения и, как следствие, увеличением потребности в физической помощи.

Для решения этих проблем разработаны подходы и устройства физической реабилитации, такие как ортезы, функциональная электростимуляция и физиотерапия. В клинической практике используются роботизированные устройства с возможностью выполнения повторяющихся задач. Однако функциональные возможности этих устройств ограничены предельными возможностями существующих сегодня способов бионического управления [5].

При разработке био- или нейроуправляемых биотехнических систем важно определить способы и биофизические принципы получения информации о совершаемом движении, которые должны позволять численно оценить силомоментные характеристики движения [6]. В этом смысле актуальной проблемой является исследование новых путей и методов антропоморфного бионического управления реабилитационными медицинскими устройствами.

Сегодня в профессиональном научном сообществе сложилось обоснованное понимание, что исключительно накожными электромиографическими измерениями достичь качественного нового уровня оценки силомоментных характеристик движения, к сожалению, пока не удастся, поэтому, в дополнение к электромиографии и самостоятельно, исследуются иные физические методы измерений мышечной активности. К таковым сегодня в первую очередь относятся: механомиография; акселеромиография; оптическая, ультразвуковая и электроимпедансная миография.

Методом, который потенциально более устойчив к широкому спектру помех, включающих возмущения приэлектродных областей, является метод электроимпедансной миографии (ЭИМ). Методика применения основана на измерении электрического импеданса мышц, которые происходят во время мышечных сокращений, совместно с сигналом электромиограммы (ЭМГ). При этом научные и научно-технические основы метода ЭИМ

как при одноканальных, так и при многоканальных измерениях импеданса разработаны слабо.

Целью совместных исследований МГТУ имени Н.Э. Баумана и Рейнско-Вестфальского технического университета Ахена (RWTH Aachen University, Germany) в рамках проектов РФФИ – DFG №№ 20-58-12006 и LE 817/41-1 является разработка научных основ и исследование ключевых характеристик технологии многоканальной электроимпедансной миографии для антропоморфного бионического управления.

В данной статье приведены результаты исследований первого года трехлетнего российско-германского проекта, определены планы последующих исследований.

Материалы и методы

Метод электроимпедансной миографии

Физическая сущность метода электроимпедансной миографии состоит в том, что на поверхность области исследования устанавливается система токовых и измерительных электродов. Между токовыми электродами пропускают высокочастотный зондирующий ток низкой интенсивности и, получая сигнал от измерительных электродов, регистрируют возникающую разность электрических потенциалов (рис. 1). Измеряемые значения электрического импеданса несут информацию об электрофизических, биомеханических и иных процессах, связанных с мышечным сокращением и движением конечности.

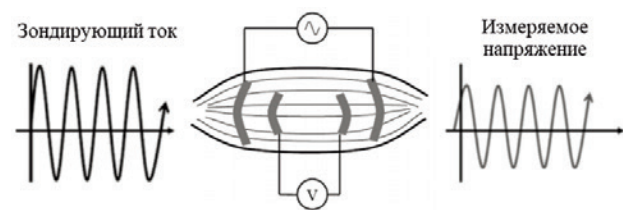


Рис. 1. Концепция измерения электрического импеданса [7].

Проведенные ранее исследования показали возможность получения информации о степени сокращения мышцы [8] и применения данного метода при решении задач бионического управления [7–11]. Основным преимуществом является тот факт, что сигнал электрического импеданса модулирован частотой зондирующего тока, гораздо более высокой по сравнению с электромагнитными наводками, что упрощает его выделение [11] (рис. 2).

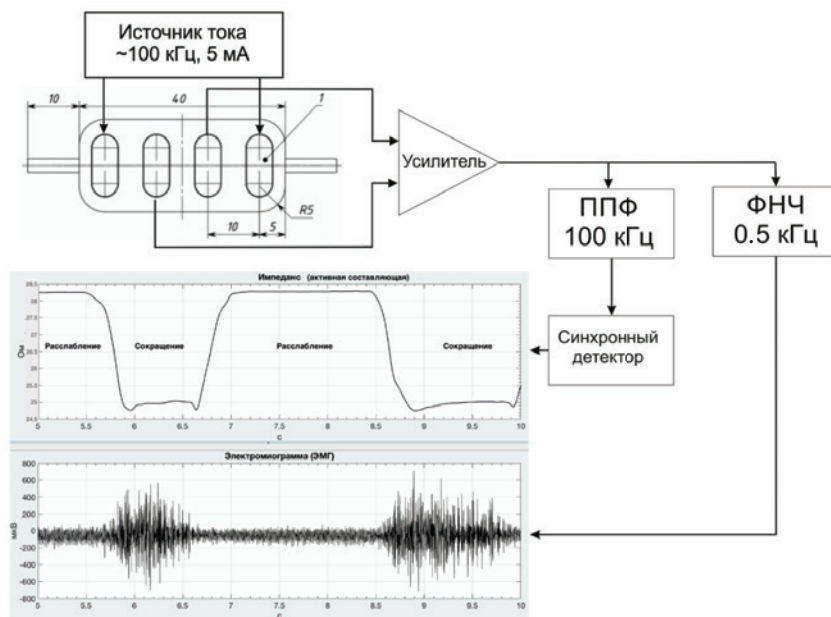


Рис. 2. Принцип регистрации сигнала ЭИМ [8].

Исследование механизмов формирования сигналов электроимпедансной миографии

Биологические ткани конечностей представлены: кожно-жировым слоем; мышцами с сухожилиями и фасциями; мягкими, в основном соединительными, тканями; кровеносными сосудами; костными тканями; костным мозгом. Эти ткани имеют существенно различающиеся удельные сопротивления в диапазоне частот зондирующего тока, как правило, от 50 до 100 кГц. В процессе мышечного сокращения происходит увеличение поперечного сечения мышцы, изменяется глубина и положение проекции мышцы на поверхность кожных покровов, где располагаются электродные системы для измерения электрического импеданса, изменяется взаимоположение мышцы и окружающих биотканей. Кроме того, скелетные мышцы обладают анизотропией электрической проводимости в покое и при сокращении.

Величина электрического импеданса, измеряемого с помощью тетраполярных электродных систем, располагаемых на поверхности кожных покровов в области проекции мышц, и его изменение при сокращении/расслаблении мышцы зависят от всех вышеперечисленных процессов изменения взаимного расположения «электрод – мышца», а также от формы, размеров и удельного электрического сопротивления окружающих тканей и кожно-жирового слоя (рис. 3). Кроме того, утолщение тела мышцы приводит к утоньшению сухожилий, что также приводит к изменению распределения плотности тока в области зондирования. Разобраться в этих процессах возможно, используя многоканальные измерения электрического импеданса и ЭМГ, а также методы ультразвуковых (УЗИ) исследований и магниторезонансную томографию (МРТ).

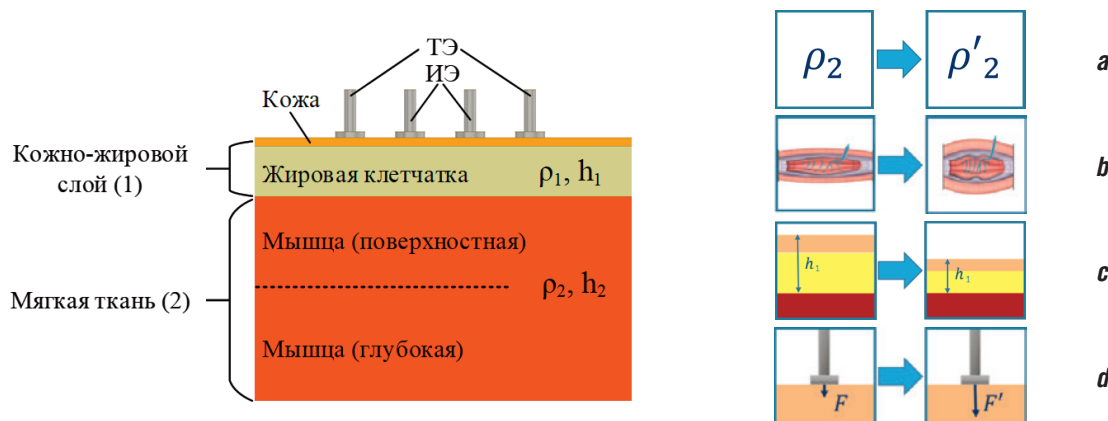


Рис. 3. Механизмы формирования сигналов ЭИМ: изменение удельного сопротивления мышц (а), морфологии мягкой ткани (b), толщины кожно-жирового слоя (с), силы прижатия электродной системы (d).

Проведенные нами МРТ-исследования показали (рис. 4), что сокращение мышц приводит к существенным изменениям изображений как собственно мышц, так и сечения сегмента конечности в целом, контур становился более эллипсоидным. С использованием средств графической оценки контурных параметров по изображениям верхней трети предплечья определено утончение кожно-жирового слоя по всей площади при действиях в среднем примерно 20%.

Динамические УЗИ показали, что при выполнении действий происходит комплексное изменение формы контура группы мышц (рис. 5).

Анализ поведения поверхностных мышц (рис. 6а) допускает возможность применения горизонтально-слоистых моделей формирования электроимпедансных сигналов (при небольших размерах электродных систем по сравнению с характерным размером предплечья) либо слоистых цилиндрических моделей, представленных кожно-жировым слоем и мягкими тканями. Кроме того, исследования показали, что при определении расположения электродной системы относительно активной мышцы необходимо учитывать продольное смещение центра тела мышцы относительно электродной системы при сокращении (рис. 6б).

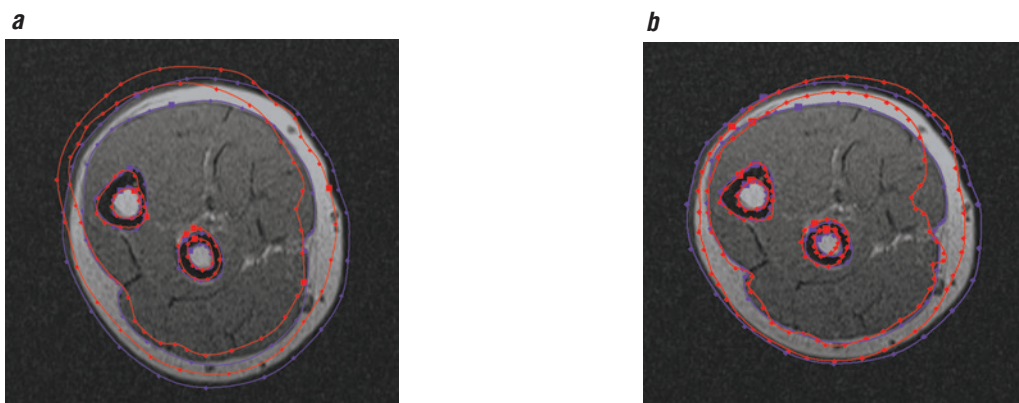


Рис. 4. Изменение морфологии среза верхней трети предплечья: фиолетовый контур – для состояния покоя, красный контур – при действии (а – сгибание, б – разгибание).

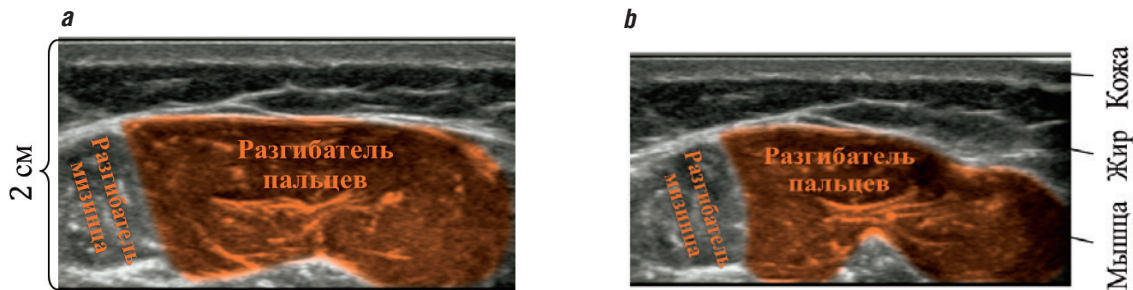


Рис. 5. Поперечное УЗИ верхней трети предплечья области мышц-разгибателей при расслаблении (а) и разгибании (б).

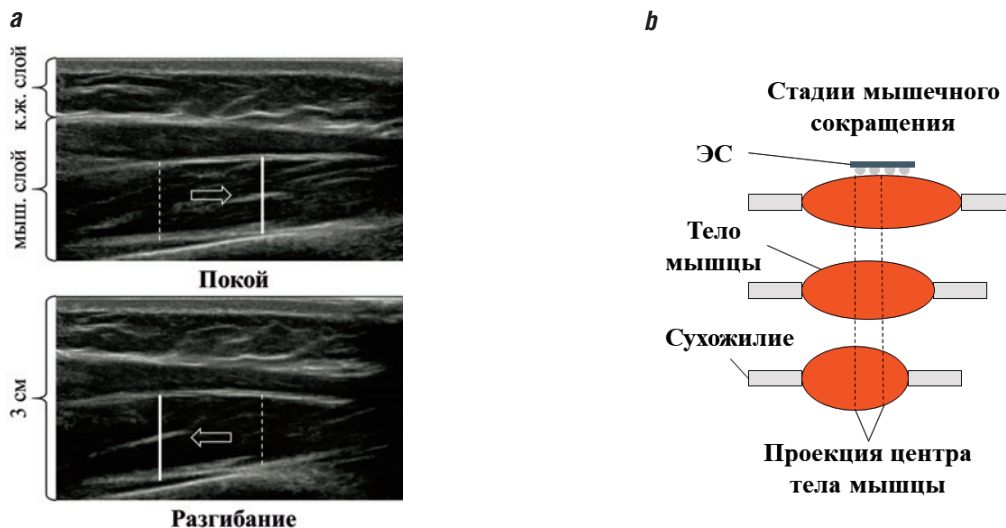


Рис. 6. Продольное смещение центра тела мышц-разгибателей при выполнении действия областью верхней трети предплечья.

На основе проведенных исследований, связанных с оценкой морфологических изменений предплечья посредством динамических УЗИ и МРТ-изображений, установлено, что толщина кожно-жирового слоя уменьшается в процессе сокращения мышцы. Еще одной причиной утоньшения кожно-жирового слоя являются деформации тканей, возникающие при фиксации электродной системы на коже и сокращении мышц. С целью исследования этих процессов в проекте был разработан специальный стенд (рис. 7).

В результате ультразвуковых исследований с привлечением добровольцев установлено, что с

прижатием утончается кожно-жировой слой и изменяются морфологические параметры мышц как в покое, так и при сокращении (рис. 8). Примеры экспериментальных данных изменения толщин кожно-жирового и мышечного слоев испытуемого представлены на рис. 9.

Экспериментально установлено, что при реализации прижатия сначала утончается кожно-жировой слой, причем начиная с определенного значения силы/давления прижатия электродной системы утончение выходит на плато, после чего начинают утончаться преимущественно мышечные ткани.

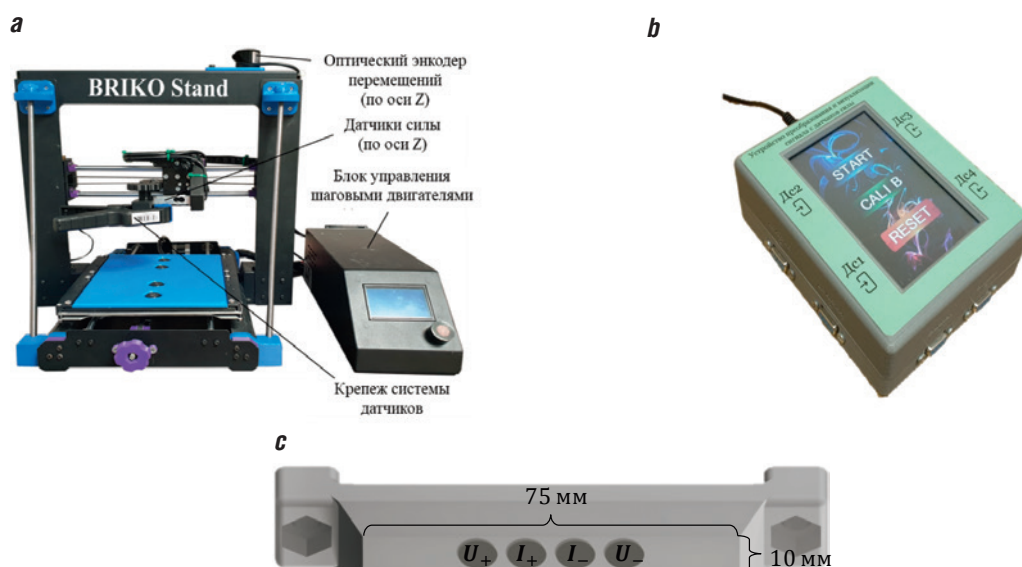


Рис. 7. Стенд прижатия (а), устройство преобразования сигнала (б), электродная система для регистрации электрического импеданса и ЭМГ с межэлектродным расстоянием 10 мм (с).

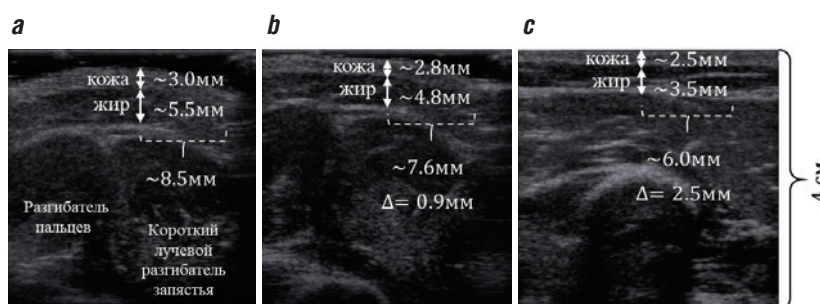


Рис. 8. Пример результатов УЗИ на стенде прижатия: без прижатия в покое (а), без прижатия при разгибании (б), с предельным прижатием в покое (с).

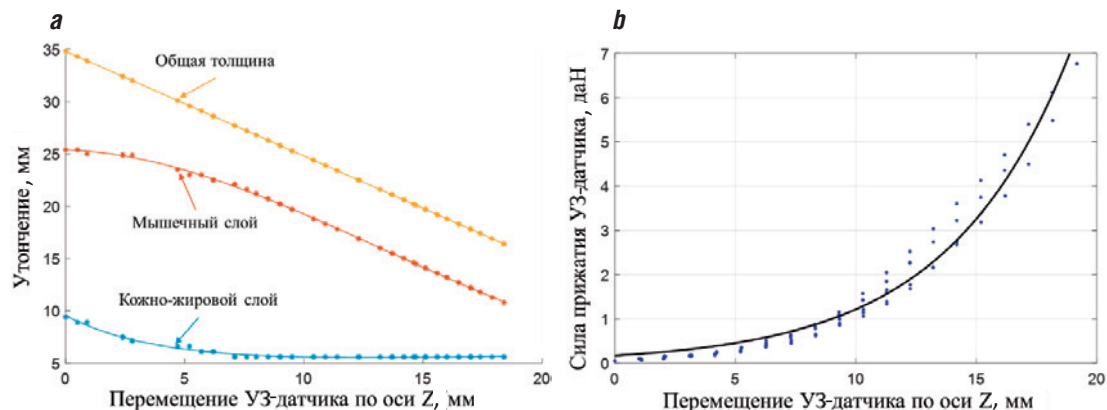


Рис. 9. Зависимость изменения толщин кожно-жирового и мышечного слоев при прижатии датчика (а) и зависимость силы прижатия от перемещения (б).

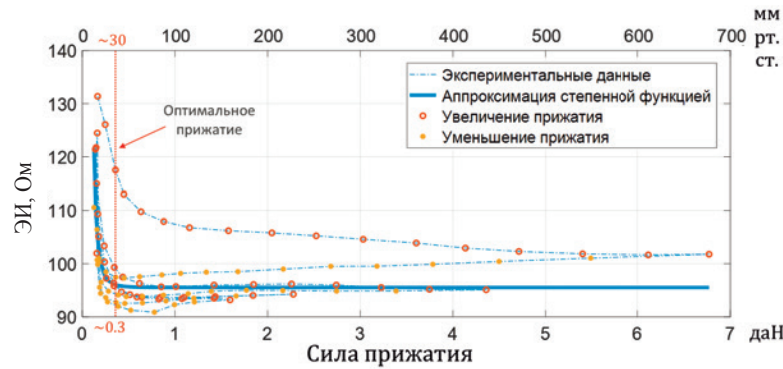


Рис. 10. Зависимость электрического импеданса от прижатия электродной системы.

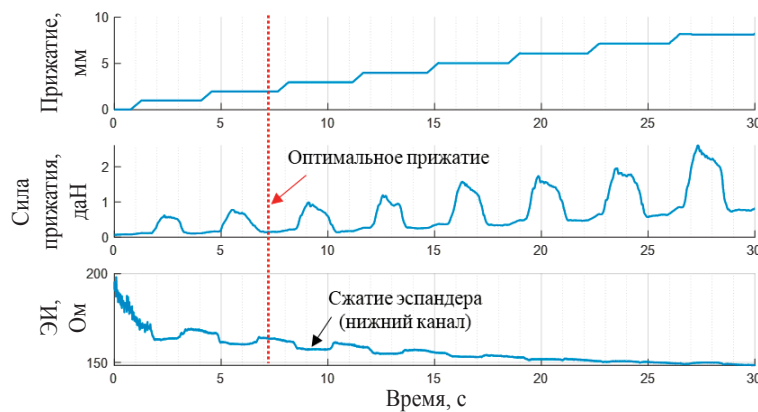


Рис. 11. Экспериментальные данные исследования влияния прижатия электродной системы на сигналы электрического импеданса (ЭИ) при циклическом сжатии кистевого эспандера. Электродная система «нижнего канала» располагалась у локтя в проекциях мышц – сгибателей кисти.

Анализ результатов показал, что оптимальная с точки зрения надежности и воспроизводимости электроимпедансных сигналов сила прижатия, как правило, находится в диапазоне от 0.2 до 0.4 даН, что соответствовало уровням давления под электродной системой от 20 до 40 мм рт. ст. (рис. 10, 11). Изменение электрического импеданса при выполнении действия может менять свое направление в зависимости от силы прижатия электродной системы. При чрезмерном прижатии кожно-жировой слой прекращает утончаться во время действия, тем самым переставая оказывать преобладающее влияние на изменение электрического импеданса. В этом случае последнее может быть связано со вторым фактором – изменением удельного сопротивления мышц.

Исследования характера изменения продольного удельного сопротивления мышцы в процессе ее сокращения показали, что интерпретация результатов отличается в зависимости от области расположения электродных систем. Измерения в проекции центра тела мышцы показывают, что удельное сопротивление мышцы в продольном направлении увеличивается на величину порядка

0.03 Ом·м. Однако утолщение тела мышцы приводит к утоньшению сухожилий, перемещению внеклеточной жидкости и крови в области с меньшим тканевым давлением, что проявляется как уменьшение удельного сопротивления в этих областях на величины того же порядка.

Измеренное *in-vivo* продольное электрическое сопротивление мышечной ткани (1.40–1.53 Ом·м) оказалось сравнимо с данными литературы, полученными на выделенных тканях (от 1.7 до 2.5 Ом·м [12]). Изменения удельного сопротивления мышечной ткани в области тела мышцы и дистальном/проксимальном концах отличались по знаку, причем в области тела мышцы удельное сопротивление, как и ожидалось, увеличивается, а в дистальном/проксимальном – уменьшается. Эксперименты показали, что независимо от расположения электродных систем продольное удельное сопротивление по модулю меняется одинаково (на величину порядка 0.03 Ом·м), что, вероятно, связано именно с мышечным сокращением.

В области дистальных и проксимальных отделов мышцы продольное и поперечное удель-

ное сопротивление уменьшается, при этом степень анизотропии по постоянной составляющей удельного сопротивления составляет

$$\frac{\rho_{\perp}}{\rho_{\parallel}} = \frac{3.57}{1.49} = 2.4 ;$$

а по переменной составляющей и при интенсивном мышечном сокращении

$$\frac{\Delta\rho_{\perp}}{\Delta\rho_{\parallel}} = \frac{0.57}{0.03} = 19.0 .$$

Такое различие в анизотропии в покое и при сокращении может быть связано с влиянием кожи и подкожно-жировой клетчатки. В аналогичных исследованиях *in-vivo* коэффициент анизотропии в покое не превышал 2.0 [12]. Однако при исследовании выделенной мышцы коэффициент анизотропии возрастал до 15.3 [13]. В нашем случае для переменной составляющей удельного сопротивления он составил 19.0. Таким образом, кожа и подкожно-жировая клетчатка не оказывают влияния на результат измерения коэффициента анизотропии проводимости сокращающейся мышцы.

Удельное сопротивление мышечных тканей и кожно-жирового слоя также зависит от их кровообращения, которое связано с параметрами дыхания. В результате проведенных исследований было установлено, что изменения удельного сопротивления кожно-жирового слоя и мышцы в связи с изменениями кровенаполнения составляют порядка 0.001 Ом·м, в связи с дыханием – около 0.010 Ом·м (рис. 12).

Обсуждение

Полученные результаты оценки влияния кожи и подкожно-жировой клетчатки на параметры электроимпедансных сигналов как в покое, так и при сокращении мышц позволяют совершенно по-новому рассматривать широкий спектр неинвазивных и бесконтактных электрофизических измерений. В частности, если ранее укоренилось мнение, что кожно-электродный импеданс может существенно

меняться при прижатии электродов и это, в основном, описывалось в терминах изменения ионной атмосферы в коже, то теперь можно утверждать, что имеются и другие, причем не электрофизические, а биомеханические и физиологические процессы, роль которых существенна, но ранее не анализировалась. К таковым, на наш взгляд, относятся следующие процессы. При прижатии электрода происходит утоньшение слоя подкожно-жировой клетчатки, причем при сдавливании она при небольших давлениях ведет себя как телеобразное тело, не создавая механических напряжений: при этом собственно кожа растягивается и, начиная с определенных уровней деформации, создает механические напряжения, приводящие к возникновению силы противодействия прижимающему электроду. Крайне интересен и тот факт, что полученный диапазон оптимальных давлений прижатия от 20 до 40 мм рт. ст. близок к уровням давления в венах и артериолах, однако если артериолы окружены гладкомышечной оболочкой и являются более жесткими конструкциями, чем вены, то последние легко меняют свой объем, что приводит к выдавливанию венозной крови, лимфы и внеклеточной жидкости из сжатых областей в подкожно-жировую клетчатку. Если при этом учитывать развитую сеть артериальных и венозных сосудов и тот факт, что объем крови в венозном русле в 7–10 раз превышает аналогичный для артериальных сосудов, то становится очевидным, что изменение состава биологических сред при контакте «электрод – кожа» не ограничивается идеями формирования двойного слоя, как в теории равновесных свойств электролитов Дебая – Хюккеля [14]. Кроме того, численная оценка влияния дыхания и пульсового кровенаполнения тканей конечности на удельное сопротивление мышцы показала, что вклад этих процессов не существенен и многие теоретизированные рассуждения на эту тему экспериментально не обоснованы.



Рис. 12. Изменение удельного сопротивления участка предплечья в связи с кровенаполнением и дыханием.

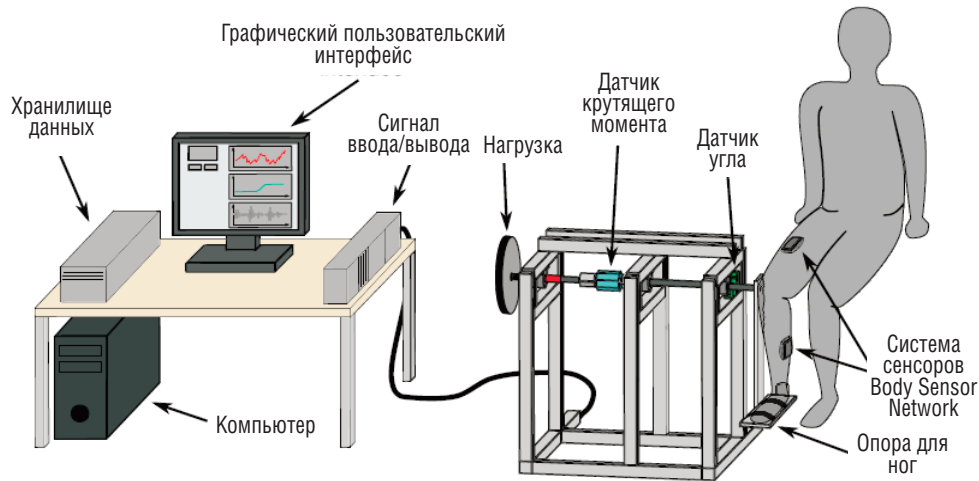


Рис. 13. Схема исследовательской установки MedIT для исследований совместного использования комбинированного нейромышечного интерфейса.

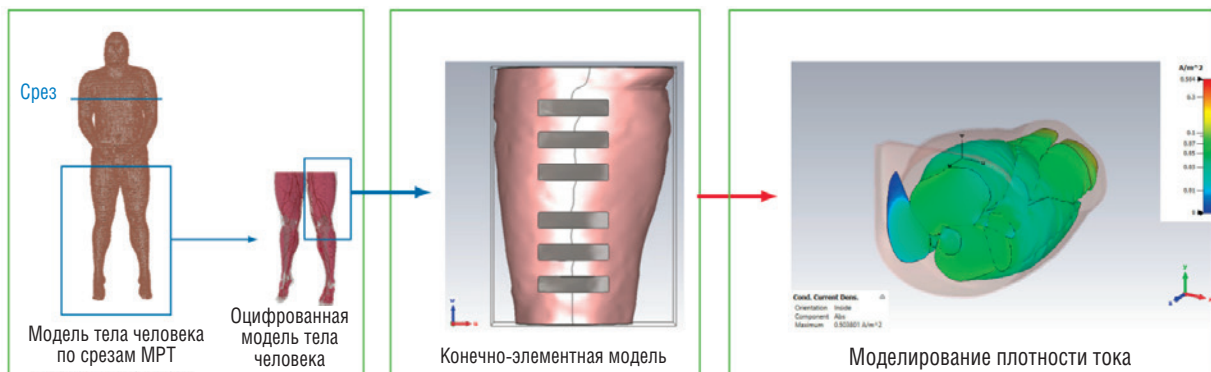


Рис. 14. Процесс параметризации конечно-элементной модели мышечного сокращения.

Заключение

Полученные результаты оценки изменения проводимости мышечных тканей при их сокращении в условиях живого организма (*in-vivo*) пока трудно назвать надежными, однако стало понятно, на какие особенности измерений надо обратить внимание в последующем. Кроме того, численные оценки удельного электрического сопротивления (преимущественно продольного) живых мышц показывают, что существенной доле литературных данных, относящихся к проводимости материала мышечных тканей – именно так корректно называть данные для выделенных и денервированных биологических тканей – доверять при моделировании процессов в живой мышце не приходится.

В первую очередь эти направления исследований планируется углубить, расширить и си-

стематизировать в дальнейших совместных работах, проводимых в том числе на базе исследовательского оборудования MedIT (RWTH, Ахен, Германия), имеющего в своем составе: привод с переменной жесткостью (VSA), Exoskeleton Framework, механический привод вращательного импеданса MeRIA, исследовательскую сеть датчиков тела (BSN) IPANEMA (рис. 13).

После завершения этих, ранее не очевидных, исследований будут получены надежные данные о: удельном сопротивлении мышцы и окружающих тканей; сечении мышцы и ее изменении в процессе сокращения; перемещении мышцы. В дальнейшем эти данные будут использованы при параметризации конечно-элементной модели формирования электроимпедансных сигналов в процессе мышечного сокращения, проводимой немецкими учеными (рис. 14).

Литература

1. T. Platz
Nervenarzt, 2003, 74(10), 841. DOI: 10.1007/s00115-003-1549-7.
2. H. Feys, W. De Weerd, G. Verbeke, G.C. Steck, C. Capiau,

- C. Kiekens, E. Dejaeger, G. Van Hoydonck, G. Vermeersch, P. Cras
Stroke, 2004, 35(4), 924.
DOI: 10.1161/01.STR.0000121645.44752.f7.



3. J. Patton, S.L. Small, W. Zev Rymer
Top. Stroke Rehabil., 2008, 15(6), 521. DOI: 10.1310/tsr1506-521.
4. L. Richards, C. Hanson, M. Wellborn, A. Sethi
Top. Stroke Rehabil., 2008, 15(5), 397. DOI: 10.1310/tsr1505-397.
5. A. Fougner, O. Stavdahl, P.J. Kyberd, Y.G. Losier, P.A. Parker
IEEE Trans. Neural Syst. Rehabil. Eng., 2012, 20(5), 663.
DOI: 10.1109/tnsre.2012.2196711.
6. H.F.N. Al-Shuka, S. Leonhardt, W.-H. Zhu, R. Song, C. Ding, Y. Li
Appl. Bionics Biomech., 2018, 2018, 8203054.
DOI: 10.1155/2018/8203054.
7. S.B. Rutkove
Muscle Nerve, 2009, 40(6), 936.
DOI: 10.1002/mus.21362.
8. А.В. Кобелев, С.И. Шуккин
Физические основы приборостроения, 2019, 8(4), 62.
DOI: 10.25210/jfop-1904-062068.
9. C.A. Shiffman, R. Aaron, S.B. Rutkove
Physiol. Meas., 2003, 24(1), 213.
DOI: 10.1088/0967-3334/24/1/316.
10. B. Sanchez, S.B. Rutkove
Neurotherapeutics, 2017, 14(1), 107.
DOI: 10.1007/s13311-016-0491-x.
11. R. Kusche, M. Ryschka
IEEE Sens. J., 2019, 19(23), 11687.
DOI: 10.1109/JSEN.2019.2936171.
12. T.J.C. Faes, H.A. van der Meij, J.C. de Munck, R.M. Heethaar
Physiol. Meas., 1999, 20(4), R1.
DOI: 10.1088/0967-3334/20/4/201.
13. S. Rush, J.A. Abildskov, R. McFeer
Circ. Res., 1963, 12(1), 40. DOI: 10.1161/01.res.12.1.40.
14. М.В. Волькенштейн
Молекулярная биофизика, СССР, Москва, Наука, 1975, 616 с.

English

Fusion of Electromyogram and Bioimpedance (Electrical Impedance Myography) for Force-Moment Control in Medical Assisted Devices

Sergey I. Shchukin

Bauman Moscow State Technical University
5 2nd Baumanskaya Str., Moscow, 105005, Russia
schookin@bmstu.ru

Alexander V. Koblelev

Bauman Moscow State Technical University
5 2nd Baumanskaya Str., Moscow, 105005, Russia
ak.mail.ru@gmail.com

Yaroslava N. Lipich

Bauman Moscow State Technical University
5 2nd Baumanskaya Str., Moscow, 105005, Russia
lipich.yar@mail.ru

Chuong Ngo

Helmholtz-Institute for Biomedical Engineering at RWTH Aachen
University
Pauwelsstr. 20, D-52074 Aachen, Germany
ngo@hia.rwth-aachen.de

Yuri V. Gulyaev

Kotelnikov Institute of Radioengineering and Electronics, RAS
11-7 Mokhovaya Str., Moscow, 125009, Russia
gulyaev@cplire.ru

Andrey N. Briko

Bauman Moscow State Technical University
5 2nd Baumanskaya Str., Moscow, 105005, Russia
briko@bmstu.ru

Alfred Hülkenberg

Helmholtz-Institute for Biomedical
Engineering at RWTH Aachen University
Schurzelter Str. 570, Room: 2.07, D-52074 Aachen, Germany
huelkenberg@hia.rwth-aachen.de

Steffen Leonhardt

Helmholtz-Institute for Biomedical
Engineering at RWTH Aachen University
Pauwelsstr. 20, D-52074 Aachen, Germany
medit@hia.rwth-aachen.de

Abstract

The paper presents the results of studies aimed at the qualitative and quantitative description of the processes and parameters that affect the amplitude and time characteristics of the electrical impedance myogram. The processes of changes in the thickness and shape of biological tissues of the limb during muscle contraction have been determined. It is shown that when the electrode system is pressed, the skin-fat layer is first thinned, then the muscle tissues; the dependences of the electrical impedance at rest and during muscle contraction on the pressing pressure are obtained. The results of *in-vivo* pilot studies of the magnitude and degree of anisotropy of the electrical conductivity of muscles at rest and with pronounced contraction are presented. An insignificant effect of respiration and pulse blood filling on the conductivity of the resting muscle was shown. The tasks of further research have been clarified.

Keywords: electric impedance, sEMG, neuromuscular interface.

* The work was financially supported by RFBR and DFG (projects 20-58-12006 and LE 817/41-1).

Images & Tables

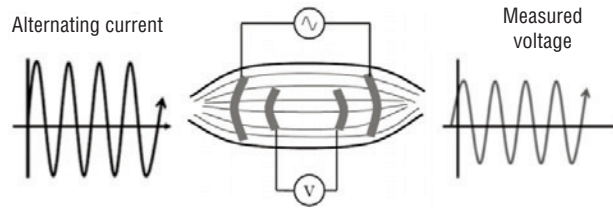


Fig. 1. Electrical impedance measurement [7].

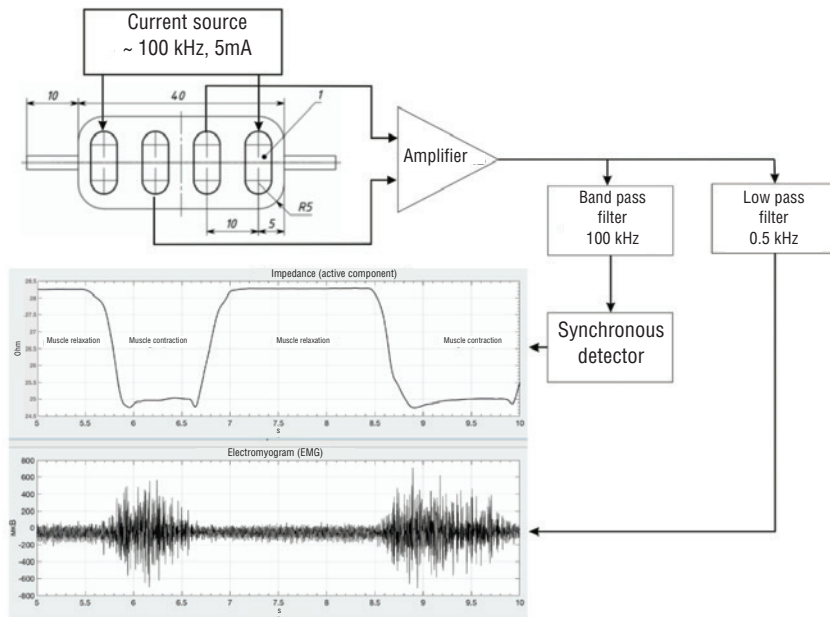


Fig. 2. The principle of registration of the EIM signal [8].

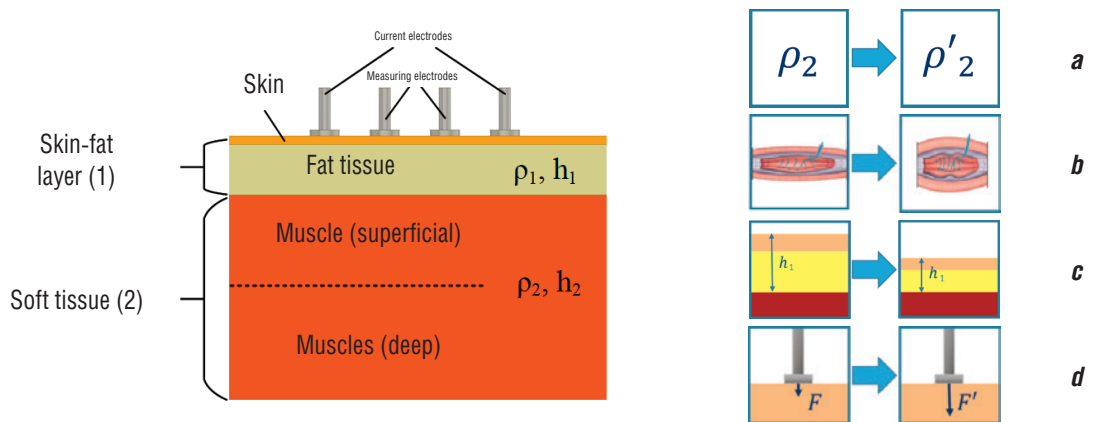


Fig. 3. EIM signal formation mechanisms: changes in muscle resistivity (a), soft tissue morphology (b), thickness of the skin-fat layer (c), pressing force of the electrode system (d).

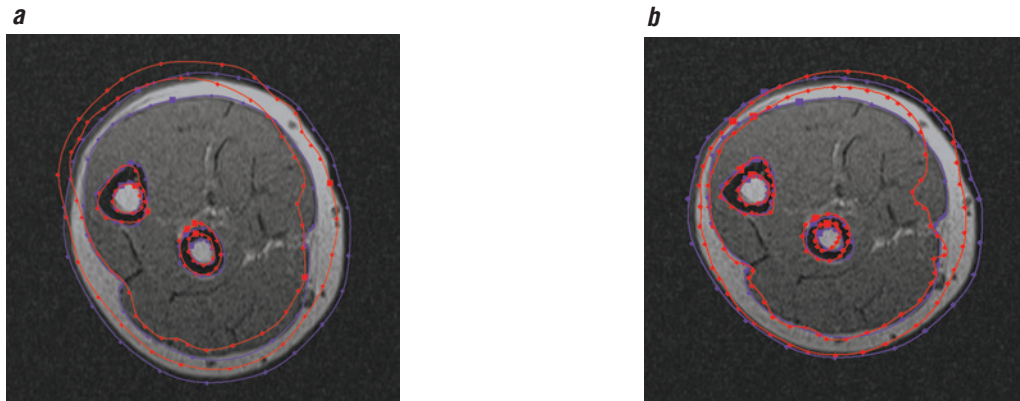


Fig. 4. Change in the morphology of the upper third of the forearm: purple contour – for the state of rest, red contour – during action (a – flexion, b – extension).

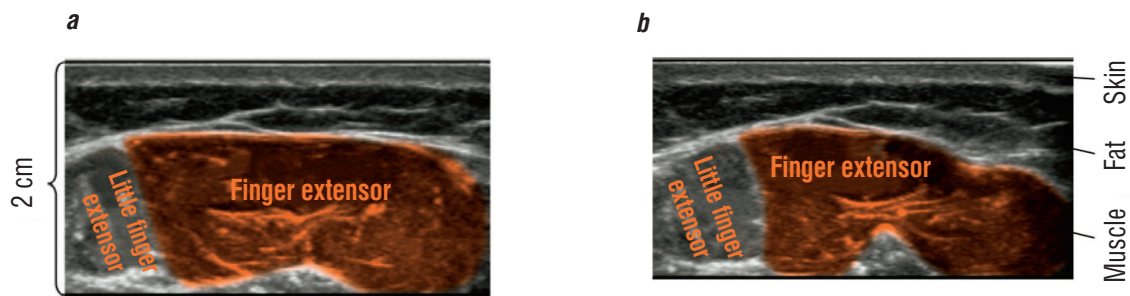


Fig. 5. Transverse ultrasound of the upper third of the forearm of the extensor muscles during relaxation (a) and extension (b).

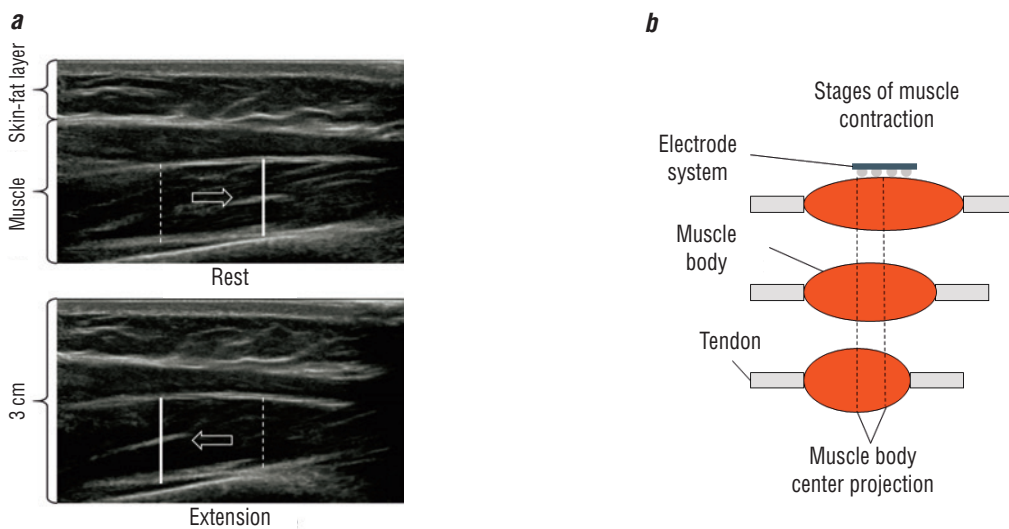


Fig. 6. Longitudinal displacement of the center of the body of the extensor muscles when performing the action of the upper third of the forearm.

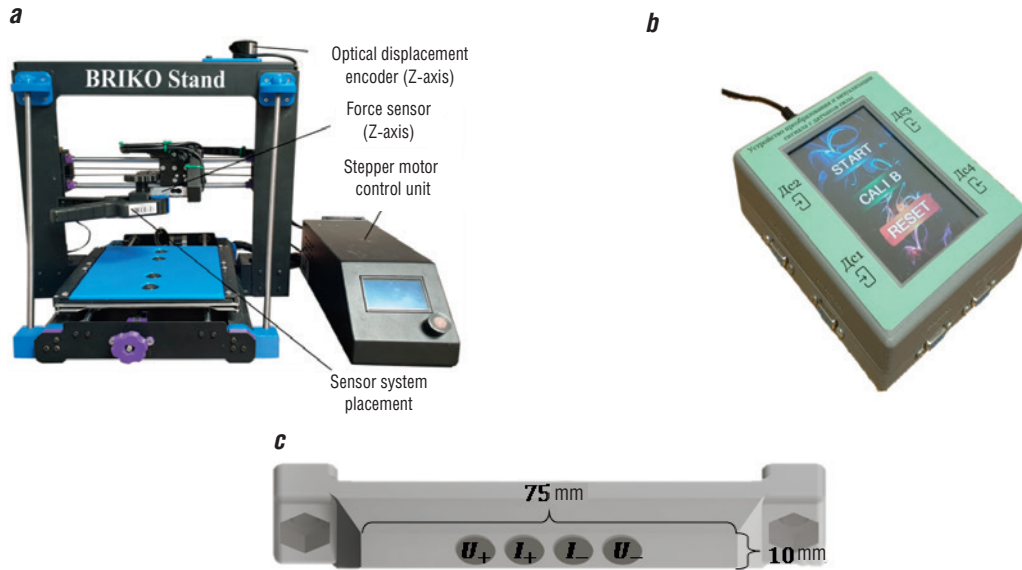


Fig. 7. Pressing stand (a), signal conversion device (b), electrode system for recording electrical impedance and EMG with an interelectrode distance of 10 mm (c).

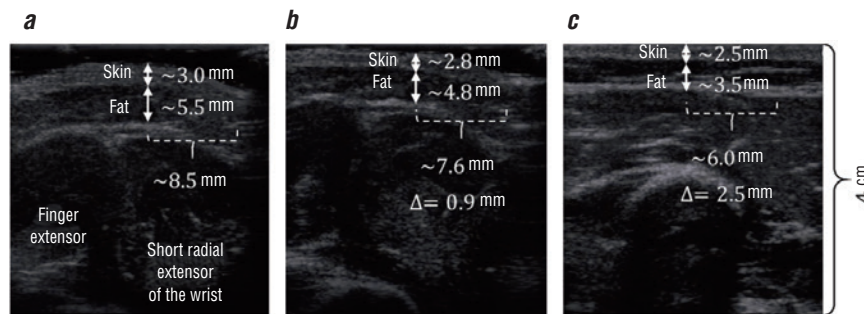


Fig. 8. An example of the results of ultrasound studies on the pressing bench: without pressing at rest (a), without pressing during extension (b), with extreme pressing at rest (c).

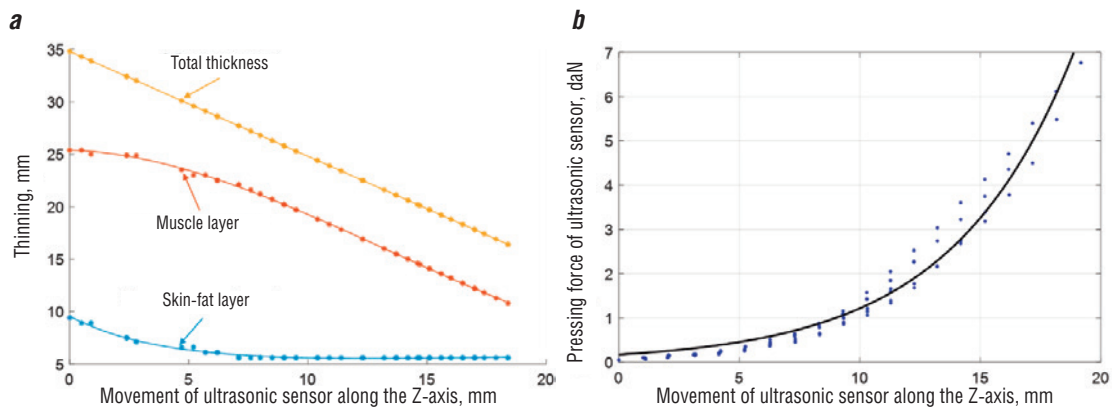


Fig. 9. Dependence of the change in the thickness of the skin-fat and muscle layers when pressing the sensor (a) and the dependence of the pressing force on displacement (b).

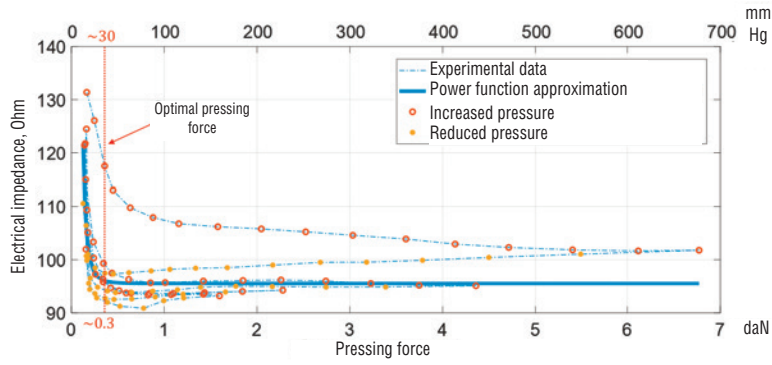


Fig. 10. Dependence of the electrical impedance on the pressing of the electrode system.

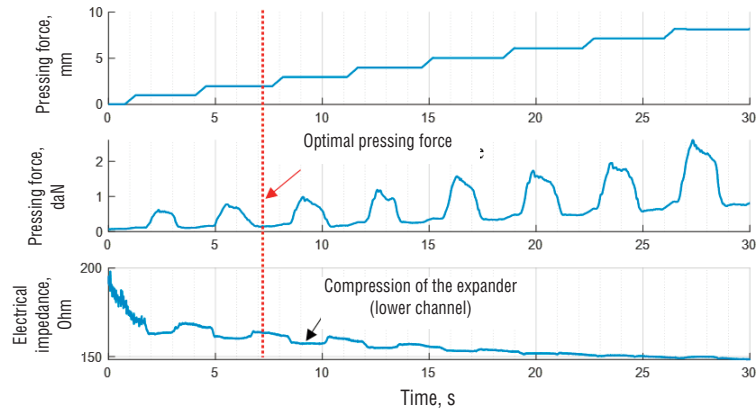


Fig. 11. Experimental data of the study of the effect of pressing the electrode system on the electrical impedance signals during cyclic compression of the wrist expander. The electrode system of the “lower channel” was located at the elbow in the projections of the flexor muscles of the hand.

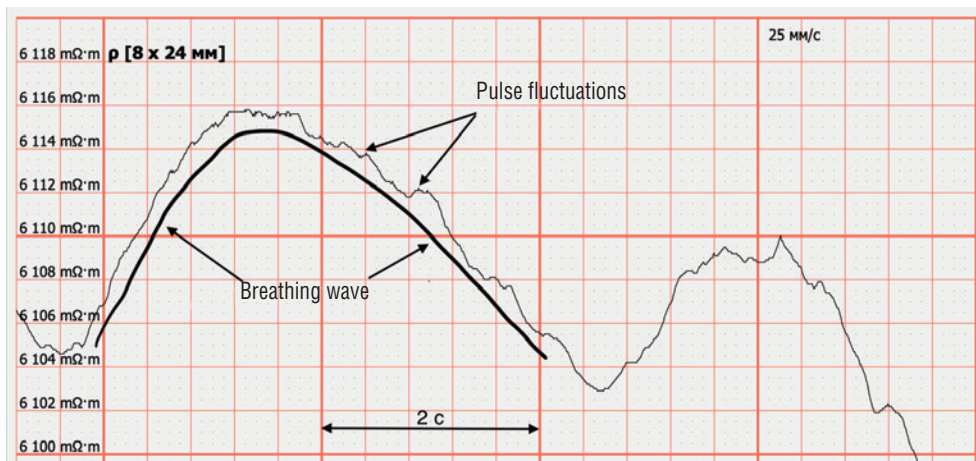


Fig. 12. Change in the resistivity of the forearm area due to blood filling and respiration.

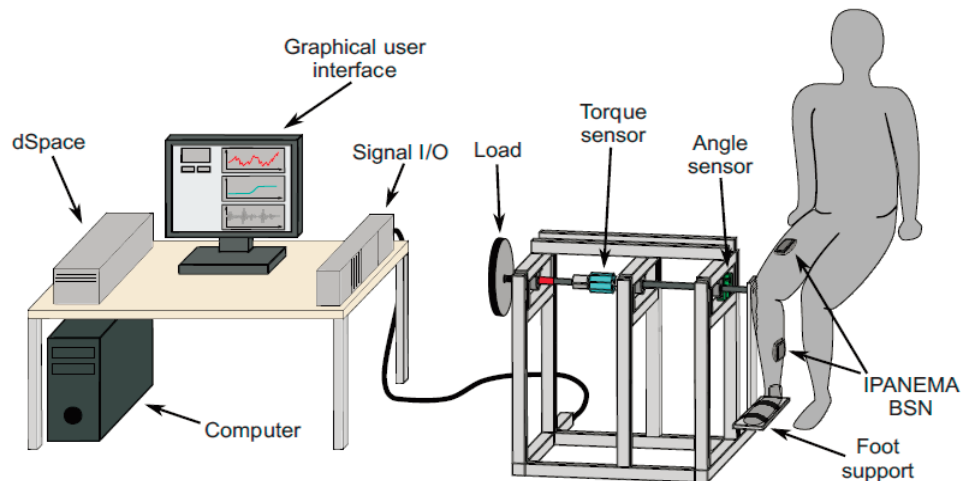


Fig. 13. Diagram of the MedIT research facility (RWTH, Aachen, Germany) for studies of the combined use of a combined neuromuscular interface.

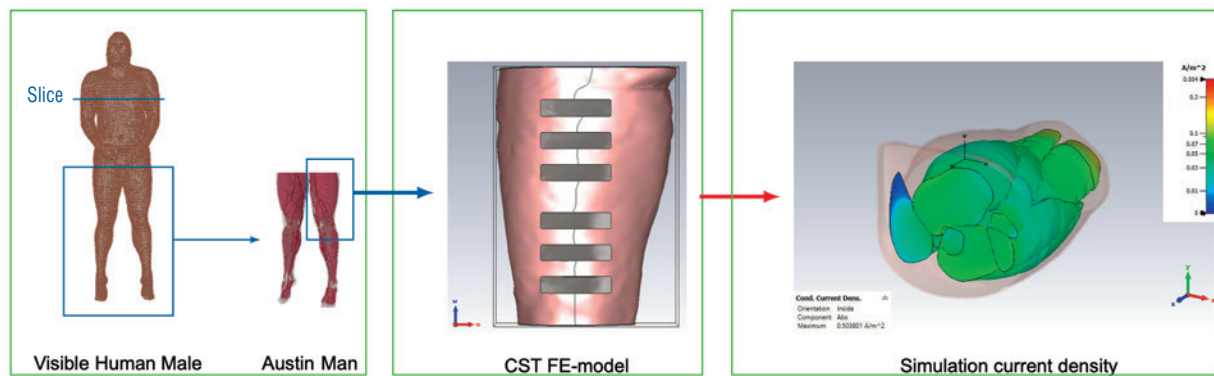


Fig. 14. The process of parametrization of the finite-element model of muscle contraction.

References

1. T. Platz
Nervenarzt, 2003, 74(10), 841. DOI: 10.1007/s00115-003-1549-7.
2. H. Feys, W. De Weerd, G. Verbeke, G.C. Steck, C. Capiau, C. Kiekens, E. Dejaeger, G. Van Hoydonck, G. Vermeersch, P. Cras
Stroke, 2004, 35(4), 924. DOI: 10.1161/01.STR.0000121645.44752.f7.
3. J. Patton, S.L. Small, W. Zev Rymer
Top. Stroke Rehabil., 2008, 15(6), 521. DOI: 10.1310/tsr1506-521.
4. L. Richards, C. Hanson, M. Wellborn, A. Sethi
Top. Stroke Rehabil., 2008, 15(5), 397. DOI: 10.1310/tsr1505-397.
5. A. Fougner, O. Stavadahl, P.J. Kyberd, Y.G. Losier, P.A. Parker
IEEE Trans. Neural Syst. Rehabil. Eng., 2012, 20(5), 663. DOI: 10.1109/tnsre.2012.2196711.
6. H.F.N. Al-Shuka, S. Leonhardt, W.-H. Zhu, R. Song, C. Ding, Y. Li
Appl. Bionics Biomech., 2018, 2018, 8203054. DOI: 10.1155/2018/8203054.
7. S.B. Rutkove
Muscle Nerve, 2009, 40(6), 936. DOI: 10.1002/mus.21362.
8. A.V. Kobelev, S.I. Shchukin
Physical Bases of Instrumentation, 2019, 8(4), 62 (in Russian). DOI: 10.25210/jfop-1904-062068.
9. C.A. Shiffman, R. Aaron, S.B. Rutkove
Physiol. Meas., 2003, 24(1), 213. DOI: 10.1088/0967-3334/24/1/316.
10. B. Sanchez, S.B. Rutkove
Neurotherapeutics, 2017, 14(1), 107. DOI: 10.1007/s13311-016-0491-x.
11. R. Kusche, M. Ryschka
IEEE Sens. J., 2019, 19(23), 11687. DOI: 10.1109/JSEN.2019.2936171.
12. T.J.C. Faes, H.A. van der Meij, J.C. de Munck, R.M. Heethaar
Physiol. Meas., 1999, 20(4), R1. DOI: 10.1088/0967-3334/20/4/201.
13. S. Rush, J.A. Abildskov, R. McFeer
Circ. Res., 1963, 12(1), 40. DOI: 10.1161/01.res.12.1.40.
14. M.V. Volkenshtein
Molecular Biophysics [Molekulyarnaya biofizika], USSR, Moscow, Nauka Publ., 1975, 616 pp. (in Russian).

Траектории научной коллаборации: от публичной лекции к международному проекту

Н.В. Ростиславлева, А. Бауэркемпер

В статье рассматриваются зарождение и развитие научного сотрудничества Российско-германского учебно-научного центра РГУ и Института Фридриха Майнеке (Freie Universität Berlin). Авторы подробно освещают становление и реализацию совместного научного проекта «Безопасность и гражданское общество в России и Германии в годы Первой мировой войны. Соотношение процессов интернирования в России и Германии в 1914–1917 гг.», который был поддержан РФФИ и ННИС (DFG). Проект нацелен на изучение немцев, включая русских немцев, в царской России и российских подданных в Германии в 1914–1917 гг. Особое внимание уделяется проблеме обоюдного восприятия и ответных реакций на политику интернирования и противостоянию репрессиям. Свобода – важнейшая составляющая гражданского общества – при этом была серьезно ограничена или упразднена. Нивелировать такую ситуацию помогали национальные и международные гуманитарные организации, которые оказывали поддержку «враждебным иностранцам» обеих стран. Феномен интернирования в контексте комплекса отношений политики безопасности и элементов гражданского общества в России и Германии – основной фокус проекта.

Ключевые слова: научное сотрудничество, Первая мировая война, Россия, Германия, политика безопасности, гражданское общество, интернирование.

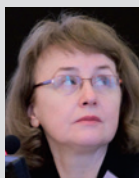
** Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проект № 19-59-12006).*

Любая научная кооперация требует времени для того, чтобы стать успешной. Не является исключением и наше сотрудничество. Личное знакомство руководителей проекта профессора Н.В. Ростиславлевой и профессора А.Бауэркемпера состоялось в 2008 г., однако сотрудничество началось в 2010 г. Весной 2011 г. профессор Института Фридриха Майнеке А. Бауэркемпер выступал в РГУ с лекцией «Политика государственной безопасности в XX в.» (рис. 1). Историк показал, что опыт взаимосвязи и взаимозависимости свободы и безопасности возник уже в XIX в., когда на Западе шел процесс становления гражданского общества, основополагающей потребностью которого были «покой и порядок». Однако интерес к проблемам безопасности личности, как было показано в лекции, возрос лишь в конце XIX в., и это привело к расширению понимания безопасности, осознанию рисков и формированию стратегии превентивной политики. А. Бауэркемпер выделил различные подходы в понимании понятий «свобода» и «безопасность», которые, по его мнению, зависели от хронологи-

ческих периодов и политической конъюнктуры в Европе, подчеркнув при этом роль существующих общественных и политических традиций [1, 2]. Лекция вызвала большой интерес, состоялась оживленная дискуссия. Она показала не только актуальность темы, но и ее большой потенциал для дальнейшего изучения.



Рис. 1. Выступление А. Бауэркемпера с лекцией «Политика государственной безопасности в XX веке», 2011 г.



РОСТИСЛАВЛЕВА
Наталья Васильевна
Российско-германский учебно-научный
центр Российского государственного
гуманитарного университета



БАУЭРКЕМПЕР Арнд
Свободный университет
Берлина, Германия

Новым этапом в сотрудничестве стало проведение совместных научных мероприятий. В 2012 г. при финансовой поддержке Немецкого научно-исследовательского сообщества (DFG) состоялась международная конференция «Культуры безопасности в конце XIX – начале XX вв. в Германии и России/СССР: сравнительное измерение» (рис. 2, 3). В теоретическом плане проблема культуры безопасности была проработана Х. Даазе, который видел ее проявление в противоречии между общественной потребностью в безопасности и способностью государственных и международных акторов эту потребность удовлетворять [3]. Материалы конференции были

опубликованы при финансовой поддержке Германского дома науки и инноваций в Москве (DWIN). В издательстве «Ferdinand Schöningh» (Падерборн, Германия) вышел российско-германский сборник статей «Культуры безопасности: сравнительное измерение. Германия и Россия/СССР в конце XIX – начале XXI вв.» [4]. Он был презентован в марте 2015 г. в РГГУ, а сентябре 2015 г. – в Германо-русском музее «Берлин – Карлсхорст». Как в Германии, так и в России на этот сборник было написано много рецензий, в которых отмечалась своевременность обращения к научному сравнению культур безопасности в Германии и России [5–8].



Рис. 2. Международная научная конференция «Культуры безопасности в конце XIX – начале XXI вв. в Германии и России/СССР: сравнительное измерение», 2012 г.



Рис. 3. Международная научная конференция «Культуры безопасности в конце XIX – начале XXI вв. в Германии и России/СССР: сравнительное измерение», 2012 г.

Дальнейшее сотрудничество было нацелено на выявление новых аспектов изучения культуры безопасности. В процессе обсуждения траекторий влияния гражданского общества на безопасность появилась идея рассмотреть и глубоко изучить данный ракурс в рамках Первой мировой войны. Профессор Н. Катцер, в то время являвшийся директором Германского исторического института в Москве, обратил наше внимание на довольно мало исследованную проблему гуманности в годы Первой мировой войны. В марте 2017 г. при финансовой поддержке Германского исторического института в Москве (DHI Moskau) состоялась международная конференция «Безопасность и проблемы гуманности в России и Германии в годы Первой мировой войны» (рис. 4, 5).



Рис. 4. Международная научная конференция «Безопасность и проблемы гуманности в России и Германии в годы Первой мировой войны», 2017 г.



Рис. 5. Международная научная конференция «Безопасность и проблемы гуманности в России и Германии в годы Первой мировой войны», 2017 г.

Конференция оказалась очень представительной. С российской стороны в ней принимали участие профессор, член-корреспондент РАН В.С. Христофоров (РГГУ), д. и. н., профессор Е.Ю. Сергеев (ИВИ РАН), д. и. н. Г.А. Шатохина (ИВИ РАН), к. и. н. И.К. Богомолов (ИНИОН РАН),

д. и. н., профессор А.Ю. Бахтурина (РГГУ), к. и. н., доцент А.Б. Асташов (РГГУ), д. и. н., профессор Н.В. Ростиславлева, с германской стороны – профессор Н. Катцер (Германский исторический институт в Москве), профессор А. Бауэркемпер (Freie Universität Berlin), профессор Т. Мауер (Гёттингенский университет), профессор С.О. Мюллер (университет Тюбингена). В ходе итоговой дискуссии, которую блестяще модерировал Н. Катцер (рис. 4), было признано, что потребность в безопасности – это не только государственная, но и коллективная, и индивидуальная проблема, а гуманность выступает в качестве универсальной категории, которая имеет региональные и национальные очертания. Определенное напряжение в исследовательский дискурс внесла история эмоций, без которых часто невозможно было объяснить поведенческие реакции акторов. Дискуссии на этой конференции помогли определить фокус будущего совместного проекта и внесли существенные дополнения в его методологию.

В 2017 г. между РГГУ и Институтом Фридриха Майнеке (Freie Universität Berlin) был подписан «Меморандум о взаимопонимании» (Memorandum of Understanding), который предусматривает подготовку совместных проектов, конференций, круглых столов, летних школ, обмен изданиями. Подписание этого документа – важная веха в развитии сотрудничества.

С 2017 г. началась подготовка совместного проекта «Безопасность и гражданское общество в России и Германии в годы Первой мировой войны. Соотношение процессов интернирования гражданского населения воюющих государств в 1914–1917 гг.». Обращение к данной теме было связано не только с наличием хорошего задела, но и с ее невероятной актуальностью, поскольку именно в этой войне государства впервые прибегли к жесткому контролю за «внутренними врагами», в глобальный конфликт были втянуты гражданские лица. Феномен интернирования – это инновация Первой мировой войны. Стремясь обеспечить национальную безопасность и сплотить нацию, сформировав направленное на войну общественное мнение, государство проводило политику ограничения гражданских прав и свобод в воюющих странах, подвергало гражданское население государства-противника конфинированию и интернированию [9; 10, с. 31–46, 199]. Здесь прослеживается определенная реципрокность: интернирование помогало государству добиваться лояльности собственных граждан в ситуации тотальной войны и ограничения их прав и свобод, так как гра-

жданам легче было смириться с этим, имея перед глазами многочисленные лагеря гражданских пленных и депортации. Поскольку дебаты 2014 г. показали [11–13], что процессы интернирования в годы Первой мировой войны до сих пор не изучены должным образом и не получили исследовательскую оценку, то необходимость совместного углубленного изучения феномена гражданско-го плена является настоящей.

Оригинальность настоящего проекта заключается в том, что концепция безопасности выступает в качестве методологического принципа. В теоретическом плане проект опирается на концепцию безопасности Копенгагенской школы изучения международных отношений. Она используется для научных исследований начиная с Нового времени. Согласно данной системе взглядов, политика безопасности является результатом (симметричных и асимметричных) договорных процессов, где значимую роль играют отдельные лица, отстаивающие свои концепции безопасности. Отношение между потребностями безопасности и гражданским обществом рассматривается либо как дополняющее, либо как взаимоисключающее. В планировании и реализации политики безопасности с конца XIX в. возросло значение негосударственных структур и общественных деятелей. Концепция Копенгагенской школы довольно хорошо применима к изучению Первой мировой войны, так как граждане враждебного государства – *enemy aliens* – являются экзистенциальной угрозой только при определенных обстоятельствах, то есть при наступлении войны. Именно поэтому происходит процесс «секьюритизации», то есть перевод обыденных социально-политических явлений в разряд угроз безопасности [10, с. 31, 46, 199; 14, с. 17]. Инструментальный характер для данного проекта имеют методы сравнительного и имагологического анализа, а также приемы трансфера.

Работа над подготовкой заявки была плодотворной, она показала не только возможность интеграции подходов историков России и Германии, но и позволила уже выявить определенную специфику процессов интернирования в России и Германии.

Проект получил поддержку РФФИ и ННИС в конце декабря 2018 г. Его реализация началась тотчас. Был окончательно сформирован научный коллектив, который включал в себя не только признанных ученых – А. Бауэркемпера, А.Ю. Бахтуруину, Н.В. Ростиславлеву, Г. Вурцера – но и молодых исследователей – Х. Бока и

Е.В. Киктеву. Долгосрочная цель проекта – подготовка коллективной монографии «Государственная безопасность и гражданское общество в России и Германии в годы Первой мировой войны: обращение с мирным населением немецкого и русского происхождения, 1914–1918 гг.» («*Staatliche Sicherheit und Zivilgesellschaft in Russland und Deutschland im ersten Weltkrieg. Der Umgang mit Zivilisten deutscher und russischer Abstammung, 1914–1918*»). Исследовательский коллектив был един во мнении, что, прежде чем приниматься за подготовку столь фундаментальной работы, необходимо вынести важнейшие положения на обсуждение научной общественности. Быстро было подготовлено и опубликовано на портале H-Soz-Kult, на сайте проекта и сайте Германского исторического института информационное письмо (Call for Papers) о семинаре (workshop) «Интернирование и депортации гражданского населения России и Германии в годы Первой мировой войны (1914–1917)». Он состоялся в октябре 2019 г. В заседаниях круглого стола приняли участие все члены исследовательского коллектива, а также историки из РГГУ, ИНИОН РАН, ИВИ РАН, Германского исторического института (рис. 6, 7, 8). С приветствием к участникам обратились заместитель начальника международного двустороннего сотрудничества РФФИ С.А. Шеверева и сотрудник Московского офиса ННИС (DFG) Ю. Ильина, которые подчеркнули особую значимость данного проекта для исследования гуманитарных аспектов истории международных отношений. В фокусе исследовательского внимания оказались взаимоотношения власти и гражданского общества, которые по-разному относились к процессу интернирования и депортациям. Гражданское общество России и Германии было обречено на участие в практике интернирования, поскольку оно либо противодействовало ему, либо это происходило при его молчаливом согласии или поддержке. Была поднята проблема подсчета интернированных и конфинированных лиц в России и Германии, затронут вопрос о различии статуса интернированных и конфинированных гражданских лиц. Последующие исследования показали, что статусы «конфинированный» и «интернированный» существовали в Германии [10, с. 31, 46, 199], но это деление не обнаруживается в Российской империи, поскольку в России не было лагерей интернированных, а под интернированием понималась депортация германских подданных, включая русских немцев, из столиц и прифронтовых районов [15].



Рис. 6. Международный круглый стол «Интернирование и депортации гражданского населения России и Германии в годы Первой мировой войны (1914–1917)», 2019 г.



Рис. 7. Международный круглый стол «Интернирование и депортации гражданского населения России и Германии в годы Первой мировой войны (1914–1917)», 2019 г.



Рис. 8. Международный круглый стол «Интернирование и депортации гражданского населения России и Германии в годы Первой мировой войны (1914–1917)», 2019 г.

К открытию круглого стола вышла из печати коллективная монография «Россия и Германия в годы Первой мировой войны: между безопасностью и гуманностью» [16], в которую вошли отдельные главы, посвященные тематике проекта. Монография была опубликована в издательстве РГУ, большую поддержку в ее публикации оказали руководство университета и первый проректор – проректор по научной работе О.В. Павленко. Презентация данной монографии стала частью программы круглого стола и продемонстрировала перспективные возможности science diplomacy. Именно в рамках секционных дискус-

сий и особенно итогового обсуждения результатов круглого стола выявилась настоятельная необходимость провести еще один круглый стол, посвященный проблеме гуманитарных организаций и гуманитарной помощи в годы Первой мировой войны.

Научные командировки немецких исследователей в Россию и российских в Германию и Латвию позволили серьезно расширить спектр эмпирического материала, еще раз обсудить методологические проблемы и решить вопросы организации следующего круглого стола. В связи с началом пандемии общение продолжалось по

переписке и встречах в режиме онлайн. Конечно, невозможность личного общения, посещения зарубежных архивов и библиотек – это серьезный вызов для реализации проекта. Но все участники коллектива в той или иной мере постарались адаптироваться к новой реальности и оказывать друг другу посильную помощь в связи с закрытием границ. Еще год назад трудно было себе представить, как может осуществляться научная коммуникация без фестивализации науки, без продуктивных встреч и обмена мнениями. В этой связи хочется вспомнить научную революцию XVII в., которая протекала в тиши кабинетов и развивалась в основном по переписке. Именно в то время были сделаны выдающиеся открытия И. Ньютона, Р. Декарта, Г.В. Лейбница, которые обрели известность не только в области естественных наук, но и они обращались к гуманитарному знанию – истории и теологии.

Коммуникативные трудности не привели к прекращению работы над проектом. Вопреки всему, семинар «Гуманитарная помощь и гуманитарные организации в России и Германии в годы Первой мировой войны» был проведен в ноябре 2020 г. в смешанном формате (рис. 9). Все немецкие участники и некоторые российские участники подключались к видеоконференции посредством сервиса Zoom, что было сопряжено с серьезными техническими проблемами при организации синхронного перевода. Но, как заметил профессор Бауэркемпер, размышляя над результатами круглого стола: «При данных обстоятельствах – это единственная возможность провести мероприятие, которое в содержательном плане прошло на высоком научном уровне» (рис. 10).



Рис. 9. Международный круглый стол «Гуманитарная помощь и гуманитарные организации в России и Германии в годы Первой мировой войны», 2020 г.

Первый проректор – проректор по науке О.В. Павленко, руководитель департамента экономики и науки М. Фишер, заместитель начальника международного

двустороннего сотрудничества РФФИ С.А. Шеверева, директор Германского исторического института в Москве доктор С. Дальке, руководитель контактного офиса Freie Universität Berlin в Москве Т. Стюдеманн обратились к участникам круглого стола с приветствием и подчеркнули актуальность темы, ее слабую изученность и важность для российско-германского научного сотрудничества.

С докладами выступили почти все участники научного коллектива, а также ученые из МГУ, РГГУ, Красноярского государственного аграрного университета. В итоговой дискуссии, которую профессионально модерировал профессор А. Бауэркемпер, помимо основных докладчиков выступили доктор С. Дальке, профессор Р. Нахтигаль, Е.В. Киктева. Подчеркивалось, что в гуманитарной помощи проявляются не только порывы альтруизма, но утилитарные и прагматические мотивы, которые преследуют и политические цели, поэтому важная линия исследования – связь гуманитарной помощи с национальной пропагандой. Воюющие государства поддерживают гуманитарную помощь, формируя таким образом имидж гуманитарной нации. Дискуссию вызвало такое понятие как «национальная культура войны», которая во многом определялась ментальными вызовами и географическими границами, в которых велась война. Обсуждалась деятельность нейтральных государств, держав-покровительниц и гуманитарных акторов; отмечалось, что оценки тех, кто осуществлял гуманитарную помощь и тех, кто принимал ее, часто не совпадали. Отдельно поднимались вопросы о судьбах семей интернированных в Российской империи, о помощи русских немцев интернированным гражданским лицам из Германской империи и Австро-Венгрии, о необходимости углубленного изучения международно-правовых аспектов деятельности международного и национальных комитетов Красного Креста, о гуманитарной функции почтовой открытки военного времени. Универсальность гуманитарного подхода позволяет сделать вывод, что гуманизм – это феномен гражданского общества.

Материалы круглых столов «Интернирование и депортации гражданского населения в России и Германии в годы Первой мировой войны» и «Гуманитарная помощь и гуманитарные организации в России и Германии в годы Первой мировой войны» уже опубликованы в электронном сборнике «Интернирование и депортации гражданского населения России и Германии в годы Первой мировой войны: политические, социальные и гуманитарные аспекты» [17], что является хорошим заделом для подготовки кол-

лективной монографии. В данной публикации показано, как процесс интернирования гражданского населения регулировался воюющими государствами и как его воспринимали основные акторы гражданского общества России и Германии, какое влияние оказывали эмоции на процессы интернирования и формирования образа врага. Большая часть статей написана на основе архивных документов, многие из которых впервые вводятся в научный оборот. Также серьезное внимание уделено расширению круга

источников, прежде всего источников личного происхождения, которые иллюстрируют восприятие интернированными и конфинированными лицами различных аспектов гражданского плена. Осмысление новых документов и новых аспектов темы в контексте международного сотрудничества продолжается, так как существуют отличия российской и германской исторических школ. Однако уже есть определенная уверенность, что удастся реализовать проект как целостное исследование.



Рис. 10. Международный круглый стол «Гуманитарная помощь и гуманитарные организации в России и Германии в годы Первой мировой войны», 2020 г.

Литература

- 1. А. Бауэркемпер**
В *Россия и Германия в годы Первой мировой войны. Между безопасностью и гуманностью: монография*, отв. ред. А. Бауэркемпер, Н.В. Ростиславлева, РФ, Москва, РГГУ, 2019, с. 11–30.
- 2. А. Бауэркемпер**
В *Sicherheitskulturen im Vergleich: Deutschland und Russland/UdSSR seit dem späten 19. Jahrhundert*, hrsg. von A. Bauerkämper, N. Rostislavleva, FRG, Paderborn, Ferdinand Schöningh, 2014, S. 7–34.
- 3. С. Даасе**
Aus Politik und Zeitgeschichte, 2010, 50, 9.
- 4. Sicherheitskulturen im Vergleich: Deutschland und Russland/UdSSR seit dem späten 19. Jahrhundert**, hrsg. von A. Bauerkämper, N. Rostislavleva, Germany, Paderborn, Ferdinand Schöningh, 2014, 257 S.
- 5. М. Миршел**
H-Soz-Kult, 13.03.2015.
(www.hsozkult.de/publicationreview/id/reb-21634).
- 6. S. Keil**
Jahrbücher für Geschichte Osteuropas, 2017, 2.
(<https://www.recensio.net/rezensionen/zeitschriften/jahrbucher-fur-geschichte-osteuropas/jgo-e-reviews-2017/2/ReviewMonograph433283562>).
- 7. T. Speckmann**
Frankfurter Allgemeine Zeitung, Besprechung von 04.02.2015.
(https://www.buecher.de/shop/militaergeschichte/sicherheitskulturen-im-vergleich/bauerkemper-arnd-rostislavleva-natalia/products_products/detail/prod_id/40877814/).
- 8. А.Г. Матвеева**
Новая и Новейшая история, 2016, № 2, 211.
- 9. Н.В. Ростиславлева**
Новый исторический вестник, 2020, № 3(65), 79.
- 10. M. Stibbe**
Civilian Internment during the First World War: A European and Global History, 1914–1920, UK, London, Palgrave Macmillan, 2019, 335 pp.
DOI: 10.1057/978-1-137-57191-5.
- 11. А. Филитов**
Российская история, 2017, № 4, 103.
- 12. С. Clark**
The Sleepwalkers. How Europe Went to War in 1914, UK, London, Allen Lane, 2012, 736 pp.
- 13. А. Kramer**
J. Mod. Eur. Hist., 2014, 12(1), 5.
DOI: 10.17104/1611-8944_2014_1_5.

14. **B. Buzan, O. Waever, J. de Wilde**
Security: A New Framework for Analysis, USA, CO, Boulder, Lynne Rienner Publishers, 1998, 239 pp.
15. **А.Ю. Бахтурина**
В Россия и Германия в годы Первой мировой войны. Между безопасностью и гуманностью, отв. ред. А. Бауэркемпер, Н.В. Ростиславлева, РФ, Москва, РГГУ, 2019, с. 177–204.
16. *Россия и Германия в годы Первой мировой войны. Между безопасностью и гуманностью*, отв. ред. А. Бауэркемпер, Н.В. Ростиславлева, РФ, Москва, РГГУ, 2019, 376 с.

17. *Интернирование и депортации гражданского населения России и Германии в годы Первой мировой войны: политический, социальный и гуманитарный аспекты: Мат. межд. круглых столов 17–18 октября 2019 г. и 26 ноября 2020 г.*, РФ, Москва, РГГУ, 2020, 199 с.
(https://www.rsuh.ru/upload/main/international/drz/Сборник_материалов_Интернирование_и_депортации.pdf).

English

Trajectories of Scientific Collaboration: from a Public Lecture to the Joint Research Project

Natalia V. Rostislavleva

German-Russian Center for Study and Research of Russian State
University for the Humanities
6 Miussskaya Sq., Moscow, 125993, Russia
ranw@mail.ru

Arnd Bauerkämper

Freie Universität Berlin
Koserstr. 20, 14195 Berlin-Dahlem, Germany
baue@zedat.fu-berlin.de

Abstract

The article deals with the genesis and development of scientific cooperation between the Russian-German Center for Study and Research of the RSUH and the Friedrich Meinecke Institut Freie Universität Berlin. In particular, it traces the emergence and development of the joint research project “Security and Civil Society in Russia and Germany during the First World War. The Internment of Civilian “Enemy Aliens” in the Bilateral Relationship, 1914–1917”. This project has been supported by RFBR and DFG. It aims to investigate the Germans, including the Russian Germans, in Russia and Russian citizens in Germany from 1914 to 1917. Apart from comparison, we have paid attention to the mutual perceptions of and responses to the internment policy as well as to opposition against repressions. Civil liberties as an important component of civil society were largely restricted or even abolished. Yet national and international humanitarian organizations supported the civilian “enemy aliens” in the two countries. The main focus of project is on internment in the context of the complex relationship between security policy and elements of civil society.

Keywords: scientific collaboration, First World War, Russia, Germany, security policy, civil society, internment.

* *The work was financially supported by RFBR and DFG (project 19-59-12006).*

Images & Tables



Fig. 1. Prof. Bauerkämper's lecture “Security Politics in the 20th Century”, 2011.



Fig. 2. International scientific conference “Cultures of Security since the Late 19th Century. Germany and Russia / USSR in Comparison”, 2012.



Fig. 3. International scientific conference “Cultures of Security since the Late 19th Century. Germany and Russia / USSR in Comparison”, 2012.



Fig. 4. International scientific conference “Security and Humanity in Russia and Germany in the First World War”, 2017.



Fig. 5. International scientific conference “Security and Humanity in Russia and Germany in the First World War”, 2017.



Fig. 6. International workshop “Internment and Deportations of Civilians in Russia and Germany during the First World War (1914–1917)”, 2019.



Fig. 7. International workshop “Internment and Deportations of Civilians in Russia and Germany during the First World War (1914–1917)”, 2019.



Fig. 8. International workshop “Internment and Deportations of Civilians in Russia and Germany during the First World War (1914–1917)”, 2019.



Fig. 9. International workshop “Humanitarian Supplies and Humanitarian Organisations in Russia and Germany during the First World War”, 2020.



Fig. 10. International workshop “Humanitarian Supplies and Humanitarian Organisations in Russia and Germany during the First World War”, 2020.

References

1. **A. Bauerkämper**
In *Russia and Germany during the First World War. Between Security and Humanity [Rossiya i Germaniya v gody Pervoy mirovoy voyny. Mezhdru bezopasnostyu i gumannostyu]*, RF, Moscow, RGGU, 2019, pp. 11–30 (in German).
2. **A. Bauerkämper**
In *Sicherheitskulturen im Vergleich: Deutschland und Russland/UdSSR seit dem späten 19. Jahrhundert*, hrsg. von A. Bauerkämper, N. Rostislavleva, FRG, Paderborn, Ferdinand Schöningh, 2014, S. 7–34.
3. **C. Daase**
Aus Politik und Zeitgeschichte, 2010, 50, 9.
4. *Sicherheitskulturen im Vergleich: Deutschland und Russland/UdSSR seit dem späten 19. Jahrhundert*, hrsg. von A. Bauerkämper, N. Rostislavleva, Germany, Paderborn, Ferdinand Schöningh, 2014, 257 S.
5. **M. Mirschel**
H-Soz-Kult, 13.03.2015. (www.hsozkult.de/publicationreview/id/reb-21634).
6. **S. Keil**
Jahrbücher für Geschichte Osteuropas, 2017, 2.
(<https://www.recensio.net/rezensionen/zeitschriften/jahrbucher-fur-geschichte-osteuropas/jgo-e-reviews-2017/2/ReviewMonograph433283562>).
7. **T. Speckmann**
Frankfurter Allgemeine Zeitung, Besprechung von 04.02.2015.
(https://www.buecher.de/shop/militaergeschichte/sicherheitskulturen-im-vergleich/bauerkaemper-arnd-rostislavleva-natalia/products_detail/prod_id/40877814).
8. **A.G. Matveeva**
Modern and Contemporary History [Novaya i Noveyshaya istoria], 2016, № 2, 211 (in Russian).
9. **N.V. Rostislavleva**
The New Historical Bulletin [Novyy istoricheskiy vestnik], 2020, № 3(65), 79 (in Russian).
10. **M. Stibbe**
Civilian Internment during the First World War: A European and Global History, 1914–1920, UK, London, Palgrave Macmillan, 2019, 335 pp.
DOI: 10.1057/978-1-137-57191-5.
11. **A. Filitov**
Russian History [Rossiyskaya istoriya], 2017, № 4, 103 (in Russian).
12. **C. Clark**
The Sleepwalkers. How Europe Went to War in 1914, UK, London, Allen Lane, 2012, 736 pp.
13. **A. Kramer**
J. Mod. Eur. Hist., 2014, 12(1), 5.
DOI: 10.17104/1611-8944_2014_1_5.
14. **B. Buzan, O. Waever, J. de Wilde**
Security: A New Framework for Analysis, USA, CO, Boulder, Lynne Rienner Publishers, 1998, 239 pp.
15. **A.Yu. Bakhturina**
In *Russia and Germany during the First World War. Between Security and Humanity [Rossiya i Germaniya v gody Pervoy mirovoy voyny. Mezhdru bezopasnostyu i gumannostyu]*, RF, Moscow, RGGU, 2019, pp. 177–204 (in Russian).
16. *Russia and Germany during the First World War. Between Security and Humanity [Rossiya i Germaniya v gody Pervoy mirovoy voyny. Mezhdru bezopasnostyu i gumannostyu]*, RF, Moscow, RGGU, 2019, 376 pp. (in Russian & German).
17. *Internierung und Deportationen der Zivilangehörigen Russlands und Deutschlands im Ersten Weltkrieg: Politische, Soziale und Humanitäre Aspekte (Proc. Int. Workshops, 17–18 October 201, and 26 November 2020) [Internment and Deportation of Civilians in Russia and Germany during the First World War: Political, Social and Humanitarian Aspects]*, RF, Moscow, RGGU Publ., 2020, 199 pp. (in Russian & German).
(https://www.rsuh.ru/upload/main/international/drz/Сборник_материалов_Интернирование_и_депортации.pdf).

Культура нью-эйджа в СССР и постсоветской России

Б. Менцель, А.А. Панченко

Статья посвящена основным исследовательским находкам, полученным в ходе работы над совместным российско-немецким проектом «Новые формы религиозной культуры в позднем СССР и постсоветской России: идеология, формы социальной организации, дискурсы». Результаты наших исследований позволяют утверждать, что культура нью-эйджа формирует новую религиозную онтологию, где на место богов, ангелов и демонов приходят инопланетяне, «духовные учителя», «реликтовые гоминоиды» и полтергейсты. Эта онтология связана с холистической концепцией мироздания и личности, где стираются привычные для новоевропейской культуры границы между материальным и духовным, индивидуальным и коллективным, человеческим телом и окружающим миром.

Ключевые слова: нью-эйдж, религиозная онтология, стигматизированное знание, СССР, постсоветская Россия.

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ – DFG (проект № 18-509-12017).

В этой статье мы расскажем об основных исследовательских находках и результатах, полученных в ходе работы над совместным российско-немецким проектом «Новые формы религиозной культуры в позднем СССР и постсоветской России: идеология, формы социальной организации, дискурсы». Более подробно о нашем проекте можно узнать не только из академических публикаций его участников, но и присоединившись к нашему исследовательскому блогу «*New Age in Russia: Ideologies, Networks, Discourses*» (<https://newageru.hypotheses.org/>).

Проект посвящен социально-антропологическому изучению новых форм религиозной культуры, получивших глобальное распространение в конце XX – начале XXI вв. и обозначаемых в современной научной литературе термином «нью-эйдж». Несмотря на кажущуюся разнородность и даже противоречивость идей, верований и практик нью-эйджа, они могут быть исследованы как части единой «эзотерической» культуры, обладающей внутренней логикой и прямо обусловленной глобальными социальными процессами. Внимание исследовательского коллектива сосредоточено на истории и социальных особенностях культуры нью-эйджа в СССР 1960-х – 1980-х гг. и постсоветской России. Мы пытаемся ответить на вопрос, какими именно факторами определялись генезис и эволюция идей и практик нью-эйджа в

советской культуре. Проект также подразумевает исследование культуры нью-эйджа в контексте социально-идеологической преемственности между поздней советской и постсоветской эпохами, а также общественной функции идей и практик нью-эйджа в современной России.

Новая онтология и новая агентность

В качестве самоназвания (то есть «эмической» категории) словосочетание *New Age* восходит к астрологическому обозначению «эры Водолея» (*the Age of Aquarius*), связанному с ожиданиями новой исторической эпохи, когда резко изменяются психические и физиологические возможности человека. Генезис этой культуры принято проследить по крайней мере с рубежа XIX и XX вв. (в частности, в связи с эволюцией спиритизма, теософии, антропософии и ряда других мистико-эзотерических учений и практик), однако ее глобальное и массовое распространение относится к последним десятилетиям XX в.

В узком смысле под нью-эйджем обычно понимают верования и практики хилиастического и эсхатологического характера, сформировавшиеся в «контркультурной» среде Западной Европы и США в 1960-е гг. [1, с. 96–97]. Более широкое понимание культуры нью-эйджа включает разнообразный набор верований и практик, ориентированных на расширение физиологии-



МЕНЦЕЛЬ Биргит
Майнцский университет
им. Иоганна Гутенберга,
Германия



ПАНЧЕНКО
Александр Александрович
Институт русской литературы
(Пушкинский дом) РАН,
Европейский университет
в Санкт-Петербурге

ческих возможностей и своего рода технологизацию человеческого тела (экстрасенсорное восприятие, телепатия и телекинез, альтернативная медицина и «духовное целительство»), духовную и этическую трансформацию человека и общества, взаимодействие с воображаемыми сверхчеловеческими агентами и трансперсональными силами (инопланетяне, «духовные учителя», «галактическое сознание», «энергетические поля» и т. д.) при помощи особых психофизических техник, главным образом – так называемого «ченнелинга» [1, с. 23–41; 2]. В целом идеология нью-эйджа была ориентирована на сущностное моральное перерождение человеческой индивидуальности путем самосовершенствования и достижение принципиально новых – гармонических – социальных отношений. К числу характерных мировоззренческих особенностей культуры нью-эйджа относится так называемый «холистический принцип», подразумевающий целостность вселенной, взаимную обусловленность всех происходящих в ней процессов, а также неразрывную связь между микрокосмом и макрокосмом, то есть человеком и мирозданием, описываемую в конвенциональных «естественнонаучных» терминах, в частности – как действие воображаемых энергий и полей. Кроме того, одним из ключевых аспектов эпистемологии нью-эйджа является «сциентизм» [3, с. 201–330] – использование социального образа науки и рационального знания в целом, а также научных и паранаучных дискурсов для конструирования религиозных метафор, нарративных моделей и практик.

Говоря о нью-эйдже как о религиозной культуре, следует иметь в виду, что в последние годы термин «религия» воспринимается многими исследователями как не слишком «удобный» или операциональный. Современные антропологи нередко считают его «европоцентричным», генеалогически связанным с историей христианства и культурой Нового времени. Использование оппозиции «религиозное» / «секулярное» применительно к не христианским и не европейским культурам зачастую лишь мешает понять их особенности [4]. Дело, впрочем, не только в отказе от эссенциалистского и внеисторического понимания религии, но и в тех смыслах, которые мы вкладываем в этот термин. «Онтологический поворот» и когнитивные исследования в современной антропологии религии перенесли внимание исследователей на особенности не- или сверхчеловеческих агентов, с которыми взаи-

модействуют люди, принадлежащие к разным обществам и культурам. В этом смысле нью-эйдж строит новую религиозную онтологию, где на место богов, ангелов и демонов приходят инопланетяне, «духовные учителя», «реликтовые гоминоиды» и полтергейсты. Специфику этой онтологии еще предстоит описать исследователям, однако важно, что она связана с вышеупомянутой холистической концепцией мироздания и личности, где стираются привычные для новоевропейской культуры границы между материальным и духовным, индивидуальным и коллективным, человеческим телом и окружающим миром. Центральное место в этой онтологии занимает представление о «холистической личности», резко расширяющее ожидаемые возможности любого человека вне зависимости от его положения в обществе, образовательного и экономического статуса и т. п. К числу нью-эйджерских концепций такого рода относится идеология «человеческого потенциала», декларирующая задачи персонального роста и скрытых экстраординарных способностей. На практике этот сдвиг описывается в терминах «паранормальных» способностей к экстрасенсорному восприятию, телепатии и телекинезу, ченнелингу и духовному целительству. Нью-эйдж, таким образом, формирует не только новое мировоззрение, но и новые ритуальные, поведенческие и социальные практики. Наконец, достаточно важную роль в культуре нью-эйджа играют экологически ориентированные идеи, также основанные на холистическом мировоззрении, отказывающемся от нарочитого антропоцентризма и опять-таки стирающем границы между человеком и природным миром.

Впрочем, новизна, о которой мы говорим, конечно, несколько относительна. Так, скажем, истории о похищении людей инопланетянами (*alien abduction narratives*), составлявшие заметную часть культуры нью-эйджа и на Западе, и в СССР, можно анализировать, как это некогда делал американский исследователь Дэвид Хаффорд [5], в контексте психосоматического опыта «сонного паралича» и сопоставлять с довольно широким спектром верований и нарративов, известных в самых разных культурах – от рассказов о домовом, «душившем» во сне русских крестьян, до историй об инкубах и суккубах в «Молоте ведьм» [6]. Однако единство человеческого опыта и типологическое сходство его культурных репрезентаций не отменяют появления новых социальных и когнитивных моделей, на которых основывается нью-эйдж.

«Пси-войны», «народная дипломатия», новые религиозные движения и массовая культура

На Западе нью-эйдж 1960-х – 1970-х гг. был формой социального и культурного протеста и вместе с тем своеобразным эсхатологическим движением. В странах советского блока он скорее выглядел как технократическая или «техногностическая» утопия, но вместе с тем тоже был своего рода протестной идеологией, противостоящей официозу. Любопытно при этом, что в СССР этими идеями увлекались не только «инженерно-технические работники», но и многие представители университетской и академической элиты, художники, писатели и музыканты. Особую роль в эволюции советского нью-эйджа, где, как и на Западе, были особенно значимы ориенталистские идеи и интересы, играли профессиональные востоковеды. Иногда о советском нью-эйдже пишут как о своего рода культурном импорте, то есть простом копировании западных идей, концепций и практик. Нам, однако, представляется, что речь должна идти скорее о параллельном развитии и взаимном влиянии этой культуры в США, СССР и Европе. О взаимном интересе и влиянии свидетельствует, например, книга американских журналисток Шейлы Острандер и Линн Шредер «Психические открытия за железным занавесом» [7], послужившая стимулом к контактам и сотрудничеству между американскими и советскими парапсихологами и экстрасенсами. Это сотрудничество, в котором заметную роль играл Институт Эсален – одна из американских нью-эйджерских организаций, – было одной из первых форм «народной дипломатии» между Западом и Востоком на излете Холодной войны. При этом «паранормальными способностями» интересовались и американские, и советские спецслужбы, так что обе стороны собирались использовать экстрасенсорную силу далеко не только в мирных целях и пытались вести своего рода «пси-войны». В России этот «боевой нью-эйдж» дожил до эпохи Б.Н. Ельцина [8].

Одна из первых социологических моделей нью-эйджа была предложена в 1972 г. британским исследователем Колином Кэмпбеллом в работе «Культ, культовая среда и секуляризация» [9]. Речь здесь шла о «культовой среде» (*the cultic milieu*) как о социальных сетях, служащих средством культурной инновации и диффузии альтернативных религиозных практик и паранаучных доктрин. По наблюдению Кэмпбелла, эти сети не тяготели к образованию устойчивых структур и институций и были объединены об-

щей идеологией «духовного поиска» и медиальным контекстом (журналы, памфлеты, лекции, неформальные собрания и т. п.). Не останавливаясь подробно на вопросах генезиса «культовой среды», Кэмпбелл подчеркивал ее альтернативный и отчасти стигматизированный статус в современном западном обществе и вместе с тем «адаптивный потенциал» в контексте смены и эволюции социально-идеологических парадигм XX в.

Хотя в СССР 1970-х – начала 1980-х гг. нью-эйджерские сообщества представляли собой форму культурного андеграунда и не так уж часто могли заявить о своих идеях и практиках публично, ситуация здесь в целом напоминала описанную Кэмпбеллом. Однако к концу 1980-х гг. в Советском Союзе произошел взрывообразный рост популярности нью-эйджа, захвативший и значительную часть 1990-х гг. В результате в бывших советских республиках появились ассоциации, институты и даже академии «исследователей паранормального», активно действовавшие внутри своих стран и сотрудничавшие с глобальными нью-эйджерскими сетями; различные формы коммерческого использования магических и мантических практик (астрология, гадания, целительство и т. п.); новые сакральные ландшафты («места силы», «аномальные зоны»); а также автохтонные новые религиозные движения. Первое поколение религиозных движений, выросшее из нью-эйджерских клубов позднего СССР (скажем, «Великое Белое Братство ЮСМАЛОС» или «Церковь Последнего Завета»), было основано на харизматическом лидерстве и отличалось выраженными эсхатологическими ожиданиями, что, вероятно, стоит объяснять общим кризисом «советской символической вселенной». В дальнейшем, однако, движения такого рода (например, «анастасиевцы») вернулись к «сетевой» форме социальной организации и лишились апокалиптического пафоса. К началу нового столетия нью-эйдж и на Западе, и в постсоветских странах стал частью массовой культуры, отчасти растворившись в многообразных формах «альтернативного знания».

Массовый интерес к идеям и практикам нью-эйджа в последние годы существования СССР и в первое постсоветское десятилетие был частью общего «религиозного бума» конца 1980-х – 1990-х гг., где «исследования паранормального» довольно легко сочетались с «возрождением» православия, ислама, иудаизма и буддизма, активной и успешной проповедью западных евангелических миссий и т. п. Эти процессы наложи-

ли отпечаток и на массовую религиозную культуру современной России, где, например, православная идентичность зачастую не препятствует увлечению идеями и практиками нью-эйджа. На Западе всё обстояло несколько иначе, поскольку идеология нью-эйджа там с самого начала исходила из отказа от «традиционных» (в частности, протестантских) религиозных идей и норм.

Перенниализм, ресентимент и конспирология

Одна из значимых составляющих нью-эйджерской историософии – это перенниализм, то есть представления об утраченной людьми истине, подлинном знании, которым когда-то владели предки одного народа или всего человечества. Стремление тем или иным способом вернуть или обрести «древнюю мудрость» – одна из характерных черт многих нью-эйджерских учений и практик. Это, впрочем, только один из вариантов более общей идеологии «альтернативного знания», широко популярной в современном обществе. Нью-эйдж в этом контексте взаимодействует с разнообразными паранаучными доктринами – от «альтернативной лингвистики» до «криптозоологии».

Понять привлекательность этой идеологии помогает концепция «стигматизированного знания», предложенная американским политологом Майклом Баркуном: это, как он пишет, «претензии на истину, которые претенденты считают обоснованными, несмотря на маргинализацию со стороны институций, конвенционально отвечающих за различение знаний и ошибок, – университетов, научных сообществ и тому подобных» [10, с. 26]. Иными словами, ценность приписывается преимущественно или исключительно официально отвергаемому и преследуемому знанию: важность и общественная значимость идей и практик в данном случае как бы пропорциональна тому социальному «давлению», которое оказывается на них со стороны официальных институтов. Модель стигматизированного знания представляет собой один из типичных вариантов конспирологической гносеологии, характерной для современной массовой культуры. Речь идет не просто об оспаривании классовой, сословной или институциональной монополии на рациональность и научность. Образ знания и технологий в этом контексте используется как значимое средство социальной борьбы и протеста и одновременно как неотъемлемая часть индивидуальной агентности, не опосредуемой социальными институтами и политическими системами.

Многие постсоветские нью-эйджерские доктрины и движения основываются на идеях стигматизированного знания. К ним, например, относится учение о так называемой «всеясветной грамоте» – вымышленном древнем алфавите, обладающем мистическими свойствами – и не только информационными, но и психофизиологическими особенностями. Такие доктрины, как правило, характеризуются не только перенниалистским, но и конспирологическим пафосом: предполагается, что утрата древних знаний произошла по воле могущественных заговорщиков, желающих зла русскому народу, воображаемым «ариям» или всему человечеству. Современный постсоветский нью-эйдж вообще в существенной степени ориентирован на консервативный национализм, имперский ресентимент и конспирологию. Показательно, скажем, что в формировании и эволюции западного нью-эйджа существенную роль играл феминизм, тогда как в России, наоборот, популярны идеи гендерного неравенства, возводящие подчиненную роль женщины в ранг одной из «традиционных ценностей».

Всё это можно объяснять тем, что современный нью-эйдж во многих отношениях следует общим тенденциям массовой культуры, в том числе и в контексте коллективного политического воображения, а оно в России имеет отчетливый националистический и конспирологический оттенок. Всё, однако, может быть не так просто. Слияние нью-эйджа, конспирологии и правого консерватизма наблюдается и в Западной Европе, и в США, так что в 2011 г. британские ученые Шарлотта Уорд и Дэвид Воас даже придумали специальный термин – *conspiratology* («конспирологическая духовность») – для описания идеологических процессов такого рода [11]. Дело здесь, судя по всему, в том, что нью-эйдж в качестве новой религиозной онтологии нуждается в языке, идеях и нарративах для описания и обсуждения проблемы зла, и именно теории заговора предоставляют для этого широкие возможности.

Широкое распространение нью-эйджа в современной массовой культуре опять-таки позволяет заключить, что он оказался интеллектуально и психологически привлекательной онтологией, успешно конкурирующей с более привычными для западного общества мировоззренческими формами и дискурсами – христианством и другими мировыми религиями, а также рационалистической позитивистской картиной мира. В этом смысле социальную и культурную значимость нью-эйджа для постсоветских обществ сложно переоценить.

Литература

1. **W.J. Hanegraaff**
New Age Religion and Western Culture: Esotericism in the Mirror of Secular Thought, NL, Leiden, Brill, 1996, 595 pp.
2. **M. Wood**
Possession, Power and the New Age: Ambiguities of Authority in Neoliberal Societies, UK, Aldershot, Ashgate Publ., 2007, 214 pp.
3. **O. Hammer**
Claiming Knowledge: Strategies of Epistemology from Theosophy to the New Age, NL, Leiden, Brill, 2001, 573 pp.
4. **B. Huss**
J. Contemp. Relig., 2014, **29**(1), 47.
DOI: 10.1080/13537903.2014.864803.
5. **D.J. Hufford**
Transcult. Psychiatry, 2005, **42**(1), 11.
DOI: 10.1177/1363461505050709.
6. **А.А. Панченко**
НЛО, 2020, №163(3), 24.
7. **Sh. Ostrander, L. Schroeder**
Psychic Discoveries Behind the Iron Curtain, USA, NJ, Englewood Cliffs, Prentice-Hall Publ., 1970, 443 pp.
8. **В.А. Рубель, А.Ю. Савин, Б.К. Ратников**
Пси-войны: Запад и Восток. История в свидетельствах очевидцев, РФ, Москва, ИД «Постум», 2016, 530 с.
9. **C. Campbell**
A Sociological Yearbook of Religion in Britain, 1972, **5**, 119.
10. **M. Barkun**
A Culture of Conspiracy: Apocalyptic Visions in Contemporary America, USA, CA, Berkeley, University of California Press, 2003, 257 pp.
11. **Ch. Ward, D. Voas**
J. Contemp. Relig., 2011, **26**(1), 103–121.
DOI: 10.1080/13537903.2011.539846.

English

New Age Culture in USSR and Post-Soviet Russia

Birgit Menzel

Johannes Gutenberg University Mainz
Mainz, 55099 Mainz, Germany
bmenzel@uni-mainz.de

Alexander A. Panchenko

Institute of Russian Literature, RAS
4 Makarov Emb., Saint Petersburg, 199034, Russia
European University at Saint Petersburg
6/1A Gagarinskaya Str., Saint Petersburg, 191187, Russia
apanchenko2008@gmail.com

Abstract

The paper deals with principal research findings related to the project “New Religious Culture in Late Soviet and Post-Soviet Russia: Ideology, Social Networks, Discourses”. The results of our research allow discussing New Age culture in terms of new religious ontology where gods, angels, and demons are replaced by aliens, “ascended masters”, “snow men”, and other semi- or superhuman agents. The ontology is related to holistic conception of universe and personality, where traditional for European modernity borders between material and spiritual, individual and collective, human body and physical environment erode.

Keywords: New Age, religious ontology, stigmatized knowledge, USSR, Post-Soviet Russia.

* The work was financially supported by RFBR and DFG (project 18-509-12017).

References

1. **W.J. Hanegraaff**
New Age Religion and Western Culture: Esotericism in the Mirror of Secular Thought, NL, Leiden, Brill, 1996, 595 pp.
2. **M. Wood**
Possession, Power and the New Age: Ambiguities of Authority in Neoliberal Societies, UK, Aldershot, Ashgate Publ., 2007, 214 pp.
3. **O. Hammer**
Claiming Knowledge: Strategies of Epistemology from Theosophy to the New Age, NL, Leiden, Brill, 2001, 573 pp.
4. **B. Huss**
J. Contemp. Relig., 2014, **29**(1), 47.
DOI: 10.1080/13537903.2014.864803.
5. **D.J. Hufford**
Transcult. Psychiatry, 2005, **42**(1), 11.
DOI: 10.1177/1363461505050709.
6. **A.A. Panchenko**
New Literary Review J. [Novoe literaturnoe obozrenie], 2020, №163(3), 24 (in Russian).
7. **Sh. Ostrander, L. Schroeder**
Psychic Discoveries Behind the Iron Curtain, USA, NJ, Englewood Cliffs, Prentice-Hall Publ., 1970, 443 pp.
8. **V.A. Rubel, A.Yu. Savin, B.K. Ratnikov**
Psi Wars: West and East. History in eyewitness accounts, RF, Moscow, “Postum” Publ. House, 2016, 530 pp. (in Russian).
9. **C. Campbell**
A Sociological Yearbook of Religion in Britain, 1972, **5**, 119.
10. **M. Barkun**
A Culture of Conspiracy: Apocalyptic Visions in Contemporary America, USA, CA, Berkeley, University of California Press, 2003, 257 pp.
11. **Ch. Ward, D. Voas**
J. Contemp. Relig., 2011, **26**(1), 103–121.
DOI: 10.1080/13537903.2011.539846.

**«ВЕСТНИК РОССИЙСКОГО ФОНДА
ФУНДАМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ»
№ 1–2 (109–110) январь–июнь 2021 года**

Подписано в печать 29.06.2021.
Формат 60x90/8. Гарнитура Minion Pro.
Заказ № 2792.1. Тираж 300.

Отпечатано в типографии ООО «Принт».
426035, г. Ижевск, ул. Тимирязева, 5.