

УДК 520.84

## СПЕКТРОСКОПИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЕНОК НЕОНА, ВЫРАЩЕННЫХ НА ЗОЛОТОЙ ПОДЛОЖКЕ

© 2023 г. У. Н. Курельчук<sup>a, \*</sup>, П. В. Борисюк<sup>a</sup>, Е. В. Чубунова<sup>a</sup>, М. С. Домашенко<sup>a</sup>, С. Ж. Каражанов<sup>b</sup>, Н. Н. Колачевский<sup>a, c</sup>, Ю. Ю. Лебединский<sup>a</sup>, Д. А. Мызин<sup>a</sup>, А. В. Николаев<sup>a, d</sup>, Е. В. Ткаля<sup>a, c, e</sup><sup>a</sup>Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, Москва, 115409 Россия<sup>b</sup>Институт энергетики и технологий (IFE), P.O. Box 40, NO 2027-Кжселлер, Норвегия<sup>c</sup>Физический институт Российской академии наук им. П. Н. Лебедева, Москва, 119991 Россия<sup>d</sup>Национальный исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына МГУ, Москва, 119991 Россия<sup>e</sup>Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН, Москва, 115191 Россия

\*E-mail: UNKurelchuk@mephi.ru

Поступила в редакцию 01.07.2022 г.

После доработки 29.07.2022 г.

Принята к публикации 29.07.2022 г.

Пленка кристаллического неона была конденсирована на подложке из золота и измерен спектр характеристических потерь энергии обратно рассеянных электронов (СХПЭ) при температуре 5К. Также были теоретически исследовано конденсированное ГЦК-состояние неона методами теории функционала плотности и многочастичной теории возмущений, приближения случайных фаз и уравнения Бете–Салпетера. Теоретический спектр СХПЭ был рассчитан как в приближении независимых электронов, так и с учетом многочастичных эффектов – экранирования локального поля, появления электронно-дырочных пар и связанных состояний (экситонов). Получена ширина запрещенной зоны – 21.5 эВ. Показано, что в СХПЭ неона пики потерь энергии от 17.8 до 21.5 эВ являются чисто экситонными. Кристаллическая пленка неона, являясь широкозонным диэлектриком, рассматривается как перспективный материал для имплантации Th и изучения уникального ядерного перехода в  $^{229}\text{Th}$  с энергией 8.2 эВ.

**Ключевые слова:** СХПЭ, кристаллические пленки благородных газов, неон, широкозонный диэлектрик, экситон, ядерный переход

DOI: 10.56304/S2079562922050268

## ВВЕДЕНИЕ

Изомерное состояние  $^{229}\text{Th}$  с аномально низкой энергией (~8.2 эВ) и долгим временем жизни является уникальным явлением в ядерной физике [1]. На его основе ведутся разработки таких приложений как сверхточные ядерные часы [2], ядерный лазер оптического диапазона [3], ядерный светодиод [4]. В основе работы этих приборов лежат ионы тория, имплантированные в диэлектрическую матрицу с большой шириной запрещенной зоны (ШЗЗ). Показано, что если ШЗЗ подложки превышает энергию ядерного перехода [5, 6], то безизлучательный канал распада возбужденного состояния  $^{229\text{m}}\text{Th}$  подавлен, и остается только фотоэмиссионный. Благодаря большой ШЗЗ холодные решетки благородных газов рассматриваются в качестве кандидатов на роль подложки для имплантации Th. Недавно исследованы решетки аргона в контексте ториевой тематики [7] и изучена природа химической связи Ag и ионов  $\text{Th}^{n+}$  [8]. Из этих работ следует, что несмотря на экситонные

эффекты ширина оптической щели в твердом Ag намного превышает 8 эВ.

В настоящей работе кристаллическая пленка аргона была конденсирована на золотой подложке и измерен спектр характеристических потерь энергии обратно рассеянными электронами. Была рассчитана теоретическая функция потерь с учетом многочастичных эффектов (возбуждение электронно-дырочных пар, экранировка локального поля, экситоны).

## ЭКСПЕРИМЕНТ

Твердотельная пленка неона была получена путем конденсации газа неона на охлаждаемой подложке из золота и высоковакуумной камере электронного спектрометра XSAM-800. Вакуумная камера была предварительно откачана ниже  $10^{-8}$  торр, затем напущен чистый газ неон. Газ конденсировался на образце покрытом золотом на криогенном штоке с регулируемой температурой,

который охлаждался до 4 К. Конденсация газа начиналась при температуре ниже 20 К при постоянной скорости напуска и одновременном снижении давления в камере спектрометра с  $5 \cdot 10^{-6}$  до  $1 \cdot 10^{-6}$  торр. Кристаллическая пленка неона конденсировалась при температуре 5 К и давлении  $1-5 \cdot 10^{-6}$  торр. Толщина пленки контролировалась путем настройки экспозиции (давление  $\times$  время), при этом подразумевалось, что sticking coefficient равен 1. СХПЭ спектр был получен при температуре 5К с помощью электронной пушки с энергией налетающих электронов 500 эВ и полусферического анализатора энергии электронов. Половина максимума ширины для первичного электронного пучка 500 эВ (т. е. упругий пик СХПЭ) составляла 0.8 эВ.

### РАСЧЕТЫ

Как показывают эксперименты, неон конденсируется в ГЦК решетку при температуре в несколько К. Постоянная решетки ГЦК неона при 5К была принята равной  $4.46 \text{ \AA}$ , следуя обзору [9]. Электронная структура ГЦК неона была рассчитана по теории функционала плотности (ТФП) методом плоских волн и псевдопотенциала с помощью кода Quantum Espresso code [10]. Использован скалярно-релятивистский сохраняющий норму GGA PBE псевдопотенциал [11]  $2s^2 2p^6$  для состояний Ne. Самосогласованный расчет основного состояния для первых 32 неразличимых по спине состояний (4 занятых и 28 пустых) на сетке Монкорста–Пака из 256 точек с энергией отсечки базиса 816 эВ. В таких структурах, как решетки благородных газов, определяют длины связей, поэтому использовался обменно-корреляционный функционал VdW–DF2, учитывающий ван-дер-ваальсово взаимодействие как корреляционный эффект [12]. Для учета многочастичных эффектов возмущения – появление дырок, поляризация и электронно-дырочное взаимодействие – были рассчитаны квазичастичные поправки к энергиям основного состояния с помощью метода функций Грина в приближении  $G_0W_0$ , реализованном в коде Yambo [13, 14]. Здесь  $W_0$  – динамически экранированный кулоновский потенциал;  $G_0$  – функция Грина, вычисленная для всех  $k$ -точек. Получено значение  $E_g = 21.5$  эВ ширины прямой запрещенной щели, возникающей в точке  $\Gamma$  зоны Бриллюэна.

Функция потерь энергии выражается как мнимая часть обратной величины макроскопической диэлектрической функции  $I(-\epsilon_M^{-1})$ , которая в свою очередь выражается из микроскопической диэлектрической матрицы  $\epsilon_{G,G'}(\mathbf{q}, \omega)$  как  $\epsilon_M(\omega) = \frac{1}{\epsilon_{G,G'=0}^{-1}(\mathbf{q}, \omega)}$ , где  $\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}'$  – малая величина переданного импульса, а  $\mathbf{G}$  – вектор обрат-

ной решетки. Обратная диэлектрическая матрица  $\epsilon_{G,G'}(\mathbf{q}, \omega)$  была рассчитана в приближении линейного отклика из диэлектрической восприимчивости, полученной из решения уравнение Дайсона – как на уровне независимых электронов, так и с учетом эффектов локального поля (экранированный кулоновский потенциал). Учтена поправка на ширину запрещенной зоны за счет энергий квазичастиц в обоих случаях. Затем  $\epsilon_M$  была рассчитана из решения уравнения Бете–Солпитера в двухчастичной гамильтоновой форме для связанных электронно-дырочных состояний (экситонов), где ранее рассчитанные энергии квазичастиц были учтены для всех  $k$ -точек:

$$\epsilon_M(\omega) = 1 - \lim_{q \rightarrow 0} \frac{8\pi}{|q|^2 \Omega} \sum_{c'v'k'} \langle v\mathbf{k} - \mathbf{q} | e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} | c\mathbf{k} \rangle \times \langle c'\mathbf{k}' | e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} | v'\mathbf{k}' - \mathbf{q} \rangle \sum_{\lambda} \frac{A_{cvk}^{\lambda} A_{c'v'k'}^{\lambda}}{\omega - E_{\lambda}}$$

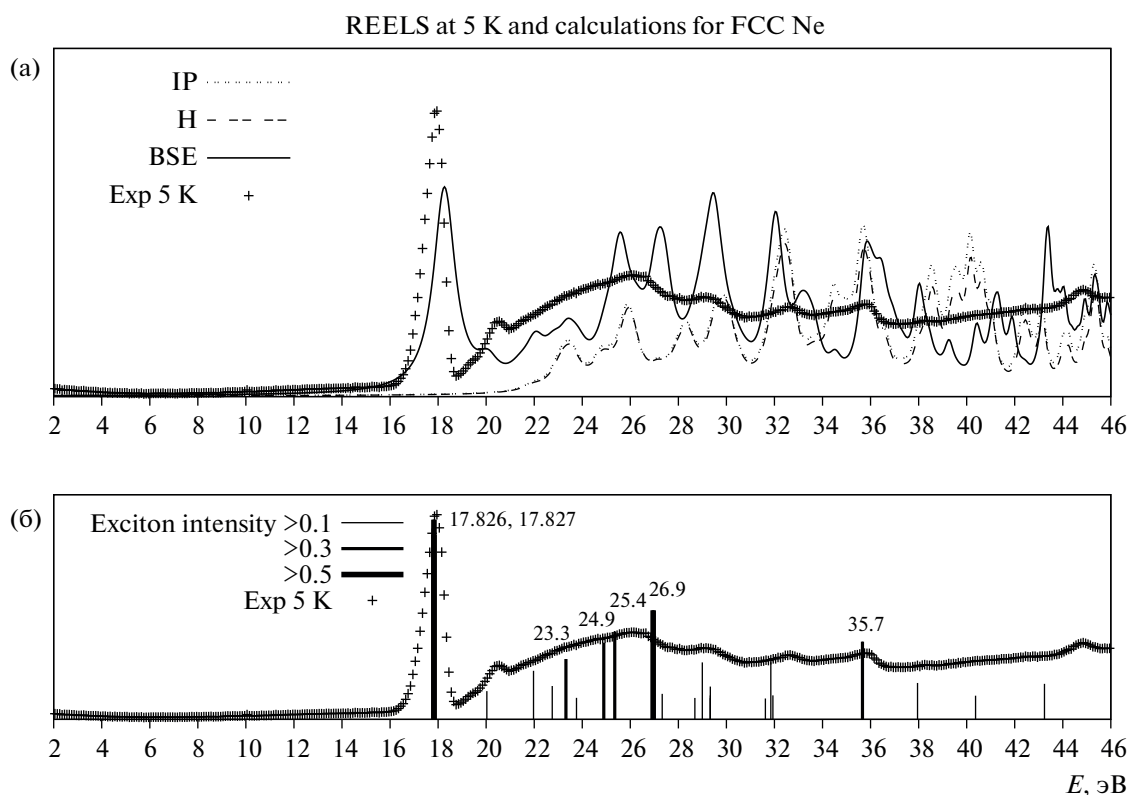
Для сопоставления с экспериментальным СХПЭ рассчитанные спектры были уширены с распределением Гаусса с параметром 0.8 эВ.

### РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1а показаны рассчитанные спектры характеристических потерь обратно рассеянных электронов для ГЦК неона, полученные на уровне независимых частиц (IP), с эффектами экранирования локального поля (Н) и с экситонными эффектами (BSE), экспериментальные спектры, полученные при 5К (Exp). Распределение интенсивности экситонов,  $I \sim |A^{\lambda}|^2$  (относительно максимального, принято за 1) показано отдельно на рис. 1б для первых 30 экситонных состояний. Экситоны с интенсивностями  $I > 0.1$  показаны на графике линиями разной толщины, при этом состояния с  $I > 0.3$  на графике дополнены значениями их энергий. Также на рис. 1б показан экспериментальный спектр.

На экспериментальном СХПЭ наблюдается тонкая структура пиков потерь энергии. Декомпозиция экспериментального спектра, приведенного на рис. 1, представлена в табл. 1.

На теоретических кривых IP, Н и BSE на рис. 1а видно, что для нижних зон эффекты экранирования (график Н) вносят незначительные поправки по сравнению с приближением независимых электронов (IP), экранирование несколько сильнее влияет на зоны с энергией больше 30 эВ. Сравнивая IP, Н и BSE на рис. 1а, можно заключить, что экситоны значительно меняют вид СХПЭ. Спектры BSE имеют отдельные пики при 18 и 20 эВ, расположенные ниже края 21.5 эВ, найденного неэкситонными методами (IP и Н) и соответствующие дну зоны проводимости. Пики



**Рис. 1.** (а) Теоретические расчеты и экспериментальный спектр обратно рассеянных электронов на кристаллической пленке неона при температуре 5К. (б) Распределение интенсивности экситонов.

BSE ниже 21.5 эВ соответствуют первому экситону максимальной интенсивности 17.8 эВ с сателлитами и экситонному состоянию 20.0 эВ (рис. 1б), которые хорошо соответствуют экспериментальным данным (Exp). Согласно рис. 1а, 1б и табл. 1, экспериментальные пики с энергиями менее 22 эВ (17.8, 19.1 и 20.3 эВ) следует отнести исключительно к экситонным состояниям. Следовательно, экситоны вызывают сдвиг ненулевого края потерь в сторону меньших энергий примерно на 3 эВ.

В системе “торий в твердой неоновой матрице” описанный эффект сужения оптической щели, вероятно, не повлияет на экспериментальное наблюдение распада  $^{229\text{m}}\text{Th}$ , поскольку плотность имплантации тория в матрицу холодной газовой решетки незначительна. Тем не менее особенности химической связи Ne–Th в матрице Ne нуж-

даются в теоретическом исследовании. Таким образом, полученные в данной работе экспериментальные и расчетные результаты дают основание рассматривать инертный газ неон, замороженный на золотой подложке, как один из перспективных кандидатов на формирование диэлектрической матрицы для изучения экзотического ядерного перехода в  $^{229}\text{Th}$ .

#### БЛАГОДАРНОСТИ

Работа была поддержана грантом Российского научного фонда № 19-72-30014.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. *Seiferle B. et al. // Nature. 2019. V. 573 (7773). P. 243.*

**Таблица 1.** Декомпозиция СХПЭ кристаллической пленки неона

$E$ , эВ	17.8	19.3	20.3	22.9	26.0	29.1	32.4	34.5	35.8	40.1	44.7	46.6
Разрешение	0.76	0.77	0.81	4.49	3.88	3.34	1.95	2.27	1.15	10.8	1.36	4.28
Площадь	2282	51	256	3236	2162	2012	709	592	230	1934	189	728

2. Peik E., Tamm C. // *Europhys. Lett.* 2003. V. 61 (2). P. 181.
3. Tkalya E.V. // *Phys. Rev. Lett.* 2011. V. 106 (16). P. 162501.
4. Tkalya E.V. // *Phys. Rev. Lett.* 2020. V. 124 (24). P. 242501.
5. Tkalya E.V., Zherikhin A.N., Zhudov V.I // *Phys. Rev. C.* 2000. V. 61 (6). P. 064308.
6. Tkalya E.V. // *JETP Lett.* 2000. V. 71. P. 311.
7. Kurelchuk U.N. et al. // *Mater. Lett.* 2021. V. 306. P. 130930.
8. Nikolaev A.V., Tkalya E.V. // *Phys. Rev. A.* 2021. V. 104 (3). P. 032819.
9. Batchelder D.N., Losee D.L., Simmons R.O. // *Phys. Rev.* 1967. V. 162 (3). P. 767–775.
10. Giannozzi P. et al. // *J. Chem. Phys.* 2020. V. 152 (15). P. 154105.
11. Hamann D.R. // *Phys. Rev. B.* 2013. V. 88 (8). P. 085117.
12. Lee K. et al. // *Phys. Rev. B.* 2010. V. 82 (8). P. 081101.
13. Marini A. et al. // *Comput. Phys. Commun.* 2009. V. 180 (8). P. 1392.
14. Sangalli D. et al. // *J. Phys.: Condens. Matter.* 2019. V. 31 (32). P. 325902.

## Spectroscopic Studies of Crystalline Neon Film Condensed on a Gold Surface

U. N. Kurelchuk<sup>1, \*</sup>, P. V. Borisyuk<sup>1</sup>, E. V. Chubunova<sup>1</sup>, M. S. Domashenko<sup>1</sup>, S. Z. Karazhanov<sup>2</sup>,  
N. N. Kolachevsky<sup>1, 3</sup>, Yu. Yu. Lebedinskii<sup>1</sup>, D. A. Myzin<sup>1</sup>, A. V. Nikolaev<sup>1, 4</sup>, and E. V. Tkalya<sup>1, 3, 5</sup>

<sup>1</sup>National Research Nuclear University MEPHI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia

<sup>2</sup>Institute for Energy Technology (IFE), P.O. Box 40, NO 2027-Kjeller, Norway

<sup>3</sup>Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 119991 Russia

<sup>4</sup>Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119991 Russia

<sup>5</sup>Nuclear Safety Institute of Russian Academy of Sciences, Moscow 115191 Russia

\*e-mail: unkurelchuk@mephi.ru

Received July 1, 2022; revised July 29, 2022; accepted July 29, 2022

**Abstract**—Solid neon film condensed on a gold surface and crystallized in the face-centered cubic (FCC) lattice, has been studied using reflected electron energy-loss spectroscopy (REELS) at the temperature of 5 K. The experimental REEL spectra are compared with theoretical calculations using density-functional theory (DFT), GW approximation, random-phase approximation (RPA) and the Bethe–Salpeter equation (BSE). In the calculations many electron corrections such as the local-field dielectric screening, quasiparticles, and excitonic effects have been taken care of. The calculated electronic bandgap is 21.5 eV, but the excitonic peaks in REELS are found to set in at ~18 eV. Thus, a solid neon film, being a wide-gap dielectric, is a promising material for implanting Th and studying its low-lying nuclear transition at 8.2 eV.

**Keywords:** electron-energy loss spectroscopy, solid neon, wide-gap dielectric, exciton, <sup>229</sup>Th, nuclear transition