



ЖУРНАЛ
БЕЛОРУССКОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО УНИВЕРСИТЕТА

ФИЗИКА

JOURNAL
OF THE BELARUSIAN STATE UNIVERSITY

PHYSICS

Издается с января 1969 г.
(до 2017 г. – под названием «Вестник БГУ.
Серия 1, Физика. Математика. Информатика»)

Выходит три раза в год

1

2020

МИНСК
БГУ

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

- Главный редактор** АНИШИЧ В. М. – доктор физико-математических наук, профессор; профессор кафедры физики твердого тела физического факультета Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь.
E-mail: anishchik@bsu.by
- Заместитель главного редактора** ВОРОПАЙ Е. С. – доктор физико-математических наук, профессор; профессор кафедры лазерной физики и спектроскопии физического факультета Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь.
E-mail: voropay@bsu.by
- Ответственный секретарь** КАБАНОВА О. С. – кандидат физико-математических наук; научный сотрудник лаборатории нелинейной оптики и спектроскопии кафедры лазерной физики и спектроскопии физического факультета Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь.
E-mail: kabanovaos@bsu.by
- Бондаренко Г. Г.** Московский институт электроники и математики Национального исследовательского университета «Высшая школа экономики», Москва, Россия.
- Воеводин В. Н.** Институт физики твердого тела, материаловедения и технологий Национальной академии наук Украины, Харьков, Украина.
- Жуковский П. В.** Люблинский технический университет, Люблин, Польша.
- Кислицын С. Б.** Институт ядерной физики Министерства энергетики Республики Казахстан, Алма-Ата, Казахстан.
- Козлов С. А.** Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, Санкт-Петербург, Россия.
- Кучинский П. В.** НИУ «Институт прикладных физических проблем им. А. Н. Севченко» Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь.
- Максименко С. А.** НИУ «Институт ядерных проблем» Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь.
- Малый С. В.** Белорусский государственный университет, Минск, Беларусь.
- Маскевич С. А.** Международный государственный экологический институт им. А. Д. Сахарова Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь.
- Машлан М.** Оломоуцкий университет им. Палацкого, Оломоуц, Чехия.
- Патрин А. А.** Кошалинский технический университет, Кошалин, Польша.
- Погребняк А. Д.** Сумский государственный университет, Сумы, Украина.
- Ремнев Г. Е.** Томский политехнический университет, Томск, Россия.
- Толстик А. Л.** Белорусский государственный университет, Минск, Беларусь.
- Туроверов К. К.** Институт цитологии Российской академии наук, Санкт-Петербург, Россия.
- Чалов В. Н.** Имперский колледж Лондона, Лондон, Великобритания.
- Шандаров С. М.** Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, Томск, Россия.
- Хайнцманн Р.** Институт физической химии Йенского университета, Йена, Германия.

РЕДАКЦИОННЫЙ СОВЕТ

- Ануфрик С. С.** Гродненский государственный университет им. Янки Купалы, Гродно, Беларусь.
- Гусев О. К.** Белорусский национальный технический университет, Минск, Беларусь.
- Казак Н. С.** Институт физики им. Б. И. Степанова Национальной академии наук Беларуси, Минск, Беларусь.
- Килин С. Я.** Национальная академия наук Беларуси, Минск, Беларусь.
- Кононов В. А.** СП «ЛОТИС ТИИ», Минск, Беларусь.
- Маляревич А. М.** Белорусский национальный технический университет, Минск, Беларусь.
- Пенязьков О. Г.** Институт тепло- и массообмена им. А. В. Лыкова Национальной академии наук Беларуси, Минск, Беларусь.
- Пилипенко В. А.** Государственный центр «Белмикросистемы» филиала НТЦ «Белмикросистемы» ОАО «Интеграл» – управляющей компании холдинга «Интеграл», Минск, Беларусь.
- Плетюхов В. А.** Брестский государственный университет им. А. С. Пушкина, Брест, Беларусь.
- Семченко И. В.** Гомельский государственный университет им. Франциска Скорины, Гомель, Беларусь.
- Федосюк В. М.** ГНПО «Научно-практический центр НАН Беларуси по материаловедению», Минск, Беларусь.
- Шкадаревич А. П.** Научно-производственное унитарное предприятие «Научно-технический центр “ЛЭМТ” БелОМО», Минск, Беларусь.

EDITORIAL BOARD

- | | |
|-------------------------------|---|
| Editor-in-chief | ANISHCHIK V. M. , doctor of science (physics and mathematics), full professor; professor at the department of solid-state physics, faculty of physics, Belarusian State University, Minsk, Belarus.
E-mail: anishchik@bsu.by |
| Deputy editor-in-chief | VOROPAY E. S. , doctor of science (physics and mathematics), full professor; professor at the department of laser physics and spectroscopy, faculty of physics, Belarusian State University, Minsk, Belarus.
E-mail: voropay@bsu.by |
| Executive secretary | KABANOVA O. S. , PhD (physics and mathematics); researcher at the laboratory of nonlinear optics and spectroscopy, department of laser physics and spectroscopy, faculty of physics, Belarusian State University, Minsk, Belarus.
E-mail: kabanovaos@bsu.by |
-
- | | |
|-------------------------|---|
| Bondarenko G. G. | Moscow Institute of Electronics and Mathematics of the National Research University «Higher School of Economics», Moscow, Russia. |
| Voevodin V. N. | Institute of Solid State Physics, Materials Science and Technologies, National Academy of Sciences of Ukraine, Kharkiv, Ukraine. |
| Zhukowski P. V. | Lublin University of Technology, Lublin, Poland. |
| Kislitsin S. B. | Institute of Nuclear Physics of the Ministry of Energy of the Republic of Kazakhstan, Almaty, Kazakhstan. |
| Kozlov S. A. | Saint Petersburg National Research University of Information Technologies, Mechanics and Optics, Saint Petersburg, Russia. |
| Kuchinski P. V. | A. N. Sevchenko Institute of Applied Physical Problems of the Belarusian State University, Minsk, Belarus. |
| Maksimenko S. A. | Institute for Nuclear Problems of the Belarusian State University, Minsk, Belarus. |
| Maly S. V. | Belarusian State University, Minsk, Belarus. |
| Maskevich S. A. | International Sakharov Environmental Institute of the Belarusian State University, Minsk, Belarus. |
| Maslan M. | Palacký University, Olomouc, Czech Republic. |
| Patryn A. A. | Politechnika Koszalińska, Koszalin, Poland. |
| Pogrebnjak A. D. | Sumy State University, Sumy, Ukraine. |
| Remnev G. E. | Tomsk Polytechnic University, Tomsk, Russia. |
| Tolstik A. L. | Belarusian State University, Minsk, Belarus. |
| Turoverov K. K. | Institute of Cytology, Russian Academy of Sciences, Saint Petersburg, Russia. |
| Chalov V. N. | Imperial College London, London, United Kingdom. |
| Shandarov S. M. | Tomsk State University of Control Systems and Radioelectronics, Tomsk, Russia. |
| Heintzmann R. | Institute of Physical Chemistry of the Jena University, Jena, Germany. |

EDITORIAL COUNCIL

- | | |
|---------------------------|---|
| Anufrik S. S. | Yanka Kupala State University of Grodno, Grodno, Belarus. |
| Gusev O. K. | Belarusian National Technical University, Minsk, Belarus. |
| Kazak N. S. | B. I. Stepanov Institute of Physics of the National Academy of Sciences of Belarus, Minsk, Belarus. |
| Kilin S. Y. | National Academy of Sciences of Belarus, Minsk, Belarus. |
| Kononov V. A. | «LOTIS TII», Minsk, Belarus. |
| Malyarevich A. M. | Belarusian National Technical University, Minsk, Belarus. |
| Penyazkov O. G. | A. V. Luikov Heat and Mass Transfer Institute of the National Academy of Sciences of Belarus, Minsk, Belarus. |
| Pilipenko V. A. | JSC «Integral», Minsk, Belarus. |
| Platyukhov V. A. | Brest State University named after A. S. Pushkin, Brest, Belarus. |
| Semchenko I. V. | Francisk Skorina Gomel State University, Gomel, Belarus. |
| Fedosyuk V. M. | SSPA «Scientific and Practical Materials Research Centre of NAS of Belarus», Minsk, Belarus. |
| Shkadarevich A. P. | Unitary Enterprise «STC «LEMT» of the BelOMO», Minsk, Belarus. |

УДК 535.016

ХАРАКТЕРИСТИКИ ВОЛОКОННО-ОПТИЧЕСКИХ ФОТОАКУСТИЧЕСКИХ ПРЕОБРАЗОВАТЕЛЕЙ С МОНОСЛОЕМ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ НАНОЧАСТИЦ ДЛЯ СИСТЕМ ТЕХНИЧЕСКОЙ ДИАГНОСТИКИ

Е. П. МИКИТЧУК¹⁾, К. В. КОЗАДАЕВ¹⁾

¹⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

Проведены экспериментальные исследования микроструктурных и морфологических свойств наноструктур в виде монослоя наночастиц серебра в составе макета волоконно-оптического фотоакустического преобразователя. Указанные наночастицы имеют гамма-распределение по размерам, средний диаметр 35 нм и среднеквадратичный разброс 12 нм, что позволяет использовать их в качестве сверхтонких поглотителей на торце оптического волокна. Впервые предложен метод одновременного определения эффективности фотоакустического преобразования и измерения частотной характеристики энергетического отклика фотоакустического преобразователя в зависимости от параметров модуляции оптического сигнала в оптоволокне, базирующийся на использовании основного измерительного канала для облучения фотоакустического преобразователя модулированным по интенсивности лазерным сигналом и опорного канала на основе волоконно-оптического разветвителя и фотодиода в составе установки для измерения характеристик фотоакустических преобразователей. Показана генерация ультразвука на частотах 10–18 МГц в макете волоконно-оптического фотоакустического преобразователя. Установлено,

Образец цитирования:

Микитчук ЕП, Козадаев КВ. Характеристики волоконно-оптических фотоакустических преобразователей с монослоем металлических наночастиц для систем технической диагностики. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика*. 2020;1:4–15.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-4-15>

For citation:

Mikitchuk AP, Kozadaev KV. Characteristics of fiber-optic photoacoustic transducers with monolayer of metal nanoparticles for systems of technical diagnostics. *Journal of the Belarusian State University. Physics*. 2020;1:4–15. Russian.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-4-15>

Авторы:

Елена Петровна Микитчук – старший преподаватель кафедры интеллектуальных систем факультета радиоп физики и компьютерных технологий.
Константин Владимирович Козадаев – доктор физико-математических наук, доцент; проректор по учебной работе и интернационализации образования.

Authors:

Alena P. Mikitchuk, senior lecturer at the department of intelligent systems, faculty of radiophysics and computer technologies.
m.helenay@yandex.by
<https://orcid.org/0000-0003-2135-9533>
Konstantin V. Kozadaev, doctor of science (physics and mathematics), docent; vice-rector for academic affairs and international relations.
kozadaeff@mail.ru
<https://orcid.org/0000-0001-6263-8024>

что часовое воздействие модулированного лазерного излучения на созданный макет не вызывает деградации двумерных поверхностных наноструктур, поэтому последние можно использовать неоднократно в составе систем технической диагностики нового поколения.

Ключевые слова: фотоакустическая генерация; монослой наночастиц; металлические наночастицы; оптическое волокно; техническая диагностика.

Благодарность. Работа поддержана грантом совместных научных проектов Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований и Российского фонда фундаментальных исследований для молодых ученых (БРФФИ-РФФИ М-2019) № Ф19РМ-006 «Исследование двумерных плазмонных наноструктур для фотоакустических преобразователей».

CHARACTERISTICS OF FIBER-OPTIC PHOTOACOUSTIC TRANSDUCERS WITH MONOLAYER OF METAL NANOPARTICLES FOR SYSTEMS OF TECHNICAL DIAGNOSTICS

A. P. MIKITCHUK^a, K. V. KOZADAEV^a

^aBelarusian State University, 4 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220030, Belarus

Corresponding author: A. P. Mikitchuk (m.helenay@yandex.by)

The work is devoted to the experimental study of the microstructural and morphological properties of nanostructures as part of a prototype of fiber-optic photoacoustic transducer. The transducer has been created to confirm the theoretical investigations previously obtained by the authors during the study the conditions of the most effective photoacoustic generation. To solve the main problem that arises when creating photoacoustic transducers, namely reducing the thickness of the absorbing layer, we used a nanostructure based on a monolayer of silver nanoparticles with size gamma-distribution, the average diameter of 35 nm with RMS-size of 12 nm. The method of simultaneous measuring both efficiency of photoacoustic conversion and frequency response of a photoacoustic transducer is proposed for the first time. The method allows experimental investigation of transducers output parameters versus the modulation mode of the optical signal. The proposed method is based on the usage of the main measurement channel for irradiating the photoacoustic transducer and a reference channel based on fiber optical coupler and photodiode. The experiment shows the reliable generation of ultrasound at frequencies of 10–18 MHz with a prototype of photoacoustic transducer. During one hour irradiation, degradation of two-dimensional surface nanostructures has not been observed. This allows such type of photoacoustic transducer to be used as part of a new generation of technical diagnostics systems.

Keywords: photoacoustic transducer; nanoparticles monolayer; metal nanoparticles; optical fiber; technical diagnostics.

Acknowledgements. This work was supported by the grant of joint research projects of the Belarusian Republican Foundation for Fundamental Research and the Russian Foundation for Fundamental Research for Young Scientists No. F19RM-006 «Study of 2D plasmonic nanostructures for photoacoustic transducers».

Введение

В настоящее время существует целый ряд методов неразрушающего контроля [1–4; 5, с. 43–69], что позволяет, например, при своевременной диагностике производственного оборудования предотвратить поломки промышленных машин и механизмов [5, с. 6], а также исключить брак в выпускаемой продукции [4; 5]. Одним из основных подходов является использование ультразвуковых сигналов в качестве диагностического инструмента [6; 7]. По сравнению с другими методами неразрушающего контроля данный способ обладает важными преимуществами: высокой чувствительностью к наиболее опасным дефектам типа трещин; низкой стоимостью; безопасностью для человека (в отличие от рентгеновской дефектоскопии); возможностью вести контроль изделий из разнообразных материалов, без вмешательства в технологический процесс и без повреждения исследуемого объекта [7]. Следует отметить, что методы ультразвукового контроля часто используют, когда нужно получить изображения с высоким разрешением (доступ к СВЧ-сборкам, проверка качества мелкоформатных изделий и обработки поверхностей высокодобротных резонаторов [7; 8], медицинские и биологические исследования [9]). Однако во многих случаях подобная дефектоскопическая диагностика осложняется необходимостью доступа ультразвукового излучателя к местам микросварок и микропаек, проволок и шлейфов разварки, межсоединений в гибридных микросхемах. Зачастую массивность установок неразрушающего контроля затрудняет такой доступ.

Традиционные пьезоэлектрические электроакустические преобразователи требуют высокого напряжения питания, характеризуются большими размерами и весом, чувствительностью к электромагнитным помехам, относительно узкой рабочей полосой частот [6; 10–12]. Альтернативой электроакустическим преобразователям служат фотоакустические преобразователи, в которых поглощение модулированного оптического излучения вызывает циклы деформации фотоакустического материала, порождающие акустические волны в окружающей среде [13; 14]. Однако параметры таких преобразователей значительно ограничиваются двумя основными факторами: полоса частот формируемой акустической волны существенно зависит от толщины слоя, поглощающего модулированное оптическое излучение; компактность преобразователя является одним из ключевых факторов применимости источника ультразвука [15; 16]. Чтобы минимизировать толщину поглощающего слоя, в ультразвуковых преобразователях можно применять наноструктуры в виде монослоя наночастиц (НЧ) благородных металлов на оптически прозрачных подложках. Использование торца оптического волокна в качестве подложки для фотоакустического преобразователя обуславливает ряд преимуществ, таких как компактный размер и малый вес (сотни микрометров и доли грамма), высокая устойчивость к электромагнитным помехам и химическая стойкость, широкая полоса рабочих частот, диэлектрическое исполнение, механическая гибкость [15–20].

Ранее определены условия наиболее эффективной фотоакустической генерации в монослое серебряных и золотых НЧ в составе волоконно-оптического фотоакустического преобразователя: высокий коэффициент поглощения оптического излучения, совпадение с длиной волны коммерчески доступных лазерных диодов, ширина пика поглощения свыше 25 нм, а также стабильная работа наноструктуры без термофизических ограничений и наибольшее быстроедействие монослоя металлических НЧ [21; 22]. При выполнении этих условий достигается ширина полосы рабочих частот по уровню –3 дБ более 40 и 35 МГц в наноструктурах с монослоем НЧ Ag и Au на торце оптического волокна в воздухе соответственно, а для тех же наноструктур в воде – 25 и 18 МГц соответственно.

Настоящая работа посвящена экспериментальному исследованию микроструктурных и морфологических свойств наноструктур в составе макета волоконно-оптического фотоакустического преобразователя, который был создан для подтверждения теоретических выводов, полученных авторами ранее при изучении условий наиболее эффективной фотоакустической генерации. Для решения основной проблемы, которая возникает при изготовлении фотоакустических преобразователей, а именно уменьшения толщины поглощающего слоя, использована наноструктура в виде монослоя НЧ серебра, нанесенная на торец оптического волокна.

Микроскопические параметры наноструктур в составе волоконно-оптического фотоакустического преобразователя

Синтез монослоя НЧ Ag на поверхности торца оптического волокна проводился методом атмосферного лазерного осаждения. Для обеспечения одинаковых условий осаждения изготавливалась оснастка [23; 24], на которой одновременно крепились несколько волокон, предварительно сколотых перпендикулярно оптической оси (максимальная ошибка скола не превышала 1°) и очищенных от защитной оболочки. В эксперименте использовался импульсный YAG : Nd³⁺-лазер (*LOTIS TII*, Беларусь) с длиной волны 1064 нм и полной длительностью импульса на уровне половины интенсивности 20 нс [25].

Исследование поверхности тестовых образцов волоконно-оптических фотоакустических преобразователей проводилось на растровом электронном микроскопе S-4800 (*Hitachi*, Япония), максимальное разрешение которого составляет 1 нм, относительная неопределенность измерения не превышает ± 5 %. Заметим, что здесь и далее в качестве размеров НЧ указаны медианные величины. Бинаризация полученных микрофотографий выполнялась в программном пакете *ImageJ*, что необходимо для определения распределения НЧ по размерам, а также статистических параметров последнего (в том числе масштабного и размерного параметра, среднего размера НЧ), плотности заполнения подложки. Бинаризация микрофотографий подразумевает под собой также применение алгоритма сглаживания шумов, выделение границ и пороговой фильтрации. Все площади НЧ в пикселях с помощью делений калибровочной линейки, которая записана на микрофотографиях с электронного микроскопа, пересчитывались в реальные площади проекций НЧ, а затем с помощью математической обработки рассчитывались размеры НЧ.

На рис. 1 показано распределение НЧ Ag по размерам, полученное путем анализа бинаризованных микрофотографий (обработка проводилась для общего количества НЧ свыше 5,5 тыс.), а также гамма-распределение с размерным параметром $k_T = 8,5$ и масштабным параметром $\theta_T = 4,1$, величины которых подобраны методом нелинейных наименьших квадратов. Плотность заполнения подложки НЧ составляла 3,8 % [23]. Следует отметить, что распределение НЧ по размерам при синтезе с помощью атмосферного лазерного осаждения подчиняется гамма-распределению [24], причем в соответствии

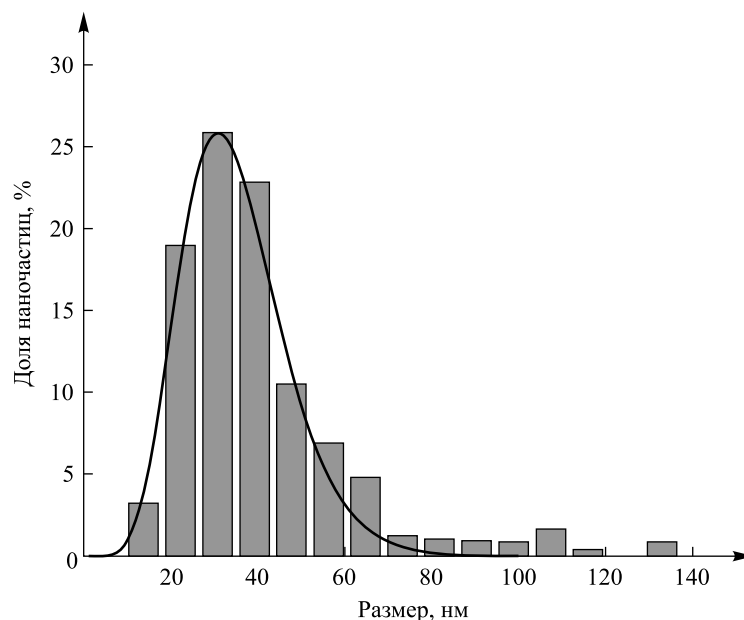


Рис. 1. Распределение наночастиц Ag по размерам, полученное путем анализа бинаризованных микрофотографий (столбчатая диаграмма); гамма-распределение с размерным параметром $k_{\Gamma} = 8,5$ и масштабным параметром $\theta_{\Gamma} = 4,1$, что соответствует среднему диаметру наночастиц 35 нм и среднеквадратичному разбросу по размерам 12 нм (огнивающая кривая)

Fig. 1. Nanoparticle size distribution obtained by means of binarized microphotography analysis (bar chart); gamma-distribution with size parameter of $k_{\Gamma} = 8.5$ and scale parameter of $\theta_{\Gamma} = 4.1$, their values correspond to nanoparticles average size of 35 nm and RMS-size of 12 nm (envelope curve)

со статистическими свойствами последнего математическое ожидание среднего размера и среднеквадратичного разброса НЧ по размерам связано с параметрами данного распределения следующим образом [26, с. 134]:

$$\bar{d} = k_{\Gamma} \theta_{\Gamma},$$

$$\sigma = \sqrt{k_{\Gamma}} \theta_{\Gamma},$$

где параметры гамма-распределения для приведенного случая соответствуют среднему диаметру НЧ 35 нм и среднеквадратичному разбросу по размерам 12 нм.

Элементный состав наноструктуры волоконно-оптического фотоакустического преобразователя с НЧ на торце оптического волокна определялся энергодисперсным спектрометром Quantex 200 с детектором Bruker SDD XFlash 5030 чувствительностью 0,1 ат. %. Результаты растровой электронной микроскопии и энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии для НЧ следующие: состав – серебро, плотность заполнения подложки 3,8 %, средний диаметр 35 нм, распределение по размерам – гамма-распределение с размерным параметром $k_{\Gamma} = 8,5$ и масштабным параметром $\theta_{\Gamma} = 4,1$, что соответствует среднему диаметру НЧ 35 нм и среднеквадратичному разбросу по размерам 12 нм. Невзирая на малую плотность заполнения подложки, такие наноструктуры возможно использовать в составе волоконно-оптического фотоакустического преобразователя для оценки быстродействия. В частности, как показали результаты моделирования, быстродействие указанного преобразователя с монослоем НЧ Ag данного диаметра практически не зависит от плотности заполнения подложки [21].

Стенд для исследования волоконно-оптических фотоакустических преобразователей с монослоем металлических наночастиц

На рис. 2 приведена схема стенда для исследования волоконно-оптического фотоакустического преобразователя с монослоем металлических НЧ на торце оптического волокна, который можно использовать в воздухе и различных жидких средах. Вначале от цифрового генератора сигналов произвольной формы в составе измерительного комплекса осциллограф – генератор TiePie HS5 (полоса частот синтезируемых сигналов произвольной формы до 40 МГц) подается зондирующий импульсный сигнал с периодом 10 мс и длительностью 50 нс (амплитуда 12 В), по коаксиальному кабелю распространяющийся к волоконно-оптическому лазерному модулю Laserscom LDI-450-FP-30, в котором лазерный диод

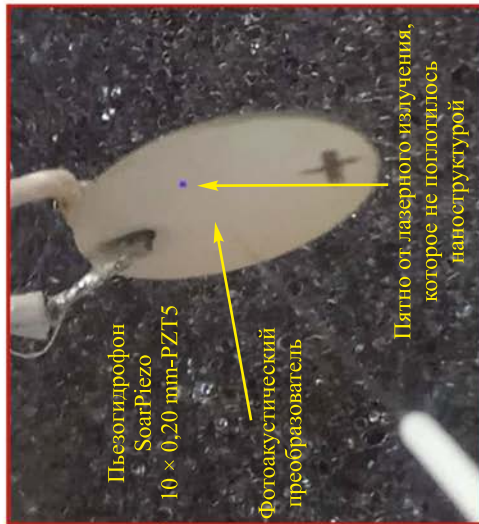
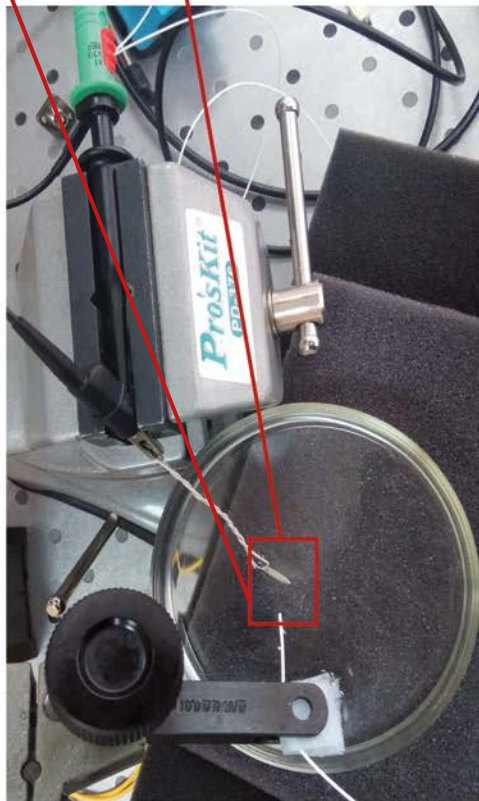
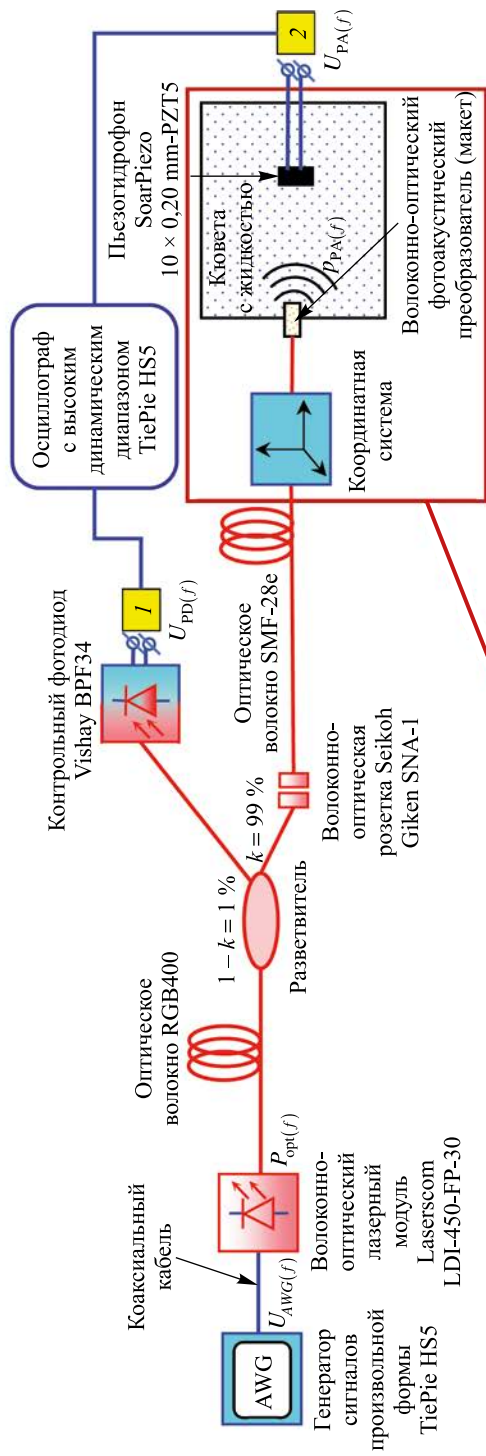


Рис. 2. Схема стенда для исследования волоконно-оптического фотоакустического преобразователя с монослоем наночастиц на торце оптического волокна, погруженного в жидкую среду:

1, 2 – порты осциллографа (макрофотографии на контрастном темном фоне)

Fig. 2. Layout of setup for investigation of a fiber-optic photoacoustic transducer

with nanoparticles monolayer deposited on the fiber-optic edge within liquid surrounding:

1, 2 – oscilloscope ports (macrophotos are presented with contrast dark background)

согласован с одномодовым волокном с диаметром модового пятна 3,6 мкм (стандартное одномодовое оптическое волокно для излучения видимого диапазона RGB400). Оптическое излучение на выходе из волокна имеет гауссовский профиль пространственного радиального распределения интенсивности и пиковую оптическую мощность 40 мВт в импульсном режиме. Длина волны генерации лазерного диода 450 нм, ширина спектра 2 нм. Затем лазерное излучение в оптическом волокне RGB400 делится на две части в волоконно-оптическом разветвителе, в результате чего 1 % излучения поступает на контрольный фотодиод Vishay BPF34 (площадь 7,5 мм², темновой ток до 2 нА, емкость $p-n$ -перехода при смещении 14 В составляет 25 пФ) и регистрируется осциллографом с высоким динамическим диапазоном в составе измерительного комплекса TiePie HS5. Другая часть модулированного по интенсивности оптического сигнала (99 %) с помощью волоконно-оптической розетки Seikoh Giken SNA-1 соединяется с отрезком оптического волокна SMF-28e (диаметр сердцевины 125 мкм), на поверхности которого сформированы наноструктуры фотоакустических преобразователей.

Торец оптического волокна с монослоем НЧ (макет фотоакустического преобразователя) закреплен на координатной системе Standa 7T38XYZ, необходимой для перемещения фотоакустического преобразователя относительно пьезоакустического преобразователя в кювете с деионизованной водой. Акустический сигнал детектируется узкополосным пьезогидрофоном SoarPiezo 10 × 0,20 mm-PZT5 (диаметр 10 мм, резонансная частота 10 МГц, эквивалентная емкость 13,5 нФ, диэлектрическая постоянная 3900 Ф/м ($\pm 10\%$), пьезоэлектрическая константа 460×10^{-12} м/В). Сигнал с гидрофона регистрируется осциллографом высокого динамического диапазона TiePie HS5 с максимальной относительной неопределенностью измерения уровня сигналов 0,25 % (типично – 0,1 %). Следует учесть, что в работе не применялся волоконно-оптический изолятор ввиду того, что стыкуются два оптических волокна: RGB400 и SMF-28e. При этом для используемой длины волны 450 нм волокно RGB400 является одномодовым, а волокно SMF-28e становится многомодовым (эффективный диаметр модового пятна 9,8 мкм, одномодовым оно является для телекоммуникационных длин волн, например 1,31–1,55 мкм). В этом случае из-за разницы эффективных площадей модового пятна одномодового (RGB400) и многомодового (SMF-28e) оптических волокон обеспечивается развязка сигналов (модулированного по интенсивности оптического сигнала и паразитного сигнала обратного отражения), достаточная для обеспечения стационарной генерации лазерного диода без перехода в режим динамических нестабильностей (как при использовании волоконно-оптического изолятора) [21].

При математическом описании стенда для исследования волоконно-оптического фотоакустического преобразователя с монослоем НЧ на торце оптического волокна необходимо учесть ряд особенностей физических процессов, происходящих в оптическом волокне, а также при электрооптическом и оптоэлектронном преобразованиях. При изучении фотоакустических преобразователей необходима оценка спектральной плотности мощности выходного акустического сигнала, полоса частот которого не превышает 100 МГц, при этом оптическая несущая имеет частоту свыше 100 ТГц, поэтому рассматриваемую задачу можно отнести к исследованию узкополосных процессов в оптическом волокне. Считается, что узлы стенда работают в линейном режиме. При измерении сигналов во временной области и последующем пересчете в частотную область удобнее пользоваться двусторонними спектральными плотностями мощности [27, с. 44–47], причем оценка спектральной плотности мощности с помощью метода Уэлча (обобщенного периодограммного метода) ограничивает диапазон частот от $-f_{\max}$ до $f_{\max}$, когда значение верхней частоты в спектре оказывается заведомо более высоким, чем ширина линии генерации лазера и спектральное положение любой из составляющих модулирующего сигнала. Мощность модулированного по интенсивности лазерного сигнала рассчитывается из спектральной плотности мощности по формуле [27, с. 52–60]:

$$P_{\text{opt}}^{\Sigma} = \int_{-f_{\max}}^{f_{\max}} P_{\text{opt}}(f) df, \quad (1)$$

где $P_{\text{opt}}(f)$ – спектральная плотность мощности модулированного по интенсивности лазерного сигнала; f – частота отстройки от оптической несущей.

Спектральная плотность мощности электрического сигнала опорного канала на выходе фотодиода может быть представлена как

$$U_{\text{PD}}(f) = Z_{\text{out}} S_{\text{PD}}(f) (1 - k) P_{\text{opt}}(f), \quad (2)$$

где Z_{out} – эффективный выходной импеданс фотодиода модуля, учитывающий рассогласование импедансов фотодиода и порта осциллографа; $S_{\text{PD}}(f)$ – частотная характеристика отклика фотодиода, А/Вт; k – коэффициент разветвления волоконно-оптического разветвителя в канал, содержащий фотоакустический преобразователь.

При исследовании фотоакустического преобразователя необходимо с помощью координатной системы добиться того, чтобы плоскость торца оптического волокна с монослоем НЧ Ag, с которой происходит излучение ультразвука, была параллельна плоскости чувствительной площадки гидрофона. Если расстояние между этими плоскостями менее длины волны наиболее высокочастотной составляющей спектра зондирующего электрического сигнала (для частот до 50 МГц и расстояния менее 10 мкм) при учете линейности всей системы, то рассеянием ультразвукового сигнала можно пренебречь. Спектральная плотность мощности давления акустического сигнала на выходе фотоакустического преобразователя может быть представлена в следующем виде:

$$p_{\text{PA}}(f) = S_{\text{PA}}(f) k P_{\text{opt}}(f), \quad (3)$$

где $S_{\text{PA}}(f)$ – частотная характеристика энергетического отклика фотоакустического преобразователя, Па²/Вт.

В случае когда площадь пятна акустического сигнала не превышает площадь чувствительной площадки гидрофона, интегральная акустическая мощность на выходе фотоакустического преобразователя с учетом теоремы о равенстве энергии в частотной и временной области [13; 27] равна

$$P_{\text{ac}}^{\text{eff}} = \frac{v}{K} S_{\text{eff}} \int_{-f_{\text{max}}}^{f_{\text{max}}} p_{\text{PA}}(f) df, \quad (4)$$

где v – скорость звука в окружающей среде; K – объемный модуль упругости среды, в которой находится фотоакустический преобразователь; S_{eff} – площадь пятна, приближенно равная эффективной площади модового пятна используемого оптического волокна.

Спектральная плотность мощности выходного электрического сигнала гидрофона представляется в виде

$$U_{\text{PA}}(f) = S_{\text{AE}}(f) p_{\text{PA}}(f), \quad (5)$$

где $S_{\text{AE}}(f)$ – частотная характеристика отклика гидрофона, В/Па².

Расчет численного значения эффективности фотоакустического преобразования выполняется по формуле [13]

$$\eta = \frac{P_{\text{ac}}^{\text{eff}}}{P_{\text{opt}}^{\Sigma}}. \quad (6)$$

С учетом того что в эксперименте имеется априорная информация ($S_{\text{AE}}(f)$, $S_{\text{PD}}(f)$), а также данные измерения ($U_{\text{PA}}(f)$, $U_{\text{PD}}(f)$), окончательно расчет эффективности фотоакустического преобразования проводится из формулы (6) в следующем виде:

$$\eta = \frac{v}{K} S_{\text{eff}} Z_{\text{out}} (1 - k) \int_{-f_{\text{max}}}^{f_{\text{max}}} \left[\frac{U_{\text{PA}}(f)}{S_{\text{AE}}(f)} \right] df \left[\int_{-f_{\text{max}}}^{f_{\text{max}}} \frac{U_{\text{PD}}(f)}{S_{\text{PD}}(f)} df \right]^{-1}.$$

Частотная характеристика энергетического отклика фотоакустического преобразователя, в свою очередь, может быть рассчитана на основе формул (1)–(6) с помощью соотношения

$$S_{\text{PA}}(f) = \frac{Z_{\text{out}} (1 - k)}{k} \frac{S_{\text{PD}}(f)}{S_{\text{AE}}(f)} \frac{U_{\text{PA}}(f)}{U_{\text{PD}}(f)}.$$

Таким образом, применение опорного волоконно-оптического канала с высокоскоростным фотодиодом при измерении спектральной плотности мощности сигнала с гидрофона при оценке параметров фотоакустического преобразователя, закрепленного на координатной системе, позволяет одновременно определять эффективность фотоакустического преобразования и измерять частотную характеристику энергетического отклика фотоакустического преобразователя в зависимости от параметров модуляции сигнала в оптическом волокне в реальном времени, что дает возможность разрабатывать фотоакустические методы диагностики и анализа структуры и свойств технических систем.

Спектр выходного акустического сигнала и фотостойкость макета фотоакустического преобразователя

Длительность импульса лазерного сигнала по уровню половины амплитуды составляет 50 нс, длительности фронтов не превышают 12 нс. Токовая чувствительность использованного фотодиода на длине волны 450 нм равна 0,07 А/Вт, ширина полосы рабочих частот превышает 40 МГц, пиковая

оптическая мощность оценена в 40 мВт. При исследовании выходного акустического сигнала макета фотоакустического преобразователя с монослоем НЧ Ag в воде необходимо отметить следующие важные особенности эксперимента:

- для приема ультразвукового сигнала с фотоакустического преобразователя (эффективный излучающий диаметр ~ 10 мкм) используется пьезоэлектрический приемник (эффективный диаметр ~ 10 мм), что приводит к существенной неравномерности механических напряжений на поверхности приемника, следствием чего является значительное снижение эффективности акустоэлектрического преобразования;
- в состав макета фотоакустического преобразователя входит монослой НЧ Ag с малой плотностью заполнения поверхности, что также приводит к существенному снижению эффективности фотоакустического преобразования, однако в соответствии с расчетами из-за большого запаса по мощности лазера [21] оказывается возможным применять созданный макет для генерации ультразвуковых сигналов. Значение коэффициента поглощения на длине волны использованного в эксперименте лазера (450 нм), оцененное с помощью фотодиода Vishay BPF34 и волоконно-оптического циркулятора, составляет около 9 %.

В силу этих особенностей параметры выходных акустических сигналов исследовались путем анализа в частотной области. Для оценки спектральной плотности мощности при экспериментальном исследовании применялся метод Уэлча [28, с. 22–24] к нескольким реализациям выходного акустического сигнала во временной области с использованием специализированного программного обеспечения *TiePie HS5 Multi Channel ver. 1.41.1*. Спектральная плотность мощности электрического сигнала ($\text{В}^2/\text{Гц}$) на выходе пьезоэлектрического преобразователя определяется спектральной плотностью мощности давления акустического сигнала ($\text{Па}^2/\text{Гц}$) на выходе фотоакустического преобразователя. На основе ряда реализаций сигнала на выходе пьезоэлектрического преобразователя проведена оценка спектральной плотности мощности электрического сигнала для двух различных макетов (рис. 3), в которых монослой НЧ Ag на торец оптического волокна наносился одновременно при близких условиях, однако плотность заполнения НЧ оказалась различной из-за особенностей эксперимента [24; 25]. Следует отметить, что метрологическая достоверность результатов достигается в случае, если измеряемый уровень спектральной плотности мощности превышает уровень собственного шума измерительной системы по крайней мере на 6 дБ [29, с. 189], что наблюдалось только для частот выше 10 МГц. Величины спектральной плотности мощности акустического отклика для макетов № 1 и 2 отличаются не более чем на 5 дБ, что объясняется тем, что в макете № 2 плотность заполнения поверхности НЧ ниже. Поведение кривых спектральной плотности мощности для обоих макетов очень близкое, в частности, наблюдается фотоакустический отклик в частотном диапазоне 10–18 МГц. Поскольку частота 10 МГц является собственной частотой пьезоэлектрического преобразователя, чувствительность данного приемника значительно снижена на других частотах. Интенсивность фотоакустического отклика в эксперименте на частотах около 18 МГц снижена из-за спада спектральной плотности мощности лазерного импульса на величину порядка 8 дБ (см. рис. 3, кривая зеленого цвета).

Таким образом, для макета волоконно-оптического фотоакустического преобразователя с монослоем серебряных НЧ с гамма-распределением последних по размерам с размерным и масштабным параметрами, величины которых соответствуют среднему диаметру 35 нм и разбросу по размерам 12 нм, сформированным на торце оптического волокна, сколотого стандартным волоконно-оптическим скалывателем Fujikura CT-30A (Япония), при использовании лазерного диода с волоконно-оптическим выводом излучения с пиковой мощностью 40 мВт экспериментально установлен фотоакустический отклик в воде в частотном диапазоне 10–18 МГц даже при достаточно узкополосном пьезоэлектрическом преобразователе в качестве приемника ультразвукового сигнала.

Устойчивость полученных макетов фотоакустических преобразователей в рамках экспериментов по оценке выходных характеристик может служить подтверждением работоспособности таких преобразователей по крайней мере в составе экспресс-систем технической диагностики с высоким разрешением [13; 15]. Для исследования устойчивости и надежности макета фотоакустического преобразователя требуется целый комплекс долговременных испытаний, а также проведение отдельных экспериментов по установлению закономерностей влияния экспозиции, пиковой интенсивности, формата модуляции, режима воздействия на структурную деградацию фотоакустических преобразователей и изменение выходных характеристик во времени.

Микрофотографии поверхности макета волоконно-оптического фотоакустического преобразователя с монослоем НЧ Ag до и после часового воздействия модулированным лазерным излучением (до и после исследования фотоакустической генерации) с эквивалентной экспозицией $\sim 800 \text{ Дж/см}^2$ представлены на рис. 4, из которого видно, что на поверхности появились загрязнения и механические повреждения вне сердцевины оптического волокна, однако при этом не наблюдается деградации спектральной плотности мощности выходного ультразвукового сигнала. Нанесенный на торец оптического волокна монослой НЧ обладает хорошей адгезией: размер НЧ и плотность заполнения подложки не

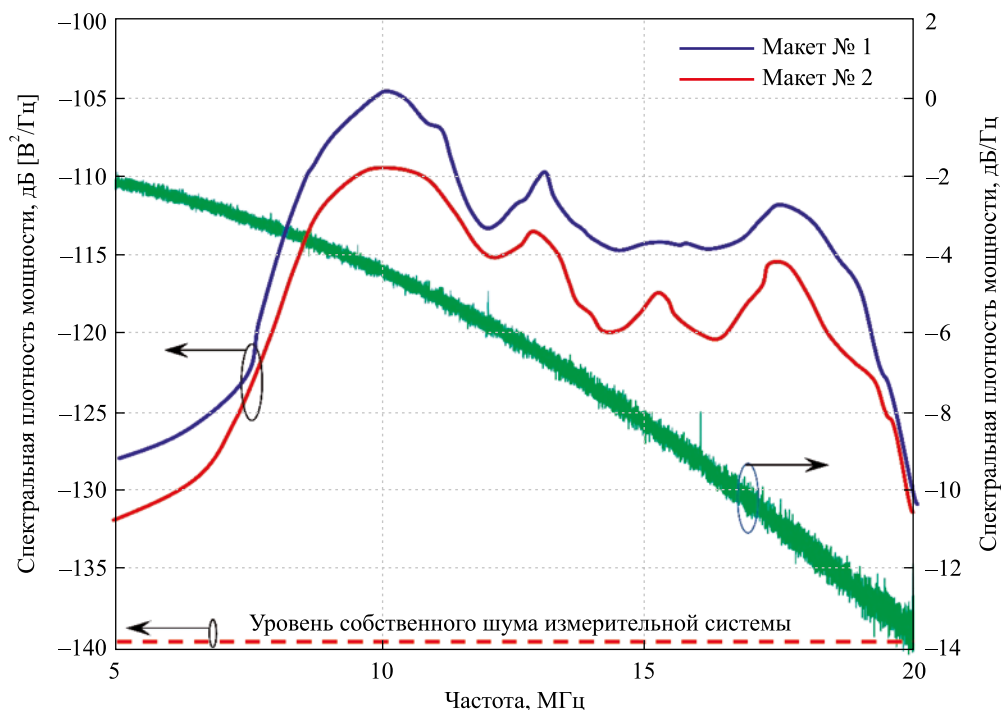


Рис. 3. Зависимость спектральной плотности мощности выходного акустического сигнала макета фотоакустического преобразователя с монослоем НЧ серебра в воде (шкала слева) и спектральной плотности мощности оптического импульса на входе (шкала справа) от частоты

Fig. 3. Power spectrum density of output signal of the prototype of photoacoustic transducer with monolayer of silver nanoparticles within water surrounding (left axis) and power spectrum density of input optical pulse

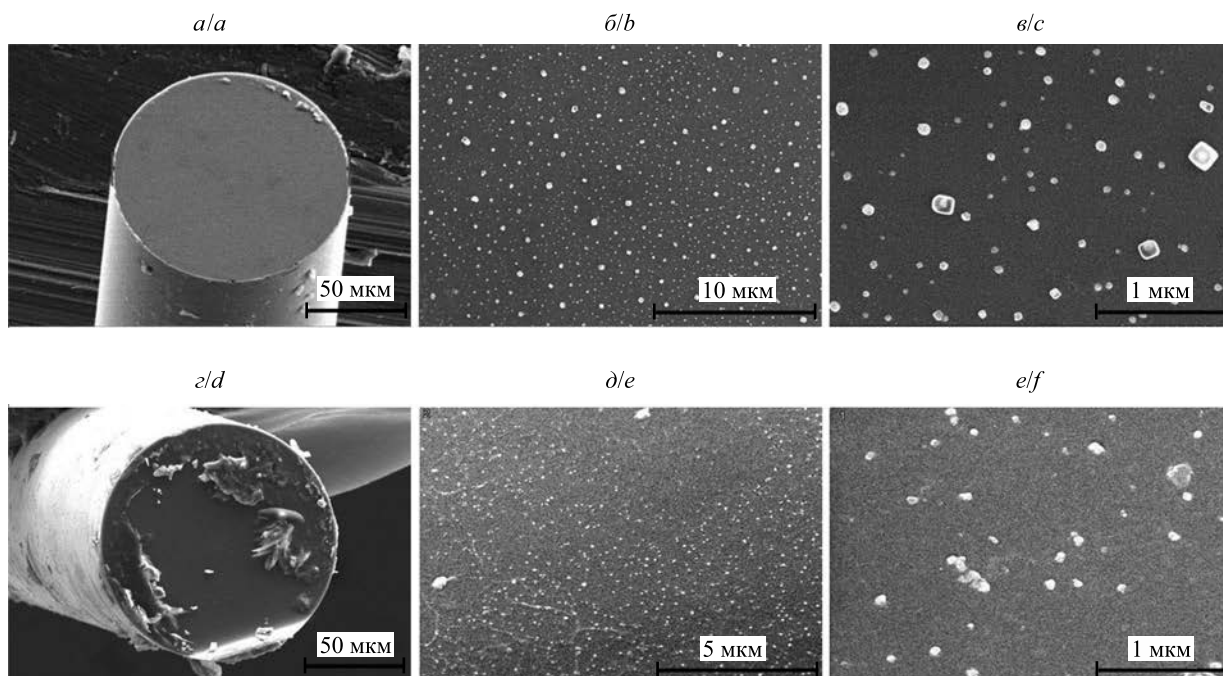


Рис. 4. Микрофотографии поверхности макета волоконно-оптического фотоакустического преобразователя с монослоем наночастиц серебра до (а – в) и после (г – е) измерения ультразвукового сигнала в воде, полученные с помощью растрового электронного микроскопа Hitachi S-4800

Fig. 4. Microphotos of photoacoustic transducer surface with monolayer of silver nanoparticles before (a – c) and after (d – f) measurement of acoustic signal within water surrounding. Microphotos are obtained with scanning electron microscope Hitachi S-4800

изменились, причем на некоторых образцах присутствуют «борозды», связанные с поверхностным загрязнением образцов. Наличие мелкой зернистости на микрофотографиях связано с особенностями растровой электронной микроскопии, когда перед исследованием на образец наносится технологический слой платины.

Таким образом, установлено, что часовое воздействие лазерного излучения на макет волоконно-оптического фотоакустического преобразователя, в котором монослой НЧ серебра на торец оптического волокна нанесен методом атмосферного лазерного осаждения, а также загрязнения и механические воздействия вне сердцевины оптического волокна не вызвали деградации монослоя НЧ, что позволяет использовать такие фотоакустические преобразователи в составе систем технической диагностики и неразрушающего контроля высокого разрешения.

Заключение

Экспериментально продемонстрирована генерация ультразвука на частотах 10–18 МГц в макете волоконно-оптического фотоакустического преобразователя, в котором методом атмосферного лазерного осаждения на торец оптического волокна нанесен монослой серебряных НЧ со средним диаметром последних 35 нм, гамма-распределением их по размерам со среднеквадратичным разбросом по размерам 12 нм и плотностью заполнения подложки 3,8 %. В качестве источника оптического сигнала для фотоакустического преобразователя использовался лазерный диод с волоконно-оптическим выводом с длиной волны 450 нм, обеспечивающий при прямой токовой модуляции генерацию оптических импульсов с длительностями фронтов не более 12 нс.

Показано, что применение опорного волоконно-оптического канала с высокоскоростным фотодиодом при измерении спектральной плотности мощности сигнала с гидрофона при оценке параметров фотоакустического преобразователя, закрепленного на координатной системе, позволяет одновременно определять эффективность фотоакустического преобразования и измерять частотную характеристику энергетического отклика фотоакустического преобразователя в зависимости от параметров модуляции сигнала в оптическом волокне, что открывает возможность для разработки фотоакустических методов диагностики и анализа структуры и свойств технических систем.

Установлено, что часовое воздействие модулированного лазерного излучения с эквивалентной экспозицией ~ 800 Дж/см² на указанный макет волоконно-оптического фотоакустического преобразователя, а также загрязнения и механические воздействия вне сердцевины оптического волокна не вызвали деградации наноструктуры, что позволяет использовать такие преобразователи неоднократно для системы технической диагностики и неразрушающего контроля высокого разрешения.

Библиографические ссылки

1. Hanselka H, Nuffer J. Characterization of reliability. In: Czichos H, Saito T, Smith LE, editors. *Springer handbook of metrology and testing. Chapter 16.7*. New York: Springer; 2011. p. 949–975.
2. Czichos H. Metrology and testing in materials science and technology. *Measurement Science and Technology*. 2009;4(4):46–77. DOI: 10.1080/19315775.2009.11721494.
3. Vesely W. *Fault tree handbook with aerospace applications*. Washington DC: NASA; 2002. 232 p.
4. Worden K, Farrar CR, Manson G, Park G. The fundamental axioms of structural health monitoring. *Philosophical Transactions of the Royal Society A*. 2007;463(2082):1639–1664. DOI: 10.1098/rspa.2007.1834.
5. Czichos H, editor. *Handbook of technical diagnostics*. Heidelberg: Springer; 2013. 566 p. DOI: 10.1007/978-3-642-25850-3.
6. Sposito G, Warda C, Cawley P, Nagyac PB, Scruby C. A review of non-destructive techniques for the detection of creep damage in power plant steels. *NDT International*. 2010;43(7):555–567. DOI: 10.1016/j.ndteint.2010.05.012.
7. Snook KA, Hu C-H, Shrout TR, Shung KK. High-frequency ultrasound annular-array imaging. Part I: Array design and fabrication. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*. 2006;53(2):300–308. DOI: 10.1109/TUFFC.2006.1593368.
8. Sharples SD, Clark M, Somekh MG. Spatially resolved acoustic spectroscopy for fast noncontact imaging of material microstructure. *Optics Express*. 2006;14(22):10435–10440. DOI: 10.1364/OE.14.010435.
9. Baerwald A, Dauk S, Kanthan R, Singh J. Use of ultrasound biomicroscopy to image human ovaries *in vitro*. *Ultrasound in Obstetrics and Gynecology*. 2009;34(2):201–207. DOI: 10.1002/uog.6438.
10. Foster FS, Mehi J, Lukacs M, Hirson D, White C, Chaggares C, et al. A new 15–50 MHz arraybased micro-ultrasound scanner for preclinical imaging. *Ultrasound in Medicine and Biology*. 2009;35(10):1700–1708. DOI: 10.1016/j.ultrasmedbio.2009.04.012.
11. Jadidian B, Hagh NM, Winder AA, Safari A. 25 MHz ultrasonic transducers with lead-free piezoceramic, 1–3 PZT fiber-epoxy composite, and PVDF polymer active elements. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*. 2009;56(2):368–378. DOI: 10.1109/TUFFC.2009.1046.
12. Gottlieb EJ, Cannata JM, Hu C-H, Shung KK. Development of a high-frequency (>50 MHz) copolymer annular-array, ultrasound transducer. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*. 2006;53(5):1037–1045. DOI: 10.1109/TUFFC.2006.1632693.

13. Biagi E, Margheri F, Menichelli D. Efficient laser-ultrasound generation by using heavily absorbing films as targets. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*. 2001;48(6):1669–1680. DOI: 10.1109/58.971720.
14. Buma T, Spisar M, O'Donnell M. A high-frequency, 2-D array element using thermoelastic expansion in PDMS. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*. 2003;50(9):1161–1176. DOI: 10.1109/TUFFC.2003.1235327.
15. Hou Y, Kim JS, Huang SW, Ashkenazi S, Guo LJ, O'Donnell M. Characterization of a broadband all-optical ultrasound transducer-from optical and acoustical properties to imaging. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*. 2008;55(8):1867–1877. DOI: 10.1109/TUFFC.2008.870.
16. Wu N, Zou X, Zhou J, Wang X. Fiber optic ultrasound transmitters and their applications. *Measurement*. 2016;79:164–171. DOI: 10.1016/j.measurement.2015.10.002.
17. Won Baac H, Ok JG, Park HJ, Ling T, Chen S-L, Hart AJ, et al. Carbon nanotube composite optoacoustic transmitters for strong and high frequency ultrasound generation. *Applied Physics Letters*. 2010;97(23):234104. DOI: 10.1063/1.3522833.
18. Hu C, Yu Z, Wang A. An all fiber-optic multi-parameter structure health monitoring system. *Optics Express*. 2016;24(18):20287–20296. DOI: 10.1364/OE.24.020287.
19. Tian Y, Wu N, Zou X, Felemban H, Cao C, Wang X. Fiber-optic ultrasound generator using periodic gold nanopores fabricated by a focused ion beam. *Optical Engineering*. 2013;52(6):065005. DOI: 10.1117/1.OE.52.6.065005.
20. Zou X, Wu N, Tian Y, Wang X. Broadband miniature fiber optic ultrasound generator. *Optics Express*. 2014;22(15):18119–18127. DOI: 10.1364/OE.22.018119.
21. Микитчук ЕП, Козадаев КВ. Моделирование оптических свойств поверхностных наноструктур для фотоакустических преобразователей. *Квантовая электроника*. 2018;48(7):630–636.
22. Mikitchuk AP, Kozadaev KV. Photoacoustic generation with surface noble metal nanostructures. *Semiconductors*. 2018;52(14):1839–1842. DOI: 10.1134/S106378261814018X.
23. Микитчук ЕП, Козадаев КВ, Гавриш ЛА, Гиришова ЕИ, Гончаров ВК, Жигулин ДВ и др. Наноструктуры на торце оптического волокна для фотоакустических преобразователей. *Квантовая электроника. Материалы XII Международной научно-технической конференции; 18–22 ноября 2019 г.; Минск, Беларусь*. Минск: РИВШ; 2019. с. 161–163.
24. Goncharov VK, Kozadaev KV, Mikitchuk AP, Puzyreva MV. Synthesis, structural and spectral properties of surface noble metal nanostructures for fiber-optic photoacoustic generation. *Semiconductors*. 2019;53(14):1950–1953. DOI: 10.1134/S1063782619140070.
25. Kozadaev KV. Physics of laser-induced plasma streams under irradiation of metals with nanosecond laser pulses at atmospheric pressure. *Journal of Engineering Physics and Thermophysics*. 2014;87(3):704–714. DOI: 10.1007/s10891-014-1063-8.
26. Корольок ВС. *Справочник по теории вероятностей и математической статистике*. Москва: Наука; 1985. 640 с.
27. Ахманов СА, Дьяков ЮЕ, Чиркин АС. *Введение в статистическую радиофизику и оптику*. Москва: Наука; 1981. 640 с.
28. Кривошеев ВИ. *Современные методы цифровой обработки сигналов (цифровой спектральный анализ)*. Нижний Новгород: Национальный исследовательский Нижегородский государственный университет им. Н. И. Лобачевского; 2006. 117 с.
29. Rauscher C, Janssen V, Minihold R. *Fundamentals of spectrum analysis*. München: Rohde & Schwarz; 2008. 208 p.

References

1. Hanselka H, Nuffer J. Characterization of reliability. In: Czichos H, Saito T, Smith LE, editors. *Springer handbook of metrology and testing. Chapter 16.7*. New York: Springer; 2011. p. 949–975.
2. Czichos H. Metrology and testing in materials science and technology. *Measurement Science and Technology*. 2009;4(4):46–77. DOI: 10.1080/19315775.2009.11721494.
3. Vesely W. *Fault tree handbook with aerospace applications*. Washington DC: NASA; 2002. 232 p.
4. Worden K, Farrar CR, Manson G, Park G. The fundamental axioms of structural health monitoring. *Philosophical Transactions of the Royal Society A*. 2007;463(2082):1639–1664. DOI: 10.1098/rspa.2007.1834.
5. Czichos H, editor. *Handbook of technical diagnostics*. Heidelberg: Springer; 2013. 566 p. DOI: 10.1007/978-3-642-25850-3.
6. Sposito G, Warda C, Cawley P, Nagyac PB, Scruby C. A review of non-destructive techniques for the detection of creep damage in power plant steels. *NDT International*. 2010;43(7):555–567. DOI: 10.1016/j.ndteint.2010.05.012.
7. Snook KA, Hu C-H, Shrout TR, Shung KK. High-frequency ultrasound annular-array imaging. Part I: Array design and fabrication. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*. 2006;53(2):300–308. DOI: 10.1109/TUFFC.2006.1593368.
8. Sharples SD, Clark M, Somekh MG. Spatially resolved acoustic spectroscopy for fast noncontact imaging of material microstructure. *Optics Express*. 2006;14(22):10435–10440. DOI: 10.1364/OE.14.010435.
9. Baerwald A, Dauk S, Kanthan R, Singh J. Use of ultrasound biomicroscopy to image human ovaries *in vitro*. *Ultrasound in Obstetrics and Gynecology*. 2009;34(2):201–207. DOI: 10.1002/uog.6438.
10. Foster FS, Mehi J, Lukacs M, Hirson D, White C, Chaggares C, et al. A new 15–50 MHz arraybased micro-ultrasound scanner for preclinical imaging. *Ultrasound in Medicine and Biology*. 2009;35(10):1700–1708. DOI: 10.1016/j.ultrasmedbio.2009.04.012.
11. Jadidian B, Hagh NM, Winder AA, Safari A. 25 MHz ultrasonic transducers with lead-free piezoceramic, 1–3 PZT fiber-epoxy composite, and PVDF polymer active elements. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*. 2009;56(2):368–378. DOI: 10.1109/TUFFC.2009.1046.
12. Gottlieb EJ, Cannata JM, Hu C-H, Shung KK. Development of a high-frequency (>50 MHz) copolymer annular-array, ultrasound transducer. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*. 2006;53(5):1037–1045. DOI: 10.1109/TUFFC.2006.1632693.
13. Biagi E, Margheri F, Menichelli D. Efficient laser-ultrasound generation by using heavily absorbing films as targets. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*. 2001;48(6):1669–1680. DOI: 10.1109/58.971720.
14. Buma T, Spisar M, O'Donnell M. A high-frequency, 2-D array element using thermoelastic expansion in PDMS. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*. 2003;50(9):1161–1176. DOI: 10.1109/TUFFC.2003.1235327.
15. Hou Y, Kim JS, Huang SW, Ashkenazi S, Guo LJ, O'Donnell M. Characterization of a broadband all-optical ultrasound transducer-from optical and acoustical properties to imaging. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*. 2008;55(8):1867–1877. DOI: 10.1109/TUFFC.2008.870.

16. Wu N, Zou X, Zhou J, Wang X. Fiber optic ultrasound transmitters and their applications. *Measurement*. 2016;79:164–171. DOI: 10.1016/j.measurement.2015.10.002.
17. Won Baac H, Ok JG, Park HJ, Ling T, Chen S-L, Hart AJ, et al. Carbon nanotube composite optoacoustic transmitters for strong and high frequency ultrasound generation. *Applied Physics Letters*. 2010;97(23):234104. DOI: 10.1063/1.3522833.
18. Hu C, Yu Z, Wang A. An all fiber-optic multi-parameter structure health monitoring system. *Optics Express*. 2016;24(18):20287–20296. DOI: 10.1364/OE.24.020287.
19. Tian Y, Wu N, Zou X, Felemban H, Cao C, Wang X. Fiber-optic ultrasound generator using periodic gold nanopores fabricated by a focused ion beam. *Optical Engineering*. 2013;52(6):065005. DOI: 10.1117/1.OE.52.6.065005.
20. Zou X, Wu N, Tian Y, Wang X. Broadband miniature fiber optic ultrasound generator. *Optics Express*. 2014;22(15):18119–18127. DOI: 10.1364/OE.22.018119.
21. Mikitchuk AP, Kozadaev KV. [Simulation of the optical properties of surface nanostructures for photoacoustic converters]. *Quantum Electronics*. 2018;48(7):630–636. Russian.
22. Mikitchuk AP, Kozadaev KV. Photoacoustic generation with surface noble metal nanostructures. *Semiconductors*. 2018;52(14):1839–1842. DOI: 10.1134/S106378261814018X.
23. Mikitchuk AP, Kozadaev KV, Gavrik LA, Girshova EI, Goncharov VK, Zhigulin DV, et al. [Surface nanoparticles with metal nanoparticles for fiber-optic photoacoustic transducers]. In: *Kvantovaya elektronika. Materialy XII Mezhdunarodnoi nauchno-tehnicheskoi konferentsii; 18–22 noyabrya 2019 g.; Minsk, Belarus* [Quantum Electronics. Materials of the XII International Scientific and Technical Conference; 2019 November 18–22; Minsk, Belarus]. Minsk: National Institute for Higher Education; 2019. p. 161–163. Russian.
24. Goncharov VK, Kozadaev KV, Mikitchuk AP, Puzyreva MV. Synthesis, structural and spectral properties of surface noble metal nanostructures for fiber-optic photoacoustic generation. *Semiconductors*. 2019;53(14):1950–1953. DOI: 10.1134/S1063782619140070.
25. Kozadaev KV. Physics of laser-induced plasma streams under irradiation of metals with nanosecond laser pulses at atmospheric pressure. *Journal of Engineering Physics and Thermophysics*. 2014;87(3):704–714. DOI: 10.1007/s10891-014-1063-8.
26. Koroljuk VS. *Spravochnik po teorii veroyatnostei i matematicheskoi statistike* [Handbook on the probability theory and mathematical statistics]. Moscow: Nauka; 1985. 640 p. Russian.
27. Ahmanov SA, D'jakov YuE, Chirkin AS. *Vvedenie v statisticheskuyu radiofiziku i optiku* [Introduction to statistical radiophysics and optics]. Moscow: Nauka; 1981. 640 p. Russian.
28. Krivosheev VI. *Sovremennye metody tsifrovoy obrabotki signalov (tsifrovoy spektral'nyi analiz)* [Modern methods of digital signal processing]. Nizhny Novgorod: Lobachevsky State University of Nizhni Novgorod; 2006. 117 p. Russian.
29. Rauscher C, Janssen V, Minihold R. *Fundamentals of spectrum analysis*. München: Rohde & Schwarz; 2008. 208 p.

Статья поступила в редколлегию 17.12.2019.
Received by editorial board 17.12.2019.

УДК 539.104:537.311.33:535.1

ПРОБЛЕМА МОДЕЛИРОВАНИЯ ФИЛАМЕНТОВ ПРИ ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННОМ ПРОБОЕ СРЕДЫ

П. П. ТРОХИМЧУК¹⁾

¹⁾Восточноевропейский национальный университет им. Леси Украинки,
пр. Воли, 4, 43025, г. Луцк, Украина

Обсуждаются проблемы возникновения лазерно-индуцированных филаментов в среде. Проведен детальный анализ образования таких структур в различных средах – от воздуха до карбида кремния. Показано влияние спектрального состава, числа импульсов и длительности облучения и среды на геометрические размеры полученных структур и на их фазовые состояния. При этом величина филаментов изменяется от сотен нанометров для карбида кремния до сотен метров для воздуха. Спектр излучения непрерывный и напоминает спектр излучения Вавилова – Черенкова. Поэтому было развито представление о том, что излучение филаментов и излучение Вавилова – Черенкова имеют одну и ту же природу. Обсуждаются проблемы механизмов образования лазерно-индуцированного каскада разрушений в карбиде кремния. Для объяснения экспериментальных результатов были использованы модифицированные модели Рэлея (дифракционного расслоения лазерного луча и критических размеров нановоидов), физико-химические модели определения критических значений энергии для соответствующих процессов и модели для оптически индуцированного черенковского излучения.

Ключевые слова: объемные лазерно-индуцированные структуры; черенковское излучение; карбид кремния; филаменты; оптический пробой; дифракционное расслоение; модифицированные модели Рэлея; каскадная модель; релаксационная оптика.

PROBLEM OF THE MODELING THE FILAMENTS AFTER LASER-INDUCED BREAKDOWN THE MATTER

P. P. TROKHIMCHUCK^a

^aLesya Ukrayinka East European National University, 4 Voly Avenue, Lutsk 43025, Ukraine

The problems of the appearance of laser-induced filaments in the matter are discussed. A detailed analysis of the formation of such structures in various media: from air to silicon carbide, is represented. The influence of the spectral composition, the number of pulses and the duration of the irradiation and the medium on the geometric dimensions of the resulting structures and on their phase states is shown. In this case, the sizes of filaments vary from several hundred nanometers for silicon carbide to several hundred meters for air. The emission spectrum is continuous, and resembles the Cherenkov radiation. Therefore, the idea was developed that the radiation of filaments and the radiation of Cherenkov are of the same nature. The problems of the mechanisms of the formation of laser-induced destruction cascades in silicon carbide are discussed. To explain the experimental results, we used modified Rayleigh models (diffraction stratification of the laser beam and critical sizes of nanovoids), physicochemical models for determining critical energy values for the corresponding processes, and models for optically-induced Cherenkov radiation.

Keywords: volume laser-induced structures; Cherenkov radiation; silicon carbide; filaments; optical breakdown; diffraction separation; modified Rayleigh models; cascade model; relaxation optics.

Образец цитирования:

Трохимчук П.П. Проблема моделирования филаментов при лазерно-индуцированном пробое среды. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика.* 2020;1:16–27. <https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-16-27>

For citation:

Trokhimchuck P. P. Problem of the modeling the filaments after laser-induced breakdown the matter. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2020;1:16–27. Russian. <https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-16-27>

Автор:

Петр Павлович Трохимчук – кандидат физико-математических наук, доцент; доцент кафедры теоретической и математической физики им. А. В. Свидзинского факультета информационных систем.

Author:

Petro P. Trokhimchuck, PhD (physics and mathematics), docent; associate professor at the A. V. Svidzinskii department of theoretical and mathematical physics, faculty of information systems.
trope1650@gmail.com

Введение

Моделирование механизмов лазерно-индуцированных объемных неравновесных и необратимых явлений представляет собой сложную задачу [1–12]. В зависимости от условий облучения образуются филаменты длиной от сотен нанометров для твердого тела [3; 4] до сотен метров для воздуха [5]. При этом процессы могут быть неравновесными и необратимыми [3; 4].

Первые результаты по выяснению причины образования лазерно-индуцированных филаментов были получены при экспериментальном исследовании явления самофокусировки [5; 11]. Возникновение филаментов связывали с генерацией одного или нескольких волноводов вследствие самоканалирования и изменения модовой структуры излучения [5; 11]. Также приводились объяснения с помощью модели движущихся фокусов Лугового – Прохорова [5; 11], которая может рассматриваться как дифракционное расслоение оптического пучка [5; 6]. Однако движущиеся фокусы перемещаются по оптической оси, а множество филаментов может возникать и на расстояниях от нее, больших, чем диаметр падающего пучка [5; 6; 9–14].

Кроме того, по оптической оси наблюдались чередование темных и светлых областей в воздухе [12] либо каскады разрушений в карбиде кремния [3; 4]. Это позволяет предположить, что образование каскадов филаментов и их «наноструктурирование» – два взаимосвязанных процесса [6–8].

Нами предложена модифицированная модель дифракционных колец Рэлея с последующей фокусировкой излучения, которая позволила выявить причину возникновения каскада разрушений [6–8].

Неоднородность распределения излучения по длине филамента может быть объяснена также на основании теории движущихся фокусов Лугового – Прохорова [6] и модифицированной модели Рэлея дифракционного расслоения лазерного пучка [6]. Но при этом каждый фокус является источником черенковского излучения, и поэтому дальнейшее высвечивание имеет непрерывный спектр, также происходит интерференция черенковского излучения [6]. Максимумы интерференционных картин и есть причина образования микро- и нанокартин фазовых трансформаций материала [6]. Особенно хорошо это прослеживается в экспериментах группы Т. Окады по облучению гексагонального карбида кремния сфокусированным лазерным излучением [3; 4; 6–8]. С помощью этой модели удовлетворительно объясняются результаты по получению филаментов в воздухе, образованных при облучении фемтосекундными лазерными импульсами [12]. Итоги этих исследований могут служить подтверждением существования оптически генерируемого излучения Вавилова – Черенкова и основанием для выяснения его роли в фазовых превращениях облучаемой среды [6–8]. В пользу черенковского излучения как излучения филаментов говорит тот факт, что непрерывность спектра излучения филамента не зависит от природы облучающей среды (твердое тело, жидкость или газ) [2; 9; 10]. Характеристики черенковского излучения (черенковский угол и т. п.) более наглядно прослеживаются при облучении твердого тела [6].

Однако следует отметить, что ударный характер черенковского излучения с оптической накачкой с квантовой точки зрения заключается в том, что локальные квантовые процессы должны происходить быстрее, чем электромагнитная «коллективизация» возбуждения или переход к дальнодействию (нестрого говоря, это процесс образования плазменных колебаний). Реально использование тепловых моделей, которые позволяют объяснить цитируемые экспериментальные результаты, рассматривать не приходится [1; 6–8].

Само появление филамента может быть представлено с помощью кинетической каскадной модели поэтапного возбуждения химических связей в режиме насыщения возбуждения облучения (лазерный эффект) [1; 6–8]. В этом случае можно учитывать и механизмы релаксации (излучательная или безызлучательная). Кроме того, эта модель описывает и ударные процессы с физико-химической точки зрения [6]. При этом главную роль играет скорость накоплений локальных возбуждений, и она в принципе может быть меньше среднестатистической фазовой скорости света в среде, на что указывалось при изучении возможности возникновения черенковского излучения с оптической накачкой в любой среде [6; 9].

Основные экспериментальные результаты

Приведем краткий обзор основных итогов экспериментов по образованию объемных лазерно-индуцированных филаментов, включая фазовые трансформации облучаемого материала.

Первые результаты по самофокусировке были получены Н. Ф. Пилипецким и А. Р. Рустамовым [5; 6; 11]. Кюветы с органическими жидкостями подвергались сфокусированному лазерному облучению. В данном случае изучались вторичные процессы взаимодействия указанного излучения с веществом.

Позже самофокусировка исследовалась в различных газах, жидкостях и твердых телах [5; 11]. Основные особенности этих экспериментов – генерация лазерно-индуцированных филаментов и коническое излучение с непрерывным спектром от ультрафиолетового до инфракрасного диапазона [2; 9; 10].

Непрерывные спектры изучались группой К. Нагуры, и спектры белого света были получены для различных сред [2]. Титан-сапфировая лазерная система, основанная на методе усиления чирпированного импульса, обеспечивала энергию импульса 1 мДж, длительность 70 фс с частотой повторения 10 Гц. Средняя длина волны составляла 785 нм, а полуширина линии лазерного излучения – 20 нм. Этот основной луч, имеющий диаметр 7 мм, был преобразован в импульсы второй и третьей гармоник путем удвоения и утроения частоты двумя кристаллами бората бария толщиной 100 мкм. Максимальная выходная энергия импульсов второй и третьей гармоник – 180 и 30 мкДж соответственно.

Согласно [2] ширина запрещенной зоны облучаемых материалов равна 4,7; 7,5; 7,5; 10,2 и 11,8 эВ для стекла BK7, воды, плавленого кварца, CaF_2 и LiF соответственно. Лазерный луч фокусировался на передней поверхности среды, которая помещалась в фокальной плоскости. Когда интенсивность лазера накачки постепенно увеличивалась, ширина спектра резко возрастала с пороговой интенсивностью и сами спектры быстро насыщались. Было установлено, что материалы с большой запрещенной зоной, такие как CaF_2 и LiF , имеют тенденцию к асимметричному уширению, так как спектр в антистоксовой области расширяется гораздо больше, чем в стоксовой [2].

Природа конического излучения исследовалась в [9; 10]. Для облучения [10] использовался синхронизированный лазер Quantel YG-471 (*Quantel Laser*, Франция), который генерировал импульсы длительностью 22 мкс с длиной волны 1,06 мкм и энергией до 35 мДж и импульсы длительностью 15 мкс второй гармоники с энергией 12 мДж. Лазерное излучение фокусировалось на кюветы длиной 1–10 см с H_2O и D_2O . С помощью набора линз с фокусными расстояниями от 2 до 25 см получали интенсивность в фокусном пятне до 10^{12} Вт/см². Несколько (обычно от 5 до 10) филаментов генерировались каждым импульсом. Суперконтинуум более эффективно генерировался при фокусировке лазерного излучения с помощью линз с большими фокусами на длинные кюветы облучаемого материала. Пороговая энергия образования суперконтинуума в D_2O ниже, чем в H_2O . Суперконтинуум распространялся в кольце, и при облучении с длиной волны 1,06 мкм генерируемая энергия фотона возрастала с углом вне оси, тогда как при возбуждении излучением с 0,53 мкм картина была более сложной. Из экспериментальных данных видно (рис. 1, а), что пространственное распределение излучения суперконтинуума в конусе не зависит от моды фокусировки. Это позволяет сделать вывод, что источник излучения находится на поверхности филаментов. Аналогичные результаты были получены на парах натрия [10] (рис. 1, б).

В [3; 4] для минимизации получаемых структур кристаллы 4Н-SiC облучались импульсами фемтосекундного лазера (продолжительность импульса 130 фс, длина волны 800 нм, частота импульсов 1 кГц, энергия 200–300 нДж на импульс) с помощью микроскопа (рис. 2, а, б). Облучение проводилось сфокусированными фемтосекундными лазерными импульсами по линиям внутри монокристаллов 4Н-SiC на глубине 30 мкм путем перемещения образца со скоростью сканирования 10 мкм/с. Расстояние между соседними линиями 20 мкм. Лазерный луч был направлен под прямым углом к поверхности (0001) кристалла. Направление облучения – почти параллельное этому направлению. Схема облучения приведена на рис. 2, а.

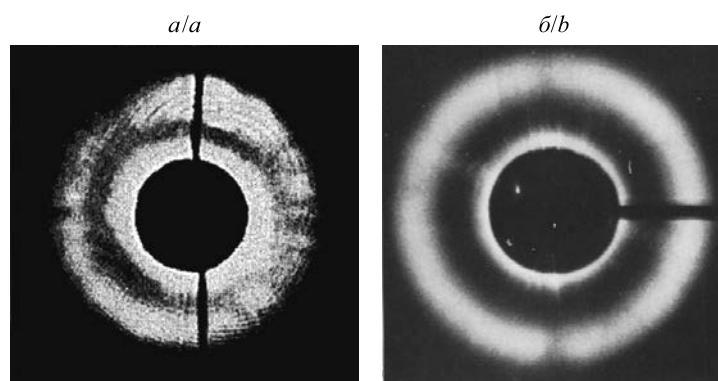


Рис. 1. Генерация суперконтинуума в D_2O при лазерном облучении с длиной волны 0,53 мкм, фокусируемом на ячейку сферической линзой (а); коническое излучение для паров натрия с плотностью $1,8 \cdot 10^{15}$ см⁻³ и лазерной отстройкой от 0,2 нм до синего цвета перехода D_2 [10] (б)

Fig. 1. Supercontinuum pattern generation in D_2O by 0.53 μm laser excitation. The laser is focused by cell (a) by spherical lens or (b) the pattern of the conical emission at sodium density of $1.8 \cdot 10^{15}$ cm⁻³ and laser detuning of 0.2 nm to the blue of the D_2 transition. The laser radiation is focused into the sodium cell by a spherical lens [10]

Изображения, полученные с помощью просвечивающей электронной микроскопии при облучении с энергией 300 нДж на импульс, приведены на рис. 2, в, д.

В этом случае были получены не поверхностные, а трехмерные периодические структуры. Поперечные размеры секций этих структур ~ 22 мкм, глубина ~ 50 мкм. Как видно из рис. 2, в, имеются пять степеней каскада неупорядоченных областей, расположенных на расстоянии от 2 до 4 мкм друг от друга по вертикали. Толщина групп каскада от 150 до 300 нм. Присутствуют также нитевидные образования диаметром от 10 до 20 нм. Кроме того, в этих нитях образуются нановоиды (пузырьки) с тем же диаметром. Обнаружено, что облученные структуры сохраняют кристаллографическую симметрию исходной структуры.

Лазерная филаментация была получена при облучении воздуха фемтосекундными лазерными импульсами (длина волны 800 нм, длительность импульса 85 фс, энергия 230 мДж и пиковая мощность 2,3 ТВт [12]). Образуется кольцевая пятнистая зона деформированного исходного пучка (глубина 30 м). Эти «горячие» точки (пятна) самофокусируются еще на несколько метров, в то же время они возбуждают вторичные мелкомасштабные расслоения в своей окрестности (глубина 35 м) [12]. Избыточная мощность передается в центральную зону луча, которая служит резервуаром энергии для возбуждения новых последовательностей небольших пятен (глубина 50 м).

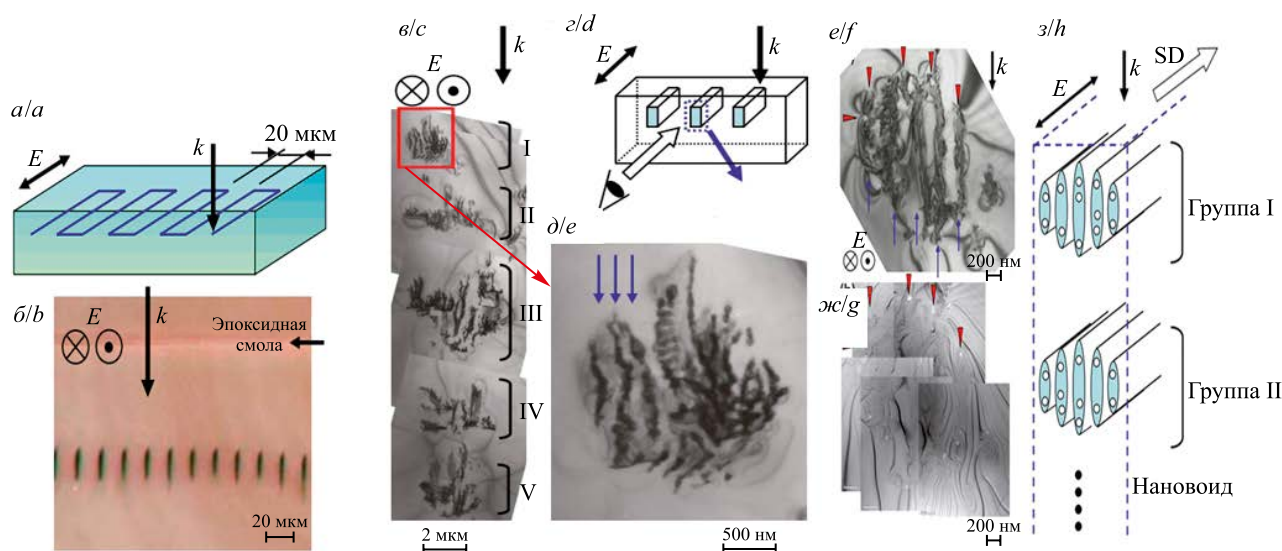


Рис. 2. Принципиальная схема лазерного облучения с указанием направлений распространения света k и ориентации напряженности электрического поля E (а). Изображение, полученное с помощью электронной просвечивающей микроскопии по сечению лазерного пучка облучения (200 нДж на импульс) (б). Изображение, полученное с помощью электронной просвечивающей микроскопии для плотности энергии 300 нДж на импульс (в). Иллюстрация геометрии облучения (г). Увеличенное изображение отмеченной на рис. 2, в, прямоугольной площадки (лазерно-модифицированные слои с межслойным промежутком 150 нм обозначены стрелками) (д). Изображение, полученное с помощью электронной просвечивающей микроскопии части сечения линии для плотности энергии 200 нДж на импульс (е). Изображения с нулевой потерей той же области, что и на рис. 2, е, с нановоидами (светлые области); соответствие с рис. 2, е, задается стрелками в обоих электронограммах (ж). Схематические иллюстрации микроструктуры лазерно-модифицированной линии: показаны направления k , E и направление сканирования SD; приведены только две группы (I и II) лазерно-модифицированной микроструктуры [3; 4] (з).

Fig. 2. Schematic illustration of the laser irradiated pattern; the light propagation direction k and electric field E are shown (a). Optical micrograph of the mechanically thinned sample to show cross sections of laser-irradiated lines (200 nJ per pulse) (b). Bright-field TEM image of the cross section of a line written with pulse energy of 300 nJ per pulse (c). Schematic illustration of a geometric relationship between the irradiated line and the cross-sectional micrograph (d). Magnified image of a rectangular area in fig. 2, c (laser-modified layers with a spacing of 150 nm are indicated by arrows) (e). Bright-field TEM image of a portion of the cross section of a line written with a pulse energy of 200 nJ per pulse (f). Zero-loss image of a same area as in fig. 2, f, with nanovoids appearing as bright areas; correspondence with fig. 2, f, is found by noting the arrowheads in both micrographs (g). Schematic illustrations of the microstructure of a laser modified line. Light-propagation direction (k), electric field (E), and scan direction (SD) are shown; only two groups (I and II) of the laser-modified microstructure are drawn [3; 4] (h).

Были выделены три характерные особенности экспериментальных результатов [12]:

- образование «горячих» (ярких) пар точек на дальнем расстоянии;
- наличие в активной области пучка зоны, где интенсивные нити распадаются на мелкомасштабные ячейки;
- наличие области, включающей поперечную структуру, которая сохраняет видимую картину нитей на длине более 5 м.

Моделирование, объяснение результатов

В основу моделирования положены результаты, представленные на рис. 2, в, с привлечением других данных. Оно было разбито на следующие стадии:

- 1) выявление причины возникновения каскада объемных разрушений и оценка его размеров (см. рис. 2, в);
- 2) оценка размеров каждой группы каскада и объяснение образования ниточной структуры, а также соответствующие численные оценки;
- 3) создание модели генерации нановоидов и оценка их размеров и формы.

Наличие пяти групп нановоидов (см. рис. 2, в) может быть объяснено дифракционным расслоением лазерного луча как с помощью теории подвижных фокусов Лугового – Прохорова, так и по модифицированной модели Рэля [6]. Стратификация дифракционного кольца на нитях обусловлена формированием новых фаз, которые «создают» эти застывшие нанопровода. Поэтому стратификация лазерного облучения на различные зоны в модели Лугового – Прохорова подвижных фокусов может быть объяснена с помощью теории создания дифракционной картины [6]. Но максимумы более высоких порядков этой картины для сфокусированного излучения в нелинейном случае могут иметь большую интенсивность по сравнению с линейным.

Оптический пробой вещества может основываться на каскадной модели – многофотонных процессах поглощения света в режиме насыщения возбуждения соответствующих центров рассеяния (многофотонное поглощение) [6].

Размеры (диаметры) групп каскада d_{nir} пропорциональны соответствующим дифракционным диаметрам d_{ndif} [6]:

$$d_{\text{nir}} = k d_{\text{ndif}},$$

где k – коэффициент пропорциональности.

Дифракционные диаметры d_{ndif} могут быть определены с помощью соотношений Рэля для дифракционных кружков [6]:

$$d_{\text{ndif}} = n\lambda,$$

где n – номер дифракционного кольца (натуральное число).

Оценки дифракционных диаметров d_{ndif} для $\lambda = 800$ нм приведены в табл. 1.

Таблица 1

Диаметры первых пяти
дифракционных колец Рэля

Table 1

Diameters of first five Rayleigh diffractive rings

Номер дифракционного кольца	Диаметр, нм
1	800
2	1600
3	2400
4	3200
5	4000

Расстояние между дифракционными пятнами и соответствующими фокусами можно найти по формуле [6]

$$l_{\text{nf}} = \frac{d_{\text{ndif}}}{2 \operatorname{tg} \frac{\varphi}{2}},$$

где φ – угол фокусировки луча.

Величины l_{nf} для двух значений углов $\varphi_1 = 20^\circ$ и $\varphi_2 = 30^\circ$ приведены в табл. 2. Разность этих расстояний дает расстояние между соответствующими группами каскада.

Таблица 2

Расстояние от дифракционных колец
до точек фокусировки, нм

Table 2

Distances from diffraction rings to their focus points, nm

Номер дифракционного кольца	Угол фокусировки	
	20°	30°
1	2269	1493
2	4538	2985
3	6807	4478
4	9076	5970
5	11 345	7463

Качественное объяснение образования каскада разрушений следующее. Фокус каждой дифракционной зоны (пятна) является основой для формирования источника черенковского излучения. Но фокусы от дифракционных колец более высокого порядка могут размещаться в зоне влияния предыдущих фокусов. Поэтому только первая группа каскада разрушений (см. рис. 2, в, д) представлена чистым ударным механизмом (конус Маха). Конусы Маха характерны и для второй и третьей групп каскада разрушений (см. рис. 2, в), но их максимумы смещены от центра, что может быть результатом взаимодействия второй и третьей ударных волн с предыдущими ударными волнами (с первой – для второй волны и с первой и второй – для третьей волны). Ударный механизм разрушения подтверждается линейным направлением оптического пробоя. Оно параллельно направлению ударной волны, а излучаемый спектр является континуумом как для излучения Вавилова – Черенкова [6–10], так и для наблюдаемых лазерных филаментов в воде и воздухе [6–10]. Таким образом, основная причина оптического каскада разрушений – вторичное черенковское излучение (электромагнитные ударные волны), которое поглощается более эффективно, чем исходное лазерное, так как лежит в области собственного поглощения карбида кремния. Поэтому создание оптических следов пробоя более эффективное для вторичного черенковского излучения, чем для исходного лазерного. Для исходного излучения с длиной волны 800 нм карбид кремния практически прозрачен. При проверке этой гипотезы следует измерить спектр вторичного излучения [6]. В этом случае можно использовать физико-химическую каскадную модель возбуждения соответствующих химических связей облученного вещества в режиме насыщения возбуждения [6].

Причина появления нанорасслоения в каждой группе каскада разрушений – интерференция черенковского излучения или самоиндуцированное образование дифракционных решеток [6].

Можно выделить главные особенности распределения энергии в конусе Маха. Оценим основные энергетические характеристики экспериментальных данных, которые представлены на рис. 2, в. Пусть каждый этап каскада имеет ~200 нанотрубок диаметром $d_{nt} = 20$ нм и длиной $l_{nt} = 500$ нм. Общее количество этих нанотрубок $N_{lsnt} \sim 1000$, а их полный объем

$$V_{lsnt} = N_{lsnt} \frac{\pi d_{nt}^2}{4} l_{nt} = 0,63 \text{ мкм}^3.$$

Атомная плотность (плотность кристаллических узлов) для 4H-SiC может быть определена с помощью формулы [7; 8]

$$N_a = \frac{2\rho N_A}{A},$$

где ρ – плотность материала; N_A – число Авогадро; A – вес грамм-молекулы SiC. Для 4H-SiC атомная плотность есть $N_{aSiC} = 2,4 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$.

Число атомов в полном объеме

$$N_{asnt} = N_{aSiC} V_{lsnt} = 1,51 \cdot 10^{10}.$$

Энергию, необходимую для оптического пробоя в объеме образованных нанотрубок, можно оценить исходя из следующих соображений [6; 7]. Пороговая энергия Зейтца (суммарная энергия разрыва всех

связей одного атома в кристалле) для 4Н-SiC равна $E_{Zth} \sim 25$ эВ. Пусть эта энергия соответствует энергии оптического пробоя. Тогда суммарная энергия есть

$$E_{lob} = N_{asnt} E_{Zth} = 30,2 \text{ нДж.}$$

Это значение составляет 10 % от энергии лазерного импульса (300 нДж) [6], а с учетом отражения – примерно 30 % от эффективной поглощенной энергии. Таким образом, мы имеем более высокую эффективность преобразования исходного излучения в излучение Вавилова – Черенкова. Основной особенностью экспериментальных данных, представленных на рис. 2, является преобразование исходного лазерного излучения (длина волны 800 нм) в непрерывное излучение Черенкова. Если предположить, что длина одной нанонити соответствует оптической толщине, то коэффициент поглощения будет составлять $\sim 10^4 \text{ см}^{-1}$. Это значение отвечает фиолетово-синему диапазону спектра поглощения 4Н-SiC. Необратимость достигается за счет многофотонного поглощения в максимумах наведенной интерференционной картины.

Оценим цепочку критических значений энергии для SiC с физико-химической точки зрения. Критическое значение энергии, которая необходима для начала самофокусировки, можно определить следующим образом. Объемная плотность энергии, требуемой для возникновения процесса самофокусировки, может быть вычислена по формуле

$$W_{crvol} = E_a N_{nc},$$

где E_a – энергия активации соответствующих «нелинейных центров»; N_{nc} – их концентрация. Воспользуемся следующим приближением: $E_a = h\nu = 1,5$ эВ; $N_{nc} = 10^{14} - 10^{16} \text{ см}^{-3}$. Тогда для SiC величина W_{crvol} составляет от $2,4 \cdot 10^{-5}$ до $2,4 \cdot 10^{-3} \text{ Дж/см}^3$. Поверхностная плотность может быть определена как

$$W_{crsur} = \frac{W_{crvol}}{\alpha},$$

здесь α – коэффициент поглощения. Для SiC имеем: $\alpha = 0,1 \text{ см}^{-1}$ и $W_{crsur} = 2,4 \cdot 10^{-4} - 2,4 \cdot 10^{-2} \text{ Дж/см}^2$. Интегральное значение энергии определяется как

$$W_{crin} = W_{crsur} S,$$

где S – площадь облучения.

Для рис. 2, в, $S = 1,256 \cdot 10^{-7} \text{ см}^2$ при $r = 2$ мкм, поэтому $W_{crin} = 3 \cdot 10^{-11} - 3 \cdot 10^{-9} \text{ Дж}$. При $r = 1$ мм получим $W_{crin} = 1,9 \cdot 10^{-6} - 1,9 \cdot 10^{-4} \text{ Дж}$. Эти оценки согласуются с таковыми, которые найдены исходя из электродинамических соображений (керровская среда и т. п. [11]). Однако предлагаемый метод более общий, так как не зависит от среды облучения, а лишь связан с концентрацией центров, приводящих к изменению коэффициента поглощения при лазерном облучении [15].

Следующим этапом определения плотности энергии является выявление условий дифракционного расслоения, которые находятся, например, с помощью размеров дифракционных колец. Мы можем оценить дифракционное расслоение для $n = 5$.

Максимальный диаметр дифракционной картины грубо оценивается диаметром пятого дифракционного кольца. Средняя плотность энергии в плоскости дифракционных колец

$$W_{avdr} = \frac{E_p}{S},$$

где E_p – энергия лазерного импульса.

Для $S = 1,256 \cdot 10^{-7} \text{ см}^2$ и $E_p = 200$ нДж или $E_p = 300$ нДж получим значения W_{avdr} , равные 1,6 или $2,4 \text{ Дж/см}^2$ соответственно. Если последние величины умножить на коэффициент поглощения SiC ($\alpha = 0,1 \text{ см}^{-1}$), то найдем объемную плотность энергии – 0,16 или $0,24 \text{ Дж/см}^3$. Действительное значение составляет 0,4 от приведенного (коэффициент отражения $\sim 0,6$) и равно 0,064 или $0,096 \text{ Дж/см}^3$. Соотношение $\frac{W_{avdrvol}}{W_{crvol}}$ для этих величин колеблется от 27 до 2700. Плотность энергии оптического пробоя

W_{ob} для SiC равна 48 кДж/см^3 , соотношение $\frac{W_{ob}}{W_{avdrvol}}$ составляет $5 \cdot 10^5$ или $7,5 \cdot 10^5$.

Эту методику расчета можно использовать и для других материалов. В зависимости от того, что требуется получить (непрерывный спектр излучения или фазовые превращения облученного материала), можно оценить условия облучения.

Вопрос о суперконтинуальном излучении в процессе лазерной филаментации обсуждается в [9]. В воздухе суперконтинуальные спектры имеют диапазон от ультрафиолетового до инфракрасного.

Конусный вид одной группы (см. рис. 2, в, д, и 3) может быть представлен как замороженная картина черенковского излучения с оптической накачкой [6]. Угол 2θ при вершине конуса на рис. 3

соответствует углу Черенкова [6–8]. Из этого можно сделать следующий вывод: создание каскада разрушений связано с ударной ионизацией, и данный эффект аналогичен микроскопическому механизму излучения Черенкова [6]. Но этот угол может быть и больше, и меньше угла Черенкова

$$\cos \theta_{\text{ch}} = \frac{1}{\beta n},$$

где n – показатель преломления; $\beta = \frac{v}{c}$, v – скорость налетающей частицы (для лазера – скорость соответствующего процесса поляризации среды). Угол может быть определен, согласно теории Нильса и Оге Боров, и как угол между оптической осью и перпендикуляром к огибающей поверхности лазерного луча [6; 14]. Для 4H-SiC $\theta_{\text{ch}} = 69^\circ$ [6]. Иное значение угла может быть объяснено двумя причинами: 1) нелинейной дефокусировкой выходного излучения; 2) увеличением черенковского угла для нелинейного режима облучения [6; 9].

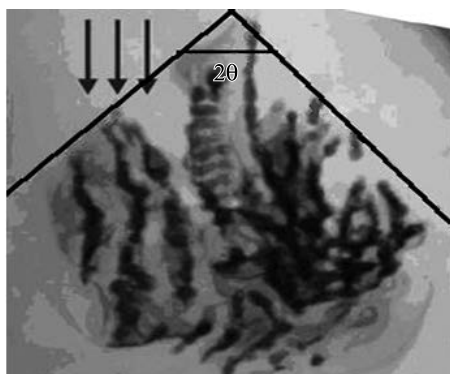


Рис. 3. Увеличенное изображение первой группы каскада, представленной на рис. 2, в. Угол 2θ примерно равен углу черенковского излучения [6]

Fig. 3. Increased image of the first group of the cascade fig. 2, c. The angle 2θ is approximately equal to the Cherenkov irradiation angle [6]

Подобные процессы происходят во время облучения среды ультракороткими импульсами. Это позволяет сделать вывод, что широкополосная часть спектра самофокусировки соответствует черенковскому излучению. Здесь общим является изменение поляризационных свойств вещества как при пролете высокоэнергетической частицы, которая проходит через вещество, так и во время самофокусировки. Гиперболоид торможения частицы в теории Нильса и Оге Боров [13; 14] может быть заменен гауссовым распределением излучения в лазерной моде TEM_{00} или же сфокусированным лазерным лучом. Однако если во время прохождения высокоэнергетических частиц с одинаковой энергией имеется много гиперболоидов, то при прохождении лазерного импульса, вызывающего появление самофокусировки, такой «гиперболоид» лишь один. Следовательно, лазерное излучение вызывает неодинаковую поляризацию по своему сечению, поэтому модель Нильса и Оге Боров [13; 14] можно успешно использовать для объяснения конического излучения при самофокусировке. В этом случае необходимо учитывать изменение диэлектрической проницаемости при фотоионизации среды лазерным излучением и тот факт, что его поперечная часть – это то же излучение, что и для высокоэнергетических частиц. Иными словами, конусное излучение самофокусировки можно рассматривать как излучение Черенкова с «оптической накачкой».

Угол черенковского излучения в нелинейной среде был изучен в работе [9], согласно которой сходство торможения заряженной частицы и черенковского излучения света объясняется исходя из аналогии между законами Снелла и черенковского излучения. Это естественно, поскольку оба явления можно получить из интерференционного принципа Гюйгенса (рис. 4).

На рис. 4, а, точка пересечения светового луча, падающего под углом φ на границу между двумя средами (в данном случае это граница сред с линейной и нелинейной поляризациями), вдоль которой распространяется нелинейная поляризация, движется со скоростью $v = \frac{c}{n_1 \cos \varphi}$. Применяя это соот-

ношение и закон Снелла, получим формулу для черенковского излучения $\cos \theta = \frac{c}{n_2 v}$ (см. рис. 4). Таким образом, закон преломления света на границе между двумя средами аналогичен условию черенковского излучения источником, движущимся по границе. В нелинейной среде излучаемые частоты

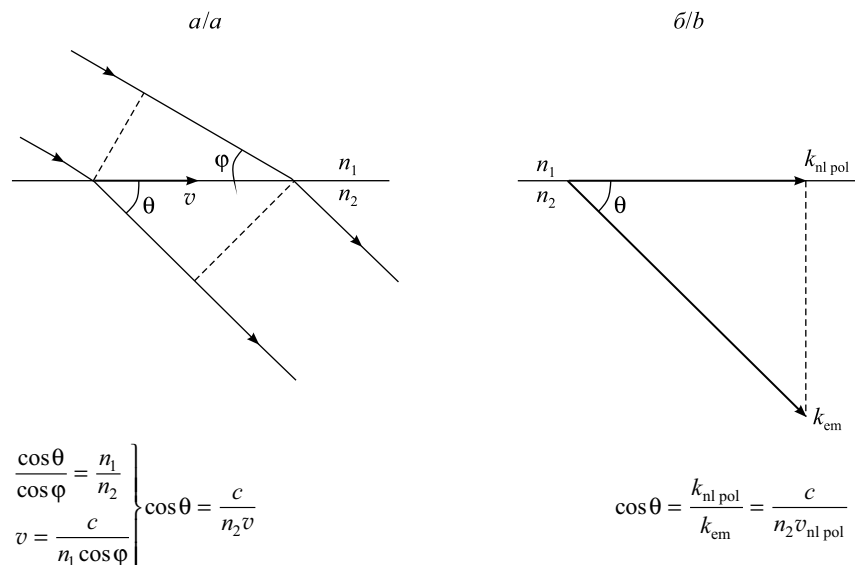


Рис. 4. Аналогия между законами Снелла и черенковского излучения (а).
Вывод формулы для черенковского угла из закона сохранения продольной составляющей импульса на границе между средами, вдоль которых распространяется нелинейная поляризация [9] (б)

Fig. 4. Analogy between Snell's law and Cherenkov radiation (a).

The point of intersection of a light pulse impinging upon a boundary two media moves with velocity $v = \frac{c}{n_1 \cos \varphi}$.

Combining this relation with Snell's law one obtains the Cherenkov relation, $\cos \theta = \frac{c}{n_2 v}$ [9] (a).

The Cherenkov angle relation can be obtained from the conservation of the longitudinal component of a linear momentum at a boundary between to media along which a nonlinear polarization is propagated [9] (b)

могут отличаться от частоты возбуждения, но отношение Черенкова все еще справедливо, поскольку интерференция происходит под заданным углом Черенкова для каждой составляющей частоты Фурье с нелинейной поляризацией, вызванной светом. В определенном смысле можно говорить о нелинейном эффекте Снелла – Черенкова.

Формула для черенковского угла может быть получена из закона сохранения продольной составляющей импульса на границе между средами, вдоль которых распространяется нелинейная поляризация (см. рис. 4, б). Используя выражение для волнового числа $k = \frac{\omega}{v}$, получим [9]

$$\cos \theta = \cos \varphi = \frac{k_{nl \text{ pol}}(\omega)}{k_{em}(\omega)} = \frac{v_{em}}{v_{nl \text{ pol}}} = \frac{c}{n_2(\omega) v_{nl \text{ pol}}}$$

Роль границы может играть поверхность самоканализованного филамента. Нелинейная поляризация, которая распространяется вдоль этой поверхности, приведет к черенковскому излучению. Несочетание поперечной составляющей импульса может быть связано с принципом неопределенности $\Delta x \Delta k > 1$, где Δx – толщина границы [9].

В целом микроскопический механизм лазерно-индуцированного черенковского излучения может быть представлен как неравновесный спектр всех возможных нелинейных оптических явлений в локальных точках распространения лазерного луча. Это рамановское и бриллюэновское рассеяния, up- и down-конверсия, генерация гармоник и разнообразные взаимодействия этих процессов, которые формируют непрерывный спектр от ультрафиолетовой до инфракрасной области [6].

Черенковское излучение при оптической накачке представимо как нелинейный оптический процесс со скоростью, меньшей, чем фазовая скорость света в облученном веществе. В этом случае последняя имеет физическую природу – это электромагнитная скорость «коллективного» движения заряженных частиц или заряда в веществе. Следовательно, в локальном масштабе имеют место нелинейные оптические процессы, которые ограничены конусом Маха черенковского излучения (см. рис. 2, в). Именно это позволяет расширить теорию Нильса и Оге Боров о микроскопическом механизме черенковского излучения на оптический диапазон возбуждения [6].

Причиной филаментации (образование нитей диаметром 50–80 мкм и длиной несколько десятков метров при распространении коллимированных фемтосекундных лазерных импульсов в воздухе,

диаметром 10–20 мкм – в карбиде кремния) служит возникновение мелкомасштабной структуры самофокусировки, которое может быть вызвано образованием индуцированных дифракционных решеток и подвижных фокусов. Это явление также связано с пробоем воздуха и по своей природе, очевидно, схоже с возникновением молнии, только в нашем случае ионизация (пробой) воздушного слоя выполняется с одной стороны за счет многократной узконаправленной фотоионизации с учетом процесса облучения.

Упрощенно объяснить экспериментальные данные, представленные на рис. 2, в, можно следующим образом. Каскад разрушений в объеме – это след подвижных фокусов или сфокусированных колец Рэлея. Каждая стадия этого каскада (см. рис. 3) является следствием возникновения ударного оптического пробоя в конусе Маха. Механизм создания новой фазы облученного вещества схож с плоским случаем, когда имеет место генерация поверхностных нано- или микроколон, ориентированных перпендикулярно к облученной поверхности [7]. Для объемного случая (см. рис. 2, в, и 3) нанонити ориентированы параллельно оси конуса Маха. Волновой характер этих нанонитей определяется кристаллической структурой облученного вещества.

Перейдем теперь к моделированию геометрических размеров и формы нановоидов в карбиде кремния. Нановоиды могут быть представлены как результат лазерно-индуцированного разрушения и создания кавитационных пузырьков. Световое давление можно найти по формуле [6–8]

$$p_0 = \frac{E_{ir}}{\tau_i c S},$$

где E_{ir} – энергия облучения; τ_i – длительность импульса; c – скорость света; S – площадь зоны облучения. Для сферической симметрии

$$S = \pi r^2,$$

здесь r – радиус лазерного луча.

Оценка максимального радиуса нановоидов вычисляется по модифицированной формуле Рэлея [6–8]

$$R_{\max} = \frac{T_c}{0,915} \sqrt{\frac{p_0}{\rho_0}},$$

где T_c – время образования нановоида; ρ_0 – плотность облученного материала. Величина T_c определяется из соотношения

$$T_c \approx \frac{d_c}{v_s},$$

здесь d_c – характерный размер нановоида (кавитационного пузырька); v_s – скорость звука. Для сферического случая $d_c = 2R$, где R – радиус нановоида.

Скорость звука определяется как

$$v_s = \sqrt{\frac{E}{\rho_0}},$$

где E – модуль Юнга.

Окончательная формула для определения $R_{\max}$ имеет вид

$$R_{\max} \approx \frac{2R}{0,915r} \sqrt{\frac{E_{ir}}{\pi \tau_i c E}}.$$

Если положить $r = 250$ нм, $R = 10$ нм, $E = 600$ ГПа [40; 41], $E_{ir} = 130$ нДж, $\tau_i = 130$ нс, $c = 3 \cdot 10^8$ м/с, то получим $R_{\max} = 11$ нм.

Скорость ударных электромагнитных волн для фемтосекундного режима облучения меньше, чем фазовая скорость света в среде.

В идеальном упругом теле имеются две составляющие скорости звука: продольная и поперечная [8]. Их значения определяются с помощью следующих формул:

$$v_{ls} = \sqrt{\frac{E(1-\nu)}{\rho_0(1+\nu)(1-2\nu)}}, \quad v_{ts} = \sqrt{\frac{E}{2\rho_0(1+\nu)}},$$

где ν – коэффициент Пуассона. Отношение этих двух составляющих

$$\alpha = \frac{v_{ts}}{v_{ls}} = \sqrt{\frac{(1-2\nu)}{2(1-\nu)}}. \quad (1)$$

Однако такое соотношение справедливо и для ударных волн. Тогда для карбида кремния $\alpha = 0,33$ при $v = 0,45$. Образно говоря, последнее соотношение определяет степень «эллипсоидальности» форм нановоидов (см. рис. 2).

Можно также определить среднюю скорость звука:

$$v_{ms} = \frac{1}{2}(v_{ls} + v_{ts}) = \frac{1}{2} \left[\frac{\sqrt{2E(1-v)} + \sqrt{E(1-2v)}}{\sqrt{2\rho_0(1+v)(1-2v)}} \right].$$

В общем случае это значение надо умножить на число Маха M .

После вышеуказанных замечаний формула для определения среднего максимального радиуса $R'_{\max}$ нановоидов принимает вид

$$R'_{\max} = \frac{4R\sqrt{2E_{ir}(1+v)(1-2v)}}{0,915r\sqrt{\pi c\tau_i M} \left[\sqrt{2E(1-v)} + \sqrt{E(1-2v)} \right]} = 2 \frac{\sqrt{2(1+v)(1-2v)}}{\sqrt{M} \left[\sqrt{2(1-v)} + \sqrt{(1-2v)} \right]} R_{\max}.$$

Для $M = 1$ получаем $R'_{\max} = 0,75R_{\max}$. Поскольку число Маха большее для миллисекундного и наносекундного режимов облучения и меньшее для фемтосекундного режима, имеет место удовлетворительное согласование с экспериментом.

Оценим $R_{\max}$ для продольной v_{ls} и поперечной v_{ts} составляющих скорости звука:

$$R_{\max l} = \sqrt{\frac{(1+v)(1-2v)}{(1-v)}} R_{\max} \approx 0,51R_{\max}, \quad R_{\max t} = \sqrt{2(1+v)} R_{\max} \approx 1,7R_{\max}. \quad (2)$$

Тогда параметр α в (1) может быть определен также как

$$\alpha = \frac{R_{\max l}}{R_{\max t}} = 0,33.$$

По формулам (2) можно оценить максимальные продольные и поперечные радиусы – они составят 6 и 19 нм соответственно.

Здесь мы рассматривали 4H-SiC как изотропное упругое тело, а не кристаллическую гексагональную структуру. Но для качественного объяснения экспериментальных данных, представленных на рис. 2, эта модифицированная модель Рэлея позволяет также оценить размеры и формы нановоидов.

Таким образом, с помощью приведенной системы моделей можно исследовать основные особенности рассматриваемых экспериментальных данных.

Заключение

В данной работе проанализированы экспериментальные результаты по лазерно-индуцированному образованию филаментов в различных средах.

Для объяснения цепочки лазерно-индуцированных процессов, которые приводят к филаментации и каскаду разрушений в случае карбида кремния, разработан и приведен комплекс моделей – модифицированные модели Рэлея (дифракционного расслоения лазерного луча и образования нанонитей и нановоидов).

Показана роль черенковского излучения в формировании филаментов в различных средах и образовании фазовых трансформаций в карбиде кремния.

Выполнен энергетический физико-химический расчет цепочки взаимосвязанных процессов: порог возникновения самофокусировки – дифракционное расслоение пучка – необратимые фазовые превращения в облучаемом материале. Приведены соответствующие оценки для карбида кремния.

Сделан вывод, что с вышеописанной точки зрения следует анализировать экспериментальные результаты по образованию филаментов в жидкостях и газах.

Библиографические ссылки

1. Trokhimchuk PP. Problems of reradiation and reabsorption in nonlinear and relaxed optics. *International Journal of Advanced Research in Physical Science*. 2017;4(2):37–50.
2. Nagura C, Suda A, Kawano H, Obara M, Midorikawa K. Generation and characterization of ultrafast white-light continuum in condensed media. *Applied Optics*. 2002;41(18):3735–3742. DOI: 10.1364/AO.41.003735.

3. Okada T, Tomita T, Matsuo S, Hashimoto S, Ishida Y, Kiyama S, et al. Formation of periodic strain layers associated with nanovoids inside a silicon carbide single crystal induced by femtosecond laser irradiation. *Journal of Applied Physics*. 2009;106(5):054307. DOI: 10.1063/1.3211311.
4. Okada T, Tomita T, Matsuo S, Hashimoto S, Kashino R, Ito T. Formation of nanovoids in femtosecond laser irradiated single crystal silicon carbide. *Material Science Forum*. 2012;725(4):19–22. DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.725.19.
5. Boyd RW, Lukishova SG, Shen Y-R, editors. *Self-Focusing: Past and Present*. New York: Springer Verlag; 2009. 605 p. (Topics in Applied Physics; volume 114).
6. Trokhimchuk PP. Problems of modeling diffraction and interference processes in nonlinear and relaxed optics. *International Journal of Advanced Research in Physical Science*. 2019;6(7):5–17.
7. Trokhimchuk PP. Problems of modeling the phase transformations in nonlinear and relaxed optics. *International Journal of Engineering Research and Development*. 2018;14(2):48–61.
8. Trokhimchuk PP. Some problems of modeling the volume processes of relaxed optics. *International Journal of Advanced Research in Physical Science*. 2018;5(11):1–14.
9. Golub I. Optical characteristics of supercontinuum generation. *Optics Letters*. 1990;15(6):305–307. DOI: 10.1364/OL.15.000305.
10. Golub I, Shuker R, Eres G. On the optical characteristics of the conical emission. *Optics Communications*. 1986;57(2):143–145. DOI: 10.1016/0030-4018(86)90145-8.
11. Marburger JH. Self-focusing: theory. *Progress in Quantum Electronics*. 1975;4(1):35–110. DOI: 10.1016/0079-6727(75)90003-8.
12. Berge L, Skupin S, Lederer F, Mejean G, Yu J, Kasparian J, et al. Multiple filamentation of terawatt laser in laser. *Physical Review Letters*. 2004;92(22):225002. DOI: 10.1103/PhysRevLett.92.225002.
13. Франк ИМ. Излучение Вавилова – Черенкова. *Вопросы теории*. Москва: Наука; 1988. 288 с.
14. Бор Н. Прохождение заряженных частиц через вещество. Москва: Иностранная литература; 1950. 148 с.
15. Шен ИР. Принципы нелинейной оптики. Шумай НЛ, переводчик. Москва: Наука; 1989. 559 с.

References

1. Trokhimchuk PP. Problems of reradiation and reabsorption in nonlinear and relaxed optics. *International Journal of Advanced Research in Physical Science*. 2017;4(2):37–50.
2. Nagura C, Suda A, Kawano H, Obara M, Midorikawa K. Generation and characterization of ultrafast white-light continuum in condensed media. *Applied Optics*. 2002;41(18):3735–3742. DOI: 10.1364/AO.41.003735.
3. Okada T, Tomita T, Matsuo S, Hashimoto S, Ishida Y, Kiyama S, et al. Formation of periodic strain layers associated with nanovoids inside a silicon carbide single crystal induced by femtosecond laser irradiation. *Journal of Applied Physics*. 2009;106(5):054307. DOI: 10.1063/1.3211311.
4. Okada T, Tomita T, Matsuo S, Hashimoto S, Kashino R, Ito T. Formation of nanovoids in femtosecond laser irradiated single crystal silicon carbide. *Material Science Forum*. 2012;725(4):19–22. DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.725.19.
5. Boyd RW, Lukishova SG, Shen Y-R, editors. *Self-Focusing: Past and Present*. New York: Springer Verlag; 2009. 605 p. (Topics in Applied Physics; volume 114).
6. Trokhimchuk PP. Problems of modeling diffraction and interference processes in nonlinear and relaxed optics. *International Journal of Advanced Research in Physical Science*. 2019;6(7):5–17.
7. Trokhimchuk PP. Problems of modeling the phase transformations in nonlinear and relaxed optics. *International Journal of Engineering Research and Development*. 2018;14(2):48–61.
8. Trokhimchuk PP. Some problems of modeling the volume processes of relaxed optics. *International Journal of Advanced Research in Physical Science*. 2018;5(11):1–14.
9. Golub I. Optical characteristics of supercontinuum generation. *Optics Letters*. 1990;15(6):305–307. DOI: 10.1364/OL.15.000305.
10. Golub I, Shuker R, Eres G. On the optical characteristics of the conical emission. *Optics Communications*. 1986;57(2):143–145. DOI: 10.1016/0030-4018(86)90145-8.
11. Marburger JH. Self-focusing: theory. *Progress in Quantum Electronics*. 1975;4(1):35–110. DOI: 10.1016/0079-6727(75)90003-8.
12. Berge L, Skupin S, Lederer F, Mejean G, Yu J, Kasparian J, et al. Multiple filamentation of terawatt laser in laser. *Physical Review Letters*. 2004;92(22):225002. DOI: 10.1103/PhysRevLett.92.225002.
13. Frank IM. *Izluchenie Vavilova – Cherenkova. Voprosy teorii* [Cherenkov Radiation. Theoretical Aspects]. Moscow: Nauka; 1988. 288 p. Russian.
14. Bohr N. *Prokhozhenie zaryazhennykh chastits cherez veshchestvo* [The passage of charged particles through matter]. Moscow: Inostrannaya literatura; 1950. 148 p. Russian.
15. Shen YR. *Principles of nonlinear optics*. New York: John Wiley & Sons; 1984.
Russian edition: Shen YR. *Printsipy nelineinoi optiki*. Shumai NL, translation. Moscow: Nauka; 1989. 559 p.

Статья поступила в редакцию 03.12.2019.
Received by editorial board 03.12.2019.

УДК 520.874.7

РАЗГРУЗКА РЕЗОНАТОРА ПОСРЕДСТВОМ ГЕНЕРАЦИИ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ В Nd : YAG-ЛАЗЕРЕ С МОДУЛЯЦИЕЙ ДОБРОТНОСТИ

Р. И. НОВИЦКАЯ¹⁾, И. В. СТАШКЕВИЧ¹⁾, Е. С. ВОРОПАЙ¹⁾

¹⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

Рассматривается метод разгрузки резонатора через генерацию второй гармоники в неодимовом лазере, функционирующем в режиме модуляции добротности. Проводится теоретическое моделирование работы лазера при активной модуляции добротности, рассчитаны основные характеристики выходных импульсов и их зависимость от коэффициента потерь в системе и мощности накачки. Указанный метод может быть реализован в лазере с кристаллом второй гармоники внутри резонатора и электрооптическим затвором, на который подается импульс напряжения. Продолжительность этого импульса определяется временем, необходимым для формирования гигантского импульса в резонаторе, и составляет $\sim 0,1-1,0$ мкс в зависимости от мощности накачки. Длительность управляющего импульса напряжения должна быть постоянной с точностью до нескольких наносекунд. При этом на выходе лазера формируются наносекундные импульсы второй гармоники с пиковой интенсивностью порядка $10-100$ МВт/см². Продолжительность выходных импульсов определяется только длиной резонатора в случае, когда время переключения электрооптического затвора меньше, чем время обхода резонатора светом. Для достижения максимальной пиковой интенсивности импульсов необходимо уменьшить потери в системе до минимально возможного уровня и увеличить мощность накачки.

Ключевые слова: Nd : YAG-лазер; разгрузка резонатора; балансные уравнения; модуляция добротности; электрооптический кристалл; кристалл второй гармоники.

Благодарность. Работа выполнена при поддержке Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований (договор № F18-118).

Образец цитирования:

Новицкая РИ, Сташкевич ИВ, Воропай ЕС. Разгрузка резонатора посредством генерации второй гармоники в Nd : YAG-лазере с модуляцией добротности. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика*. 2020;1:28–33 (на англ.). <https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-28-33>

For citation:

Navitskaya RI, Stashkevich IV, Voropay ES. Cavity dumping by the second harmonic generation in the Q-switched Nd : YAG laser. *Journal of the Belarusian State University. Physics*. 2020; 1:28–33. <https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-28-33>

Авторы:

Роза Игоревна Новицкая – аспирантка кафедры лазерной физики и спектроскопии физического факультета. Научный руководитель – И. В. Сташкевич.

Игорь Вячеславович Сташкевич – кандидат физико-математических наук, доцент; доцент кафедры лазерной физики и спектроскопии физического факультета.

Евгений Семенович Воропай – доктор физико-математических наук, профессор; профессор кафедры лазерной физики и спектроскопии физического факультета.

Authors:

Roza I. Navitskaya, postgraduate student at the department of laser physics and spectroscopy, faculty of physics. r.navitskaya@gmail.com

Ihar V. Stashkevich, PhD (physics and mathematics), docent; associate professor at the department of laser physics and spectroscopy, faculty of physics. stashkevitch@bsu.by

Eugeni S. Voropay, doctor of science (physics and mathematics), full professor; professor at the department of laser physics and spectroscopy, faculty of physics. voropay@bsu.by
<https://orcid.org/0000-0001-7995-8796>

CAVITY DUMPING BY THE SECOND HARMONIC GENERATION IN THE Q-SWITCHED Nd : YAG LASER

R. I. NAVITSKAYA^a, I. V. STASHKEVICH^a, E. S. VOROPAY^a

^a*Belarusian State University, 4 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220030, Belarus*

Corresponding author: I. V. Stashkevich (stashkevitch@bsu.by)

This paper presents the cavity dumping method by the second harmonic generation in a neodymium laser operating in the Q-switched mode. Theoretical modeling of the laser generation in dynamics is performed. The main characteristics of the output pulses and their dependence on the pump power and coefficient of losses are calculated. The proposed method can be implemented in the laser with a second harmonic crystal inside the cavity and an electro-optical crystal, which is operated by a step voltage pulse. The switching pulse length is defined by the time needed to achieve the maximum giant pulse intensity in the cavity, and is in the order of 0.1–1.0 μs depending on the pump power. Moreover, the voltage pulse jitter should not exceed several nanoseconds. In such case the second harmonic pulses with nanosecond duration and peak intensity of 10–100 MW/cm^2 are generated at the laser output. The output pulses duration is defined only by the cavity length under the conditions of a small response time of the electro-optical crystal compared to the cavity round-trip time. To achieve the maximal peak intensity, one should decrease the coefficient of inactive losses to the possible minimum and increase the pump power.

Keywords: Nd : YAG laser; cavity dumping; rate equations; Q-switching; electro-optical crystal; second harmonic crystal.

Acknowledgements. This work was supported by the Belarusian Republican Foundation for Fundamental Research (agreement No. F18-118).

The use of pulsed lasers in such areas as range finding, remote sensing, medicine, and the like requires stable energy characteristics and high-quality beam. Conventional Q-switched lasers have fundamental limitations on the stability of the pulse energy and the pulse length when operating in the nanosecond range. Lasers operating in the cavity dumping mode allow one to obtain highly stable pulses, the length of which is determined only by the gate switch time and the cavity length [1–3]. In such lasers thin-film or prism polarizers are usually used as an output mirror, and cavity dumping is achieved by rotation of the output-radiation polarization plane by an angle of 90° with the help of an electrooptical shutter.

An alternative method is cavity dumping by means of the second harmonic generation [4–6]. This method allows to output the energy stored in the cavity using the intracavity conversion into the second harmonic. The method can be implemented in various laser operation modes: free generation [4], Q-switching [5], and mode-locking [6]. The output pulses with the highest power and energy are formed when the cavity dumping by the second harmonic generation is realized in the Q-switched mode. In this paper, we present theoretical analysis and implementation of the cavity dumping method in the actively Q-switched neodymium laser.

The proposed setup is shown in fig. 1.

The cavity mirrors are chosen in such a way that their reflection coefficients are almost equal to 1 for the fundamental frequency radiation and 0 for the second harmonic radiation (for the output mirror). To convert radiation to the second harmonic, an anisotropic second harmonic crystal of type II is used (*oe* interaction, in our case this is a KTP crystal).

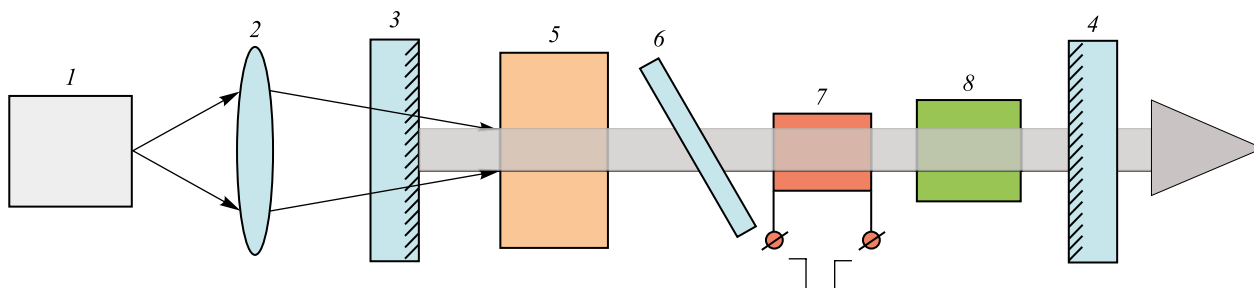


Fig. 1. Setup for the cavity dumping by the second harmonic generation in the actively Q-switched laser:

1 – diode laser; 2 – lens; 3, 4 – resonator mirrors; 5 – laser crystal; 6 – polarizer;
7 – electro-optical crystal; 8 – second harmonic crystal

The generation of the output pulses with the scheme under consideration is realized in three stages, which are switched by changing the voltage on the electro-optical crystal (EOC). The first two stages correspond to the giant pulse generation under constant pumping. At the first stage, a quarter-wave voltage is applied to the EOC. The cavity Q-factor is low, the population of the upper laser level increases to the maximum value, but the generation does not start. At the second stage, the voltage on the EOC rapidly drops to zero, which leads to the formation of a giant pulse inside the cavity. At zero voltage, the generation of the second harmonic does not occur because the polarization of the radiation remains linear and the phase-matching conditions in the second harmonic crystal (SHC) are not fulfilled. At the third stage, the cavity is dumped. When the intensity inside the cavity reaches a maximum, the quarter-wave voltage is applied to the EOC again and an output second harmonic pulse is formed. The quarter-wave voltage on the EOC changes the polarization of radiation from linear to circular, which leads to the phase matching in the SHC and generation of the second harmonic pulse. The part of the fundamental frequency radiation that is not converted into the second harmonic is dispersed by the polarizer, and its intensity is reduced almost to zero over the cavity round-trip time.

A crystal of yttrium-aluminum garnet with neodymium ($\text{Nd}^{3+} : \text{YAG}$) operating according to the four-level scheme was considered as an active element of the laser.

To simulate the generation in dynamics at the first and second stages (generation of a giant pulse), we used the rate equations [6] written in the approximation of the point model of the active medium:

$$\begin{aligned}\frac{dS_1}{dt} &= \frac{l}{L_{\text{opt}}} c \sigma_e S_1 (N_2 - N_1) + K_s l \frac{N_2}{\tau_2} - S_1 r_{\text{tc}}, \\ \frac{dN_1}{dt} &= \sigma_e S_1 (N_2 - N_1) + \frac{N_2}{\tau_2} - \frac{N_1}{\tau_1}, \\ \frac{dN_2}{dt} &= -\sigma_e S_1 (N_2 - N_1) + \frac{N_3}{\tau_3} - \frac{N_2}{\tau_2}, \\ \frac{dN_3}{dt} &= \sigma_a R_{\text{pump}} (N_s - N_1 - N_2 - N_3) - \frac{N_3}{\tau_3}.\end{aligned}\tag{1}$$

Here $l = 0.3$ cm is the active element length; $L_{\text{opt}} = 20.25$ cm is the cavity optical length; $\sigma_e = 28 \cdot 10^{-20}$ cm² is the stimulated emission cross-section; $\sigma_a = 7.7 \cdot 10^{-20}$ cm² is the absorption cross-section; S_1 is the fundamental frequency photon flux density in the cavity; N_i and τ_i , where $i = 1, 2, 3$, are the population densities and lifetimes at the lower laser level ($^4\text{I}_{11/2}$), the upper laser level ($^4\text{F}_{3/2}$) and the level $^4\text{F}_{5/2}$ respectively, where $\tau_1 = 10$ ns, $\tau_2 = 230$ μ s, $\tau_3 = 30$ ns; $N_s = 1.38 \cdot 10^{20}$ cm⁻³ is the bulk density of neodymium ions in the crystal at a concentration of 1 %; $K_s = 10^{-10}$ is the fraction of spontaneous radiation in the generation channel; R_{pump} is the pump photon flux density determined by the pump power.

The relationship between the pump photon flux density and the incident pump power is determined as follows:

$$R_{\text{pump}} = \frac{P_{\text{pump}}}{h\nu_a s_{\text{cr}}},$$

where P_{pump} is the pump power incident on the surface of the crystal (end pumping); $h\nu_a$ is the pump photon energy; $a = 0.05$ cm is the pump radius and $s_{\text{cr}} = \pi a^2$ – the pump area of the crystal.

The value of r_{tc} is inverse to the photon lifetime in the cavity:

$$r_{\text{tc}}(t) = c \frac{\gamma + r_{\text{EOC}}(t)}{L_{\text{opt}}},$$

where γ is the coefficient of inactive losses in the cavity; $r_{\text{EOC}}(t)$ defines additional losses introduced by the EOC; c is the speed of light. In the considered setup, the output mirror reflectivity was taken equal to 1.

In the active Q-switching mode, the loss coefficient in the system depends on time. In the approximation of instant switching of the EOC, the additional loss coefficient introduced by it can be written as

$$r_{\text{EOC}}(t) = \begin{cases} r_0, & t < T_{\text{EOC}}, \\ 0, & t \geq T_{\text{EOC}}, \end{cases}$$

where r_0 is a sufficiently large loss coefficient (~ 100 %); $T_{\text{EOC}} = 300$ μ s is the EOC switching time.

By solving the system of equations (1), it is possible to calculate the dependence of the intensity in the cavity on time for the fundamental frequency radiation.

Since the dumping time is approximately two orders of magnitude shorter than the duration of a giant pulse in the cavity, we assume that the intensity of the fundamental frequency does not change during this time. To determine the intensity profile of the second harmonic pulse generated at the third stage (cavity dumping), the following expression is used:

$$I_2 = I_1 t h^2 \sqrt{\frac{\alpha I_1}{2}},$$

where I_1 is the intensity of the fundamental frequency radiation in the cavity, the coefficient α is determined by the parameters of the second harmonic crystal and is equal to $0.0161 \text{ cm}^2/\text{MW}$ for a 0.5 cm long crystal [7].

Due to the presence of a polarizer in the system, the second harmonic pulse length is determined by the cavity length and is less than the cavity round-trip time (1.35 ns for the system under consideration). However, if the EOC switching time is equal or higher than the cavity round-trip time, the output pulse length can increase and its intensity decrease compared to the ideal case when the switching time is small and can be neglected [4].

Figure 2 shows the time dependence of the intensity of the fundamental frequency radiation inside the cavity at the second stage (zero moment of time corresponds to the EOC switch). It is seen that a giant pulse is formed with a delay relative to the EOC switching time. This delay significantly depends on the pump power, as shown in fig. 3.

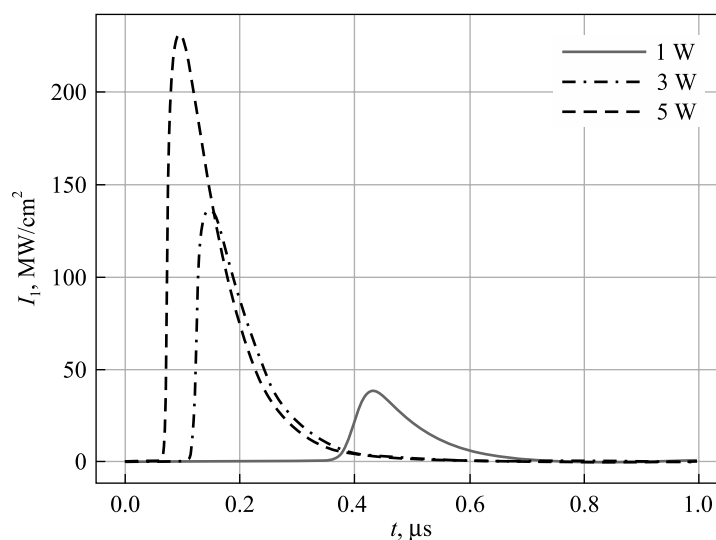


Fig. 2. Time dependence of the intensity of a giant pulse in the cavity within the active Q-switching mode for different pump powers. The coefficient of inactive losses in the cavity is 1 %

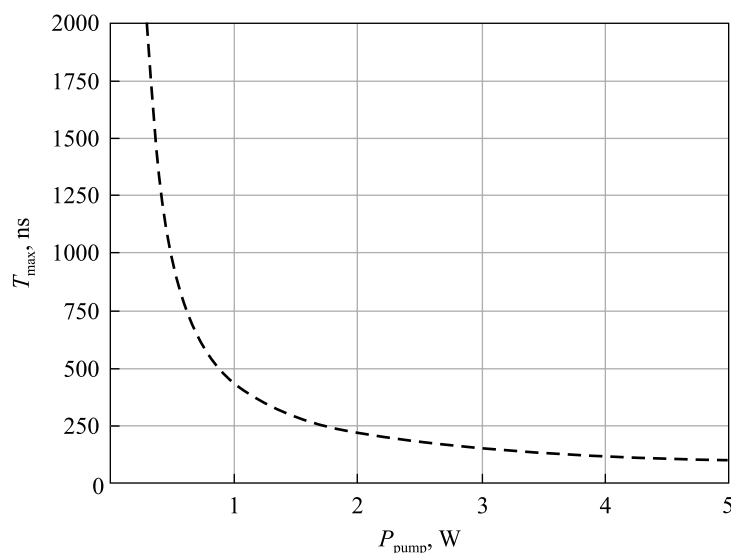


Fig. 3. The time needed to achieve a maximal intensity in the cavity as a function of the pump power. The inactive loss in the cavity is 1 %

The time needed to achieve the pulse maximum defines the duration of a voltage pulse applied to the EOC and ranges from 100 ns to more than 2 μ s. It should also be noted that despite the closed cavity (the reflection coefficients of both mirrors are close to 1), the intensity of the giant pulse decreases rather quickly due to the inactive losses. This fact imposes a limitation on the jitter value of the shutter switching pulse, which should not exceed 10 ns.

Figure 4 shows the dependence of the peak intensity of the second harmonic output pulse and the fundamental frequency in the cavity on the pump power. It is seen that the peak intensity of the fundamental frequency increases almost linearly with increasing pump power. For the second harmonic radiation, the dependence is close to quadratic at low pump powers and becomes almost linear with increasing pump power.

Figure 5 shows the dependence of the peak intensity of the second harmonic output pulse and the fundamental frequency in the cavity on the coefficient of inactive losses in the cavity. It can be seen that this parameter has the strongest effect on the output pulse power. To obtain the maximum peak intensity of the output pulses, one should minimize the inactive losses as much as possible. In real laser systems, it is difficult to obtain inactive losses lower than 1 %.

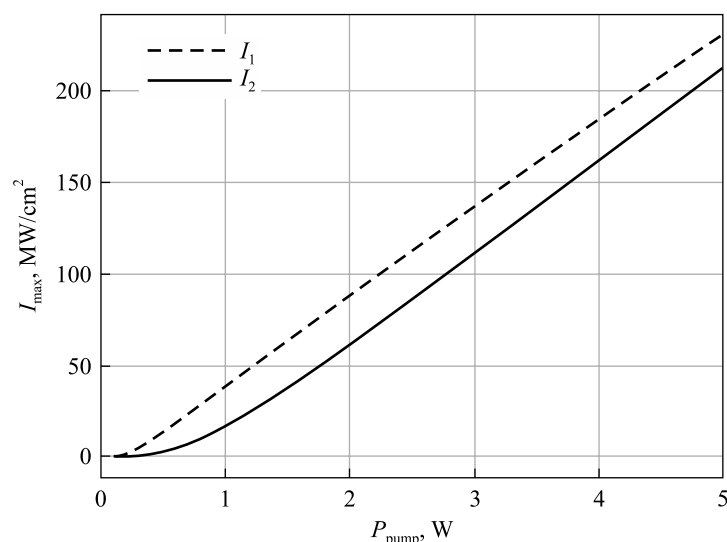


Fig. 4. Peak intensity of the giant pulse in the cavity and of the second-harmonic output pulse as a function of the pump power. The inactive loss in the cavity is 1 %

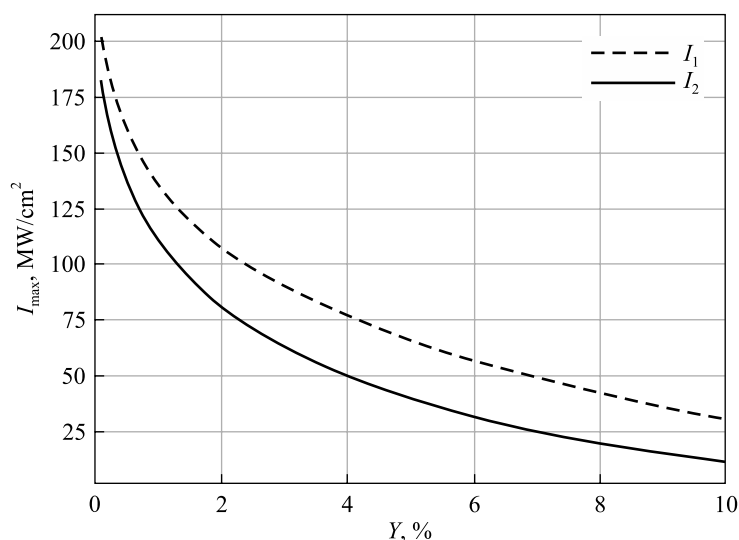


Fig. 5. Peak intensity of the giant pulse in the cavity and of the second-harmonic output pulse as a function of the inactive loss. The pump power is 3 W

The considered method of cavity dumping by the second harmonic generation in the actively Q-switched laser enables one to generate nanosecond pulses of the second harmonic radiation with the peak intensity of about 100 MW/cm^2 . The peak intensity of the output pulses increases almost linearly with increasing pump power and decreases sharply with increasing inactive loss coefficient. The maximal intensity of the output pulses is limited by the minimal possible losses and damage threshold of the setup elements.

Библиографические ссылки

1. Ma YF, Zhang JW, Li H, Yu X. High stable electro-optical cavity-dumped Nd : YAG laser. *Laser Physics Letters*. 2012;9(8): 561–563. DOI: 10.7452/lapl.201210041.
2. Yu X, Wang C, Ma YF, Chen F, Yan RP, Li XD. Performance improvement of high repetition rate electro-optical cavity-dumped Nd : GdVO₄ laser. *Applied Physics B*. 2012;106(2):309–313. DOI: 10.1007/s00340-011-4786-7.
3. Thomas GM, Minassian A, Sheng X, Damzen MJ. Diode-pumped Alexandrite lasers in Q-switched and cavity-dumped Q-switched operation. *Optics Express*. 2016;24(24):27212–27224. DOI: 10.1364/OE.24.027212.
4. Горбачевич АС, Новицкая РИ, Сташкевич ИВ. Разгрузка резонатора посредством генерации второй гармоники. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика*. 2017;2:57–62.
5. Новицкая РИ, Сташкевич ИВ. Разгрузка резонатора посредством генерации второй гармоники в режиме модуляции добротности. В: *Квантовая электроника. Материалы XI Международной научно-технической конференции; 13–17 ноября 2017 г.; Минск, Беларусь*. Минск: РИВШ; 2017. с. 25–26.
6. Navitskaya RI, Stashkevitch IV. Cavity dumping by the second harmonic generation in the mode-locked Nd : YAG laser. *Non-linear Phenomena in Complex Systems*. 2019;22(2):177–189.
7. Crystals Selection Guide [Internet; cited 2019 September 11]:29.9–2.10. Available from: <http://eksmaoptics.com/out/media/Crystals%202013%20EUR.pdf>.

References

1. Ma YF, Zhang JW, Li H, Yu X. High stable electro-optical cavity-dumped Nd : YAG laser. *Laser Physics Letters*. 2012;9(8): 561–563. DOI: 10.7452/lapl.201210041.
2. Yu X, Wang C, Ma YF, Chen F, Yan RP, Li XD. Performance improvement of high repetition rate electro-optical cavity-dumped Nd : GdVO₄ laser. *Applied Physics B*. 2012;106(2):309–313. DOI: 10.1007/s00340-011-4786-7.
3. Thomas GM, Minassian A, Sheng X, Damzen MJ. Diode-pumped Alexandrite lasers in Q-switched and cavity-dumped Q-switched operation. *Optics Express*. 2016;24(24):27212–27224. DOI: 10.1364/OE.24.027212.
4. Gorbachevich AS, Navitskaya RI, Stashkevich IV. Cavity dumping by the second harmonic generation. *Journal of the Belarusian State University. Physics*. 2017;2:57–62. Russian.
5. Navitskaya RI, Stashkevich IV. [Cavity dumping by the second harmonic generation in the Q-switched mode]. In: *Kvantovaya elektronika. Materialy XI Mezhdunarodnoi nauchno-tehnicheskoi konferentsii; 13–17 noyabrya 2017 g.; Minsk, Belarus'* [Quantum Electronics. Materials of the XI International Scientific and Technical Conference; 2017 November 13–17; Minsk, Belarus]. Minsk: National Institute for Higher Education; 2017. p. 25–26. Russian.
6. Navitskaya RI, Stashkevitch IV. Cavity dumping by the second harmonic generation in the mode-locked Nd : YAG laser. *Non-linear Phenomena in Complex Systems*. 2019;22(2):177–189.
7. Crystals Selection Guide [Internet; cited 2019 September 11]:29.9–2.10. Available from: <http://eksmaoptics.com/out/media/Crystals%202013%20EUR.pdf>.

Received by editorial board 09.12.2019.

ТЕХНОЛОГИИ ОБРАБОТКИ ИНФОРМАЦИИ

INFORMATION PROCESSING TECHNOLOGIES

УДК 004.67

РАСШИРЕНИЕ БАЗОВОГО ФУНКЦИОНАЛА ПРОГРАММЫ *MALTEGO* НА БАЗЕ ФРЕЙМВОРКА *CANARI* И ПОИСКОВОЙ СИСТЕМЫ *SHODAN*

Ш. Р. ДАВЛАТОВ¹⁾, П. В. КУЧИНСКИЙ^{1), 2)}

¹⁾Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники,
ул. П. Бровки, 6, 220013, г. Минск, Беларусь

²⁾Институт прикладных физических проблем им. А. Н. Севченко БГУ,
ул. Курчатова, 7, 220045, г. Минск, Беларусь

В работе рассматривается метапоисковая система *Maltego*, которая широко применяется для сбора данных из открытых источников и автоматического построения связей между различными объектами исследования. Изучаются основные характеристики и алгоритм работы поисковой системы *Shodan*, а также показано принципиальное отличие данной системы от традиционных поисковых движков. Платформа *Shodan* индексирует информацию, которая собирается из ответных баннеров устройств, подключенных к сети Интернет, тогда как *Google*, *Яндекс* и им подобные сервисы индексируют только контент веб-сайтов. На основе изученных материалов разработано расширение базового функционала *Maltego* с помощью фреймворка *Canari* на основе языка программирования *Python*. Данный подход позволяет объединить основные преимущества рассмотренных систем: богатый набор

Образец цитирования:

Давлатов ШР, Кучинский ПВ. Расширение базового функционала программы *Maltego* на базе фреймворка *Canari* и поисковой системы *Shodan*. Журнал Белорусского государственного университета. Физика. 2020;1:34–40.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-34-40>

For citation:

Davlatov ShR, Kuchynski PV. Extending the basic functionality of *Maltego* based on the *Canari* framework and *Shodan* search engine. *Journal of the Belarusian State University. Physics*. 2020;1:34–40. Russian.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-34-40>

Авторы:

Шохрух Рустамович Давлатов – аспирант кафедры защиты информации факультета инфокоммуникаций. Научный руководитель – П. В. Кучинский.

Петр Васильевич Кучинский – доктор физико-математических наук; профессор кафедры защиты информации факультета инфокоммуникаций¹⁾, директор²⁾.

Authors:

Shohrukh R. Davlatov, postgraduate student at the department of information security, faculty of infocommunications.
shohrukh.92@gmail.com

Petr V. Kuchynski, doctor of science (physics and mathematics); professor at the department of information security, faculty of infocommunications^a, and director^b.
kuchynski@bsu.by

графических инструментов *Maltego* и большую базу открытых данных системы *Shodan*. Предлагаемый вариант расширения функционала *Maltego* дает возможность настроить систему под любые уникальные требования, необходимые специалистам по информационной безопасности для проведения аудита защищенности информационных систем.

Ключевые слова: *Shodan*; *Maltego*; *Canari* framework; сбор и анализ данных; уязвимость программного обеспечения; информационная безопасность.

EXTENDING THE BASIC FUNCTIONALITY OF *MALTEGO* BASED ON THE *CANARI* FRAMEWORK AND *SHODAN* SEARCH ENGINE

Sh. R. DAVLATOV^a, P. V. KUCHYNSKI^{a, b}

^aBelarusian State University of Informatics and Radioelectronics,
6 P. Broŭki Street, Minsk 220013, Belarus

^bA. N. Sevchenko Institute of Applied Physical Problems, Belarusian State University,
7 Kurčatava Street, Minsk 220045, Belarus

Corresponding author: Sh. R. Davlatov (shohrukh.92@gmail.com)

The paper considers *Maltego* metasearch system, which is widely used for collecting data from open sources and automatically building relationships between various objects. The main characteristics and the algorithm of the *Shodan* search engine was studied, and also the fundamental difference between this system and traditional search engines was explained. The *Shodan* platform indexes information that is collected from response banners of devices which are connected to the internet, while *Google*, *Yandex* and similar services index only the content of websites. Based on the studied materials, an extension of the *Maltego* functionality was developed using the *Canari* framework and the *Python* programming language. This approach allows to combine the main advantages of the considered systems: a rich set of graphical tools of *Maltego* and a large open database of the *Shodan* system. The proposed option also allows to configure the system to fit any unique requirements that information security specialists need to conduct a security audit of information systems.

Keywords: *Shodan*; *Maltego*; *Canari* framework; data collection and analysis; software vulnerability; information security.

Введение

Процесс защиты информации (ЗИ) характеризуется большим количеством и многообразием факторов, влияющих на его результат, воздействие которых часто не удается однозначно выявить и описать строго математически. Проблема ЗИ относится к числу сложных, слабоструктурированных и слабоформализуемых. Более того, в корпоративных информационных системах (ИС) критичная ситуация в сфере информационной безопасности (ИБ) усугубляется в связи с использованием глобальной сети Интернет для внешних и внутренних электронных транзакций [1]. Среди современных систем обеспечения ИБ методы сбора и анализа данных из открытых источников информации для последующей оценки защищенности ИС обрели значительное распространение. На данном этапе выявляются слабые места сети, через которые в будущем будут осуществляться тесты на проникновение в систему. При правильном подходе к проведению аудита можно не только выявить потенциально уязвимые места, но и наметить возможные векторы атаки со стороны злоумышленников [2].

Получение доступа к нужной информации из открытых источников может быть реализовано различными способами. Это могут быть переходы по гиперссылкам, поиск по различным каталогам (сайтов, блогов и т. д.), ввод запросов в поисковую систему (ПС) и просмотр найденных результатов. Существуют также метапоисковые системы, которые посылают запрос одновременно на несколько ПС. Проект *Maltego* – одна из самых популярных метапоисковых систем сбора и анализа данных. Она имеет дополнительную подпрограмму для графического отображения данных и проводит сбор информации на основе разнообразных сканирований, в том числе проверку документов с метаданными и выявление уязвимостей ИС. Следует отметить, что программа *Maltego* является проприетарной (большинство функций доступны только через платное приобретение лицензии на использование)

и не распространяется с открытым исходным кодом [3]. Однако существуют разные способы расширения возможностей данной программы путем использования общедоступных источников информации и свободно распространяемых фреймворков.

Цель данной работы – анализ основных возможностей программы *Maltego* и расширение базового функционала с помощью фреймворка *Canari* (распространяется с открытым исходным кодом) и данных из поискового движка *Shodan*. Для решения поставленной задачи разработаны отдельные экспортные модули для *Maltego* на основе языка программирования *Python*. В качестве апробации результатов системы выбрана задача исследования IP-адреса заданного интернет-ресурса и получения информации из базы данных *Shodan*.

Поисковая система *Shodan*

Традиционно принято считать, что ПС предназначены исключительно для обеспечения релевантного поиска цифрового контента в интернете. Помимо обычных поисковых платформ *Google* или *Яндекс*, существуют специальные системы, используемые для поиска совершенно особого типа ресурсов. Одной из таких ПС является *Shodan*, которая предназначена для работы с теневыми каналами интернета. Система ищет не веб-ресурсы с контентом, а подключенные к интернету физические устройства. Такими могут быть принтеры, веб-камеры, маршрутизаторы, GPS-навигаторы и даже системы технического обслуживания коммерческих предприятий.

Основной принцип работы *Shodan* заключается в отправлении запросов на все публично доступные IP-адреса и протоколировании их откликов. Алгоритм сканирования данной системы:

- 1) генерация случайного IP-адреса;
- 2) выбор случайного номера порта из списка доступных в *Shodan* портов;
- 3) проверка выбранного IP-адреса (порта) и получение баннера;
- 4) повторение шага 1.

Таким образом, система выполняет сканирование всего адресного пространства случайным образом, чтобы обеспечить равномерное покрытие интернета и предотвратить смещение данных в любой момент времени. *Shodan* также поддерживает поиск по сведениям об уязвимостях программного обеспечения. К примеру, можно получить список устройств в определенной стране, которые имеют уязвимость Heartbleed (ошибка в криптографическом программном обеспечении *OpenSSL*, позволяющая несанкционированно читать память на сервере или на клиенте): *country:USvuln:CVE-2014-0160*.

Система также позволяет выбирать несколько критериев поиска и фильтрации данных для мониторинга актуального состояния ИС. К основным фильтрам *Shodan* относятся: *City/country* (фильтрация устройств, расположенных в пределах заданного города/страны, например *city:minsk*); *Port* (вывод устройств с заданным открытым портом, например *port:443*); *OS* (фильтрация устройств, которые работают на заданной операционной системе, например *os:linux*); *Geo* (точные указания координат расположения устройства (долгота, широта), например *geo:42.9693,74.1224*); *Net* (поиск устройств из заданного диапазона IP-адресов, например *net:216.0.0.0/16*).

Основной единицей информации, которую собирает *Shodan*, является баннер (текстовая информация, описывающая работу установленных служб на определенном устройстве). Например, для веб-серверов баннером будут служить заголовки ответа, которые возвращаются после обработки запроса. Содержание баннера сильно варьируется в зависимости от вида сервиса. Типичный *http*-баннер выглядит следующим образом:

```
HTTP/1.1 200 OK
Server: nginx/1.1.19
Date: Sat, 03 Oct 2015 06:09:24 GMT
Content-Type: text/html; charset=utf-8
Content-Length: 6466
Connection: keep-alive
```

Данный баннер показывает, что устройство работает под управлением программного обеспечения веб-сервера *nginx* версии 1.1.19. Если один IP-адрес предоставляет много сервисов, то в ответе запроса они будут представлены как отдельные результаты. В дополнение к баннеру *Shodan* также возвращает метаданные об устройстве, такие как его географическое местоположение, имя сетевого устройства, операционная система и многое другое. Большая часть метаданных доступна для поиска через главный веб-сайт *Shodan*, однако полный набор параметров можно получить только через интерфейс API.

Метапоисковая система *Maltego*

Maltego – проприетарное программное обеспечение, которое используется для построения и анализа связей между различными объектами ИС [3]. Его особенностями являются визуализация, обработка и комбинирование информации для детального анализа данных, полученных из открытых источников. С помощью *Maltego* можно также проводить автоматический анализ и выявление взаимосвязей между обнаруженными объектами (профили социальных сетей, электронные почты, организации, документы, картинки, геолокации, веб-сайты, домены, DNS-записи, IP-адреса, открытые порты и другие интернет-инфраструктуры). Данный инструмент широко используется специалистами по ИБ на начальных этапах проведения аудита ИС, таких как сбор первичной информации, автоматизация процесса анализа данных, тестирование объекта защиты на проникновение (например, для определенной сети организации нужно выявить, какие именно данные доступны).

На рис. 1 приведен результат сканирования официального сайта *Maltego* – *paterva.com*. Этот пример показывает, что, зная всего лишь одно доменное имя внутри ИС, можно получить детальную информацию о всей инфраструктуре в виде ориентированного графа зависимостей между сущностями, такими как NS-серверы, IP-адреса, диапазон IP-адресов сети, геолокации, данные персонала, аккаунты в социальных сетях и многое другое.

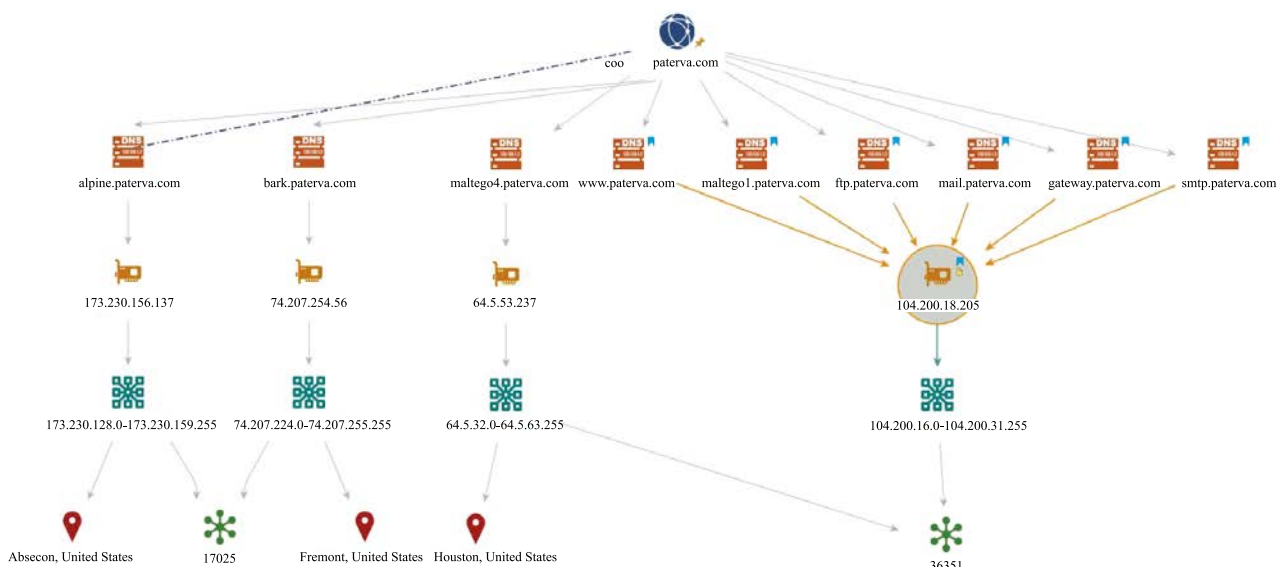


Рис. 1. Результат сканирования веб-сайта *paterva.com* в графической оболочке *Maltego*

Fig. 1. Result of scanning the *paterva.com* website in the *Maltego* GUI

В основе работы *Maltego* лежит идея создания трансформации данных, принцип которой напоминает функцию от одного аргумента. Результатом применения трансформации над входным объектом должен быть набор (один или несколько) новых выходных *Maltego*-сущностей. Таким образом, создается граф зависимостей между объектами исследования, узлы которого находятся в соотношении 1 : 1 (один к одному) или 1 : n (один ко многим). Самое главное преимущество программы *Maltego* – возможность гибкой настройки и адаптации под любые уникальные требования пользователя. Одним из вариантов расширения базового функционала *Maltego*, который используется в данной работе, является применение фреймворка *Canari* [4] (исходный код проекта доступен в открытом виде на веб-сервисе GitHub по ссылке <https://github.com/redcanari/canari3>).

Разработка и создание расширения для поисковой системы *Maltego*

Пусть для заданного параметра – IP-адреса – выполняется стандартный процесс обработки трансформации *Maltego*. После валидации входных данных пользователя отправляется запрос на ПС *Shodan*. Полученные результаты обрабатываются с помощью функции трансформации для последующей генерации новых *Maltego*-сущностей: списка открытых портов, геолокации, названия провайдера и других релевантных данных. В целях создания трансформации на базе фреймворка *Canari* необходимо разработать *Python*-класс [5], который содержит обязательный метод *do_transform*, где будет реализована основная логика преобразования данных [3]. Рассмотрим детально алгоритм работы метода *do_transform*:

```
1. def do_transform(self, request, response, config):  
2. ip_v4 = request.entity  
3. API_KEY = 'test_api_key'  
4. SHODAN_API = 'https://api.shodan.io/shodan'  
5. host_info_url = '{}/host/{}?key={}'.format(SHODAN_API, ip_v4.value, API_KEY)  
6. result_str = urlopen(host_info_url).read()  
7. result_json = json.loads(result_str)
```

Сигнатура функции *do_transform* показывает, что любая *Maltego*-трансформация принимает следующие обязательные аргументы: *self* – ссылочная переменная на текущий класс, *request* – объект запроса, *response* – объект результата работы трансформации, *config* – общий конфигурационный файл проекта. Входные данные, которые были введены пользователем, можно получить из объекта запроса – *request.entity* (в нашем примере это IP-адрес данного интернет-ресурса). Далее в строках 3–5 создаются переменные, которые хранят *url*-адреса для доступа к интерфейсу API поисковой системы *Shodan*. С помощью функции *urlopen*, которая входит в стандартную библиотеку *Python* для работы с HTTP, отправляется запрос в целях получения результатов из ПС *Shodan*. Для создания новых *Maltego*-сущностей необходимо преобразовать результат запроса в формат ассоциативного массива языка *Python* (также известен как словарь или хеш-таблица).

Рассмотрим фрагмент кода, который отвечает за формирование выходных сущностей трансформации:

```
1. response += Location(city = result_json.get('city'), country = result_json.get('country_name'))  
2. response += GPS(latitude = result_json.get('latitude'), longitude = result_json.get('longitude'))  
3. response += Company(result_json.get('org'))  
4. for port in result_json.get('ports'):  
5. response += Port(port)  
6. for hostname in result_json.get('hostnames'):  
7. response += DNSName(hostname)
```

В этом примере используются функции-конструкторы из фреймворка *Canari* [4] для образования новых *Maltego*-сущностей: геолокации, координат GPS, названия хостинг-провайдера, номеров открытых портов и DNS (англ. *domain name system* – система доменных имен). ПС *Shodan* предоставляет все релевантные данные в ответе на запрос по IP-адресу. В приведенном фрагменте кода генерируются сущности *Location*, *GPS*, *Company*, *Port*, *DNSName* путем передачи нужных аргументов из результирующего объекта *result_json*. Следует отметить, что в объект результата трансформации *response* можно добавить любое количество новых сущностей (путем конкатенации с помощью оператора сложения). Модуль визуализации *Maltego* автоматически создает все объекты и выводит результат в виде графа зависимостей [6].

Для использования полученной трансформации в графической оболочке *Maltego* необходимо импортировать разработанный *Python*-класс. Данная среда предоставляет программу *Import Wizard* для загрузки новых сущностей и трансформаций (рис. 2). В выпадающем окне из списка следует выбирать необходимые трансформации для тестирования (в одном проекте могут быть два и более модулей).

В целях проверки результатов применения трансформации в новой вкладке *Maltego* нужно создать входную сущность – IP-адрес – и ввести определенное значение, например 46.216.181.43 [3]. После запуска трансформации *Maltego* автоматически выполнит код, который был описан выше в методе *do_transform*. Как видно из рис. 3, разработанная функция на выходе генерирует сущности пяти типов: имя хостинг-провайдера, NS-сервер, координаты GPS расположения сервера, геолокацию, список открытых портов. Все данные получены из базы поисковой системы *Shodan* и преобразованы в необходимый формат для визуального отображения.

Рассмотрим пример работы другой трансформации, которая создает новые сущности касательно автономной системы (англ. *autonomous system* – система IP-сетей и маршрутизаторов, управляемых одним или несколькими операторами, имеющими единую политику маршрутизации с интернетом). В качестве открытого источника данных выберем сервис <https://iptoasn.com>, предоставляющий доступ к интерфейсу API. Для получения деталей автономной системы нужно отправить запрос с привязкой IP-адреса. В результате получим номер автономной системы, диапазон IP-адресов, название организации и геолокацию (рис. 4).

Для более глубокого анализа можно запустить созданную трансформацию для всех новых сгенерированных сущностей по отдельности. *Maltego* автоматически построит граф зависимости, включая все связи между объектами с подробной информацией о соединениях и сущностях.



Рис. 2. Импорт новых Maltego-трансформаций
Fig. 2. Importing new Maltego transforms

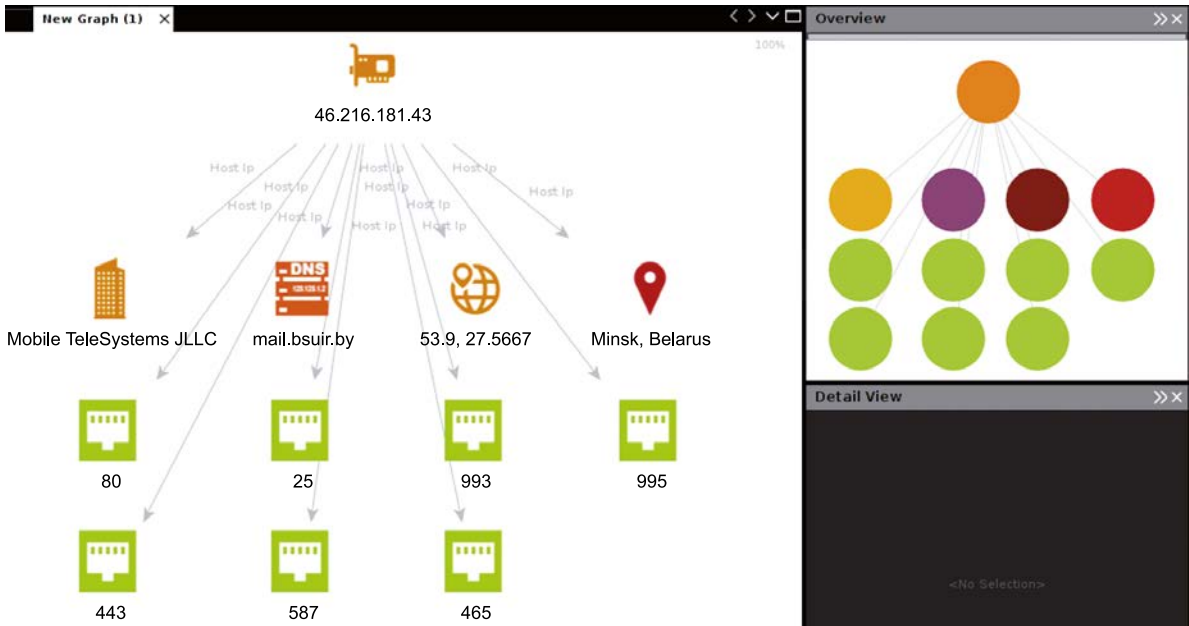


Рис. 3. Результат применения трансформации в среде Maltego
Fig. 3. The result of applying transformation in a Maltego environment

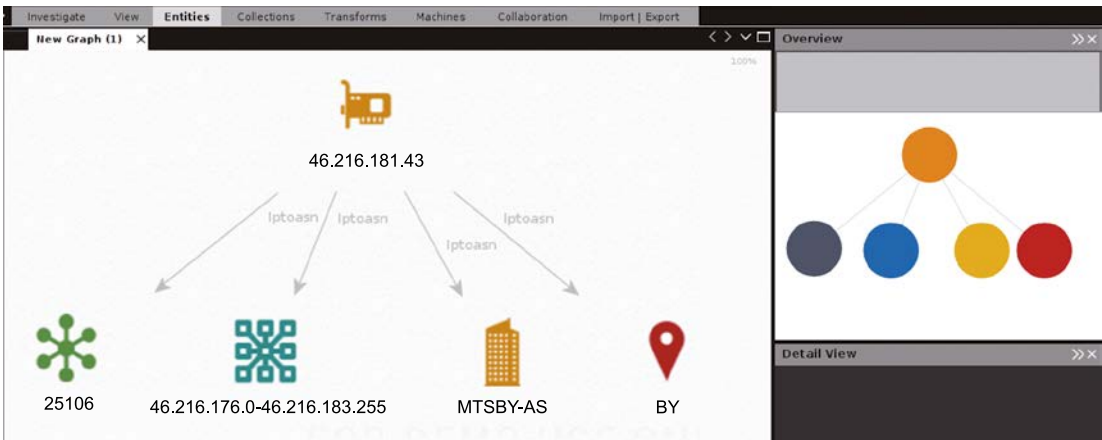


Рис. 4. Детали автономной системы
Fig. 4. Autonomous system details

Заключение

Таким образом, разработаны алгоритм и модуль расширения базового функционала программы *Maltego* с помощью открытого фреймворка *Canari*. В качестве источника открытых данных выбрана ПС *Shodan*, доступ к которой осуществлен с помощью API-интерфейса. Созданы и импортированы новые трансформации для среды *Maltego* в целях получения визуального отображения графа зависимостей между различными элементами, такими как геолокация, координаты GPS-устройства, открытые порты, данные провайдера, DNS-серверы и технические детали автономной системы. Разработка апробирована на примере сведений, полученных из базы данных *Shodan* на основании заданного IP-адреса узла в сети Интернет. Уникальность предложенной разработки заключается в том, что в ней объединены основные преимущества рассмотренных систем: богатый набор графических инструментов *Maltego* и большая база открытых данных системы *Shodan*. Для решения поставленной задачи выбран фреймворк *Canari* с открытым исходным кодом, который распространяется под лицензией GNU (*general public license*), что дает пользователям все права для копирования, модифицирования и распространения программы. Следует отметить, что предлагаемый вариант расширения базового функционала *Maltego* позволяет настроить и адаптировать программу под любые уникальные требования, которые необходимы специалистам по ИБ для проведения более качественного аудита ИС.

Библиографические ссылки

1. Давлатов Ш. Анализ защищенности информационных систем с помощью поисковой системы. В: *Технические средства защиты информации. XVII Белорусско-Российская научно-техническая конференция; 11 июня 2019 г.; Минск, Беларусь*. Минск: БГУИР; 2019. с. 23–24.
2. Скабцов НВ. *Аудит безопасности информационных систем*. Санкт-Петербург: Питер; 2018. 272 с.
3. Maltego OSINT Blog [Internet; cited 2019 May 17]. Available from: <https://maltego.blogspot.com>.
4. Canari Framework [official documentation] [Internet; cited 2019 April 5]. Available from: <http://www.canariproject.com/en/latest/>.
5. Вандер Плас Дж. *Python для сложных задач. Наука о данных и машинное обучение*. Пальти И, переводчик; Гринчик Н, редактор. Санкт-Петербург: Питер; 2019. 576 с. (Бестселлеры О’Релли).
6. Gilberto N-G, Juned A. *Web Penetration Testing with Kali Linux. Third Edition: Explore the methods and tools of ethical hacking with Kali Linux*. Birmingham: Packt Publishing – ebooks Account; 2018. 426 p.

References

1. Davlatov Sh. [Comparative analysis of tools for collecting and analyzing data from open sources OSINT]. In: *Tekhnicheskie sredstva zashchity informatsii. XVII Belorussko-Rossiiskaya nauchno-tekhnicheskaya konferentsiya; 11 iyunya 2019 g.; Minsk, Belarus* [Technical means of information security. XVII Belarusian and Russian scientific and technical conference; 2019 June 11; Minsk, Belarus]. Minsk: Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics; 2019. p. 23–24. Russian.
2. Skabtsov NV. *Audit bezopasnosti informatsionnykh system* [Information systems security audit]. Saint Petersburg: Piter; 2018. 272 p. Russian.
3. Maltego OSINT Blog [Internet; cited 2019 May 17]. Available from: <https://maltego.blogspot.com>.
4. Canari Framework [official documentation] [Internet; cited 2019 April 5]. Available from: <http://www.canariproject.com/en/latest/>.
5. VanderPlas J. *Python Data Science Handbook: Essential Tools for Working with Data*. Schanafelt D, editor. Sebastopol: O’Reilly Media; 2017. 548 p. (O’Reilly).
Russian edition: VanderPlas J. *Python dlya slozhnykh zadach. Nauka o dannykh i mashinnoe obuchenie*. Pal’ti I, translator; Grinchik N, editor. Saint Petersburg: Piter; 2019. 576 p. (Bestsellery O’Relli).
6. Gilberto N-G, Juned A. *Web Penetration Testing with Kali Linux. Third Edition: Explore the methods and tools of ethical hacking with Kali Linux*. Birmingham: Packt Publishing – ebooks Account; 2018. 426 p.

Статья поступила в редакцию 25.10.2019.
Received by editorial board 25.10.2019.

УДК 517.958:537.311.1;621.315.592

МИГРАЦИЯ ЭЛЕКТРОНОВ ПО ТРЕХЗАРЯДНЫМ ДЕФЕКТАМ КРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ МАТРИЦЫ

Н. А. ПОКЛОНСКИЙ¹⁾, А. Н. ДЕРЕВЯГО¹⁾, С. А. ВЫРКО¹⁾, А. И. КОВАЛЕВ¹⁾

¹⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

Изучение полупроводниковых материалов с точечными радиационными дефектами кристаллической структуры в трех зарядовых состояниях (-1) , (0) , $(+1)$ важно для определения условий их стойкости при воздействии гамма-квантов, быстрых электронов и др. Такие дефекты в условиях ионизационного равновесия самодостаточны

Образец цитирования:

Поклонский НА, Деревяго АН, Вырко СА, Ковалев АИ. Миграция электронов по трехзарядным дефектам кристаллической матрицы. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика*. 2020;1:41–53.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-41-53>

For citation:

Poklonski NA, Dzeraviah AN, Vyrko SA, Kavaleu AI. Migration of electrons via triple-charged defects of crystal matrix. *Journal of the Belarusian State University. Physics*. 2020;1: 41–53. Russian.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-41-53>

Авторы:

Николай Александрович Поклонский – доктор физико-математических наук, профессор; профессор кафедры физики полупроводников и нанoeлектроники физического факультета.

Александр Николаевич Деревяго – аспирант кафедры физики полупроводников и нанoeлектроники физического факультета. Научный руководитель – Н. А. Поклонский.

Сергей Александрович Вырко – кандидат физико-математических наук; старший научный сотрудник научно-исследовательской лаборатории физики электронных материалов кафедры физики полупроводников и нанoeлектроники физического факультета.

Александр Игоревич Ковалев – кандидат физико-математических наук; старший преподаватель кафедры физики полупроводников и нанoeлектроники физического факультета.

Authors:

Nikolai A. Poklonski, doctor of science (physics and mathematics), full professor; professor at the department of semiconductor physics and nanoelectronics, faculty of physics.

poklonski@bsu.by

<http://orcid.org/0000-0002-0799-6950>

Aliaksandr N. Dzeraviah, postgraduate student at the department of semiconductor physics and nanoelectronics, faculty of physics.

deralexn@list.ru

Sergey A. Vyrko, PhD (physics and mathematics); senior researcher at the laboratory of physics of electronic materials, department of semiconductor physics and nanoelectronics, faculty of physics.

vyrko@bsu.by

Aliaksandr I. Kavaleu, PhD (physics and mathematics); senior lecturer at the department of semiconductor physics and nanoelectronics, faculty of physics.

kovalevai@bsu.by

для обеспечения электрической нейтральности материала, что и обуславливает его радиационную стойкость. В кристаллах кремния и алмаза указанные дефекты при их накоплении стабилизируют уровень Ферми в окрестности одной трети ширины запрещенной зоны от потолка валентной зоны. В работе приводится аналитическое описание стационарного прыжкового переноса электронов в полупроводнике при учете совместной миграции по этим трехзарядным дефектам и одиночных электронов, и пар электронов. Рассматривается кристаллический полупроводник как матрица, содержащая в преобладающей концентрации неподвижные точечные дефекты одного сорта. Впервые в дрейфово-диффузионном приближении построена феноменологическая теория сосуществующей миграции как одиночных электронов (переходы из зарядового состояния (-1) в состояние (0) и из состояния (0) в состояние $(+1)$), так и пар электронов (переходы из состояния (-1) в состояние $(+1)$) посредством их прыжков между такими дефектами при наложении на полупроводник внешнего стационарного электрического поля. В линейном приближении получены аналитические выражения для длины экранирования статического электрического поля и длины прыжковой диффузии электронов, мигрирующих по дефектам. Показано, что дополнительный вклад прыжкового переноса пар электронов приводит к уменьшению длины экранирования, а также изменяет длину диффузии.

Ключевые слова: кристаллический полупроводник; трехзарядные точечные дефекты; прыжки одиночных электронов; прыжки пар электронов; длина экранирования; длина диффузии.

Благодарность. Работа поддержана программой «Физматтех» Республики Беларусь, Белорусским республиканским фондом фундаментальных исследований (грант № Ф19РМ-054), а также рамочной программой Европейского союза по развитию научных исследований и технологий «Горизонт-2020» (грант № H2020-MSCA-RISE-2019-871284 SSHARE).

MIGRATION OF ELECTRONS VIA TRIPLE-CHARGED DEFECTS OF CRYSTAL MATRIX

N. A. POKLONSKI^a, A. N. DZERAVIAHA^a, S. A. VYRKO^a, A. I. KAVALEU^a

^aBelarusian State University, 4 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220030, Belarus

Corresponding author: N. A. Poklonski (poklonski@bsu.by)

The study of semiconductor materials with point radiation defects of the crystal structure in three charge states (-1) , (0) , $(+1)$ is important for determining the conditions of their radiation resistance under the influence of gamma rays, fast electrons, etc. Such defects are self-sufficient to ensure electrical neutrality of the material under conditions of ionization equilibrium, that issue determines the radiation resistance of materials. In silicon and diamond crystals, such irradiation-induced defects during their accumulation stabilize the Fermi level in the vicinity of one third of the band gap from the top of the valence band. The purpose of the work is an analytical description of the stationary hopping electron transfer in a semiconductor, taking into account the joint migration of both the single electrons and the pairs of electrons over these triple-charged defects. A crystalline semiconductor is considered as a matrix containing immobile point defects of one sort in the prevailing concentration. For the first time in the drift-diffusion approximation, a phenomenological theory is constructed of coexisting migration of both the single electrons (transitions from the charge state (-1) to state (0) and from the state (0) to state $(+1)$), and the electron pairs (transitions from the state (-1) to state $(+1)$) by means of their hopping between such defects when an external stationary electric field is applied to the semiconductor. In the linear approximation, analytical expressions are obtained for the screening length of a static electric field and the length of the hopping diffusion of electrons migrating via such defects. It is shown that the additional contribution of the hopping transport of electron pairs leads to a decrease in the screening length and also changes the diffusion length.

Keywords: crystalline semiconductor; triple-charged point defects; hopping of single electrons; hopping of electron pairs; screening length; diffusion length.

Acknowledgements. The work was supported by the Belarusian National Research Program «Fizmattekh», Belarusian Republican Foundation for Fundamental Research (grant No. F19RM-054), and by the European Union Framework Programme for Research and Innovation «Horizon 2020» (grant No. H2020-MSCA-RISE-2019-871284 SSHARE).

Введение

Мотивацией к теоретическому исследованию прыжкового переноса электронов по трехзарядным точечным дефектам (имеющим заряд -1 , 0 или $+1$ в единицах элементарного заряда) в полупроводниковых материалах являются три факта: 1) такие дефекты можно вводить в больших концентрациях ионизирующим излучением (радиацией) в сочетании с последующим термическим отжигом; 2) зарядовые состояния (-1) и $(+1)$ дефектов обеспечивают их самокомпенсацию; 3) радиационно-термическое происхождение указанных дефектов определяет стабильность параметров материала при последующем воздействии радиации (см., например, [1]). Поэтому данные исследования перспективны для разработки концепции проектирования элементов и приборных структур, работающих в ближнем космосе [2]. На основе таких материалов предлагается создать варикап [3] и выпрямитель прыжкового электрического тока [4], что представляется и актуальным, и возможным.

В [5] рассмотрена прыжковая миграция одиночных электронов по точечным трехзарядным дефектам (переходы между зарядовыми состояниями $(-1) \rightarrow (0)$ и $(0) \rightarrow (+1)$). В [6] исследована прыжковая миграция только пар электронов (иначе – биполяронов) между зарядовыми состояниями (-1) и $(+1)$ точечных трехзарядных дефектов. Ясно, что в результате прыжков как одиночных электронов, так и пар электронов зарядовые состояния неподвижных точечных дефектов мигрируют по кристаллу. Поэтому представляет практический интерес рассмотреть сосуществующую прыжковую миграцию и одиночных электронов, и пар электронов между трехзарядными точечными дефектами (см., например, [7; 8]).

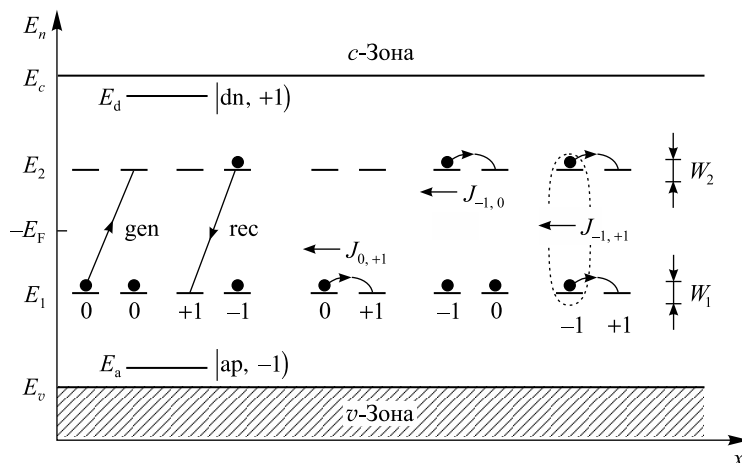
Цель работы – аналитическое описание прыжкового переноса электронов в полупроводнике, содержащем равномерно распределенные по объему неподвижные точечные дефекты, которые могут находиться в трех зарядовых состояниях (-1) , (0) и $(+1)$. Ставится задача объединить подходы работ [5; 6], т. е. учесть прыжковую миграцию и одиночных электронов, и пар электронов по этим дефектам совместно.

Постановка задачи

Предположим, что в объеме кристаллического полупроводника равномерно распределены точечные дефекты, каждый из которых может находиться в одном из трех зарядовых состояний (-1) , (0) или $(+1)$. Общая концентрация этих дефектов $N = N_{-1} + N_0 + N_{+1}$, где N_{-1} , N_0 и N_{+1} – равновесные концентрации дефектов в зарядовых состояниях (-1) , (0) и $(+1)$ соответственно. Кроме этого, в кристаллической матрице содержатся водородоподобные доноры $|dn, +1\rangle$, все в зарядовом состоянии $(+1)$, и акцепторы $|ap, -1\rangle$, все в зарядовом состоянии (-1) (см. рисунок). В отсутствие внешнего электрического поля и прыжкового тока (т. е. в термодинамическом равновесии) выполняется условие электрической нейтральности: $N_{-1} + N_{ap, -1} = N_{+1} + N_{dn, +1}$, где $N_{ap, -1}$ и $N_{dn, +1}$ – концентрации водородоподобных акцепторов и доноров соответственно. Изменяя величины $N_{ap, -1}$ и $N_{dn, +1}$, можно управлять распределением трехзарядных дефектов по состояниям (-1) , (0) и $(+1)$. Далее принимается, что $N_{-1} \gg N_{ap, -1}$ и $N_{+1} \gg N_{dn, +1}$, т. е. полупроводник по условию электронейтральности является самокомпенсированным ($N_{-1} = N_{+1}$).

Рассматриваются диапазоны температур и концентраций дефектов, при которых вклад в электрическую проводимость электронов c -зоны и (или) дырок v -зоны несуществен, и поэтому электрический ток в полупроводнике обусловлен только электронами, прыгающими по дефектам в зарядовых состояниях (-1) , (0) и $(+1)$ (см. рисунок).

Пусть к находящемуся при постоянной температуре полупроводниковому образцу в отсутствие внешнего фотовозбуждения приложено однородное стационарное электрическое поле. Выберем декартову систему координат (x, y, z) так, чтобы направление оси x совпало с направлением вектора напряженности электрического поля. На границах образца по оси x расположены два плоских металлических электрода (контакта). Принимается, что расстояние между электродами много больше характерных параметров размерности длины, сопоставляемых процессу переноса электронов между дефектами. Электроды могут служить, с одной стороны, обкладками заряженного плоского электрического конденсатора, между которыми размещен полупроводниковый образец без возбуждения в нем тока, с другой стороны, – омическими контактами к полупроводниковому образцу для возбуждения в нем электрического тока прыгающими электронами. Под действием внешнего стационарного электрического поля в полупроводнике с трехзарядными точечными дефектами, занимающем полупространство $x \geq 0$, происходят следующие три процесса.



Одноэлектронная энергия E_n (отсчитанная от $E_v = 0$) как функция координаты x в однородном кристаллическом полупроводнике с точечными трехзарядными дефектами (средние значения уровней энергии $E_1 > 0$ и $E_2 > 0$ со среднеквадратичными флуктуациями W_1 и W_2): $E_F < 0$ – уровень Ферми, $E_c - E_v = E_g > 0$ – энергетическая щель между порогами подвижности для электронов c -зоны и для дырок v -зоны; $E_a \ll E_1$ – уровень энергии акцепторов $|ap, -1\rangle$, отсчитанный от E_v ; $E_d \ll E_g - E_2$ – уровень энергии доноров $|dn, +1\rangle$, отсчитанный от E_c ; gen и rec – переходы электронов, соответствующие тепловой генерации и рекомбинации зарядовых состояний (-1) и $(+1)$ дефектов

Single-electron energy E_n (counted from $E_v = 0$) as a function of x coordinate in a homogeneous semiconductor with point triple-charged defects (average values of energy levels $E_1 > 0$ and $E_2 > 0$ with root-mean-square fluctuations W_1 and W_2): $E_F < 0$ is the Fermi level, $E_c - E_v = E_g > 0$ is the energy gap between the mobility edges for electrons of the c -band and for holes of the v -band; $E_a \ll E_1$ is the energy level of acceptors $|ap, -1\rangle$ counted from E_v and $E_d \ll E_g - E_2$ is the energy level of donors $|dn, +1\rangle$ counted from E_c ; gen and rec are the electron transitions corresponding to the thermal generation and recombination of the charge states (-1) and $(+1)$ of defects

1. Дрейфово-диффузионная миграция одиночных электронов, совершающих прыжки между зарядовыми состояниями дефектов $(-1) \rightarrow (0)$ и $(0) \rightarrow (+1)$, а также прыжки $(-1) \rightarrow (+1)$ пар электронов. Уравнения для стационарных плотностей прыжковых токов в дрейфово-диффузионном приближении имеют вид [3; 6; 9]

$$\begin{aligned} J_{-1,0}(x) &= eN_{-1,0}(x) \left(M_{-1,0} E(x) + D_{-1,0} \frac{d}{dx} \ln \frac{N_{-1}(x)}{N_0(x)} \right), \\ J_{0,+1}(x) &= eN_{0,+1}(x) \left(M_{0,+1} E(x) + D_{0,+1} \frac{d}{dx} \ln \frac{N_0(x)}{N_{+1}(x)} \right), \\ J_{-1,+1}(x) &= 2eN_{-1,+1}(x) \left(M_{-1,+1} E(x) + D_{-1,+1} \frac{d}{dx} \ln \frac{N_{-1}(x)}{N_{+1}(x)} \right), \end{aligned} \quad (1)$$

где $J_{-1,0}(x)$, $J_{0,+1}(x)$ и $J_{-1,+1}(x)$ – плотности прыжковых токов одиночных электронов и пар электронов; e – элементарный заряд; $E(x)$ – напряженность электрического поля внутри полупроводника; $N_{-1}(x)$, $N_0(x)$, $N_{+1}(x)$ – концентрации дефектов в зарядовых состояниях (-1) , (0) , $(+1)$ соответственно; $N_{-1,0}(x) = \frac{N_{-1}(x)N_0(x)}{N}$ – концентрация одиночных электронов, прыгающих между дефектами в зарядовых состояниях (-1) и (0) ; $N_{0,+1}(x) = \frac{N_0(x)N_{+1}(x)}{N}$ – концентрация одиночных электронов, прыгающих между дефектами в зарядовых состояниях (0) и $(+1)$; $N_{-1,+1}(x) = \frac{N_{-1}(x)N_{+1}(x)}{N}$ – концентрация пар электронов, прыгающих между дефектами в зарядовых состояниях (-1) и $(+1)$; $M_{-1,0}$, $M_{0,+1}$ и $D_{-1,0}$,

$D_{0,+1}$ – дрейфовые прыжковые подвижности и коэффициенты диффузии одиночных электронов по дефектам, $M_{-1,+1}$ и $D_{-1,+1}$ – дрейфовая подвижность и коэффициент прыжковой диффузии пар электронов. Отметим, что величины $M_{-1,0}$, $M_{0,+1}$, $M_{-1,+1}$ и $D_{-1,0}$, $D_{0,+1}$, $D_{-1,+1}$ определяются только равновесными (в отсутствие внешнего электрического поля и токов) концентрациями N_{-1} , N_0 , N_{+1} дефектов и расположением их уровней энергии в запрещенной энергетической зоне полупроводника (см. рисунок).

2. Изменение величины электрического поля внутри полупроводника вследствие перераспределения зарядовых состояний дефектов и нарушения условия электронейтральности $N_{-1} = N_{+1}$. Описывается уравнением Пуассона для напряженности электрического поля [5; 6]

$$\frac{dE(x)}{dx} = \frac{e}{\epsilon_r \epsilon_0} (\delta N_{+1}(x) - \delta N_{-1}(x)), \quad (2)$$

здесь ϵ_r – относительная диэлектрическая проницаемость полупроводника (без учета вклада от дефектов); ϵ_0 – электрическая постоянная. Концентрации дефектов определяются как $N_Z(x) = N_Z + \delta N_Z(x)$, где $\delta N_Z(x)$ – отклонение концентрации дефектов в зарядовом состоянии (Z) от равновесного значения N_Z , $Z = -1, 0, +1$. $\sum_Z \delta N_Z(x) = 0$, $N = N_{-1}(x) + N_0(x) + N_{+1}(x)$ – полная концентрация равномерно распределенных в полупроводниковом образце дефектов, не зависящая от x .

3. Генерационно-рекомбинационные процессы между дефектами в зарядовых состояниях (-1) , (0) , $(+1)$. Уравнение непрерывности для стационарного полного тока имеет вид

$$\frac{dJ_{-1,0}(x)}{dx} + \frac{dJ_{0,+1}(x)}{dx} + \frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx} = 0.$$

Прыжковые генерационно-рекомбинационные процессы между тремя зарядовыми состояниями неподвижных точечных дефектов (см. рисунок) при учете дивергенций трех плотностей прыжковых токов описываются уравнениями [5; 6]

$$\begin{aligned} \frac{1}{e} \frac{dJ_{-1,0}(x)}{dx} + \frac{1}{2e} \frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx} &= \alpha N_{-1}(x) N_{+1}(x) - \beta N_0^2(x), \\ \frac{1}{e} \frac{dJ_{0,+1}(x)}{dx} + \frac{1}{2e} \frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx} &= -\alpha N_{-1}(x) N_{+1}(x) + \beta N_0^2(x), \\ \frac{1}{e} \frac{d}{dx} (J_{0,+1}(x) - J_{-1,0}(x)) &= -2(\alpha N_{-1}(x) N_{+1}(x) - \beta N_0^2(x)), \end{aligned} \quad (3)$$

где α – коэффициент прыжкового захвата одного электрона с дефекта в зарядовом состоянии (-1) на дефект в зарядовом состоянии $(+1)$, заканчивающегося появлением двух электрически нейтральных дефектов $((-1) + (+1) \rightarrow 2(0))$; β – коэффициент тепловой ионизации двух электрически нейтральных дефектов $(2(0) \rightarrow (-1) + (+1))$. В состоянии равновесия выполняется равенство $\alpha N_{-1} N_{+1} = \beta N_0^2$.

Система нелинейных дифференциальных уравнений

Далее решаем стационарную задачу, т. е. считаем, что концентрации равномерно распределенных по кристаллу дефектов в зарядовых состояниях (-1) , (0) , $(+1)$ и плотности прыжковых токов не зависят от времени, иными словами, выполняются равенства

$$\frac{dN_{-1}(x)}{dx} + \frac{dN_0(x)}{dx} + \frac{dN_{+1}(x)}{dx} = 0, \quad \frac{dJ_{-1,0}(x)}{dx} + \frac{dJ_{0,+1}(x)}{dx} + \frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx} = 0. \quad (4)$$

Из (4) следует, что плотность суммарного стационарного прыжкового тока одиночных электронов $J_{-1,0}(x) + J_{0,+1}(x)$ и пар электронов $J_{-1,+1}(x)$ в полупроводнике не зависит от координаты x .

Объединим (1)–(3) с учетом (4) в систему обыкновенных дифференциальных уравнений

$$\begin{aligned}
 J_{-1,0}(x) &= e \frac{N_{-1}(x)N_0(x)}{N} M_{-1,0} E(x) + \frac{eD_{-1,0}}{N} \left(\frac{dN_{-1}(x)}{dx} N_0(x) - \frac{dN_0(x)}{dx} N_{-1}(x) \right), \\
 J_{0,+1}(x) &= e \frac{N_0(x)N_{+1}(x)}{N} M_{0,+1} E(x) + \frac{eD_{0,+1}}{N} \left(\frac{dN_0(x)}{dx} N_{+1}(x) - \frac{dN_{+1}(x)}{dx} N_0(x) \right), \\
 J_{-1,+1}(x) &= 2e \frac{N_{-1}(x)N_{+1}(x)}{N} M_{-1,+1} E(x) + \frac{2eD_{-1,+1}}{N} \left(\frac{dN_{-1}(x)}{dx} N_{+1}(x) - \frac{dN_{+1}(x)}{dx} N_{-1}(x) \right), \\
 \frac{dE(x)}{dx} &= \frac{e}{\epsilon_r \epsilon_0} (\delta N_{+1}(x) - \delta N_{-1}(x)), \\
 \frac{1}{2e} \frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx} + \frac{1}{e} \frac{dJ_{-1,0}(x)}{dx} &= \alpha N_{-1}(x) N_{+1}(x) - \beta N_0^2(x), \\
 \frac{1}{e} \frac{d}{dx} (J_{0,+1}(x) - J_{-1,0}(x)) &= 2(-\alpha N_{-1}(x) N_{+1}(x) + \beta N_0^2(x)), \\
 \frac{1}{2e} \frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx} + \frac{1}{e} \frac{dJ_{0,+1}(x)}{dx} &= -\alpha N_{-1}(x) N_{+1}(x) + \beta N_0^2(x)
 \end{aligned} \tag{5}$$

с неизвестными функциями $N_{-1}(x)$, $N_0(x)$, $N_{+1}(x)$, $E(x)$, $J_{-1,0}(x)$, $J_{0,+1}(x)$, $J_{-1,+1}(x)$.

Соотношения Нернста – Таунсенда – Эйнштейна – Смолуховского между дрейфовыми прыжковыми подвижностями и коэффициентами диффузии, согласно [3; 5; 9], имеют вид

$$\frac{M_{-1,0}}{D_{-1,0}} = \frac{e}{k_B T \xi_{-1,0}}, \quad \frac{M_{0,+1}}{D_{0,+1}} = \frac{e}{k_B T \xi_{0,+1}}, \quad \frac{M_{-1,+1}}{D_{-1,+1}} = \frac{2e}{k_B T \xi_{-1,+1}}, \tag{6}$$

где k_B – постоянная Больцмана; T – абсолютная температура; $\xi_{-1,0} \geq 1$, $\xi_{0,+1} \geq 1$ и $\xi_{-1,+1} \geq 1$ – безразмерные параметры, зависящие от соотношений между энергетическими ширинами W_1 и W_2 зон трехзрядных дефектов (см. рисунок) и тепловой энергией $k_B T$. Если $W_1 + W_2 < k_B T$, то $\xi_{-1,0} = \xi_{0,+1} = \xi_{-1,+1} = 1$.

С учетом (6) систему (5) перепишем так:

$$\begin{aligned}
 \frac{dN_{-1}(x)}{dx} N_0(x) - \frac{dN_0(x)}{dx} N_{-1}(x) &= -N_{-1}(x) N_0(x) \frac{eE(x)}{k_B T \xi_{-1,0}} + \frac{J_{-1,0}(x)N}{eD_{-1,0}}, \\
 \frac{dN_0(x)}{dx} N_{+1}(x) - \frac{dN_{+1}(x)}{dx} N_0(x) &= -N_0(x) N_{+1}(x) \frac{eE(x)}{k_B T \xi_{0,+1}} + \frac{J_{0,+1}(x)N}{eD_{0,+1}}, \\
 \frac{dN_{-1}(x)}{dx} N_{+1}(x) - \frac{dN_{+1}(x)}{dx} N_{-1}(x) &= -N_{-1}(x) N_{+1}(x) \frac{2eE(x)}{k_B T \xi_{-1,+1}} + \frac{J_{-1,+1}(x)N}{2eD_{-1,+1}}, \\
 \frac{dE(x)}{dx} &= \frac{e}{\epsilon_r \epsilon_0} (\delta N_{+1}(x) - \delta N_{-1}(x)), \\
 \frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx} + 2 \frac{dJ_{-1,0}(x)}{dx} &= 2e(\alpha N_{-1}(x) N_{+1}(x) - \beta N_0^2(x)), \\
 \frac{d}{dx} (J_{0,+1}(x) - J_{-1,0}(x)) &= 2e(-\alpha N_{-1}(x) N_{+1}(x) + \beta N_0^2(x)), \\
 \frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx} + 2 \frac{dJ_{0,+1}(x)}{dx} &= 2e(-\alpha N_{-1}(x) N_{+1}(x) + \beta N_0^2(x)).
 \end{aligned} \tag{7}$$

Из первых трех уравнений системы (7) можно найти соотношение между плотностями прыжковых токов одиночных электронов и пар электронов. Действительно, если домножить первое уравнение на $\frac{N_{+1}}{N_0}$, второе – на $\frac{N_{-1}}{N_0}$, сложить их, а затем из полученной суммы вычесть третье, то получим

$$\frac{J_{-1,0}(x)N_{+1}(x)}{D_{-1,0}N_0(x)} + \frac{J_{0,+1}(x)N_{-1}(x)}{D_{0,+1}N_0(x)} - \frac{J_{-1,+1}(x)}{2D_{-1,+1}} = \frac{eE(x)}{k_B T} \frac{N_{-1}(x)N_{+1}(x)}{N} \left(\frac{1}{\xi_{-1,0}} + \frac{1}{\xi_{0,+1}} - \frac{2}{\xi_{-1,+1}} \right). \quad (8)$$

Входящие в формулы (6) параметры $\xi_{-1,0}$, $\xi_{0,+1}$ и $\xi_{-1,+1}$ определяются в состоянии равновесия и связаны равенством

$$\xi_{-1,+1} = 2 \frac{\xi_{-1,0}\xi_{0,+1}}{\xi_{-1,0} + \xi_{0,+1}}, \quad (9)$$

которое следует из уравнений (1) при условии, что напряженность поля $E(x) \neq 0$, а плотности прыжковых токов $J_{-1,0}(x) = J_{0,+1}(x) = J_{-1,+1}(x) = 0$. Это условие соответствует размещенному между обкладками (электродами) заряженного плоского электрического конденсатора полупроводниковому образцу без возбуждения в нем тока.

Подставляя (9) в (8), находим связь плотности прыжкового тока пар электронов $J_{-1,+1}(x)$ с плотностями прыжковых токов $J_{-1,0}(x)$ и $J_{0,+1}(x)$ одиночных электронов:

$$J_{-1,+1}(x) = \frac{2D_{-1,+1}}{D_{-1,0}} \frac{N_{+1}(x)}{N_0(x)} J_{-1,0}(x) + \frac{2D_{-1,+1}}{D_{0,+1}} \frac{N_{-1}(x)}{N_0(x)} J_{0,+1}(x). \quad (10)$$

Далее, используя первые три уравнения системы (7) и условия (4), преобразуем производные концентраций дефектов в зарядовых состояниях (-1) , (0) и $(+1)$ по x и перепишем (7) в виде

$$\begin{aligned} \frac{dN_{-1}(x)}{dx} &= - \left(\frac{N_{-1,0}(x)}{\xi_{-1,0}} + 2 \frac{N_{-1,+1}(x)}{\xi_{-1,+1}} \right) \frac{e}{k_B T} E(x) + \frac{(N_{+1}(x) + N_0(x))}{N_0(x)} \frac{J_{-1,0}(x)}{eD_{-1,0}} + \frac{N_{-1}(x)}{N_0(x)} \frac{J_{0,+1}(x)}{eD_{0,+1}}, \\ \frac{dN_{+1}(x)}{dx} &= \left(\frac{N_{0,+1}(x)}{\xi_{0,+1}} + 2 \frac{N_{-1,+1}(x)}{\xi_{-1,+1}} \right) \frac{e}{k_B T} E(x) - \frac{N_{+1}(x)}{N_0(x)} \frac{J_{-1,0}(x)}{eD_{-1,0}} - \frac{(N_{-1}(x) + N_0(x))}{N_0(x)} \frac{J_{0,+1}(x)}{eD_{0,+1}}, \\ \frac{dN_0(x)}{dx} &= - \left(\frac{dN_{-1}(x)}{dx} + \frac{dN_{+1}(x)}{dx} \right), \\ \frac{dE(x)}{dx} &= \frac{e}{\epsilon_r \epsilon_0} (\delta N_{+1}(x) - \delta N_{-1}(x)), \end{aligned} \quad (11)$$

$$\frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx} + 2 \frac{dJ_{-1,0}(x)}{dx} = 2e(\alpha N_{-1}(x)N_{+1}(x) - \beta N_0^2(x)),$$

$$\frac{d}{dx} (J_{0,+1}(x) - J_{-1,0}(x)) = 2e(-\alpha N_{-1}(x)N_{+1}(x) + \beta N_0^2(x)),$$

$$\frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx} + 2 \frac{dJ_{0,+1}(x)}{dx} = 2e(-\alpha N_{-1}(x)N_{+1}(x) + \beta N_0^2(x)).$$

Решение линеаризованной системы уравнений

Ограничимся рассмотрением состояний исследуемой полупроводниковой системы вблизи равновесия (когда $E(x) = 0$ и $J_{-1,0}(x) = J_{0,+1}(x) = J_{-1,+1}(x) = 0$). Ее отклонение от положения равновесия во внешнем электрическом поле определяется величинами $|\delta N_{-1}(x)| \ll N_{-1}$, $|\delta N_0(x)| \ll N_0$, $|\delta N_{+1}(x)| \ll N_{+1}$, где N_{-1} , N_0 и N_{+1} – равновесные значения концентраций дефектов в зарядовых состояниях (-1) , (0) и $(+1)$ соответственно. В линейном приближении система (11) принимает вид

$$\begin{aligned}\frac{d(\delta N_{-1}(x))}{dx} &= -\left(\frac{N_{-1,0}}{\xi_{-1,0}} + 2\frac{N_{-1,+1}}{\xi_{-1,+1}}\right)\frac{eE(x)}{k_B T} + \frac{(N_{+1} + N_0)J_{-1,0}(x)}{eN_0 D_{-1,0}} + \frac{N_{-1}J_{0,+1}(x)}{eN_0 D_{0,+1}}, \\ \frac{d(\delta N_{+1}(x))}{dx} &= \left(\frac{N_{0,+1}}{\xi_{0,+1}} + 2\frac{N_{-1,+1}}{\xi_{-1,+1}}\right)\frac{eE(x)}{k_B T} - \frac{N_{+1}J_{-1,0}(x)}{eN_0 D_{-1,0}} - \frac{(N_{-1} + N_0)J_{0,+1}(x)}{eN_0 D_{0,+1}}, \\ \frac{d(\delta N_0(x))}{dx} &= -\frac{d(\delta N_{-1}(x))}{dx} - \frac{d(\delta N_{+1}(x))}{dx}, \\ \frac{dE(x)}{dx} &= \frac{e}{\epsilon_r \epsilon_0}(\delta N_{+1}(x) - \delta N_{-1}(x)),\end{aligned}\tag{12}$$

$$\begin{aligned}\frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx} + 2\frac{dJ_{-1,0}(x)}{dx} &= 2e((\alpha N_{+1} + 2\beta N_0)\delta N_{-1}(x) + (\alpha N_{-1} + 2\beta N_0)\delta N_{+1}(x)), \\ \frac{d}{dx}(J_{0,+1}(x) - J_{-1,0}(x)) &= -2e((\alpha N_{+1} + 2\beta N_0)\delta N_{-1}(x) + (\alpha N_{-1} + 2\beta N_0)\delta N_{+1}(x)), \\ \frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx} + 2\frac{dJ_{0,+1}(x)}{dx} &= -2e((\alpha N_{+1} + 2\beta N_0)\delta N_{-1}(x) + (\alpha N_{-1} + 2\beta N_0)\delta N_{+1}(x)),\end{aligned}$$

где $N_{-1,0} = \frac{N_{-1}N_0}{N}$ – равновесная концентрация одиночных электронов, прыгающих между дефектами в зарядовых состояниях (-1) и (0) ; $N_{0,+1} = \frac{N_0N_{+1}}{N}$ – равновесная концентрация одиночных электронов, прыгающих между дефектами в зарядовых состояниях (0) и $(+1)$; $N_{-1,+1} = \frac{N_{-1}N_{+1}}{N}$ – равновесная концентрация пар электронов, прыгающих между дефектами в зарядовых состояниях (-1) и $(+1)$.

Систему (12) можно сократить на два уравнения. Третье уравнение исключается с помощью обращения в нуль суммы отклонений концентраций дефектов от их равновесных значений, т. е. $\delta N_{-1}(x) + \delta N_0(x) + \delta N_{+1}(x) = 0$, а пятое, шестое и седьмое уравнения приводятся к двум уравнениям относительно токов $J_{-1,0}(x)$ и $J_{0,+1}(x)$ путем исключения $\frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx}$ после линеаризации (при $\delta N_Z(x) \rightarrow 0$ для $Z = -1, 0, +1$) выражения (10) для плотности тока:

$$J_{-1,+1}(x) = \frac{2D_{-1,+1}}{D_{-1,0}}\frac{N_{+1}}{N_0}J_{-1,0}(x) + \frac{2D_{-1,+1}}{D_{0,+1}}\frac{N_{-1}}{N_0}J_{0,+1}(x).\tag{13}$$

В итоге в системе (12) останется пять уравнений:

$$\begin{aligned}\frac{d(\delta N_{-1}(x))}{dx} &= -\left(\frac{N_{-1,0}}{\xi_{-1,0}} + 2\frac{N_{-1,+1}}{\xi_{-1,+1}}\right)\frac{eE(x)}{k_B T} + \frac{(N_{+1} + N_0)J_{-1,0}(x)}{eN_0 D_{-1,0}} + \frac{N_{-1}J_{0,+1}(x)}{eN_0 D_{0,+1}}, \\ \frac{d(\delta N_{+1}(x))}{dx} &= \left(\frac{N_{0,+1}}{\xi_{0,+1}} + 2\frac{N_{-1,+1}}{\xi_{-1,+1}}\right)\frac{eE(x)}{k_B T} - \frac{N_{+1}J_{-1,0}(x)}{eN_0 D_{-1,0}} - \frac{(N_{-1} + N_0)J_{0,+1}(x)}{eN_0 D_{0,+1}}, \\ \frac{dE(x)}{dx} &= \frac{e}{\epsilon_r \epsilon_0}(\delta N_{+1}(x) - \delta N_{-1}(x)), \\ \frac{dJ_{-1,0}(x)}{dx} &= \frac{2e((\alpha N_{+1} + 2\beta N_0)\delta N_{-1}(x) + (\alpha N_{-1} + 2\beta N_0)\delta N_{+1}(x))}{1 + C^{-1}}, \\ \frac{dJ_{0,+1}(x)}{dx} &= -\frac{2e((\alpha N_{+1} + 2\beta N_0)\delta N_{-1}(x) + (\alpha N_{-1} + 2\beta N_0)\delta N_{+1}(x))}{1 + C},\end{aligned}\tag{14}$$

где зависящие от координаты x неизвестные функции $\delta N_{-1}(x)$, $\delta N_{+1}(x)$, $E(x)$, $J_{-1,0}(x)$, $J_{0,+1}(x)$ указаны явно и введен коэффициент $C = \frac{D_{-1,0}(D_{0,+1}N_0 + 2D_{-1,+1}N_{-1})}{D_{0,+1}(D_{-1,0}N_0 + 2D_{-1,+1}N_{+1})}$. Отметим, что $C = 1$ при $D_{-1,+1} = 0$,

и в этом случае выражения для $\frac{dJ_{-1,0}(x)}{dx}$ и $\frac{dJ_{0,+1}(x)}{dx}$ получаются такими же, как в работе [5].

Запишем систему линейных уравнений (14) в матричном виде (см., например, [10]):

$$\frac{dy}{dx} = Ay, \quad (15)$$

где

$$y = \begin{pmatrix} \delta N_{-1}(x) \\ \delta N_{+1}(x) \\ E(x) \\ J_{-1,0}(x) \\ J_{0,+1}(x) \end{pmatrix}, \quad A = \begin{pmatrix} 0 & 0 & a_{13} & a_{14} & a_{15} \\ 0 & 0 & a_{23} & a_{24} & a_{25} \\ a_{31} & a_{32} & 0 & 0 & 0 \\ a_{41} & a_{42} & 0 & 0 & 0 \\ a_{51} & a_{52} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (16)$$

Элементы матрицы A выражаются через равновесные величины:

$$\begin{aligned} a_{13} &= -\frac{e}{k_B T} \left(\frac{N_{-1,0}}{\xi_{-1,0}} + 2 \frac{N_{-1,+1}}{\xi_{-1,+1}} \right), \quad a_{14} = \frac{N_{+1} + N_0}{e N_0 D_{-1,0}}, \quad a_{15} = \frac{N_{-1}}{e N_0 D_{0,+1}}, \\ a_{23} &= \frac{e}{k_B T} \left(\frac{N_{0,+1}}{\xi_{0,+1}} + 2 \frac{N_{-1,+1}}{\xi_{-1,+1}} \right), \quad a_{24} = -\frac{N_{+1}}{e N_0 D_{-1,0}}, \quad a_{25} = -\frac{N_{-1} + N_0}{e N_0 D_{0,+1}}, \\ a_{31} &= -\frac{e}{\epsilon_r \epsilon_0}, \quad a_{32} = \frac{e}{\epsilon_r \epsilon_0}, \quad a_{41} = \frac{2e(\alpha N_{+1} + 2\beta N_0)}{1 + C^{-1}}, \quad a_{42} = \frac{2e(\alpha N_{-1} + 2\beta N_0)}{1 + C^{-1}}, \\ a_{51} &= -\frac{2e(\alpha N_{+1} + 2\beta N_0)}{1 + C}, \quad a_{52} = -\frac{2e(\alpha N_{-1} + 2\beta N_0)}{1 + C}. \end{aligned} \quad (17)$$

Отсюда видно, что матрица A несимметрична ($a_{13} \neq a_{31}$ и т. д.).

Собственные значения λ матрицы A системы (15) находятся из характеристического уравнения $\det(A - \lambda \mathbf{1}) = 0$, где $\mathbf{1}$ – единичная матрица 5-го порядка, и равны

$$\lambda_1 = 0, \quad \lambda_2 = -\lambda_3 = -\frac{\sqrt{b - \sqrt{b^2 - d}}}{\sqrt{2}}, \quad \lambda_4 = -\lambda_5 = -\frac{\sqrt{b + \sqrt{b^2 - d}}}{\sqrt{2}}, \quad (18)$$

где $b = a_{13}a_{31} + a_{23}a_{32} + a_{14}a_{41} + a_{24}a_{42} + a_{15}a_{51} + a_{25}a_{52}$; $d = 4((a_{13}a_{24} - a_{14}a_{23})(a_{31}a_{42} - a_{32}a_{41}) + (a_{13}a_{25} - a_{15}a_{23})(a_{31}a_{52} - a_{32}a_{51}) + (a_{14}a_{25} - a_{15}a_{24})(a_{41}a_{52} - a_{42}a_{51}))$.

(Отметим, что положительные λ_3 и λ_5 быстро выводят систему из состояния, близкого к равновесному, в области $x > 0$, отрицательные λ_2 и λ_4 – в области $x < 0$, и система теряет смысл. Так как среди собственных значений имеются действительные, отличные от нуля, то решения исходной (11) и линеаризованной (14) систем дифференциальных уравнений вблизи равновесного состояния исследуемой системы близки [11; 12].)

Введем новые обозначения:

$$\begin{aligned} B_1 &= a_{13}a_{25} - a_{15}a_{23}; \quad B_2 = a_{14}a_{25} - a_{15}a_{24}; \quad B_3 = a_{13}a_{24} - a_{14}a_{23}; \\ B_4 &= a_{15}a_{31} + a_{25}a_{32}; \quad B_5 = a_{15}a_{41} + a_{25}a_{42}; \quad B_6 = a_{31}a_{42} - a_{32}a_{41}; \\ B_7 &= a_{31}a_{52} - a_{32}a_{51}; \quad B_8 = a_{41}a_{52} - a_{42}a_{51}; \quad B_9 = a_{15}a_{51} + a_{25}a_{52}. \end{aligned}$$

При подстановке a_{ij} из (17) в последние выражения получим, что $B_8 = 0$. Тогда $d = 4(B_3B_6 + B_1B_7)$.

Решение системы уравнений (15) в типичном случае, когда у матрицы A нет кратных собственных значений, имеет вид

$$\begin{pmatrix} \delta N_{-1}(x) \\ \delta N_{+1}(x) \\ E(x) \\ J_{-1,0}(x) \\ J_{0,+1}(x) \end{pmatrix} = C_1 \mathbf{e}_1 + C_2 \mathbf{e}_2 \exp(-\lambda_3 x) + C_3 \mathbf{e}_3 \exp(\lambda_3 x) + C_4 \mathbf{e}_4 \exp(-\lambda_5 x) + C_5 \mathbf{e}_5 \exp(\lambda_5 x), \quad (19)$$

где C_i – постоянные коэффициенты, определяемые из граничных условий, $i = \overline{1, 5}$; $\mathbf{e}_i$ – собственный вектор, соответствующий собственному значению λ_i (т. е. решение системы уравнений $(A - \lambda_i \mathbf{1})\mathbf{e}_i = 0$ относительно $\mathbf{e}_i$, $i = \overline{1, 5}$).

Собственные векторы матрицы A системы (15) суть

$$\mathbf{e}_1 = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \\ \sigma_{-1,0} \\ \sigma_{0,+1} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{e}_2 = \begin{pmatrix} \lambda_3(a_{15}\lambda_3^2 + B_1a_{32} + B_2a_{42}) \\ -\lambda_3(-a_{25}\lambda_3^2 + B_1a_{31} + B_2a_{41}) \\ -(B_4\lambda_3^2 + B_2B_6) \\ -(B_5\lambda_3^2 - B_1B_6) \\ -(B_9\lambda_3^2 - B_1B_7) \end{pmatrix}, \quad \mathbf{e}_3 = \begin{pmatrix} \lambda_3(a_{15}\lambda_3^2 + B_1a_{32} + B_2a_{42}) \\ -\lambda_3(-a_{25}\lambda_3^2 + B_1a_{31} + B_2a_{41}) \\ B_4\lambda_3^2 + B_2B_6 \\ B_5\lambda_3^2 - B_1B_6 \\ B_9\lambda_3^2 - B_1B_7 \end{pmatrix}, \quad (20)$$

$$\mathbf{e}_4 = \begin{pmatrix} \lambda_5(a_{15}\lambda_5^2 + B_1a_{32} + B_2a_{42}) \\ -\lambda_5(-a_{25}\lambda_5^2 + B_1a_{31} + B_2a_{41}) \\ -(B_4\lambda_5^2 + B_2B_6) \\ -(B_5\lambda_5^2 - B_1B_6) \\ -(B_9\lambda_5^2 - B_1B_7) \end{pmatrix}, \quad \mathbf{e}_5 = \begin{pmatrix} \lambda_5(a_{15}\lambda_5^2 + B_1a_{32} + B_2a_{42}) \\ -\lambda_5(-a_{25}\lambda_5^2 + B_1a_{31} + B_2a_{41}) \\ B_4\lambda_5^2 + B_2B_6 \\ B_5\lambda_5^2 - B_1B_6 \\ B_9\lambda_5^2 - B_1B_7 \end{pmatrix},$$

где $\sigma_{-1,0} = eN_{-1,0}M_{-1,0} = -\frac{B_1}{B_2}$, $\sigma_{0,+1} = eN_{0,+1}M_{0,+1} = \frac{B_3}{B_2}$ – удельные прыжковые электрические проводимости одиночных электронов по дефектам.

Отметим, что по (17)–(20) отношение 4-й компоненты к 5-й в собственных векторах $\mathbf{e}_2, \dots, \mathbf{e}_5$ есть $\frac{B_5\lambda_3^2 - B_1B_6}{B_9\lambda_3^2 - B_1B_7} = \frac{B_5\lambda_5^2 - B_1B_6}{B_9\lambda_5^2 - B_1B_7} = \frac{a_{41}}{a_{51}}$. Если полупроводниковый образец поместить между обкладками заряженного плоского электрического конденсатора без возбуждения в нем стационарного тока, то в формуле (19) получим $C_1 = 0$. Тогда с учетом выражения (13) для линеаризованной плотности прыжкового тока пар электронов $J_{-1,+1}(x)$ из (19) в силу (20) следует $J_{-1,0}(x) + J_{0,+1}(x) + J_{-1,+1}(x) = 0$.

Длина экранирования поля и длина диффузии электронов

Получим явные формулы для длины экранирования электрического поля Λ_s и длины диффузии прыгающих электронов Λ_d в типичном случае отсутствия у матрицы A кратных собственных значений (см. соотношения (15)–(18)). Формально введем замены

$$b = \Lambda_s^{-2} + \Lambda_d^{-2}, \quad d = 4\Lambda_s^{-2}\Lambda_d^{-2}Y_sY_d, \quad (21)$$

где $Y_s = \frac{N_{-1,0} + N_{0,+1} + 4N_{-1,+1}}{\tilde{N}_{-1,0} + \tilde{N}_{0,+1} + 4\tilde{N}_{-1,+1}} \geq 1$; $Y_d = \frac{\tilde{N}_{-1,0}D_{-1,0} + \tilde{N}_{0,+1}D_{0,+1} + 4\tilde{N}_{-1,+1}D_{-1,+1}}{N_{-1,0}D_{-1,0} + N_{0,+1}D_{0,+1} + 4N_{-1,+1}D_{-1,+1}}$, $0 < Y_d \leq 1$, $Y_sY_d > 0$,

$\tilde{N}_{-1,0} = \frac{N_{-1,0}}{\xi_{-1,0}}$, $\tilde{N}_{0,+1} = \frac{N_{0,+1}}{\xi_{0,+1}}$, $\tilde{N}_{-1,+1} = \frac{N_{-1,+1}}{\xi_{-1,+1}}$; безразмерные параметры $\xi_{-1,0} \geq 1$, $\xi_{0,+1} \geq 1$ и $\xi_{-1,+1} \geq 1$

показывают по (6), насколько отношения коэффициентов прыжковой диффузии к прыжковым дрейфовым подвижностям превышают классическое значение $\frac{k_B T}{e}$.

Используя (21), собственные значения (18) представим в виде

$$\lambda_1 = 0, \quad \lambda_i = \pm \frac{\sqrt{\Lambda_s^{-2} + \Lambda_d^{-2} \pm \sqrt{(\Lambda_s^{-2} + \Lambda_d^{-2})^2 - 4\Lambda_s^{-2}\Lambda_d^{-2}Y_s Y_d}}}{\sqrt{2}}, \quad i = \overline{2, 5}. \quad (22)$$

Из (22) видно, что λ_i выражаются как через длину экранирования Λ_s , так и через длину диффузии Λ_d , характеризующие по (19) экспоненциальную зависимость $\delta N_{-1}(x)$, $\delta N_{+1}(x)$, $E(x)$, $J_{-1,0}(x)$, $J_{0,+1}(x)$ от пространственной координаты x .

Входящая в (22) длина экранирования Λ_s внешнего электрического поля в полупроводнике (получается из (19) при $E(0) \neq 0$, $E(\infty) = 0$ и $J_{-1,0}(x) + J_{0,+1}(x) + J_{-1,+1}(x) = 0$) есть

$$\Lambda_s = (a_{13}a_{31} + a_{23}a_{32})^{-1/2} = \sqrt{\frac{\epsilon_r \epsilon_0 k_B T}{e^2 (\tilde{N}_{-1,0} + \tilde{N}_{0,+1} + 4\tilde{N}_{-1,+1})}}. \quad (23)$$

Отметим, что длина экранирования по (23) такая же, как и при $\frac{dJ_{-1,+1}(x)}{dx} = 0$ (ср. [5]).

В случае когда $N_0 \ll N_{-1}$ и $N_0 \ll N_{+1}$ (концентрация прыгающих пар электронов $N_{-1,+1}$ намного превышает концентрации прыгающих одиночных электронов $N_{-1,0}$ и $N_{0,+1}$), длина экранирования из (23) совпадает с длиной экранирования биполяронами из [6]:

$$\Lambda_s = \sqrt{\frac{\epsilon_r \epsilon_0 k_B T}{4e^2 \tilde{N}_{-1,+1}}} = \sqrt{\frac{\epsilon_r \epsilon_0 \xi_{-1,+1} k_B T}{4e^2 N_{-1,+1}}},$$

$$\text{где } N_{-1,+1} = \frac{N_{-1}N_{+1}}{N_{-1} + N_0 + N_{+1}} \approx \frac{N_{-1}N_{+1}}{N_{-1} + N_{+1}}.$$

Длина диффузии Λ_d прыгающих между дефектами одиночных электронов и пар электронов (получается из (19) при $E(x) \neq 0$ и $J_{-1,0}(x) + J_{0,+1}(x) + J_{-1,+1}(x) \neq 0$) есть

$$\Lambda_d = (a_{14}a_{41} + a_{24}a_{42} + a_{15}a_{51} + a_{25}a_{52})^{-1/2} = \sqrt{\frac{N_0(D_{0,+1}D_{-1,0}N_0 + D_{-1,0}D_{-1,+1}N_{-1} + D_{0,+1}D_{-1,+1}N_{+1})}{\alpha N(D_{-1,0}N_{-1}N_0 + D_{0,+1}N_0N_{+1} + 4D_{-1,+1}N_{-1}N_{+1})}}. \quad (24)$$

Рассмотрим два частных случая выражения (24).

1. Пусть реализуются прыжки между дефектами только одиночных электронов и отсутствует прыжковый ток пар электронов, т. е. $D_{-1,+1} = 0$. Тогда из (24) получаем результат работ [5; 13]:

$$\Lambda_d = \sqrt{\frac{D_{0,+1}D_{-1,0}N_0}{\alpha N(D_{-1,0}N_{-1} + D_{0,+1}N_{+1})}} \equiv \sqrt{D_d \tau_d},$$

где $D_d = \frac{D_{-1,0}D_{0,+1}(N_{-1,0} + N_{0,+1})}{D_{-1,0}N_{-1,0} + D_{0,+1}N_{0,+1}}$ – эффективный коэффициент прыжковой диффузии одиночных элект-

ронов; $\tau_d = \frac{N_0}{\alpha N(N_{-1} + N_{+1})}$ – эффективное время жизни двух дефектов в зарядовых состояниях (–1)

и (+1) относительно прыжка между ними одного электрона по схеме (–1) + (+1) → 2(0).

2. Пусть реализуются прыжки между дефектами только пар электронов и отсутствует прыжковый ток одиночных электронов ($D_{-1,0} = D_{0,+1} = 0$). Тогда из (24) получим $\Lambda_d = 0$.

Наконец, отметим, что отношение длин экранирования и диффузии определяет тип полупроводников: рекомбинационный (при $\Lambda_s < \Lambda_d$) или релаксационный (при $\Lambda_s > \Lambda_d$) [14; 15], т. е. их применимость при создании фоторезисторов (из рекомбинационного полупроводника) или, наоборот, низкочастотных силовых биполярных транзисторов (с базовой областью из релаксационного полупроводника).

Заклучение

В дрейфово-диффузионном (гидродинамическом) приближении составлена система нелинейных дифференциальных уравнений для описания сосуществующей прыжковой миграции как одиночных электронов, так и пар электронов по трехзарядным точечным дефектам одного сорта (вида) в кристаллической полупроводниковой матрице. Впервые найдено решение линеаризованной системы дифференциальных уравнений для распределения концентраций неподвижных дефектов в зарядовых состояниях (-1) , (0) и $(+1)$ вдоль напряженности внешнего электрического поля, а также плотностей токов одиночных электронов $(-1) \rightarrow (0)$ и $(0) \rightarrow (+1)$ и пар электронов $(-1) \rightarrow (+1)$, прыгающих по дефектам. Получены выражения для длины экранирования внешнего стационарного электрического поля и длины диффузии прыгающих электронов. Показано, что учет прыжков пар электронов с дефектов в зарядовом состоянии (-1) на дефекты в зарядовом состоянии $(+1)$ уменьшает длину экранирования за счет увеличения концентрации экранирующих зарядов, а также изменяет длину диффузии электронов.

Библиографические ссылки

1. Brudnyi VN. Charge neutrality in semiconductors: defects, interfaces, surface. *Russian Physics Journal*. 2013;56(7):754–756. DOI: 10.1007/s11182-013-0095-4.
2. Yamaguchi M. Radiation-resistant solar cells for space use. *Solar Energy Materials and Solar Cells*. 2001;68(1):31–53. DOI: 10.1016/S0927-0248(00)00344-5.
3. Poklonski NA, Vyrko SA, Zabrodskii AG. Calculation of capacitance of self-compensated semiconductors with intercenter hops of one and two electrons (by the example of silicon with radiation defects). *Semiconductors*. 2008;42(12):1388–1394. DOI: 10.1134/S1063782608120038.
4. Поклонский НА, Ковалев АИ, Вyrко СА, Власов АТ. Полупроводниковый диод с прыжковой миграцией электронов по точечным дефектам кристаллической матрицы. *Доклады Национальной академии наук Беларуси*. 2017;61(3):30–37.
5. Поклонский НА, Ковалев АИ, Вyrко СА. Дрейф и диффузия электронов по двухуровневым (трехзарядным) точечным дефектам в кристаллических полупроводниках. *Доклады Национальной академии наук Беларуси*. 2014;58(3):37–43.
6. Поклонский НА, Вyrко СА, Ковалев АИ. Стационарная прыжковая миграция биполяронов по «мягким» точечным дефектам в частично разупорядоченных полупроводниках. *Известия Национальной академии наук Беларуси. Серия физико-математических наук*. 2014;3:91–96.
7. Pollak M. Hopping – past, present and future(?). *Physica Status Solidi B*. 2002;230(1):295–304. DOI: 10.1002/1521-3951(200203)230:1<295::AID-PSSB295>3.0.CO;2-C.
8. Shlimak I. *Is Hopping a science? Selected topics of hopping conductivity*. Singapore: World Scientific; 2015. 156 p. DOI: 10.1142/9522.
9. Poklonski NA, Vyrko SA, Kovalev AI, Dzeraviah AN. Drift-diffusion model of hole migration in diamond crystals via states of valence and acceptor bands. *Journal of Physics Communications*. 2018;2:015013. DOI: 10.1088/2399-6528/aa8e26.
10. Korn GA, Korn TM. *Mathematical handbook for scientists and engineers: definitions, theorems, and formulas for reference and review*. New York: Dover; 2000. xx+1130 p.
11. Арнольд ВИ. *Обыкновенные дифференциальные уравнения*. Москва: МЦНМО; 2014. 341 с.
12. Farlow SJ. *An introduction to differential equations and their applications*. New York: Dover; 2006. 640 p. (Dover Books on Mathematics).
13. Poklonskii NA, Lopatin SYu. Stationary hopping photoconduction among multiply charged impurity atoms in crystals. *Physics of the Solid State*. 1998;40(10):1636–1640. DOI: 10.1134/1.1130623.
14. Manifacier JC, Henisch HK. The concept of screening length in lifetime and relaxation semiconductors. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*. 1980;41(11):1285–1288. DOI: 10.1016/0022-3697(80)90166-3.
15. Warner RM. Normalization in semiconductor problems. *Solid-State Electronics*. 1985;28(5):529–530. DOI: 10.1016/0038-1101(85)90118-2.

References

1. Brudnyi VN. Charge neutrality in semiconductors: defects, interfaces, surface. *Russian Physics Journal*. 2013;56(7):754–756. DOI: 10.1007/s11182-013-0095-4.
2. Yamaguchi M. Radiation-resistant solar cells for space use. *Solar Energy Materials and Solar Cells*. 2001;68(1):31–53. DOI: 10.1016/S0927-0248(00)00344-5.
3. Poklonski NA, Vyrko SA, Zabrodskii AG. Calculation of capacitance of self-compensated semiconductors with intercenter hops of one and two electrons (by the example of silicon with radiation defects). *Semiconductors*. 2008;42(12):1388–1394. DOI: 10.1134/S1063782608120038.
4. Poklonski NA, Kovalev AI, Vyrko SA, Vlasov AT. Semiconductor diode with hopping migration of electrons via point defects of crystalline matrix. *Doklady of the National Academy of Sciences of Belarus*. 2017;61(3):30–37. Russian.
5. Poklonski NA, Kovalev AI, Vyrko SA. Drift and diffusion of electrons via two-level (triple-charged) point defects in crystalline semiconductors. *Doklady of the National Academy of Sciences of Belarus*. 2014;58(3):37–43. Russian.
6. Poklonski NA, Vyrko SA, Kovalev AI. Stationary hopping migration of bipolarons via «soft» point defects in partly disordered semiconductors. *Proceedings of the National Academy of Sciences of Belarus. Physics and Mathematics series*. 2014;3:91–96. Russian.
7. Pollak M. Hopping – past, present and future(?). *Physica Status Solidi B*. 2002;230(1):295–304. DOI: 10.1002/1521-3951(200203)230:1<295::AID-PSSB295>3.0.CO;2-C.

8. Shlimak I. *Is hopping a science? Selected topics of hopping conductivity*. Singapore: World Scientific; 2015. 156 p. DOI: 10.1142/9522.
9. Poklonski NA, Vyrko SA, Kovalev AI, Dzeraviah AN. Drift-diffusion model of hole migration in diamond crystals via states of valence and acceptor bands. *Journal of Physics Communications*. 2018;2:015013. DOI: 10.1088/2399-6528/aa8e26.
10. Korn GA, Korn TM. *Mathematical handbook for scientists and engineers: definitions, theorems, and formulas for reference and review*. New York: Dover; 2000. xx+1130 p.
11. Arnol'd VI. *Ordinary differential equations*. Berlin: Springer; 1992. 334 p.
Russian edition: Arnol'd VI. *Obyknovennye differentsial'nye uravneniya*. Moscow: Moskovskii tsentr nepreryvnogo matematicheskogo obrazovaniya; 2014. 341 p.
12. Farlow SJ. *An introduction to differential equations and their applications*. New York: Dover; 2006. 640 p. (Dover Books on Mathematics).
13. Poklonskii NA, Lopatin SYu. Stationary hopping photoconduction among multiply charged impurity atoms in crystals. *Physics of the Solid State*. 1998;40(10):1636–1640. DOI: 10.1134/1.1130623.
14. Manificier JC, Henisch HK. The concept of screening length in lifetime and relaxation semiconductors. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*. 1980;41(11):1285–1288. DOI: 10.1016/0022-3697(80)90166-3.
15. Warner RM. Normalization in semiconductor problems. *Solid-State Electronics*. 1985;28(5):529–530. DOI: 10.1016/0038-1101(85)90118-2.

Статья поступила в редколлегию 03.12.2019.
Received by editorial board 03.12.2019.

УДК 533.9.07

КОМБИНИРОВАННОЕ МАГНЕТРОННО-ЛАЗЕРНОЕ ОСАЖДЕНИЕ ПЛЕНОЧНЫХ ПЛАЗМОННЫХ СТРУКТУР ОКСИДА ТИТАНА С НАНОЧАСТИЦАМИ СЕРЕБРА

А. П. БУРМАКОВ¹⁾, В. Н. КУЛЕШОВ¹⁾, А. В. СТОЛЯРОВ¹⁾

¹⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

Рассматривается методика получения пленочных структур, представляющих собой диэлектрическую матрицу с находящимися в ней наноразмерными металлическими частицами. Методика реализована путем одновременного использования магнетронного распыления и импульсного лазерного осаждения. В качестве диэлектрической матрицы применены пленки TiO_2 , формируемые магнетронным распылением. Металлические частицы Ag осаждались из эрозионного лазерного потока. Представлены условия реализации методики: взаимное расположение магнетрона, лазерной мишени и подложки; характеристики лазерного излучения; параметры магнетронного разряда; давление и состав газовой среды. С помощью методов спектрофотометрии, сканирующей электронной микроскопии и атомной силовой микроскопии получены оптические и структурные характеристики покрытий. Определена толщина покрытия, оценены преобладающий размер частиц и их поверхностная плотность. Установлено значительное влияние частоты лазерных импульсов на поглощение и пропускание полосы поверхностного плазмонного резонанса, а также наличие в пленочной структуре малоразмерных частиц материала катода магнетронного распылителя.

Ключевые слова: магнетронный разряд; лазерная плазма; комбинированное осаждение пленок; диэлектрические пленки; наночастицы; поверхностный плазмонный резонанс.

COMBINED MAGNETRON-LASER DEPOSITION OF TITANIUM OXIDE THIN-FILM PLASMONIC STRUCTURES WITH SILVER NANOPARTICLES

A. P. BURMAKOV^a, V. N. KULESHOV^a, A. V. STOLIAROV^a

^aBelarusian State University, 4 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220030, Belarus

Corresponding author: A. P. Burmakov (burmakov@bsu.by)

In this work, we consider a method for producing film structures, which are a dielectric matrix with nanosized metal particles in it. The technique is implemented by the simultaneous use of magnetron sputtering and pulsed laser deposition. As a dielectric matrix, TiO_2 films formed by magnetron sputtering are used. Metallic Ag particles were deposited

Образец цитирования:

Бурмаков АП, Кулешов ВН, Столяров АВ. Комбинированное магнетронно-лазерное осаждение пленочных плазмонных структур оксида титана с наночастицами серебра. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика.* 2020;1:54–59.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-54-59>

For citation:

Burmakov AP, Kuleshov VN, Stoliarov AV. Combined magnetron-laser deposition of titanium oxide thin-film plasmonic structures with silver nanoparticles. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2020;1:54–59. Russian.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-54-59>

Авторы:

Александр Пантелеевич Бурмаков – кандидат физико-математических наук, доцент; доцент кафедры физической электроники и нанотехнологий факультета радиоп физики и компьютерных технологий.

Василий Николаевич Кулешов – старший преподаватель кафедры физической электроники и нанотехнологий факультета радиоп физики и компьютерных технологий.

Алексей Владимирович Столяров – аспирант кафедры физической электроники и нанотехнологий факультета радиоп физики и компьютерных технологий. Научный руководитель – А. П. Бурмаков.

Authors:

Aliaksandr P. Burmakov, PhD (physics and mathematics), doцент; associate professor at the department of physical electronics and nanotechnologies, faculty of radiophysics and computer technologies.

burmakov@bsu.by

Vasiliy N. Kuleshov, senior lecturer at the department of physical electronics and nanotechnologies, faculty of radiophysics and computer technologies.

kuleshovv@yandex.ru

Alexei V. Stoliarov, postgraduate student at the department of physical electronics and nanotechnologies, faculty of radiophysics and computer technologies.

alexei.stoliarov@gmail.com

from an erosive laser stream. The conditions for the implementation of the technique are presented: the relative position of the magnetron, laser target, and substrate; characteristics of laser radiation; magnetron discharge parameters; pressure and composition of the gaseous medium. Using the methods of spectrophotometry, scanning electron microscopy and atomic force microscopy, the optical and structural characteristics of coatings are determined. The coating thickness was determined, the prevailing particle size and their surface density were estimated. A significant effect of the frequency of laser pulses on the absorption and transmission of the plasmon surface resonance band, as well as the presence in the film structure of small-sized particles of the cathode material of the magnetron sputter, is established.

Keywords: magnetron discharge; laser plasma; combined deposition of films; dielectric films; nanoparticles; surface plasmon resonance.

Введение

Наноразмерные пленочные структуры занимают особое место в решении различных задач научных исследований и практического применения. Большое внимание привлекают структуры, представляющие собой металлические или полупроводниковые частицы в диэлектрических матрицах, в частности система нанокристаллов Si в матрице SiO_2 , а также нанокристаллы кремния или германия в матрице Al_2O_3 или SiGeO_2 [1]. Значительный интерес обуславливают наноструктуры для эффективного поглощения света на основе благородных металлов, в первую очередь на основе наночастиц Ag, благодаря появлению в них резонансного поглощения, вызванного поверхностным плазмонным резонансом (ППР). Оптические свойства наночастиц серебра используются для усиления люминесценции, комбинационного рассеяния света и др.

Структуры, состоящие из наночастиц Ag в твердотельной матрице, получены в [2; 3]. В [2] структура создавалась путем лазерной эрозии Ag в водный раствор поливинилового спирта и дальнейшего испарения воды с образованием полимерной матрицы. В [3] для получения массива наночастиц Ag в матрице SiO_2 проводилась высокочастотная имплантация ионов Ag в поверхностный слой SiO_2 . Для формирования такого типа пленочных структур может оказаться полезной методика комбинации магнетронного распыления и лазерной эрозии.

Проведенные исследования по комбинированному магнетронно-лазерному осаждению немногочисленны и связаны с получением алмазоподобных пленок, композиционных покрытий на основе металлокерамических структур типа пленок SiC_x , TiC [4; 5]. В то же время принцип комбинированного магнетронно-лазерного осаждения дает возможность осуществить такие процессы, как формирование диэлектрических пленок, создаваемых магнетронным распылением, с одновременным включением в них наноразмерной металлической фазы эрозионного лазерного потока.

Техника и методика эксперимента

Для формирования структур с массивом металлических частиц в твердотельной диэлектрической матрице нами применена технология комбинированного магнетронно-лазерного осаждения, которая была продемонстрирована на примере частиц Ti в матрице TiO_2 [6]. В настоящей работе эта методика адаптирована к пленочной структуре, содержащей частицы Ag в матрице TiO_2 .

Схема реализации методики показана на рис. 1. Расстояние между магнетроном и подложкой 70 мм, между лазерной мишенью и подложкой 40 мм, угол между потоками эрозионной лазерной плазмы и плазмы магнетронного разряда 25° .

Осаждение покрытий магнетронным распылением проводилось при использовании титанового катода диаметром 5 см. Ток магнетронного разряда 0,35–0,4 А при напряжении 390–410 В, что соответствует типичной для магнетронного разряда плотности мощности на поверхности катода. Давление аргон-кислородной смеси газов поддерживалось на уровне 0,8 Па с использованием обратной связи сигнала вакуумметра и управляемого натекаателя аргона. Расход кислорода соответствовал магнетронному осаждению TiO_2 со скоростью 8 нм/мин и поддерживался оптической системой управления по спектру излучения магнетронного разряда, который регистрировался в реальном масштабе времени с помощью малогабаритного спектрометра S100 (*Solar Laser Systems*, Беларусь). Лазерная плазма формировалась двухимпульсным частотным лазером LS-2134D на АИГ : Nd^3 с длиной волны 532 нм, длительностью импульсов 12 нс и задержкой между удвоенными импульсами 0,4 мкс. Плотность мощности лазерного излучения 2 ГВт/см^2 . В целях равномерной эрозии мишени проводилось сканирование лазерного луча по ее поверхности с помощью призменной механической системы. Область сканирования мишени до $1 \times 1 \text{ см}$. Материал подложек – пластины стекла и кремния размером $3 \times 3 \text{ см}$. Осаждение проводилось при комнатной начальной температуре подложки.

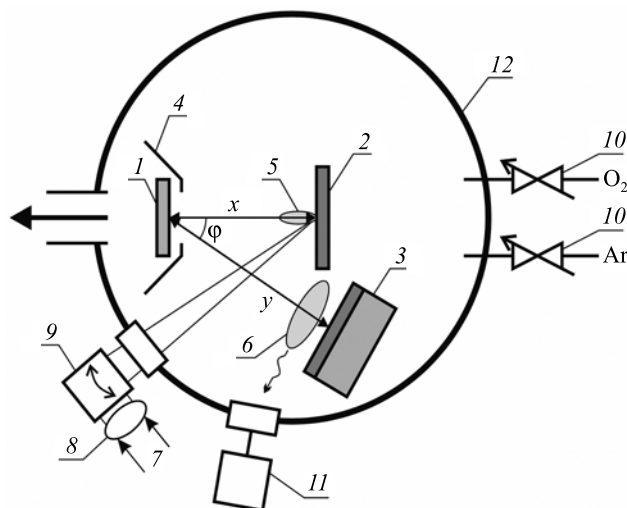


Рис. 1. Схема реализации методики комбинированного магнетронно-лазерного осаждения:
1 – подложка; 2 – лазерная мишень; 3 – магнетрон; 4 – экран; 5 и 6 – лазерная и магнетронная плазма;
7 – лазерный луч; 8 и 9 – фокусирующая линза и устройство сканирования; 10 – натекатели аргона и кислорода;
11 – датчик системы управления расходом кислорода; 12 – вакуумная камера

Fig. 1. Schematic illustration of the hybrid magnetron-laser deposition technique:
1 – substrate; 2 – laser target; 3 – magnetron; 4 – screen; 5 and 6 – laser and magnetron plasma;
7 – laser beam; 8 and 9 – focusing lens and scanning device; 10 – argon and oxygen traps;
11 – oxygen flow control system; 12 – vacuum chamber

Использование двухимпульсной генерации лазерного излучения является эффективным способом повышения энергетических параметров плазмы при ее формировании в воздухе и жидкостях. Аналогичное было установлено в [7] при генерации плазмы в вакуумных условиях, где определена оптимальная величина задержки между сдвоенными импульсами, равная 0,4 мкс. Кроме этого, можно предположить, что энергия второго импульса приведет к уменьшению размера частиц эрозионного потока за счет их доиспарения в потоке. С точки зрения величины поглощения, вызванного в пленочном покрытии ППР, такое явление носит положительный характер.

Результаты и их обсуждение

При формировании комбинированного плазменного потока одновременное существование плазмы магнетронного разряда и импульсно-периодической лазерной плазмы приводит к изменению характеристики магнетронного разряда. После образования лазерной плазмы в течение 5–15 мкс происходит спад напряжения горения разряда и повышение его тока до величин, которые характерны для дуговых разрядов. Вероятнее всего, формируемая плотная лазерная плазма обуславливает возникновение импульсного дугового разряда в промежутке катод – анод магнетронного разряда. Причиной кратковременного перехода тлеющего магнетронного разряда в дуговой является рост проводимости плазмы магнетронного разряда, вызванный попаданием в него расширяющейся лазерной плазмы с относительно высокой степенью ионизации. Следствием такого влияния лазерной плазмы на магнетронный разряд является обнаруженный в [7] дополнительный вклад дугового разряда в характеристики плазмы комбинированного потока. Катодное пятно этого разряда привязано к поверхности распыляемого материала и может быть источником мелкодисперсной капельной фазы в осаждаемой пленке. Подтверждением такого факта служат результаты рентгеноспектрального анализа элементного состава поверхности структуры, нанесенной по описанной выше методике при использовании кремниевой подложки (рис. 2). Анализ проведен вдоль линии на изображении участка поверхности (см. рис. 2, а), которое получено с помощью растрового электронного микроскопа (РЭМ) LEO 1455 VP (Carl Zeiss, Германия). На выделенной линии расположены две относительно крупные частицы. Правая частица размером около 2 мкм принадлежит Ag на фоне титана и кислорода, сформированных при магнетронном осаждении TiO_2 . Левая частица размером около 1 мкм принадлежит Ti. Содержание кислорода для этой частицы превышает фоновое значение окружающей TiO_2 -матрицы, что указывает на ее значительное окисление.

Вероятной причиной появления частицы Ti в осажденном покрытии является эрозия катода магнетрона в дуговом разряде, которая сопровождается образованием микрочастиц (мелкодисперсной фазы) в катодном пятне. Значительное содержание кислорода в месте расположения частицы Ti может быть обусловлено двумя факторами. Во-первых, частица образовалась на поверхности катода, который

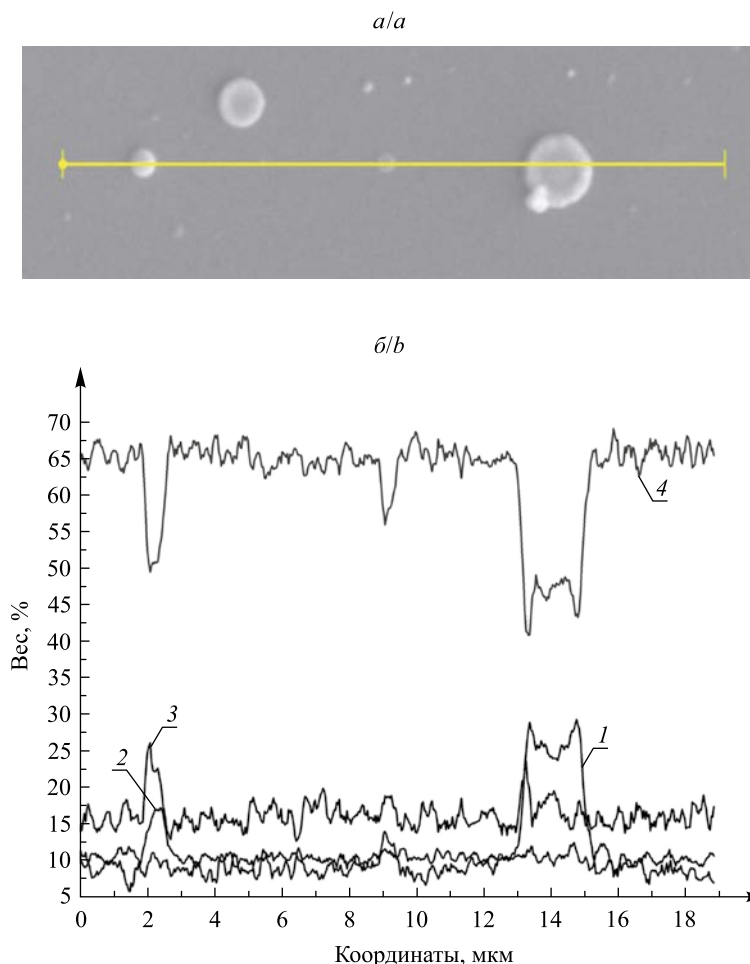


Рис. 2. РЭМ-изображение участка поверхности пленки Ag в TiO_2 на Si-подложке (а) и распределение элементного состава поверхности по линии на этом изображении (б):
1 – Ag; 2 – Ti; 3 – O; 4 – Si

Fig. 2. SEM image of the surface of Ag film in TiO_2 on Si substrate (a) and the elemental distribution on the surface along the corresponding line on the SEM image (b):
1 – Ag; 2 – Ti; 3 – O; 4 – Si

в процессе осаждения TiO_2 частично покрыт окисной пленкой. Во-вторых, на окисление частицы может влиять наличие в вакуумной камере кислорода, необходимого для формирования TiO_2 -матрицы и приводящего к поверхностному окислению частицы.

По сравнению с поверхностной плотностью частиц Ag поверхностная плотность частиц Ti мала. Это связано с относительно низкой энергией катодного пятна, которая не превышает 300 Вт при длительности его существования около 5 мкс.

Структурные свойства покрытий, содержащих частицы Ag в TiO_2 , изучались методами растровой электронной микроскопии и атомной силовой микроскопии (АСМ). Нами использован сканирующий зондовый микроскоп Solver P47 PRO (NT-MDT, Россия), работающий в полуконтактном режиме. По результатам обработки АСМ-изображений установлено, что максимальное количество частиц Ag имеет размер в интервале 20–60 нм с поверхностной плотностью 90–150 на 1 мкм^2 . Толщина покрытий, найденная с помощью АСМ-изображений профиля царапин поверхности структур, составляет около 250 нм при времени осаждения 27 мин. Сравнение этих результатов с результатами [6], полученными по близкой методике, показывает следующее. Для структуры частицы Ti в TiO_2 максимальное количество частиц имеет больший размер, который лежит в интервале 50–150 нм, а поверхностная плотность почти на порядок ниже и находится в интервале 10–15 на 1 мкм^2 . Это отличие размеров и поверхностной плотности частиц обусловлено различием теплофизических свойств материала лазерной мишени.

Основной особенностью структур, содержащих частицы Ag в TiO_2 , является наличие полосы поглощения, обусловленной поверхностным плазмонным резонансом. Обнаружено, что нанесение на поверхность структуры тонкого антикоррозионного защитного слоя TiO_2 толщиной 10 нм увеличивает

поглощение полосы ППР примерно на 5 %. Формирование защитного слоя TiO_2 проводилось путем отключения лазерного излучения при работающем магнетронном распылителе и последующего отключения магнетронного разряда. Время нанесения защитного слоя определялось скоростью роста оксида и составляло в условиях эксперимента 75 с.

На оптические характеристики ППР значительное влияние оказывает частота лазерных импульсов, которая в первую очередь определяет плотность металлических частиц в оксидной матрице. На рис. 3 и 4 представлены спектры поглощения и пропускания структур Ag в TiO_2 с защитным слоем TiO_2 для частоты лазерных импульсов 1; 2 и 4 Гц при одинаковых остальных параметрах проведения процесса осаждения. Время осаждения структур 15 мин. Спектры регистрировались с помощью спектрометра Lambda 1050 (*Perkin-Elmer*, США). Результаты указывают на значительную величину максимума поглощения, которая возрастает с 72,0 до 97,5 % при изменении частоты импульсов от 1 до 4 Гц (см. рис. 3). Полученное максимальное поглощение ППР превышает эту величину для структур, состоящих из наночастиц Ag в матрице из оксида кремния и поливинила [2; 3]. Кроме этого, спектры на рис. 3 свидетельствуют об уменьшении длины волны максимума поглощения от 450 до 400 нм с ростом частоты импульсов. Такой сдвиг максимума, вероятнее всего, связан с изменением характерного размера наночастиц серебра.

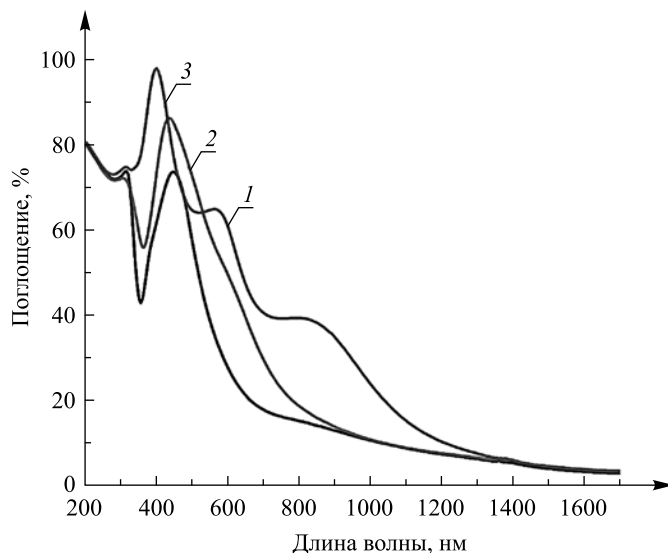


Рис. 3. Поглощение структур Ag в TiO_2 с защитным слоем TiO_2 при частотах лазерных импульсов: 1 – 1 Гц; 2 – 2 Гц; 3 – 4 Гц

Fig. 3. Absorption of Ag structures in TiO_2 with a protective TiO_2 layer formed at laser pulse frequencies: 1 – 1 Hz; 2 – 2 Hz; 3 – 4 Hz

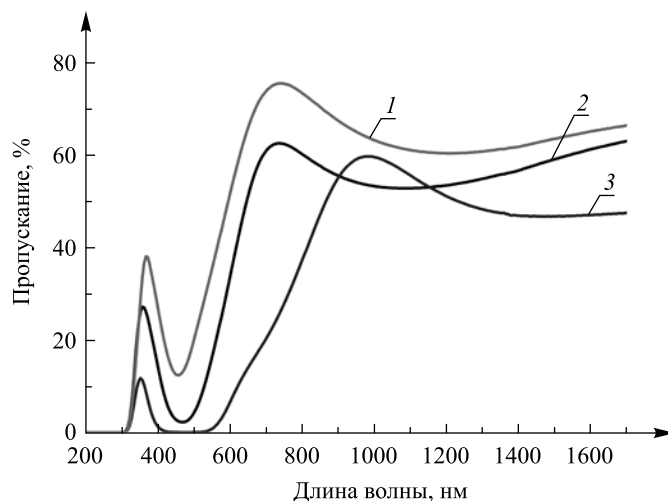


Рис. 4. Пропускание структур Ag в TiO_2 с защитным слоем TiO_2 при частотах лазерных импульсов: 1 – 1 Гц; 2 – 2 Гц; 3 – 4 Гц

Fig. 4. Transmission of Ag structures in TiO_2 with a protective TiO_2 layer formed at laser pulse frequencies: 1 – 1 Hz; 2 – 2 Hz; 3 – 4 Hz

Используя результаты [8], где представлена зависимость положения максимума поглощения полосы ППР от диаметра частиц серебра, можно оценить характерный размер частиц Ag в TiO_2 . Из рис. 3 следует, что при изменении частоты лазерных импульсов от 1 до 4 Гц размер частиц Ag лежит в интервале от 65 до 30 нм. Это достаточно хорошо согласуется с данными, полученными с помощью АСМ.

Из рис. 4 видно, что величина и ширина полосы пропускания изменяются с изменением частоты лазерных импульсов. С ростом последней минимум пропускания снижается от 13 до 0,2–0,3 %. Для частоты 4 Гц оптическая плотность в диапазоне 420–520 нм равна 2,6–2,7. Указанная информация об оптических характеристиках структур свидетельствует о более высоких поглощении и оптической плотности полосы ППР по сравнению с результатами [2; 3].

Заключение

Комбинированный магнетронно-лазерный плазменный поток позволяет получать пленочные покрытия, представляющие собой распределенные по толщине диэлектрической оксидной матрицы наноразмерные металлические частицы. Определены условия реализации комбинированной методики при формировании покрытий из частиц Ag, осаждаемых из эрозионного лазерного потока в матрице TiO_2 , которая одновременно формируется магнетронным распылением в аргон-кислородной среде. Установлено наличие в осажденном покрытии микрочастиц материала катода магнетронного разряда, которое обусловлено взаимодействием лазерной плазмы и магнетронного разряда. Показано, что на оптические характеристики ППР значительное влияние оказывает частота лазерных импульсов, что позволяет целенаправленно изменять эти характеристики. Получены структуры, обладающие ППР с высоким поглощением (до 97,5 %) и оптической плотностью до 2,6–2,7. Такие структуры могут использоваться для усиления люминесценции и комбинационного рассеяния света, при разработке медицинских сенсоров и др.

Библиографические ссылки

1. Горшков ОН, Тетельбаум ДИ, Михайлов АН. *Наноразмерные частицы кремния и германия в оксидных диэлектриках. Формирование, свойства, применение*. Нижний Новгород: Нижегородский государственный университет им. Н. И. Лобачевского; 2006. 83 с.
2. Гончаров ВК, Козадаев КВ, Шиман ДИ. Формирование и комплексная диагностика спектрально-морфологических параметров наноразмерной фазы серебра в полимерной пленке. *Журнал прикладной спектроскопии*. 2010;77(5):732–736.
3. Popok NV, Stepanov AL, Odzhaev VB. Synthesis of silver nanoparticles by the ion implantation method and investigation of their optical properties. *Journal of Applied Spectroscopy*. 2005;72(2):229–234. DOI: 10.1007/s10812-005-0060-2.
4. Krzanowski JE, Nainaparampil JJ, Phani AR. Mechanical and tribological properties of sub- and superstoichiometric Ti — C and Ti — Si — C films deposited by magnetron sputtering-pulsed laser deposition. *Journal of Vacuum Science & Technology A*. 2003; 21(6):1829–1836.
5. Jelinek M, Kocourek T, Kadlec Ja, Zemek J. Hybrid laser – magnetron technology for carbon composite coating. *Laser Physics*. 2009;19(2):149–153. DOI: 10.1134/S1054660X09020017.
6. Бурмаков АП, Людчик ОР, Кулешов ВН. Комбинированное магнетронно-лазерное осаждение диэлектрических покрытий, содержащих металлические наночастицы. *Вестник БГУ. Серия 1. Физика. Математика. Информатика*. 2016;2:41–48.
7. Бурмаков АП, Кулешов ВН, Прокопчик КЮ. Особенности формирования комбинированной магнетронно-лазерной плазмы в процессах нанесения пленочных покрытий. *Инженерно-физический журнал*. 2016;89(5):1281–1287.
8. Крутяков ЮА, Кудринский АА, Оленин АЮ, Лисичкин ГВ. Синтез и свойства наночастиц серебра: достижения и перспективы. *Успехи химии*. 2008;77(3):242–265.

References

1. Gorshkov ON, Tetelbaum DI, Mikhailov AN. *Nanorazmernye chastitsy kremniya i germaniya v oksidnykh dielektrikakh. Formirovanie, svoystva, primeneniye* [Nanoscale particles of silicon and germanium in oxide dielectrics. Formation, properties, application]. Nizhni Novgorod: Lobachevsky State University of Nizhni Novgorod; 2006. 83 p. Russian.
2. Goncharov VK, Kozadaev KV, Shiman DI. [Formation and complex investigation of spectral-morphologic parameters of Ag nanoscale phase in polymer film]. *Journal of Applied Spectroscopy*. 2010;77(5):732–736. Russian.
3. Popok NV, Stepanov AL, Odzhaev VB. Synthesis of silver nanoparticles by the ion implantation method and investigation of their optical properties. *Journal of Applied Spectroscopy*. 2005;72(2):229–234. DOI: 10.1007/s10812-005-0060-2.
4. Krzanowski JE, Nainaparampil JJ, Phani AR. Mechanical and tribological properties of sub- and superstoichiometric Ti — C and Ti — Si — C films deposited by magnetron sputtering-pulsed laser deposition. *Journal of Vacuum Science & Technology A*. 2003; 21(6):1829–1836.
5. Jelinek M, Kocourek T, Kadlec Ja, Zemek J. Hybrid laser – magnetron technology for carbon composite coating. *Laser Physics*. 2009;19(2):149–153. DOI: 10.1134/S1054660X09020017.
6. Burmakou AP, Lyudchik OR, Kuleshov VN. Combined magnetron-laser deposition of dielectric coatings comprising metal nanoparticles. *Vestnik BGU. Seriya 1. Fizika. Matematika. Informatika*. 2016;2:41–48. Russian.
7. Burmakov AP, Kuleshov VN, Prokopchik KU. [Features of the formation of a combined magnetron-laser plasma in the process of applying a film coating]. *Journal of Engineering Physics and Thermophysics*. 2016;89(5):1281–1287. Russian.
8. Krutyakov YuA, Kudrinskiy AA, Olenin AY, Lisichkin GV. Synthesis and properties of silver nanoparticles: achievements and prospects. *Uspekhi khimii*. 2008;77(3):242–265. Russian.

Статья поступила в редколлегию 04.11.2019.
Received by editorial board 04.11.2019.

УДК 621.318.13

ИССЛЕДОВАНИЕ СВОЙСТВ МАГНИТНО-МЯГКИХ КОМПОЗИЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ В ЧАСТОТНОМ ДИАПАЗОНЕ ГАРМОНИЧЕСКИХ КОЛЕБАНИЙ ДО 100 кГц

Г. А. ГОВОР¹⁾, А. О. ЛАРИН¹⁾, В. М. ДОБРЯНСКИЙ²⁾

¹⁾Научно-практический центр НАН Беларуси по материаловедению,
ул. П. Бровки, 19, 220072, г. Минск, Беларусь

²⁾Белорусский государственный аграрный технический университет,
пр. Независимости, 99, 220023, г. Минск, Беларусь

Исследованы динамические свойства композиционного магнитно-мягкого материала в диапазоне частот до 100 кГц при изменении толщины изоляционного слоя и размеров частиц железа. Показано, что с увеличением толщины изоляционного слоя потери на перемагничивание уменьшаются, но одновременно с этим имеет место снижение магнитной индукции насыщения и магнитной проницаемости. Следовательно, решение уменьшить потери за счет увеличения толщины изоляционного покрытия не всегда является оптимальным. Предпочтительнее достичь снижения потерь на перемагничивание путем повышения удельного сопротивления изоляционного слоя при его минимальной толщине.

Ключевые слова: композиционный материал; магнитно-мягкий материал; магнитные свойства; гистерезисные потери.

INVESTIGATION OF THE PROPERTIES OF SOFT MAGNETIC COMPOSITE MATERIALS IN THE FREQUENCY RANGE OF HARMONIC OSCILLATIONS UP TO 100 kHz

G. A. GOVOR^a, A. O. LARIN^a, V. M. DOBRIANSKY^b

^aScientific-Practical Materials Research Center, National Academy of Sciences of Belarus,
19 P. Broŭki Street, Minsk 220072, Belarus

^bBelarusian State Agrarian Technical University, 99 Niezalieŭnasci Avenue, Minsk 220023, Belarus
Corresponding author: V. M. Dobriansky (dobryanval@mail.ru)

The dynamic properties of the soft magnetic composite material in the frequency range up to 100 kHz with a change in the thickness of the insulating layer and the size of iron particles were investigated. It is shown that with an increase in the thickness of the insulating layer, the loss for remagnetization decreases, but at the same time there is a decrease in the

Образец цитирования:

Говор ГА, Ларин АО, Добрянский ВМ. Исследование свойств магнитно-мягких композиционных материалов в частотном диапазоне гармонических колебаний до 100 кГц. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика*. 2020; 1:60–66.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-60-66>

For citation:

Govor GA, Larin AO, Dobriansky VM. Investigation of the properties of soft magnetic composite materials in the frequency range of harmonic oscillations up to 100 kHz. *Journal of the Belarusian State University. Physics*. 2020;1:60–66. Russian.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-60-66>

Авторы:

Геннадий Антонович Говор – доктор физико-математических наук; главный научный сотрудник лаборатории физики магнитных материалов.

Артём Олегович Ларин – аспирант лаборатории физики магнитных материалов. Научный руководитель – доктор физико-математических наук К. И. Янушкевич.

Валерий Михайлович Добрянский – доктор технических наук; профессор кафедры физики агроэнергетического факультета.

Authors:

Gennady A. Govor, doctor of science (physics and mathematics); chief researcher at the laboratory of physics of magnetic materials.

govor@physics.by

Artem O. Larin, postgraduate student at the laboratory of physics of magnetic materials.

new_a-larin@mail.ru

Valery M. Dobriansky, doctor of science (engineering); professor at the department of physics, agro-power faculty.

dobryanval@mail.ru

<http://orcid.org/0000-0002-7059-6992>

magnetic value of the saturation induction and magnetic permeability. Therefore, that the decision to reduce losses by increasing the thickness of the insulating coating is not always the best solution. It is preferable to achieve a reduction losses for remagnetization due to an increase in the specific resistance of the insulating layer with its minimum thickness.

Keywords: composite material; soft magnetic material; magnetic properties; hysteresis loss.

Введение

Частотный диапазон гармонических колебаний до 100 кГц является наиболее востребованным и часто используемым в практике магнитных материалов для построения всякого рода источников питания, инверторных преобразователей различного назначения и др. Представляет интерес изучение поведения в этом частотном диапазоне композиционных магнитно-мягких материалов в целях определения возможности их применения наряду с другими магнитными материалами. В [1; 2] были рассмотрены статические свойства композиционных магнитно-мягких материалов в сравнении с характеристиками листовой стали. В [3–5] изучена возможность использования композиционных материалов для построения электромоторов и других изделий на промышленных частотах 50–60 Гц. Продолжением этих работ является изучение динамических характеристик данных материалов в более широком частотном интервале.

Цель настоящей работы – исследование свойств композиционных магнитно-мягких материалов, в первую очередь частотных зависимостей потерь на перемагничивание в диапазоне гармонических колебаний до 100 кГц при различных толщинах изоляционных покрытий железного порошка.

Методика эксперимента

Технология получения изолированных порошков магнитно-мягких материалов и изготовления из них изделий представляет собой многостадийный процесс, включающий следующие основные операции:

1) предварительную подготовку исходных порошков – очистку поверхности (в том числе высокотемпературную очистку), воздушную сепарацию порошка по размерным фракциям;

2) пассивацию порошков (защита от окисления) – нанесение на поверхность частиц порошка защитных компонентов. На настоящем этапе данная операция в стадии доработки и совершенствования. Для пассивации и защиты используются добавки высокотемпературных силиконовых лаков в количестве 0,25 % от веса порошка [6];

3) реакционное нанесение изоляционных покрытий из газовой фазы в вакууме при температуре 150–200 °С. В работе исследовались композиционные материалы на основе железных порошков ASC100.29, обработанных раствором ортофосфорной кислоты в этаноле для получения изоляционного покрытия. По магнитным параметрам такие материалы несколько лучше тех, которые обрабатываются растворами оксидов кремния, хрома или бора;

4) смазку изолированного порошка с помощью добавления раствора торфяного воска (*peat wax*) в количестве 0,15 % от исходного веса порошка;

5) изготовление изделий путем гидростатического прессования изолированных порошков в специальных пресс-формах под давлением 0,7–0,8 ГПа при нормальных условиях. Далее изделия подвергаются термообработке, их физические параметры нормализуются. Отжиг образцов производится при температуре 400 °С в вакууме или на воздухе в зависимости от требований.

Одним из главных достоинств рассматриваемой технологии (даже с учетом того, что технология в стадии доработки) является возможность равномерного нанесения защитных и изоляционных покрытий различного состава в широком диапазоне (от нанометров до микрометров). Кроме того, изделия из композиционного материала сохраняют размеры после прессования и последующего отжига.

Для исследования магнитных свойств изготавливались образцы композиционного магнитного материала в виде колец размером $24 \times 13 \times 8$ мм методом порошковой металлургии путем прессования изолированного порошка и последующего отжига в вакууме при 400 °С. Также изготовлены образцы с использованием железного порошка ASC100.29 с размерами частиц $d > 0,1$ мкм и $d < 0,1$ мкм и со средней толщиной изоляции на основе оксида фосфора ~1 нм, а также образцы на основе ASC100.29 ($d < 0,05$ мкм) с толщиной изоляционного слоя 10; 20 и 30 нм.

Измерения магнитных свойств выполнялись на экспресс-магнетометре, где по кривым перемагничивания образцов определялись потери и остальные магнитные параметры.

Динамические характеристики композиционных магнитно-мягких материалов в частотном диапазоне до 100 кГц исследовались на установке, где в качестве силового элемента применялся низкочастотный усилитель TDA7293 мощностью 140 Вт (рис. 1). Входной сигнал от генератора ГЗ-112 («Радиоприбор», Россия) усиливался и подавался на вход исследуемого сердечника, вторичная обмотка которого нагружалась активным сопротивлением 6 и 9 Ом. Выходные параметры контролировались двухканальным электронным цифровым осциллографом 2102СЕХ. Температура сердечника на открытом его участке измерялась электронным термометром TP 101.

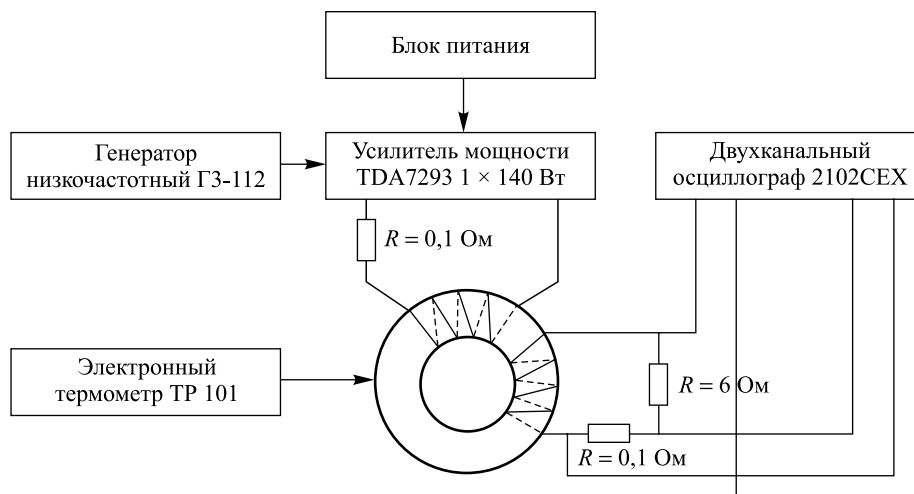


Рис. 1. Схема исследования динамических свойств композиционных магнитно-мягких материалов

Fig. 1. The scheme for research of the dynamic properties of soft magnetic composite materials

Нагрев сердечника контролировался в течение 10 мин на частотах 1; 5; 10; 25; 50 и 100 кГц при сохранении постоянной потребляемой мощности. Мощность W на нагрузке определялась с учетом угла сдвига φ на кривых напряжения U_{ef} и тока I_{ef} :

$$W = U_{ef} I_{ef} \cos \varphi.$$

Расчетный вклад взаимной индукции в общую мощность на частоте 100 кГц не превышает 1 %, экспериментально измеренный несколько больше – порядка 3 %. При меньших частотах вклад взаимной индукции можно не учитывать.

На начальном участке кривой процесс нагрева сердечника можно считать адиабатным, практически без отвода тепла. В этом случае удельные потери w на перемагничивание сердечника определяются как [7]

$$w = q \frac{\Delta T}{\Delta t},$$

где q – удельная теплоемкость композиционного материала; $\frac{\Delta T}{\Delta t}$ – скорость нагрева сердечника.

Результаты и их обсуждение

Исследованы кривые намагничивания композиционного магнитно-мягкого материала на основе железного порошка (рис. 2). К примеру, композиционный материал, полученный с использованием железного порошка ASC100.29 с $d > 0,1$ мм (слой изоляции 1 нм), имеет следующий весовой состав, %:

Al	0,2	P	0,25	Mn	0,42
Si	0,32	Cr	0,08	Fe	98,73

Средние величины толщины изоляции для других составов рассчитывались исходя из процентного содержания фосфора в железных порошках.

Как видно из рис. 2, увеличение толщины изоляции приводит к значительному снижению максимального значения магнитной индукции.

Из данных рис. 3 следует, что увеличение толщины изоляционного слоя приводит, с одной стороны, к понижению максимальной индукции и магнитной проницаемости, а с другой стороны, – к заметному уменьшению потерь на перемагничивание материала.

На рис. 4 показаны кривые нагрева сердечника при активной нагрузке и мощности 50 Вт. Скорость нагрева определялась по усредненным значениям во временном промежутке от 100 до 400 с, для которого нагрев можно считать адиабатным процессом.

Зависимости изменения магнитной индукции и удельных потерь от частоты при гармонических колебаниях приведены на рис. 5.

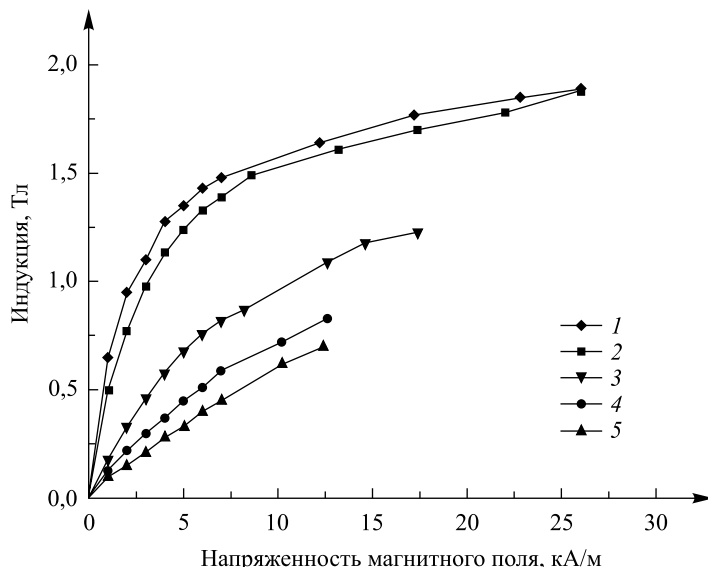


Рис. 2. Кривые намагничивания композиционного материала на основе железного порошка ASC100.29 с размером частиц $d > 0,1$ мм (1), $d < 0,1$ мм (2), $d < 0,05$ мм (3–5) и слоем изоляции 1 нм (1, 2), 10 нм (3), 20 нм (4) и 30 нм (5)

Fig. 2. Magnetization curves of composite material based on ASC100.29 iron powder with a particle size of $d > 0.1$ mm (1), $d < 0.1$ mm (2), $d < 0.05$ mm (3–5) and insulation layer 1 nm (1, 2), 10 nm (3), 20 nm (4) and 30 nm (5)

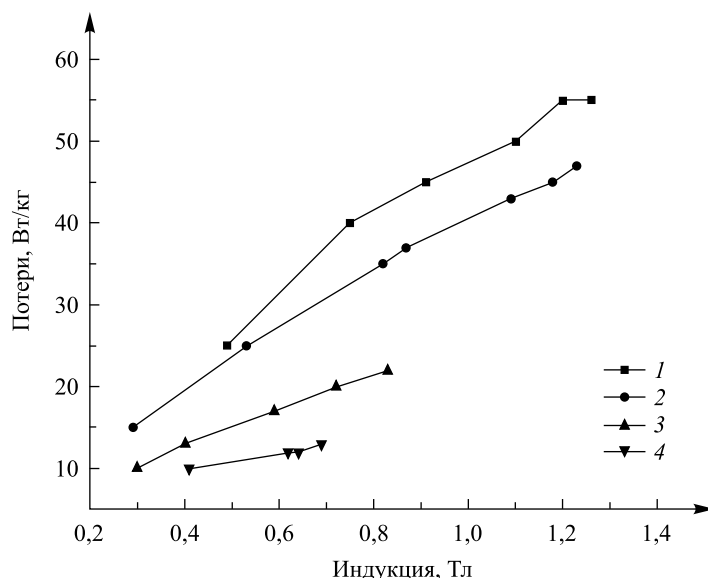


Рис. 3. Потери на перемагничивание на частоте 1 кГц для композиционного материала на основе железного порошка ASC100.29 с $d < 0,1$ мм (1), $d < 0,05$ мм (2–4) и толщиной изоляции 1 нм (1), 10 нм (2), 20 нм (3) и 30 нм (4)

Fig. 3. Losses for remagnetization at a frequency of 1 kHz for composite material based on iron powder ASC100.29 with $d < 0.1$ mm (1), $d < 0.05$ mm (2–4) and insulation thickness 1 nm (1), 10 nm (2), 20 nm (3) and 30 nm (4)

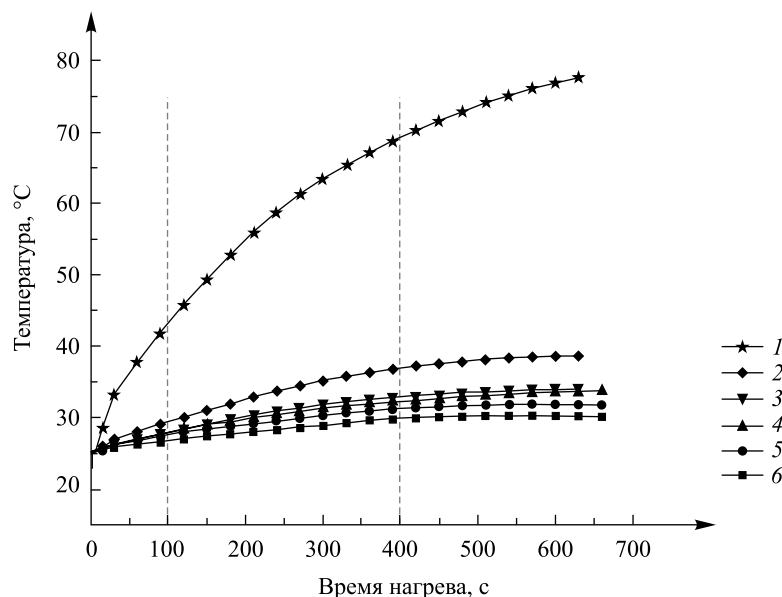


Рис. 4. Кривые нагрева сердечников композиционного магнитно-мягкого материала при постоянной напряженности магнитного поля (3 кА/м) на основе порошка ASC100.29 ($d < 0,1$ мм) со средней толщиной изоляции 1 нм на частоте 1 кГц (1), 5 кГц (2), 10 кГц (3), 25 кГц (4), 50 кГц (5) и 100 кГц (6)
Fig. 4. Heating curves of the cores of a soft magnetic composite material at constant magnetic field strength 3 kA/m based on powder ASC100.29 ($d < 0.1$ mm) insulation with an average thickness of 1 nm at a frequency of 1 kHz (1), 5 kHz (2), 10 kHz (3), 25 kHz (4), 50 kHz (5) and 100 kHz (6)

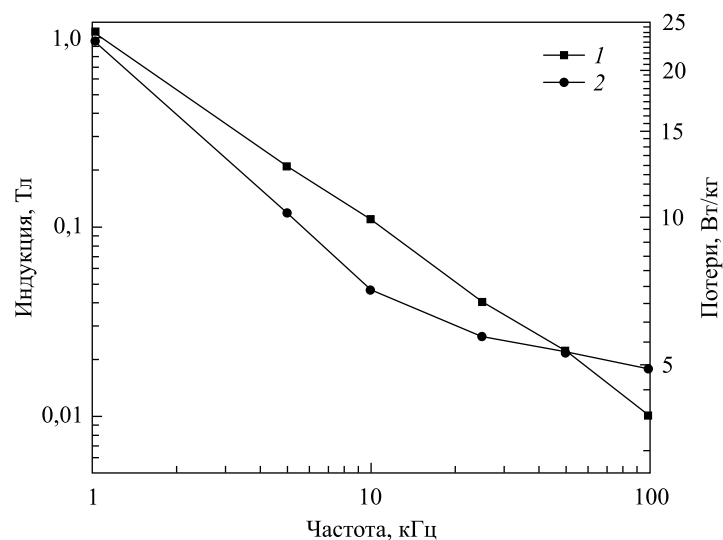


Рис. 5. Изменение индукции (1) и удельных потерь (2) в зависимости от частоты при гармонических колебаниях для композиционного материала на основе порошка ASC100.29 ($d < 0,1$ мм) при постоянной напряженности магнитного поля (3 кА/м)
Fig. 5. The change in induction (1) and the magnitude of specific losses (2) from frequency with harmonic oscillations for a composite material based on powder ASC100.29 ($d < 0.1$ mm) at constant magnetic field strength (3 kA/m)

На рис. 6 приведены кривые частотных зависимостей потерь при гармонических колебаниях, из которого видно, что для всех значений магнитной индукции (от 0,25 до 1,5 Тл) наблюдается экспоненциальный рост потерь с увеличением частоты.

Из рис. 7 можно сделать вывод, что величина потерь на перемагничивание с увеличением толщины изоляционного слоя уменьшается.

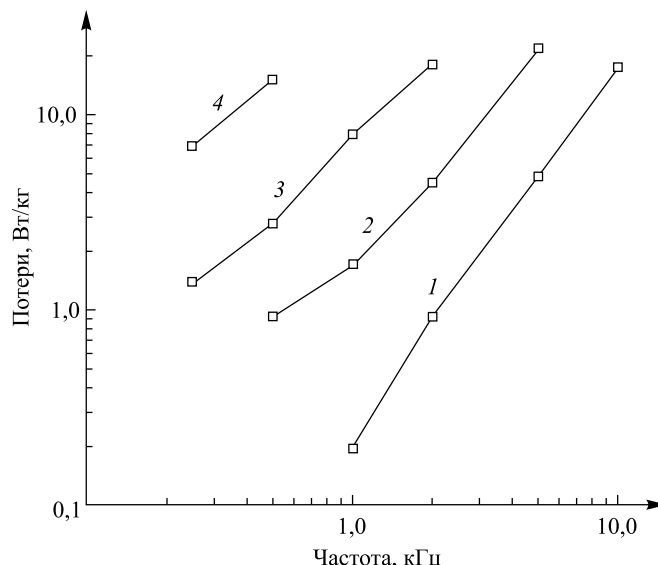


Рис. 6. Зависимость величины потерь от частоты при гармонических колебаниях для композиционного материала на основе порошка ASC100.29 ($d < 0,05$ мм, толщина изоляции ~ 1 нм) при изменении магнитной индукции 0,25 Тл (1), 0,5 Тл (2), 1,0 Тл (3), 1,5 Тл (4)

Fig. 6. Dependence of frequency losses with harmonic oscillations for a composite material based on ASC100.29 ($d < 0.05$ mm powder, insulation thickness ~ 1 nm) with a change in magnetic induction of 0.25 T (1), 0.5 T (2), 1.0 T (3), 1.5 T (4)

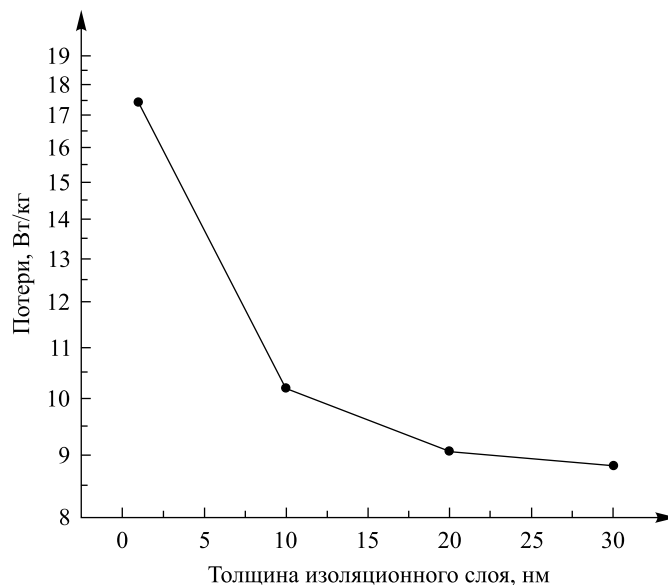


Рис. 7. Зависимость величины удельных потерь от толщины изоляционного покрытия на частоте 10 кГц при изменении индукции, равном 0,25 Тл

Fig. 7. The dependence of specific losses on the thickness of the insulation coating at a frequency of 10 kHz with a change in induction 0.25 T

Заключение

Из приведенных данных следует, что увеличение толщины изоляционного слоя приводит, с одной стороны, к уменьшению значений максимальной индукции и магнитной проницаемости, а с другой стороны, – к заметному снижению потерь на перемагничивание материала в исследуемом частотном диапазоне до 100 кГц. Указанные потери во многом определяются как величиной удельного сопротивления изоляционного покрытия, так и интегральным сопротивлением изоляционного слоя, связанным с его толщиной. В результате на частоте перемагничивания, к примеру, 10 кГц и при изменении индукции

на 0,25 Тл достичь уменьшения потерь в 2 раза можно при увеличении толщины изоляции в 30 раз – от 1 до 30 нм. При этом величина индукции в магнитном поле 10 кА/м уменьшается в 2,7 раза – от 1,6 до 0,6 Тл.

Таким образом, решение снизить потери за счет повышения толщины изоляционного покрытия не является оптимальным. Предпочтительнее уменьшать потери на перемагничивание за счет увеличения удельного сопротивления изоляционного слоя при его минимальной толщине.

Библиографические ссылки

1. Говор ГА, Ларин АО. Магнитные свойства низкочастотного композиционного магнитно-мягкого материала. *Перспективные материалы*. 2018;7:43–48. DOI: 10.30791/1028-978X-2018-7-43-48.
2. Говор ГА, Михневич ВВ. Композиционные магнитно-мягкие материалы на основе порошков железа. *Неорганические материалы*. 2007;43(7):805–807.
3. Говор ГА, Вечер АК, Митюк ВИ. Композиционные магнитно-мягкие материалы на основе порошков железа и перспективы их применения в технике. *Металлофизика и новейшие технологии*. 2012;34(4):439–444.
4. Grande MA, Ferraris L, Francisci F, Poskovic E. New SMC material for small electric machine. *IEEE Transaction on Industry Applications*. 2018;54(1):195–203.
5. Xinran Y, Yongjian L, Qingxin Y, Changgeng Z, Yang L, Xuehai G. Research of harmonic effects on core losses in SMC materials. *IEEE Transaction on Magnetic*. 2018;55(2):1–5. DOI: 10.1109/TMAG.2018.2869659.
6. Говор ГА (Беларусь), Митюк ВИ (Беларусь), Тамонов АВ (Россия), правообладатели. Способ изготовления композиционного магнитно-мягкого материала. Российская Федерация, патент 2465669. 27 октября 2012 г.
7. Сычев ВВ. *Сложные термодинамические системы*. Москва: Наука; 1980. 208 с.

References

1. Govor GA, Larin AO. [The magnetic properties of a magnetically soft composite material for use in the low-frequency range]. *Perspektivnye materialy*. 2018;7:43–48. DOI: 10.30791/1028-978X-2018-7-43-48. Russian.
2. Govor GA, Mihnevich VV. [Composite soft magnetic materials based on iron powders]. *Neorganicheskie materialy*. 2007;43(7):805–807. Russian.
3. Govor GA, Vecher AK, Mityk VI. [Composite soft magnetic materials based on iron powders and prospects for their use in engineering]. *Metallofizika i noveishie tekhnologii*. 2012;34(4):439–444. Russian.
4. Grande MA, Ferraris L, Francisci F, Poskovic E. New SMC material for small electric machine. *IEEE Transaction on Industry Applications*. 2018;54(1):195–203.
5. Xinran Y, Yongjian L, Qingxin Y, Changgeng Z, Yang L, Xuehai G. Research of harmonic effects on core losses in SMC materials. *IEEE Transaction on Magnetic*. 2018;55(2):1–5. DOI: 10.1109/TMAG.2018.2869659.
6. Govor GA (Belarus), Mityk VI (Belarus), Tamonov AV (Russia), inventors. A method of manufacturing a soft magnetic composite material. Russian Federation patent 2465669. 2012 October 27. Russian.
7. Sychov VV. *Slozhnie termodinamicheskie sistemy* [Complex thermodynamic systems]. Moscow: Nauka; 1980. 208 p. Russian.

Статья поступила в редколлегию 11.11.2019.
Received by editorial board 11.11.2019.

УДК 539.2:669.(2-8)

СТРУКТУРА БЫСТРОЗАТВЕРДЕВШЕЙ ФОЛЬГИ ЭВТЕКТИЧЕСКОГО СПЛАВА Sn – 8,8 мас. % Zn

В. Г. ШЕПЕЛЕВИЧ¹⁾, Д. А. ЗЕРНИЦА²⁾

¹⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

²⁾Мозырский государственный педагогический университет им. И. П. Шамякина,
ул. Студенческая, 28, 247760, г. Мозырь, Беларусь

Исследована микроструктура быстрозатвердевшей фольги эвтектического сплава Sn – 8,8 мас. % Zn. Фольга состоит из твердых растворов цинка и олова: темные равноосные дисперсные выделения твердого раствора цинка однородно вкраплены в матрицу из твердого раствора олова. Определены параметры микроструктуры. Средняя хорда случайной секущей на сечениях выделений твердого раствора цинка равна 0,33 мкм, удельная поверхность межфазной границы – 0,81 мкм⁻¹. Выделения твердого раствора олова имеют микрокристаллическую структуру, удельная поверхность межзеренных границ менее 1 мкм⁻¹. Проведено исследование текстуры выделений твердых растворов олова и цинка в фольге, представлены полюсные плотности дифракционных линий данных фаз. Твердый раствор олова имеет текстуру (100), а твердый раствор цинка – (0001), что объясняется преимущественным ростом зерен, у которых кристаллические плоскости (100) олова и (0001) цинка наиболее плотноупакованные и перпендикулярные тепловому потоку. Эвтектический сплав Sn – 8,8 мас. % Zn находится в неустойчивом состоянии. Отжиг фольги вызывает растворение мелких и укрупнение больших частиц твердого раствора цинка, а также распад пересыщенного твердого раствора олова. В силу указанных процессов происходит укрупнение микроструктуры: увеличение среднего размера частиц твердого раствора цинка и его объемной доли, уменьшение удельной поверхности межфазных границ.

Ключевые слова: высокоскоростное затвердевание; сплав Sn – Zn; эвтектика; микроструктура; текстура.

THE STRUCTURE OF RAPIDLY SOLIDIFIED FOIL OF THE EUTECTIC Sn – 8.8 wt. % Zn ALLOY

V. G. SHEPELEVICH^a, D. A. ZERNITSA^b

^aBelarusian State University, 4 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220030, Belarus

^bMozyr State Pedagogical University named after I. P. Shamiakin,
28 Studenckaja Street, Mozyr 247760, Belarus

Corresponding author: D. A. Zernitsa (dzernitsa@mail.ru)

Microstructure of rapidly solidified eutectic alloy foil Sn – 8.8 wt. % Zn was studied. The alloy foil consists of solid solutions of zinc and tin. Dark equiaxed dispersed precipitates of zinc solid solution are uniformly interspersed in the matrix of tin solid solution. The parameters of the microstructure were determined. The average chord of a random secant

Образец цитирования:

Шепелевич ВГ, Зерница ДА. Структура быстрозатвердевшей фольги эвтектического сплава Sn – 8,8 мас. % Zn. Журнал Белорусского государственного университета. Физика. 2020;1:67–72.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-67-72>

For citation:

Shepelevich VG, Zernitsa DA. The structure of rapidly solidified foil of the eutectic Sn – 8.8 wt. % Zn alloy. *Journal of the Belarusian State University. Physics*. 2020;1:67–72. Russian.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-67-72>

Авторы:

Василий Григорьевич Шепелевич – доктор физико-математических наук, профессор; профессор кафедры физики твердого тела физического факультета.

Денис Александрович Зерница – аспирант кафедры физики и математики физико-инженерного факультета. Научный руководитель – В. Г. Шепелевич.

Authors:

Vasili G. Shepelevich, doctor of science (physics and mathematics), full professor; professor at the department of solid state physics, faculty of physics.

shepelevich@bsu.by

Denis A. Zernitsa, postgraduate student at the department of physics and mathematics, faculty of physics and engineering.

dzernitsa@mail.ru

<http://orcid.org/0000-0002-6251-4459>

at the sections of precipitates of a solid solution of zinc is $0.33 \mu\text{m}$, and the specific interface surface is $0.81 \mu\text{m}^{-1}$. The precipitations of the tin solid solution have a microcrystalline structure. Specific surface of high angle boundaries less than $1 \mu\text{m}^{-1}$. The texture of the precipitates of solid solutions of tin and zinc in the foil was studied, and the pole densities of the diffraction lines of these phases are presented. The tin solid solution has the texture (100), and the zinc solid solution has the (0001) texture, which is explained by the predominant growth of grains, in which the crystalline planes of (100) tin and (0001) zinc are most closely packed and perpendicular to the heat flux. Eutectic alloy Sn – 8.8 wt. % Zn is in an unstable state. Annealing the foil causes the dissolution of small and coarsening of large particles of zinc solid solution, as well as the decomposition of a supersaturated tin solid solution. These processes cause an enlargement of the microstructure: an increase in the average particle size (d_{Zn}) of a solid solution of zinc and its volume fraction (V_{Zn}), a decrease in the specific surface (S) of interphase boundaries.

Keywords: rapidly solidification; Sn – Zn alloy; eutectic; microstructure; texture.

Введение

Сплавы системы олово – цинк активно используются в качестве защитных покрытий и припоев [1; 2], что имеет важное значение для авиа-, машиностроения и других отраслей промышленности, а также для сохранения окружающей среды и создания безопасных условий труда. Эвтектический сплав системы Sn – Zn обладает температурой плавления 185°C , т. е. близкой к температуре плавления эвтектической системы Pb – Sn. Это дает основание рассматривать возможность замены свинцовых припоев, вредных для окружающей среды и человека, на припой, основой которых является эвтектика Sn – Zn.

В указанной системе при концентрации 8,8 мас. % Zn происходит эвтектическое превращение, и структура образующейся эвтектики существенно зависит от условий кристаллизации. В последние годы быстро развиваются нетрадиционные методы получения сплавов. К их числу относится и высокоскоростное затвердевание, позволяющее изготовить припой в виде фольги при скоростях охлаждения расплава выше 10^5 K/c [3]. Строение и физические свойства массивных образцов и быстрозатвердевших фольг существенно различаются [4]. В связи с этим нами проведены исследования структуры фольг эвтектического сплава Sn – 8,8 мас. % Zn, являющиеся актуальными, имеющие научное и прикладное значение.

Методика эксперимента

Эвтектика Sn – 8,8 мас. % Zn изготовлена сплавлением компонентов в кварцевой ампуле, последующим охлаждением со скоростью 10^2 K/c при заливке в графитовую изложницу [4]. Кусочек сплава массой $\approx 0,2 \text{ г}$ повторно расплавлялся и инжектировался на внутреннюю полированную поверхность быстровращающегося медного цилиндра диаметром 20 см. Скорость охлаждения имела значение не менее $5 \cdot 10^5 \text{ K/c}$ [5]. Затвердевший сплав имел форму фольги, длина которой достигала 15 см, ширина – 10 мм. При проведении исследований использовалась фольга толщиной 30–100 мкм.

Микроструктура и распределение компонентов эвтектического сплава Sn – 8,8 мас. % Zn изучались с помощью растрового электронного микроскопа LEO 1455 VP (*Carl Zeiss*, Германия), имеющего приставки для проведения рентгеноспектрального микроанализа и фазового анализа HKL. Параметры микроструктуры найдены методом случайных секущих [6]. Для определения фазового состава и исследования текстуры зерен в фольге использовался дифрактометр. Полюсные плотности дифракционных линий олова и цинка рассчитывались по методу Харриса [7].

Результаты и их обсуждение

На рентгенограмме исследуемой фольги (рис. 1) наблюдаются только дифракционные линии олова (200, 101, 211 и др.) и цинка (0002, $10\bar{1}0$, $10\bar{1}1$, $10\bar{1}2$ и др.), т. е. быстрозатвердевший сплав состоит из твердых растворов этих металлов.

Изображение микроструктуры поперечного сечения фольги, изготовленной высокоскоростным затвердеванием эвтектического сплава (рис. 2), демонстрирует темные дисперсные выделения, вкрапленные в серую матрицу. Рентгеноспектральный микроанализ показал, что темные равноосные выделения в фольге являются твердым раствором цинка, а серые – твердым раствором олова.

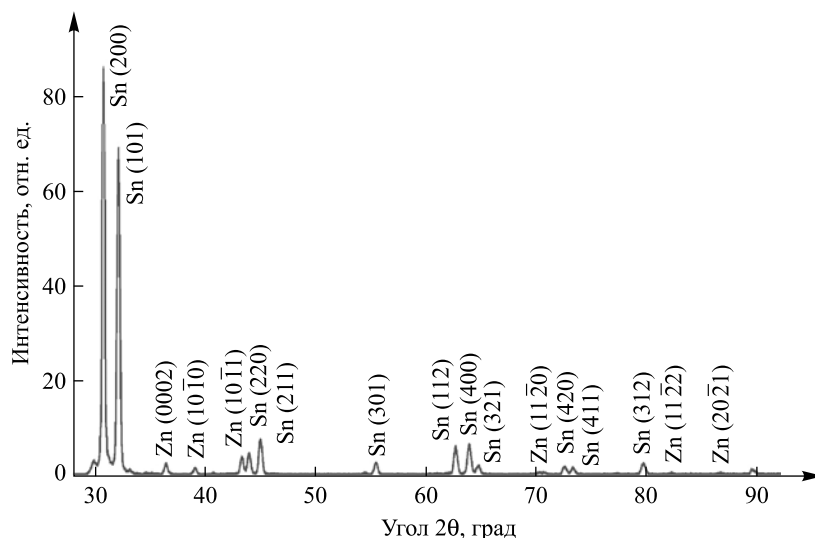


Рис. 1. Рентгенограмма быстрозатвердевшей фольги сплава Sn – 8,8 мас. % Zn

Fig. 1. X-ray diffraction pattern of rapidly solidified foil alloy Sn – 8.8 wt. % Zn

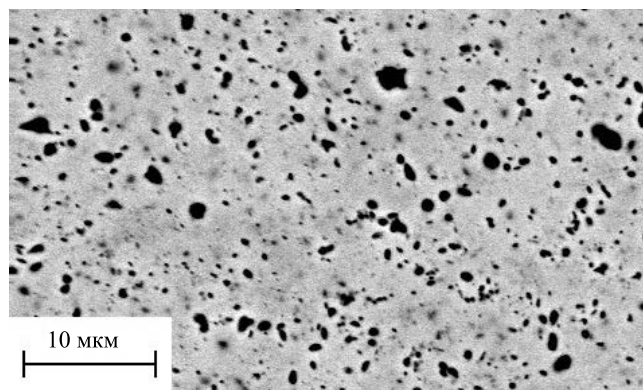


Рис. 2. Микроструктура поперечного сечения быстрозатвердевшей фольги сплава Sn – 8,8 мас. % Zn

Fig. 2. Microstructure of the cross section of the rapidly solidified foil alloy Sn – 8.8 wt. % Zn

Определенные методом случайных секущих параметры микроструктуры сечений твердого раствора цинка следующие: объемная доля частиц твердого раствора цинка $0,066 \pm 0,006$, средняя хорда случайных секущих на сечениях выделений твердого раствора цинка $(0,33 \pm 0,03)$ мкм и удельная поверхность межфазных границ $(0,81 \pm 0,08)$ мкм⁻¹. Как видно из рис. 3, с ростом величины размерной группы доля цинковых частиц монотонно уменьшается.

Формирование структуры фольги при высокоскоростном затвердевании (отсутствие пластин цинка, однородность распределения равноосных выделений цинка) способствует улучшению пластичности и снижению хрупкого разрушения, что имеет важное практическое значение.

Быстрозатвердевшая фольга эвтектического сплава Sn – 8,8 мас. % Zn обладает микрокристаллической структурой. Изображение зеренной структуры твердого раствора олова в слое фольги, прилегающем к кристаллизатору, приведено на рис. 4.

Методом случайных секущих определено, что средняя длина D_{Sn} хорд, расположенных на сечениях зерен твердого раствора олова, составляет 2,3 мкм, удельная поверхность высокоугловых границ $S_{вуг} = (0,87 \pm 0,08)$ мкм⁻¹, плотность ребер зерен $L_p = 0,23$ мкм⁻². В слое фольги, прилегающем к свободной поверхности, параметры зеренной структуры следующие: $D_{Sn} = (8,1 \pm 0,8)$ мкм, $S_{вуг} = (0,25 \pm 0,03)$ мкм⁻¹ и $L_p = (0,040 \pm 0,004)$ мкм⁻².

Исследована текстура выделений в фольге твердых растворов олова и цинка, полюсные плотности дифракционных линий которых представлены в таблице.

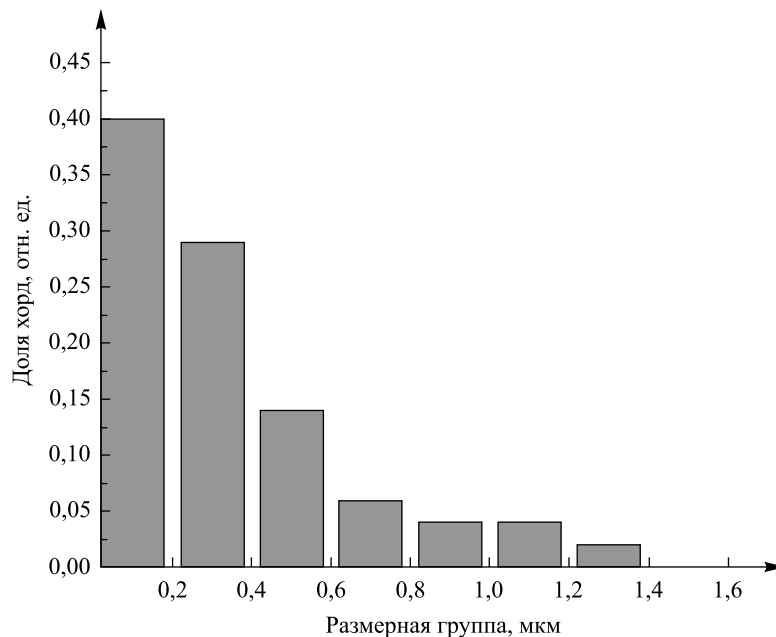


Рис. 3. Распределение хорд случайных секущих на сечениях выделений твердого раствора цинка
Fig. 3. Distribution of chords of random secants on sections of excretions of zinc solid solution

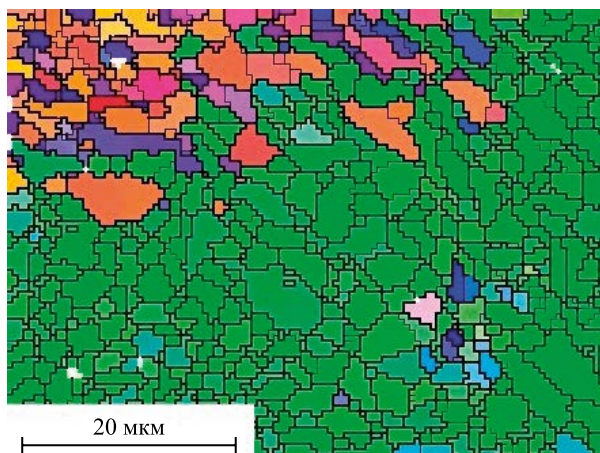


Рис. 4. Зеренная структура твердого раствора олова фольги сплава Sn – 8,8 мас. % Zn
Fig. 4. The grain structure of the solid solution of tin foil alloy Sn – 8.8 wt. % Zn

Полюсные плотности дифракционных линий твердых растворов олова и цинка для быстрозатвердевшей фольги

Pole densities of diffraction lines of tin and zinc solid solutions for rapidly solidified foil

Дифракционная линия олова	200	101	220	211	301	112	
Полюсная плотность	3,6	1,2	0,1	0,4	0,1	0,6	
Дифракционная линия цинка	0002	10 $\bar{1}$ 0	10 $\bar{1}$ 1	10 $\bar{1}$ 2	11 $\bar{2}$ 0	10 $\bar{1}$ 3	20 $\bar{2}$ 1
Полюсная плотность	2,4	2,3	2,3	0	0	0	0

Формирование аналогичных текстур олова и цинка наблюдалось ранее в чистых металлах [4; 8; 9], что объясняется преимущественным ростом зерен, у которых кристаллические плоскости (100) олова и (0001) цинка наиболее плотноупакованные и перпендикулярные тепловому потоку.

Быстрозатвердевшая фольга эвтектики Sn – 8,8 мас. % Zn находится в неустойчивом состоянии. Методами растровой микроскопии и металлографического анализа установлено, что отжиг фольг вызывает растворение мелких и укрупнение больших частиц твердого раствора цинка. Указанные процессы обуславливают укрупнение микроструктуры. Так, при отжиге 180 °С происходит увеличение размера выделений твердого раствора цинка d_{Zn} и его объемной доли V_{Zn} в сплаве и уменьшение удельной поверхности S межфазной границы (рис. 5).

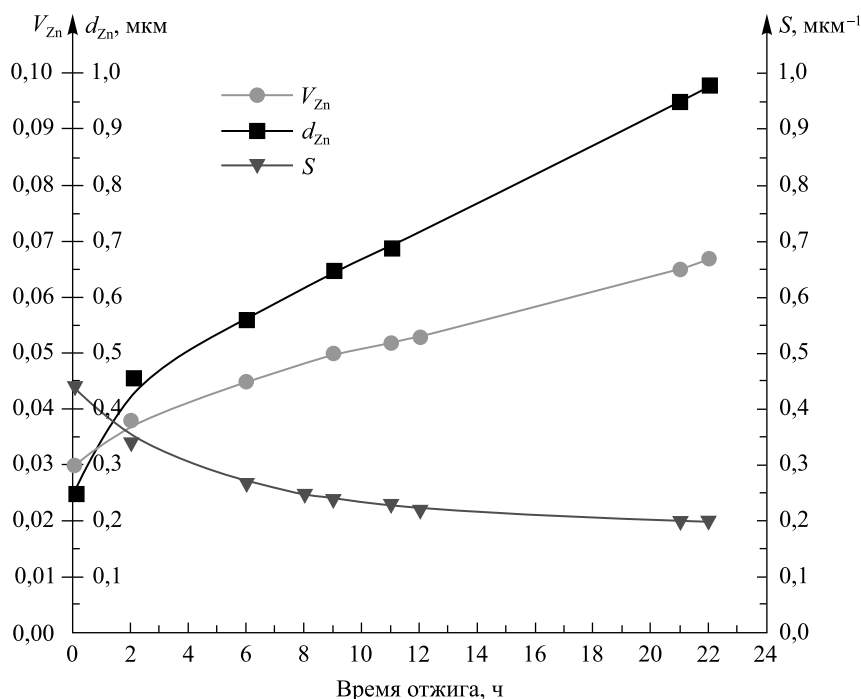


Рис. 5. Влияние отжига при 180 °С на параметры микроструктуры фольги эвтектического сплава Sn – 8,8 мас. % Zn

Fig. 5. The effect of annealing at 180 °С on the microstructure parameters of the foil of the eutectic alloy Sn – 8.8 wt. % Zn

Таким образом, эвтектический сплав Sn – 8,8 мас. % Zn, полученный высокоскоростным затвердеванием, состоит из дисперсных выделений твердого раствора цинка, распределенных однородно в твердом растворе олова. В фольге формируется микрокристаллическая структура, текстура (100) в твердом растворе олова и текстура (0001) в твердом растворе цинка. Быстрозатвердевшая фольга находится в неустойчивом состоянии, и при температуре 180 °С происходит растворение мелких и рост крупных частиц твердого раствора цинка. Отсутствие в фольге пластинчатых выделений цинка улучшает ее пластичность и уменьшает способность к хрупкому разрушению, что имеет важное практическое значение.

Библиографические ссылки

1. Кечин ВА, Люблинский ЕЯ. *Цинковые сплавы*. Москва: Металлургия; 1986. 247 с.
2. Захаров АМ. *Промышленные сплавы цветных металлов. Фазовый состав и структурные составляющие*. Москва: Металлургия; 1980. 256 с.
3. Васильев ВА, Митин БС, Пашков ИН, Серов ММ, Скуридин АА, Лукин АА и др. *Высокоскоростное затвердевание расплава (теория, технология и материалы)*. Москва: Интермет инжиниринг; 1998. 400 с.
4. Шепелевич ВГ. *Быстрозатвердевшие легкоплавкие сплавы*. Минск: БГУ; 2015. 192 с.
5. Мирошниченко ИС. *Закалка из жидкого состояния*. Москва: Металлургия; 1982. 168 с.
6. Салтыков СА. *Стереометрическая металлография (стереология металлических материалов)*. Москва: Металлургия; 1976. 270 с.
7. Русаков АА. *Рентгенография металлов*. Москва: Атомиздат; 1977. 488 с.

8. Лозенко ВВ, Шепелевич ВГ. Зеренная и субзеренная структура быстрозатвердевших фольг цинка и его бинарных сплавов с Cd, Sn и Sb. *Неорганические материалы*. 2007;43(1):22–26.
9. Шепелевич ВГ, Гусакова ОВ. Структура и свойства быстрозатвердевших фольг системы Sn – Zn. *Неорганические материалы*. 2008;44(5):560–564.

References

1. Kechin VA, Lublinski EY. *Tsinkovye splavy* [Zinc Alloys]. Moscow: Metallurgiya; 1986. 247 p. Russian.
2. Zakharov AM. *Promyshlennyye splavy tsvetnykh metallov. Fazovyi sostav i strukturnyye sostavlyayushchie* [Industrial alloys of non-ferrous metals]. Moscow: Metallurgiya; 1980. 256 p. Russian.
3. Vasil'ev VA, Mitin BS, Pashkov IN, Serov MM, Skuridin AA, Lukin AA, et al. *Vysokoskorostnoye zatverdevanie rasplava (teoriya, tekhnologiya i materialy)* [High-rate melt solidification (theory, technology, materials)]. Moscow: Internet inzhiniring; 1998. 400 p. Russian.
4. Shepelevich VG. *Bystrozatverdevshie legkoplavkie splavy* [Rapidly solidified fusible alloys]. Minsk: Belarusian State University; 2015. 192 p. Russian.
5. Miroshnichenko IS. *Zakalka iz zhidkogo sostoyaniya* [Quenching from the liquid state]. Moscow: Metallurgiya; 1982. 168 p. Russian.
6. Saltykov SA. *Stereometricheskaya metallografiya (stereologiya metallicheskih materialov)* [Stereometric metallography (stereology of metallic materials)]. Moscow: Metallurgiya; 1976. 270 p. Russian.
7. Rusakov AA. *Rentgenografiya metallov* [X-ray diffraction analysis of metals]. Moscow: Atomizdat; 1977. 488 p. Russian.
8. Lozenko VV, Shepelevich VG. [Grain and subgrain structure of rapidly solidified Zn, Zn – Cd, Zn – Sn, and Zn – Sb foils]. *Neorganicheskie materialy*. 2007;43(1):22–26. Russian.
9. Shepelevich VG, Gusakova OV. [Structure and properties of rapidly solidified Sn – Zn foils]. *Neorganicheskie materialy*. 2008;44(5):560–564. Russian.

Статья поступила в редакцию 24.12.2019.
Received by editorial board 24.12.2019.

ДВУХСЛОЙНЫЕ ГРАФЕНОВЫЕ ГЕТЕРОСТРУКТУРЫ ДЛЯ ЗАМЕДЛЕНИЯ ВОЛН: ОПЕРАТОРНЫЙ МЕТОД В ПРИМЕНЕНИИ К РЕШЕНИЮ ВОЛНОВОДНОЙ ЗАДАЧИ

М. А. ЯКОВЛЕВА^{1), 2)}, К. Г. БАТРАКОВ^{1), 3), 4)}

¹⁾Институт ядерных проблем Белорусского государственного университета,
ул. Бобруйская, 11, 220030, г. Минск, Беларусь

²⁾Национальный центр научных исследований Университета Париж-Сакле,
буль. Тома Гобера, 10, 91120, г. Палезо, Франция

³⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

⁴⁾Томский государственный университет, пр. Ленина, 36, 634050, г. Томск, Россия

Замедление фазовой скорости света в среде имеет различные применения. Среди них – генерация электромагнитного излучения с использованием когерентного черенковского механизма. В то же время существует потребность в компактных источниках терагерцового излучения. Благодаря уникальным свойствам графена гетероструктуры, состоящие из чередующихся слоев графен/диэлектрик, могут работать в качестве среды для этой цели. При помощи операторного метода получены коэффициенты замедления и распространения для мод, поддерживаемых в двухслойной графеновой структуре. Операторный подход позволяет использовать бескоординатные обозначения и, следовательно, работать со сколь угодно сложными гетероструктурами (включающими, например, анизотропные слои). Изучена зависимость степени замедления волн в графеновых сэндвич-структурах от межслойного расстояния и величины химического потенциала графена. Полученные результаты открывают перспективы для создания новых источников терагерцового излучения.

Ключевые слова: графен; гетероструктура; излучение Вавилова – Черенкова; операторный метод; фазовая скорость.

Благодарность. Статья подготовлена при финансовой поддержке Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований (проект Ф19АРМ-017), грантов исследовательской и инновационной программы Европейского союза «Горизонт-2020» (проекты MCSA RISE No. 734164 Graphene-3d и H2020-644076 CoExAN) и Всемирной федерации ученых (проект «Наука и технологии»).

Образец цитирования:

Яковлева МА, Батраков КГ. Двухслойные графеновые гетероструктуры для замедления волн: операторный метод в применении к решению волноводной задачи. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика*. 2020; 1:73–82 (на англ.).
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-73-82>

For citation:

Yakovleva MA, Batrakov KG. Two layer graphene heterostructures for waves slowing down: operator approach to waveguide problem. *Journal of the Belarusian State University. Physics*. 2020;1:73–82.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-73-82>

Авторы:

Марина Алексеевна Яковлева – стажер младшего научного сотрудника лаборатории наноэлектромагнетизма¹⁾, аспирантка объединенной лаборатории микро- и нанооптики Центра нанонауки и нанотехнологий²⁾. Научный руководитель – К. Г. Батраков.

Константин Германович Батраков – кандидат физико-математических наук; ведущий научный сотрудник лаборатории наноэлектромагнетизма¹⁾, доцент кафедры ядерной физики физического факультета³⁾, старший научный сотрудник лаборатории терагерцовых исследований⁴⁾.

Authors:

Marina A. Yakovleva, junior researcher probationer at the laboratory of nanoelectromagnetics^a and postgraduate student at the joint laboratory of micro- and nanooptics, Centre for Nanoscience and Nanotechnology (C2N)^b.

yakovlevmarin@gmail.com

<http://orcid.org/0000-0002-8718-1080>

Konstantin G. Batrakov, PhD (physics and mathematics); leading researcher at the laboratory of nanoelectromagnetism^a, associate professor at the department of nuclear physics, faculty of physics^c, and senior researcher at the laboratory of terahertz research^d.

kgbatrakov@gmail.com

<http://orcid.org/0000-0002-9073-239X>

TWO LAYER GRAPHENE HETEROSTRUCTURES FOR WAVES SLOWING DOWN: OPERATOR APPROACH TO WAVEGUIDE PROBLEM

M. A. YAKOVLEVA^{a, b}, K. G. BATRAKOV^{a, c, d}

^a*Institute for Nuclear Problems, Belarusian State University,
11 Babrujskaja Street, Minsk 220030, Belarus*

^b*National Centre for Scientific Research, Université Paris-Saclay,
10 Thomas Gobert Boulevard, Palaiseau 91120, France*

^c*Belarusian State University, 4 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220030, Belarus*

^d*Tomsk State University, 36 Lenin Avenue, Tomsk 634050, Russia*

Corresponding author: M. A. Yakovleva (yakovlevmarin@gmail.com)

Slowing down the phase velocity of light in media has various applications. The generation of electromagnetic radiation using coherent Cherenkov mechanism is among them. Meanwhile, there is a need for compact terahertz radiation sources. Due to outstanding graphene properties, heterostructures consisting of alternating graphene/dielectric layers can operate as a medium for the generation of terahertz radiation. In the present paper, the slowing down and propagation coefficients for the modes supported in a two-layer graphene structure are studied. The study is conducted by means of the operator approach to wave propagation in stratified structures. The operator approach allows one to use coordinates-free notations and to consider consequently arbitrarily complex heterostructures (including anisotropic layers, for instance). The influence of interlayer distance and the value of graphene chemical potential on waves slowdown is determined. The obtained results open up prospects for creating a new type of terahertz radiation sources.

Keywords: graphene; heterostructure; Cherenkov radiation; operator approach; phase velocity.

Acknowledgements. This publication is based on work supported by Belarus Fundamental Research Fond project F19ARM-017. Authors also acknowledge a support from a grant EU «Horizon 2020», MCSA RISE project No. 734164 Graphene-3d, EU «Horizon 2020» project H2020-644076 CoExAN, and World Federation of Scientists on the project «Science and Technologies».

Introduction

Nowadays, one of the challenges in applied electromagnetics is to find new approaches to controlling and, in particular, slowing down the phase velocity of light in media [1]. Potential applications of waves slowdown are ubiquitous and include communication, nonlinear optical amplification, optical data processing and temporary light storage [2]. Additionally, the effect of electromagnetic waves slowdown can be used to implement generators of electromagnetic radiation, working on the principle of the radiative instability of a directional electron beam [3; 4]. The slowdown of an electromagnetic wave can be applied for the generation of coherent Cherenkov radiation in the terahertz frequency range [5]. In its turn, the terahertz frequency range is in demand for many scientific and technical applications [6]. Among them, there is a need for low-cost sources for this frequency range [6].

Although promising results have been obtained on the light slowdown in solids and semiconductor-based nanostructures operating at room temperature, it still remains a challenge to incorporate such schemes in optoelectronic devices [7; 8]. Therefore, there is a great interest in alternative approaches using photonic structures, such as metallic gratings [9], microcavities [10], photonic crystals [11], semiconductor waveguide ring resonators [12; 13], etc.

Graphene and graphene-based structures (such as carbon nanotubes) are attractive for many functional materials due to their strong interaction with the external field, relatively low ohmic losses, and tunability [1; 14]. Determining peculiar properties of transport of charge carriers, the band structure is the reason for unique graphene characteristics [15]. The unusual low-energy electronic structure includes its conduction and valence bands that meet at the Dirac points [15; 16]. Graphene supports an extraordinarily strong electric current (with the density on the order of 10^8 A/cm²) without experiencing degradation [17] and reveals the ballistic length of electrons propagation on a macroscopic scale (about 28 μ m according to [18]). The size of graphene-based structures is of a nanometer-scale at least in one direction and they can support surface plasmon waves [19]. It was shown that surface electromagnetic waves can be slowed down significantly in carbon nanotubes and graphene [19; 20] and thus provide better conditions for the synchronization of an electron beam and a surface electromagnetic wave [5]. Additionally, π -electrons of graphene can coherently radiate from macroscopic ballistic length [5].

For the application to absorbers, in reference [14] it was demonstrated that graphene sandwich structures consisting of alternating layers of graphene and dielectric spacer exhibit advantageous features compared to a single graphene layer [14; 21]. Furthermore, such heterostructures suggest more means to perform electromagnetic tuning [5; 21]. Two graphene layers in vacuum demonstrate the remarkable effect of the slowdown in the terahertz frequency range [5], but these structures have not been studied in the presence of a dielectric spacer. This makes it interesting to consider the potential of graphene sandwich structures for the aims of a light slowdown.

Among the various methods of studying electromagnetic waves propagation in multilayer structures the most fruitful one is the operator formalism [22; 23]. Particularly, it allows one to find compact covariant formulas for very complex systems avoiding cumbersome calculations that arise in the process of adaptation of different coordinate systems for different layers [24; 25]. In what follows, the first demonstration of operator approach to study graphene sandwich structures is presented.

Methods

Operator approach. Operator approach was used to perform calculations. Operator formalism allows one to study properties of multilayer structures when separate layers are characterized by bulk parameters (such as permittivity and permeability). However, it is possible to extend the approach to multilayers including impedance sheets.

Monochromatic electromagnetic wave (angular frequency ω) propagating in a planar slab of a homogeneous medium is considered. The medium is characterized by a dielectric permittivity tensor $\hat{\epsilon}$ and magnetic permeability tensor $\hat{\mu}$ by constitutive equations as

$$\mathbf{D} = \hat{\epsilon}(\omega)\mathbf{E}, \quad \mathbf{B} = \hat{\mu}(\omega)\mathbf{H},$$

where $\mathbf{E}$, $\mathbf{H}$, $\mathbf{D}$, $\mathbf{B}$ are respectively the strengths of electric and magnetic fields, electric displacement, and magnetic induction. When one looks for the solution of Maxwell's partial differential equations in the form $\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}(z)\exp(ik_0\mathbf{b}\mathbf{r})$, they can be reduced to the four first order ordinary differential equations for the tangential field components $\mathbf{W} = (\mathbf{H}_t, \mathbf{n} \times \mathbf{E})^T$, where $\mathbf{b} = \frac{\mathbf{k}_t}{k_0}$ is the normalized tangential wavevector, $\mathbf{n}$ is the unit vector along z -axis, T denotes transpose operation, $\mathbf{H}_t = \hat{\mathbf{I}}\mathbf{H} = (\mathbf{H}_x, \mathbf{H}_y)^T$, and $\mathbf{n} \times \mathbf{E} = (-E_x, E_y)^T$ ($\hat{\mathbf{I}} = \hat{\mathbf{I}} - \mathbf{n} \otimes \mathbf{n}$ is the projector onto the xOy plane). Thus, the system of four differential equations reads

$$\frac{d\mathbf{W}(z)}{dz} = ik_0\hat{M}\mathbf{W}(z) = ik_0\begin{pmatrix} \hat{A} & \hat{B} \\ \hat{C} & \hat{D} \end{pmatrix}\mathbf{W}(z). \quad (1)$$

Where 4×4 matrix $\hat{M}$ is a block matrix, whose 2×2 blocks $\hat{A}$, $\hat{B}$, $\hat{C}$ and $\hat{D}$ can be found in [22]. Fundamental solution of equation (1) for a homogeneous bianisotropic medium with constant matrix $\hat{M}$ is the matrix exponential [22; 26]

$$\mathbf{W}(z) = \exp(ik_0z\hat{M})\mathbf{W}(0),$$

where $\mathbf{W}(0)$ is the initial field at $z = 0$. Then, the result of the transmission through a stack of N slabs can be expressed as follows

$$\mathbf{W}(T) = \prod_{j=1}^N \exp(ik_0t_j\hat{M}_j)\mathbf{W}(0) = \hat{C}(T)\mathbf{W}(0),$$

where $T = \sum_{j=1}^N t_j$ is the thickness of the stack and $\hat{C}$ is the spatial evolution operator. It should be noted that the order of multiplication of non-commuting exponential operators is important.

Graphene can be considered as an impedance sheet, on which the electromagnetic field excites surface currents. It leads to the field discontinuity across the sheet. The field discontinuity is described by the boundary conditions. Then the fields $(\mathbf{H}_{1t}, \mathbf{E}_{1t})$ right before the impedance sheet and right after it $(\mathbf{H}_{2t}, \mathbf{E}_{2t})$ can be related by means of a spatial evolution operator $\hat{C}_\sigma$ of the impedance sheet characterized by conductivity σ

$$\begin{pmatrix} \mathbf{H}_{2t} \\ \mathbf{n} \times \mathbf{E}_2 \end{pmatrix} = \hat{C}_\sigma \begin{pmatrix} \mathbf{H}_{1t} \\ \mathbf{n} \times \mathbf{E}_1 \end{pmatrix}, \quad \hat{C}_\sigma = \begin{pmatrix} \hat{\mathbf{I}} - \frac{4\pi}{c}\sigma\hat{\mathbf{I}} \\ \hat{0} & \hat{\mathbf{I}} \end{pmatrix}.$$

If σ is the graphene's conductivity, then $\hat{C}_\sigma$ is the spatial evolution operator of a graphene sheet. To describe a slab of isotropic dielectric with permittivity ϵ one uses the following M -operator

$$\hat{M}_d = \begin{pmatrix} 0 & 0 & \epsilon - b^2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \epsilon \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 - \frac{b^2}{\epsilon} & 0 & 0 \end{pmatrix},$$

where b is a tangential component of wavevector divided by vacuum wavenumber (k_0). It has the meaning of the slowdown coefficient of electromagnetic wave in the problems of guided waves, i. e. $b = \frac{c}{v_{ph}}$ (c is vacuum speed of light, v_{ph} is phase speed of guided wave).

The matrix exponential of M -operator $\exp(ik_0 \hat{M}_d t_s)$ of the dielectric slab provides it spatial evolution operator, t_s is the thickness of the slab.

Spatial evolution operator of a multilayer is a consequent product of evolution operators of constituents (the sequence in the product is opposite to the one of layers).

In the problem of guided waves, one has to find eigenmodes of the system. To find eigenmodes one solves the boundary problem when on the one side outside the multilayer there is a plane wave above (superscript 1) and on the other side – a plane wave below (superscript 2). These waves attenuate while retreating from the interface. The field right above and below the multilayer are related by means of the evolution operator corresponding to the multilayer $\hat{C}(T)$ (T stands for the total thickness of the multilayer)

$$\begin{pmatrix} \mathbf{H}_t^{(2)} \\ \hat{\gamma}_2 \mathbf{H}_t^{(2)} \end{pmatrix} = \hat{C}(T) \begin{pmatrix} \mathbf{H}_t^{(1)} \\ \hat{\gamma}_1 \mathbf{H}_t^{(1)} \end{pmatrix}, \quad (2)$$

where $\mathbf{H}_t^{(1,2)}$ are the tangential components of the magnetic field of waves above and below the multilayer, $\hat{\gamma}_{1,2}$ are the surface impedances of waves above and below. In case of TE and TM polarized waves surface impedance coincides with the wave impedances [22]

$$\hat{\gamma}_1 = -\frac{\sqrt{\epsilon_{in} - b^2}}{\epsilon_{in}} \frac{\mathbf{a} \otimes \mathbf{a}}{b^2} - \frac{1}{\sqrt{\epsilon_{in} - b^2}} \frac{\mathbf{b} \otimes \mathbf{b}}{b^2},$$

$$\hat{\gamma}_2 = \frac{\sqrt{\epsilon_{out} - b^2}}{\epsilon_{out}} \frac{\mathbf{a} \otimes \mathbf{a}}{b^2} + \frac{1}{\sqrt{\epsilon_{out} - b^2}} \frac{\mathbf{b} \otimes \mathbf{b}}{b^2},$$

where $\mathbf{a} = \mathbf{b} \times \mathbf{n}$, ϵ_{in} is the permittivity of the medium before the multilayer and ϵ_{out} is the one after the multilayer. In equation (2) one can easily get rid of fields above and below the structure and arrive at the eigenvector and the eigenvalue problem [22; 26], e. g.

$$(\hat{\gamma}_2, -\hat{I}) \hat{C}(T) \begin{pmatrix} \hat{I} \\ \hat{\gamma}_1 \end{pmatrix} \mathbf{H}_t^{(1)} = 0. \quad (3)$$

There is a nontrivial solution of the above equation only in the case when the determinant of the matrix equals zero, i. e.

$$\det \left[(\hat{\gamma}_2, -\hat{I}) \hat{C}(T) \begin{pmatrix} \hat{I} \\ \hat{\gamma}_1 \end{pmatrix} \right] = 0. \quad (4)$$

Thus, equation (4) is a necessary condition for the existence of guided modes. It relates the deceleration factor b of a guided mode with its angular frequency ω . Therefore, equation (4) is usually called as dispersion equation.

Graphene conductivity. The conductivity of a graphene monolayer in the terahertz range can be expressed by the intraband term [27]:

$$\sigma^{\text{intra}}(\omega, \mu, T, \Gamma_{\text{trans}}) = \frac{2e^2 k_B T}{\pi \hbar^2} \ln \left(2 \cosh \left(\frac{\mu}{2k_B T} \right) \right) \frac{i}{\omega + i\Gamma_{\text{trans}}},$$

where μ – graphene’s chemical potential; T – temperature; Γ_{trans} – intraband relaxation rate; e – electron charge; $\hbar$ – reduced Planck’s constant; k_B – Boltzmann’s constant. The intraband conductivity has the Drude form and depends mainly on the chemical potential [27] which can be changed by doping, for example. The influence of the graphene chemical potential through its conductivity on the slowing down of electromagnetic waves is demonstrated below. In the present paper the temperature value is defined as 300 K and the value of intraband relaxation rates is 0.03 THz [18], unless otherwise is specified.

Results and discussion

A freely suspended graphene sheet can support surface waves but its slowdown coefficient is not very high [1; 5; 28]. As an example, let us consider the graphene/dielectric/graphene sandwich (the permittivity of the dielectric is ϵ_d) (fig. 1). To simplify calculations, we assume that the structure is infinite in the longitudinal direction and surrounded by dielectric with ϵ_1 in the top part and with ϵ_2 in the bottom.

In case of using traditional Cherenkov or Smith – Purcell generation schemes, it is necessary to consider only the transverse-magnetic p -polarization [5]. Then, using equation (3), equation for eigenmodes of two layers graphene-dielectric system takes the form

$$i \tan(k_0 d \eta_d) = - \frac{\frac{\eta_d}{\epsilon_d} \left(2Y - \frac{\epsilon_1}{\eta_1} - \frac{\epsilon_2}{\eta_2} \right)}{1 + \left(\frac{\eta_d}{\epsilon_d} \right)^2 \left(Y - \frac{\epsilon_1}{\eta_1} \right) \left(Y - \frac{\epsilon_2}{\eta_2} \right)}, \quad (5)$$

where $\eta_i = \sqrt{\epsilon - b^2}$ is the normal component of the refractive vector in the corresponding medium, d is the dielectric spacer thickness, and $Y = \frac{4\pi\sigma}{c}$. This equation has a complicated form and in a general case it is possible to find the slowdown coefficient $\frac{c}{v_{\text{ph}}}$ only numerically. Two modes corresponding to synchronous and asynchronous oscillations are the solution of equation (5). Frequency of the asymmetric mode can be significantly less than one for single layer due to combination frequency effect. This leads to a much greater slowdown than it is possible with a single graphene monolayer (see [5]).

The value of the dielectric permittivity $\epsilon_d = 2.6$ is chosen to correspond to PMMA [29], which is normally used in such graphene structures [14]. One of the key parameters affecting the slowdown in the sandwich structure is the distance between graphene. Figure 2, *a*, *b*, demonstrate the influence of dielectric thickness in the terahertz frequency region when the graphene chemical potential is 0.10 eV. The slowdown coefficient for asynchronous oscillations significantly exceeds that for synchronous oscillations. Such behavior arises from the fact that in the case of synchronous oscillations the whole sandwich structure interacts with electromagnetic wave like it does with a graphene monolayer.

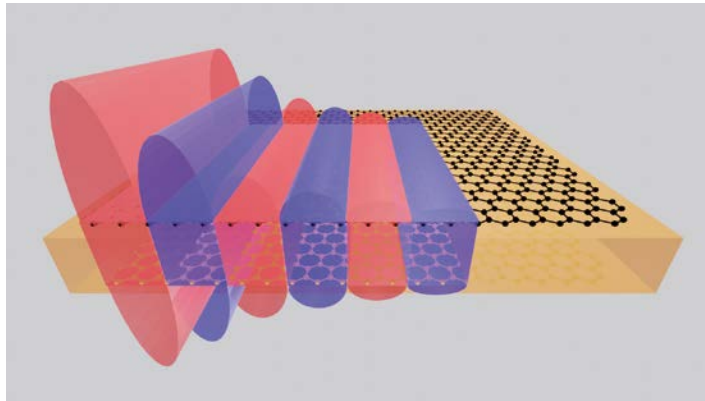


Fig. 1. Schematics of the considered system: the dielectric spacer with ϵ_d in between of two graphene layers, surrounded by a media with the permittivity $\epsilon_1 = 1$. A propagating eigenmode is pictured schematically

The maximum value of the slowdown coefficient in the considered system surpasses 200 and decreases with increasing distance between layers (fig. 2). This is caused by a weakening of the bond between the plasmon-polaritons that arise in the system [5]. At the same time, the change in the distance between the sheets has a weak effect on the propagation coefficient ξ . The ratio $\xi = \frac{\text{Re } q}{\text{Im } q}$ of the real and imaginary parts of the

tangential component of wavevector q determines wave attenuation during propagation along the layers. If this ratio is close to unity, then the corresponding modes decay quickly. In other words, ξ determines the number of oscillations occurring before a wave dissipates in the system. The propagation coefficient strongly depends on graphene quality (fig. 3). In its turn, graphene quality characterized by the intraband relaxation rate Γ_{trans} which plays the main role in the terahertz region [27].

It was shown experimentally that the ballistic length in CVD graphene can exceed $28 \mu\text{m}$ [18] what corresponds to the relaxation rate parameter of about 0.03 THz. For a demonstration, in fig. 3 we show the propagation constant ξ for the two-layer graphene system (as in fig. 2) with a 10 nm dielectric spacer, when $\Gamma_{\text{trans}} = 13 \text{ THz}$. The given value of the relaxation rate was demonstrated in [14; 21]. One can see that in this case the attenuation increases dramatically, and factually makes it impossible to use such a system for wave slowdown.

The dependence of the slowdown coefficient on the value of the graphene chemical potential μ in the case of asynchronous and synchronous oscillations is shown in fig. 4, *a*, *b*. The chemical potential has a significant effect on the value of the slowdown coefficient in graphene sandwiches. For a lower value of the chemical

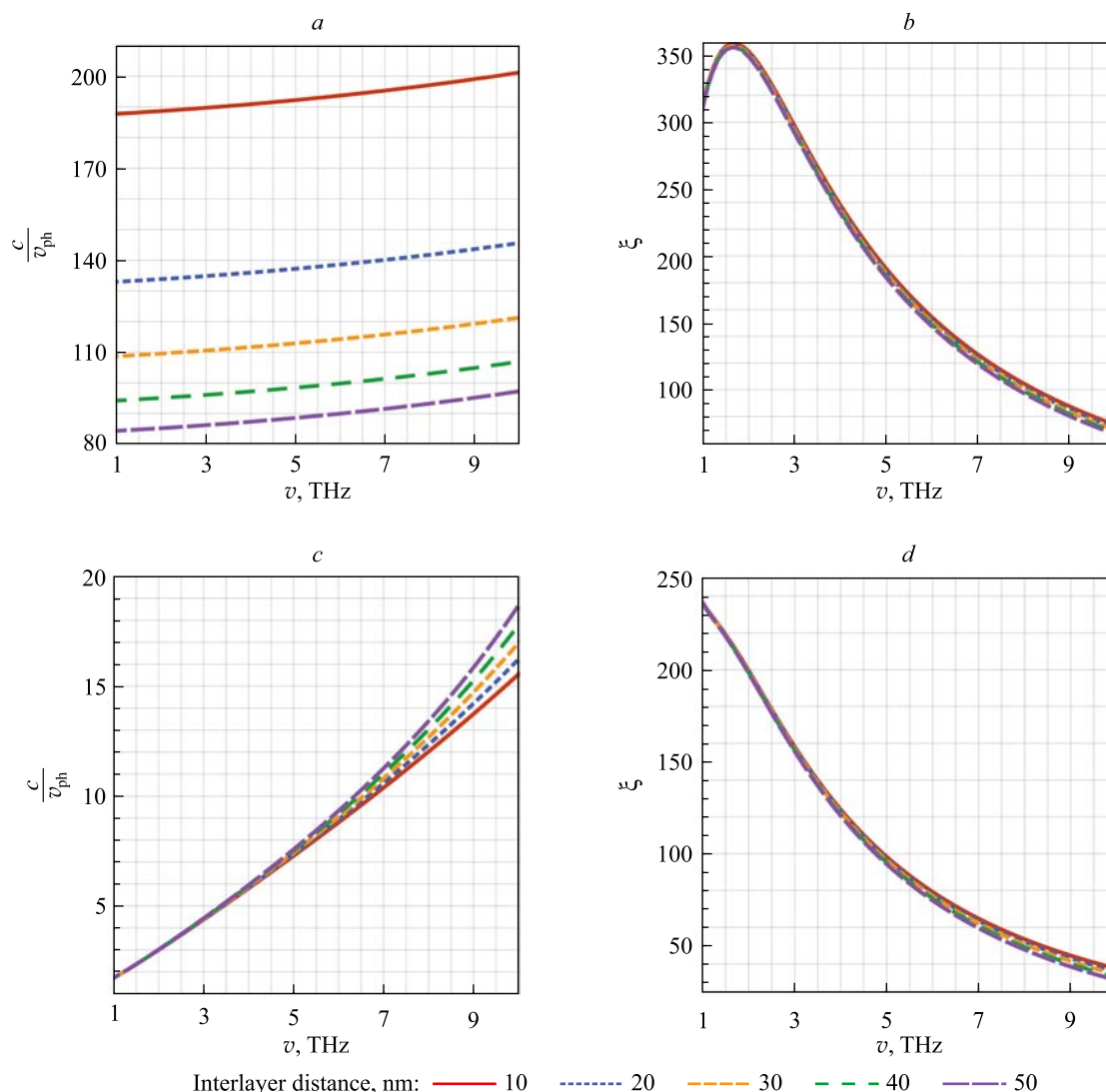


Fig. 2. The dependence of the slowdown coefficient on the frequency in the case (*a*) asynchronous and (*b*) synchronous oscillations for different interlayer distances when the graphene chemical potential is 0.10 eV; the value of the propagation coefficient ξ in the plane of the layers for the same (*c*) asynchronous and (*d*) synchronous oscillation

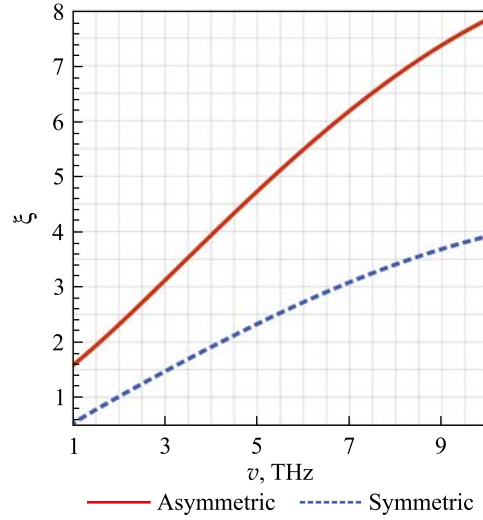


Fig. 3. The value of the propagation coefficient ξ in the plane of graphene layers with the dielectric spacer thickness 10 nm for $\Gamma_{\text{trans}} = 13$ THz

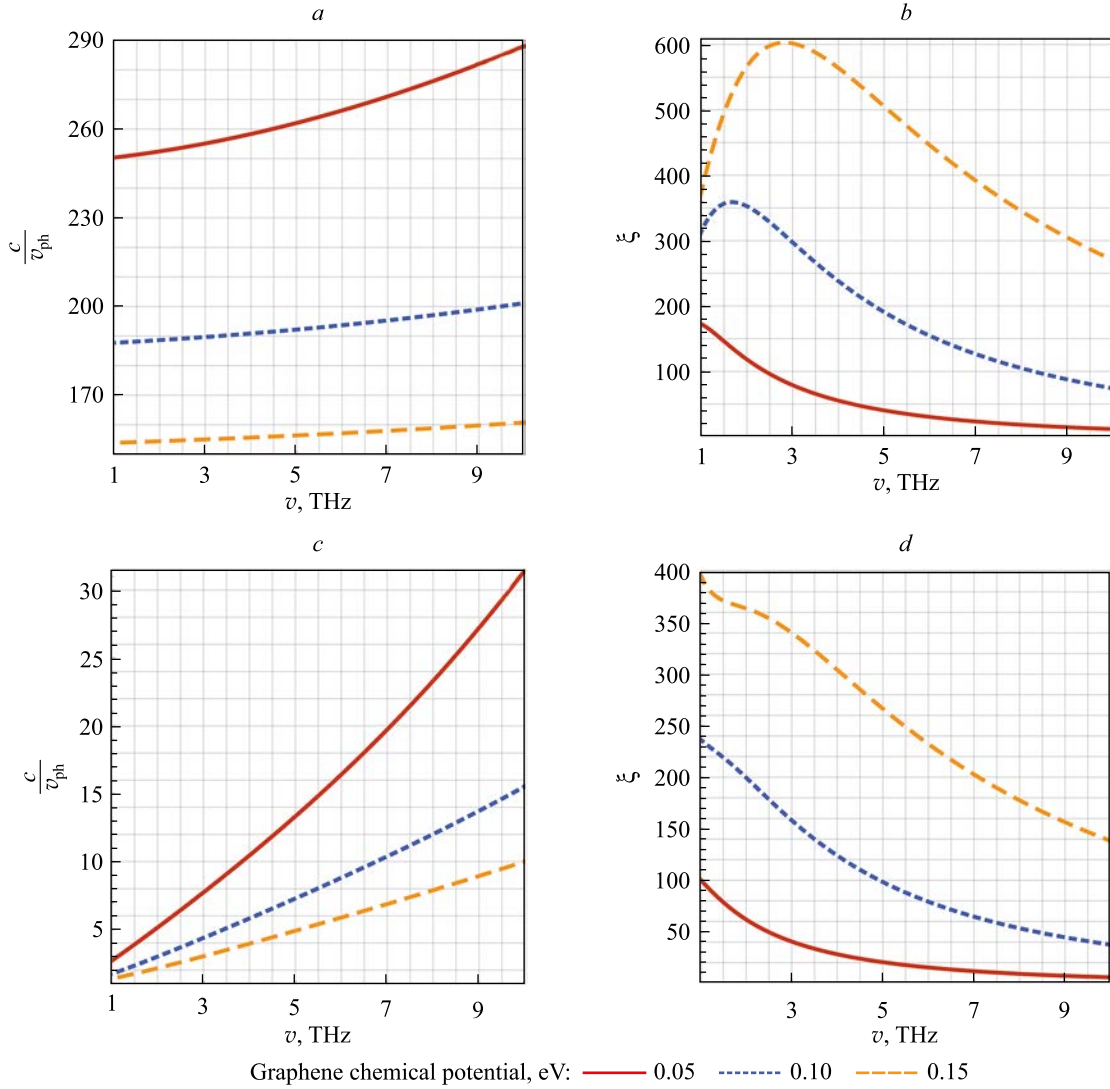


Fig. 4. The dependence of the slowdown coefficient on the frequency in the case (a) asynchronous and (b) synchronous oscillations for different values of the graphene chemical potential for the interlayer thickness 10 nm; the value of the propagation coefficient ξ in the plane of the layers for the same (c) asynchronous and (d) synchronous oscillation

potential, the slowdown coefficient almost reaches 300, which corresponds to the velocity of charge carriers in the graphene layer. Increasing of the graphene's chemical potential leads to the decrease of the light slowdown. This can be used in the dynamical tuning of graphene sandwiches, as μ value determines graphene's conductivity and can be changed by applying the electric field to graphene [5].

The propagation coefficient also significantly depends on the graphene chemical potential μ . Figure 4, c , d , show the dependence of the propagation coefficient ξ on the chemical potential. With the increase of μ , the propagation coefficient in the graphene sandwich increases as well. It can be explained by the change of the graphene conductivity.

Conclusion

Possessing unique physical properties, a pair of graphene layers combined with a dielectric allows one to obtain a structure with attractive physical properties. Graphene sandwich structures demonstrate a significant slowdown in the terahertz frequency range. In the case of a two graphene layers system, two eigenmodes appear: synchronous with slowdown coefficient close to one for single graphene layer, and asynchronous when the wave phase velocity almost reaches the value corresponding to the velocity of charge carriers. The value of this coefficient is determined by the interlayer distance and the value of graphene chemical potential, which can be tuned by electric voltage. At the same time, these modes decay rather slowly, which ensures the application of such structures in practice. The combination of such a system with an electron beam can be used to create a new generation of frequency-tunable compact terahertz sources.

To conclude, the application of the operator approach to graphene heterostructures has been demonstrated. The operator approach allows one to use coordinates-free notations and to consider consequently arbitrarily heterostructures. The results of the presented study open a way to the investigation of complex graphene-based multilayer systems.

Библиографические ссылки

1. Lu H, Zeng C, Zhang Q, Liu X, Hossain MdM, Reineck P, et al. Graphene-based active slow surface plasmon polaritons. *Scientific reports*. 2015;5:8443. DOI: 10.1038/srep08443.
2. Krauss TF. Why do we need slow light? *Nature Photonics*. 2008;2(8):448–450. DOI: 10.1038/nphoton.2008.139.
3. Batrakov KG, Kuzhir PP, Maksimenko SA. Radiative instability of electron beams in carbon nanotubes. *Proceedings of SPIE. Nanomodeling II*. 2006;6328:63280Z. DOI: 10.1117/12.678029.
4. Batrakov KG, Maksimenko SA, Kuzhir PP, Thomsen C. Carbon nanotube as a Cherenkov-type light emitter and free electron laser. *Physical Review B*. 2009;79(12):125408. DOI: 10.1103/PhysRevB.79.125408.
5. Batrakov K, Maksimenko S. Graphene layered systems as a terahertz source with tuned frequency. *Physical Review B*. 2017;95(20):205408. DOI: 10.1103/PhysRevB.95.205408.
6. Lewis RA. A review of terahertz sources. *Journal of Physics D: Applied Physics*. 2014;47(37):374001. DOI: 10.1088/0022-3727/47/37/374001.
7. Turukhin AV, Sudarshanam VS, Shahriar MS, Musser JA, Ham BS, Hemmer PR. Observation of ultraslow and stored light pulses in a solid. *Physical Review Letters*. 2002;88(2):023602. DOI: 10.1103/PhysRevLett.88.023602.
8. Chang-Hasnain CJ, Ku P-C, Kim J, Chuang S-L. Variable optical buffer using slow light in semiconductor nanostructures. *Proceedings of the IEEE*. 2003;91(11):1884–1897. DOI: 10.1109/JPROC.2003.818335.
9. Gan Q, Fu Z, Ding YJ, Bartoli FJ. Ultrawide-bandwidth slow-light system based on THz plasmonic graded metallic grating structures. *Physical Review Letters*. 2008;100(25):256803. DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.256803.
10. Yamamoto Y, Slusher RE. Optical processes in microcavities. In: Burstein E, Weisbuch C, editors. *Confined electrons and photons. New physics and applications*. Boston: Springer; 1995. p. 871–878. (NSSB; volume 340). DOI: 10.1007/978-1-4615-1963-8.
11. Yanik MF, Fan S. Stopping light all optically. *Physical Review Letters*. 2004;92(8):083901. DOI: 10.1103/PhysRevLett.92.083901.
12. Xia F, Sekaric L, Vlasov Y. Ultracompact optical buffers on a silicon chip. *Nature Photonics*. 2007;1(1):65–71. DOI: 10.1038/nphoton.2006.42.
13. Hybrid and coupled photonic system between nanoparticle and integrated microresonator. Chapter 1. In: Yi YS, editor. *Integrated nanophotonic resonators. Fundamentals, devices, and applications*. New York: Jenny Stanford Publishing; 2015. p. 15–44.
14. Batrakov K, Kuzhir P, Maksimenko S, Paddubskaya A, Voronovich S, Lambin Ph, et al. Flexible transparent graphene/polymer multilayers for efficient electromagnetic field absorption. *Scientific Reports*. 2014;4:7191. DOI: 10.1038/srep07191.
15. Geim AK, Novoselov KS. The rise of graphene. In: Rudgers P, editor. *Nanoscience and technology: a collection of reviews from nature journals*. Singapore: World Scientific; 2009. p. 11–19. DOI: 10.1142/9789814287005_0002.
16. Katsnelson MI. *Graphene: carbon in two dimensions*. Cambridge: Cambridge University Press; 2012. 351 p.
17. Murali R, Yang Y, Brenner K, Beck T, Meindl JD. Breakdown current density of graphene nanoribbons. *Applied Physics Letters*. 2009;94(24):243114. DOI: 10.1063/1.3147183.
18. Banszerus L, Schmitz M, Engels S, Goldsche M, Watanabe K, Taniguchi T, et al. Ballistic transport exceeding 28 μm in CVD grown graphene. *Nano Letters*. 2016;16(2):1387–1391. DOI: 10.1021/acs.nanolett.5b04840.
19. Batrakov KG, Saroka VA, Maksimenko SA, Thomsen C. Plasmon polariton deceleration in graphene structures. *Journal of Nanophotonics*. 2012;6(1):061719.

20. Slepyan GY, Maksimenko SA, Lakhtakia A, Yevtushenko O, Gusakov AV. Electrodynamics of carbon nanotubes: Dynamic conductivity, impedance boundary conditions, and surface wave propagation. *Physical Review B*. 1999;60(24):17136. DOI: 10.1103/PhysRevB.60.17136.
21. Batrakov K, Kuzhir P, Maksimenko S, Volynets N, Voronovich S, Paddubskaya A, et al. Enhanced microwave-to-terahertz absorption in graphene. *Applied Physics Letters*. 2016;108(12):123101. DOI: 10.1063/1.4944531.
22. Barkovskii LM, Borzdov GN, Lavrinenko AV. Fresnel's reflection and transmission operators for stratified gyroanisotropic media. *Journal of Physics A: Mathematical and General*. 1987;20(5):1095. DOI: 10.1088/0305-4470/20/5/021.
23. Барковский ЛМ, Фурс АН. *Операторные методы описания оптических полей в сложных средах*. Минск: Беларуская навука; 2003. 285 с.
24. Popov V, Lavrinenko AV, Novitsky A. Operator approach to effective medium theory to overcome a breakdown of Maxwell Garnett approximation. *Physical Review B*. 2016;94(8):085428. DOI: 10.1103/PhysRevB.94.085428.
25. Popov V, Lavrinenko AV, Novitsky A. Surface waves on multilayer hyperbolic metamaterials: operator approach to effective medium approximation. *Physical Review B*. 2018;97(12):125428. DOI: 10.1103/PhysRevB.97.125428.
26. Borzdov GN. Frequency domain wave-splitting techniques for plane stratified bianisotropic media. *Journal of Mathematical Physics*. 1997;38(12):6328–6366. DOI: 10.1063/1.532216.
27. Mikhailov S. *Carbon nanotubes and graphene for photonic applications*. Chapter 7. *Electromagnetic nonlinearities in graphene*. Yamashita S, Saito Y, Choi JH, editors. Cambridge: Woodhead Publishing; 2013. p. 171–221. (Woodhead Publishing Series in Electronic and Optical Materials).
28. Batrakov KG, Saroka VA, Maksimenko SA, Thomsen C. Plasmon polariton deceleration in graphene structures. *Journal of Nanophotonics*. 2012;6(1):061719. DOI: 10.1117/1.JNP.6.061719.
29. Jin YS, Kim GJ, Jeon SG. Terahertz dielectric properties of polymers. *Journal of the Korean Physical Society*. 2006;49(2):513–517.

References

1. Lu H, Zeng C, Zhang Q, Liu X, Hossain MdM, Reineck P, et al. Graphene-based active slow surface plasmon polaritons. *Scientific reports*. 2015;5:8443. DOI: 10.1038/srep08443.
2. Krauss TF. Why do we need slow light? *Nature Photonics*. 2008;2(8):448–450. DOI: 10.1038/nphoton.2008.139.
3. Batrakov KG, Kuzhir PP, Maksimenko SA. Radiative instability of electron beams in carbon nanotubes. *Proceedings of SPIE. Nanomodeling II*. 2006;6328:63280Z. DOI: 10.1117/12.678029.
4. Batrakov KG, Maksimenko SA, Kuzhir PP, Thomsen C. Carbon nanotube as a Cherenkov-type light emitter and free electron laser. *Physical Review B*. 2009;79(12):125408. DOI: 10.1103/PhysRevB.79.125408.
5. Batrakov K, Maksimenko S. Graphene layered systems as a terahertz source with tuned frequency. *Physical Review B*. 2017;95(20):205408. DOI: 10.1103/PhysRevB.95.205408.
6. Lewis RA. A review of terahertz sources. *Journal of Physics D: Applied Physics*. 2014;47(37):374001. DOI: 10.1088/0022-3727/47/37/374001.
7. Turukhin AV, Sudarshanam VS, Shahriar MS, Musser JA, Ham BS, Hemmer PR. Observation of ultraslow and stored light pulses in a solid. *Physical Review Letters*. 2002;88(2):023602. DOI: 10.1103/PhysRevLett.88.023602.
8. Chang-Hasnain CJ, Ku P-C, Kim J, Chuang S-L. Variable optical buffer using slow light in semiconductor nanostructures. *Proceedings of the IEEE*. 2003;91(11):1884–1897. DOI: 10.1109/JPROC.2003.818335.
9. Gan Q, Fu Z, Ding YJ, Bartoli FJ. Ultrawide-bandwidth slow-light system based on THz plasmonic graded metallic grating structures. *Physical Review Letters*. 2008;100(25):256803. DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.256803.
10. Yamamoto Y, Slusher RE. Optical processes in microcavities. In: Burstein E, Weisbuch C, editors. *Confined electrons and photons. New physics and applications*. Boston: Springer; 1995. p. 871–878. (NSSB; volume 340). DOI: 10.1007/978-1-4615-1963-8.
11. Yanik MF, Fan S. Stopping light all optically. *Physical Review Letters*. 2004;92(8):083901. DOI: 10.1103/PhysRevLett.92.083901.
12. Xia F, Sekaric L, Vlasov Y. Ultracompact optical buffers on a silicon chip. *Nature Photonics*. 2007;1(1):65–71. DOI: 10.1038/nphoton.2006.42.
13. Hybrid and coupled photonic system between nanoparticle and integrated microresonator. Chapter 1. In: Yi YS, editor. *Integrated nanophotonic resonators. Fundamentals, devices, and applications*. New York: Jenny Stanford Publishing; 2015. p. 15–44.
14. Batrakov K, Kuzhir P, Maksimenko S, Paddubskaya A, Voronovich S, Lambin Ph, et al. Flexible transparent graphene/polymer multilayers for efficient electromagnetic field absorption. *Scientific Reports*. 2014;4:7191. DOI: 10.1038/srep07191.
15. Geim AK, Novoselov KS. The rise of graphene. In: Rudgers P, editor. *Nanoscience and technology: a collection of reviews from nature journals*. Singapore: World Scientific; 2009. p. 11–19. DOI: 10.1142/9789814287005_0002.
16. Katsnelson MI. *Graphene: carbon in two dimensions*. Cambridge: Cambridge University Press; 2012. 351 p.
17. Murali R, Yang Y, Brenner K, Beck T, Meindl JD. Breakdown current density of graphene nanoribbons. *Applied Physics Letters*. 2009;94(24):243114. DOI: 10.1063/1.3147183.
18. Banszerus L, Schmitz M, Engels S, Goldsche M, Watanabe K, Taniguchi T, et al. Ballistic transport exceeding 28 μm in CVD grown graphene. *Nano Letters*. 2016;16(2):1387–1391. DOI: 10.1021/acs.nanolett.5b04840.
19. Batrakov KG, Saroka VA, Maksimenko SA, Thomsen C. Plasmon polariton deceleration in graphene structures. *Journal of Nanophotonics*. 2012;6(1):061719.
20. Slepyan GY, Maksimenko SA, Lakhtakia A, Yevtushenko O, Gusakov AV. Electrodynamics of carbon nanotubes: Dynamic conductivity, impedance boundary conditions, and surface wave propagation. *Physical Review B*. 1999;60(24):17136. DOI: 10.1103/PhysRevB.60.17136.
21. Batrakov K, Kuzhir P, Maksimenko S, Volynets N, Voronovich S, Paddubskaya A, et al. Enhanced microwave-to-terahertz absorption in graphene. *Applied Physics Letters*. 2016;108(12):123101. DOI: 10.1063/1.4944531.
22. Barkovskii LM, Borzdov GN, Lavrinenko AV. Fresnel's reflection and transmission operators for stratified gyroanisotropic media. *Journal of Physics A: Mathematical and General*. 1987;20(5):1095. DOI: 10.1088/0305-4470/20/5/021.

23. Barkovsky LM, Furs AN. *Operatornye metody opisaniya opticheskikh polei v slozhnykh sredakh* [Operator methods for describing optical fields in complex media]. Minsk: Belaruskaya navuka; 2003. 285 p. Russian.
24. Popov V, Lavrinenko AV, Novitsky A. Operator approach to effective medium theory to overcome a breakdown of Maxwell Garnett approximation. *Physical Review B*. 2016;94(8):085428. DOI: 10.1103/PhysRevB.94.085428.
25. Popov V, Lavrinenko AV, Novitsky A. Surface waves on multilayer hyperbolic metamaterials: operator approach to effective medium approximation. *Physical Review B*. 2018;97(12):125428. DOI: 10.1103/PhysRevB.97.125428.
26. Borzdov GN. Frequency domain wave-splitting techniques for plane stratified bianisotropic media. *Journal of Mathematical Physics*. 1997;38(12):6328–6366. DOI: 10.1063/1.532216.
27. Mikhailov S. *Carbon nanotubes and graphene for photonic applications. Chapter 7. Electromagnetic nonlinearities in graphene*. Yamashita S, Saito Y, Choi JH, editors. Cambridge: Woodhead Publishing; 2013. p. 171–221. (Woodhead Publishing Series in Electronic and Optical Materials).
28. Batrakov KG, Saroka VA, Maksimenko SA, Thomsen C. Plasmon polariton deceleration in graphene structures. *Journal of Nanophotonics*. 2012;6(1):061719. DOI: 10.1117/1.JNP.6.061719.
29. Jin YS, Kim GJ, Jeon SG. Terahertz dielectric properties of polymers. *Journal of the Korean Physical Society*. 2006;49(2):513–517.

Received by editorial board 20.12.2019.

ФИЗИКА ЯДРА И ЭЛЕМЕНТАРНЫХ ЧАСТИЦ

ATOMIC NUCLEUS AND ELEMENTARY PARTICLE PHYSICS

УДК 539.1

НЕКОГЕРЕНТНОЕ РАССЕЯНИЕ УЛЬТРАРЕЛЯТИВИСТСКИХ ЧАСТИЦ НА ЯДРАХ ПРИ ПЛОСКОСТНОМ КАНАЛИРОВАНИИ

В. В. ТИХОМИРОВ¹⁾

¹⁾*Институт ядерных проблем Белорусского государственного университета,
ул. Бобруйская, 11, 220030, г. Минск, Беларусь*

Рассматривается проблема последовательного описания движения заряженных частиц высоких энергий в поле атомных плоскостей ориентированных кристаллов, имеющая принципиальное значение для управления движением частиц, получения интенсивного гамма-излучения и готовящегося измерения характеристик короткоживущих элементарных частиц, таких как магнитный и электрический дипольные моменты. На основании строго рассчитанного мгновенного изменения энергии поперечного движения частицы в поле плоскостей при рассеянии на остове отдельного атома получено выражение для средней скорости ее нарастания, учитывающее квантовые эффекты и резкое изменение плотности распределения частиц в межплоскостном канале. Найденное соотношение впервые дает возможность строго описать ограничения любых приложений эффекта каналирования в физике высоких энергий без введения параметров, вводившихся до сих пор на основе качественных соображений. Помимо этого, введены выражения для сечения рассеяния ядрами на большие углы и среднего квадрата угла рассеяния на малые, позволяющие сформулировать последовательный метод учета квантовой природы некогерентного и классической природы когерентного рассеяния на атомах кристаллических плоскостей при моделировании процесса распространения ультрарелятивистских частиц обоих знаков заряда как в условиях каналирования, так и вне его.

Образец цитирования:

Тихомиров ВВ. Некогерентное рассеяние ультрарелятивистских частиц на ядрах при плоскостном каналировании. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика.* 2020;1:83–94.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-83-94>

For citation:

Tikhomirov VV. Incoherent ultrarelativistic particle scattering by nuclei at planar channeling. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2020;1:83–94. Russian.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-83-94>

Автор:

Виктор Васильевич Тихомиров – доктор физико-математических наук, профессор; заведующий лабораторией ядерной оптики и космофизики.

Author:

Viktor V. Tikhomirov, doctor of science (physics and mathematics), full professor; head of the laboratory of nuclear optics and astroparticle physics.
vvtikh@mail.ru



Ключевые слова: высокие энергии; релятивистская квантовая механика; каналирование частиц в кристаллах; дипольный момент; рассеяние частиц ядрами; когерентное рассеяние; некогерентное рассеяние.

Благодарность. Автор признателен за участие в обсуждении статьи доктору физико-математических наук, профессору, заслуженному деятелю науки Республики Беларусь Владимиру Григорьевичу Барышевскому, а также доктору Ксавье Артру (Лионский университет имени Клода Бернара, Франция), доктору физико-математических наук, профессору Султану Дабагову (Национальная лаборатория Фраскати, Рим, Италия; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ») и доктору Андреа Маццолари (университет г. Феррары, Италия).

INCOHERENT ULTRARELATIVISTIC PARTICLE SCATTERING BY NUCLEI AT PLANAR CHANNELING

V. V. TIKHOMIROV^a

^a*Institute for Nuclear Problems, Belarusian State University,
11 Babrujskaja Street, Minsk 220030, Belarus*

The problem of high-energy charged particle motion in the field of atomic planes of oriented crystals, essential for particle beam manipulation, intensive gamma-radiation generation and prepared measurements of short-living elementary particle properties, such as magnetic and electric dipole momenta, is considered. A rigorously evaluated instant change of transverse channeling motion energy under the scattering by an atomic core is applied to deduce an expression for the average transverse energy growth rate, which takes into consideration both the quantum effects and sharp particle density variation inside an inter-plane channel. The latter makes it possible for the first time to describe numerically the key limitations of multiple applications of the channeling effects in high-energy physics, not involving the parameters, introduces earlier through the arbitrary qualitative considerations. Also, the expressions of both the large angle scattering cross section and average square of small scattering angles are obtained, making possible to formulate a consistent simulation method of both positively and negatively charged particles propagation both in and out of the channeling conditions, taking into consideration both quantum nature of incoherent and classical one of the coherent scattering of ultra-relativistic particles by crystal plane atoms.

Keywords: high-energy; relativistic quantum mechanics; particle channeling in crystals; dipole moment; scattering by nuclei; coherent scattering in crystals; incoherent scattering.

Acknowledgements. The author is grateful for the discussions to doctor of science, professor, honored scientist of Belarus Republic, Vladimir Grigorjevich Baryshevsky, as well as to doctor Xavier Artru (Claude Bernard University Lyon), doctor of science, professor Sultan Dabagov (Frascati National Laboratory, Rome, Italy; National Research Nuclear University MEPhI) and doctor Andrea Mazzolari (Ferrara University, Italy).

Введение

Эффект каналирования в изогнутых кристаллах предоставляет уникальные возможности управления движением и гамма-излучением быстрых частиц, а также изучения их свойств [1; 2]. Последние десятилетия активно исследовалось применение каналирования в изогнутых кристаллах для коллимации пучков Протонного суперсинхротрона (*Super Proton Synchrotron*, SPS), Сверхпроводящего суперколлайдера (*Superconducting Super Collider*, SSC), Большого адронного коллайдера (*Large Hadron Collider*, LHC) и разрабатываемого в настоящее время Будущего циркулярного коллайдера (*Future Circular Collider*, FCC) [2]. При этом в основном рассматривалось отклонение каналирующих частиц на малые (несколько десятков микрорадиан) углы тонкими (несколько миллиметров), слабо (с радиусом несколько десятков минимальных) изогнутыми кристаллами. Однако в ближайшее время на Большом адронном коллайдере планируется перейти к экспериментам по измерению магнитных дипольных и электрических квадрупольных, а также к поиску электрических дипольных моментов короткоживущих «очарованных» и «прекрасных» частиц [2–4] и другим экспериментам с фиксированной мишенью, требующим экстремальных толщин, кривизны и углов изгиба кристаллов, недостаточно исследованных экспериментально и описанных теоретически лишь на качественном уровне. Суть в том, что при значительной кривизне изгиба применение кристаллов при любых энергиях существенно ограничено эффектом деканалирования, развитие теории которого для данной области параметров также еще не завершено [5; 6]. Последовательному описанию некогерентного рассеяния на ядрах в условиях плоскостного каналирования в протяженных, сильно изогнутых кристаллах и посвящена данная работа.

Причиной отличия некогерентного рассеяния в кристаллах от кулоновского рассеяния в аморфном веществе, как и источником всех когерентных эффектов рассеяния и излучения, является неоднородность пространственного распределения атомов в плоскости прицельного параметра, характеризующая амплитудой тепловых колебаний $u_1 \leq 10$ пм. Связанные с этой неоднородностью корреляции столкновений частиц с ядрами приводят к ослаблению рассеяния при прицельных параметрах $b \geq u_1$, а также перераспределению частиц по последним. Наиболее просто и единообразно (одинаково для всех частиц) подавление некогерентного рассеяния корреляциями проявляется в условиях близкого к однородному распределению потока частиц при движении в направлениях, далеких от параллельных осям и плоскостям кристалла [7; 8]. Этот эффект недавно наблюдался нами совместно с группой исследователей из университета г. Феррары (Италия) на микротроне Майнцского университета (Германия)¹. Однако, сохраняясь и при малых углах падения частиц на оси и плоскости, этот эффект требует более сложного описания, учитывающего все особенности распределения ядер в достаточно широкой окрестности траектории частицы.

Ввиду своей специфики подобные эффекты вообще не учитывались квантовой теорией рассеяния и стали изучаться лишь недавно с использованием функции Вигнера, позволившей локально описать имеющее квантовую природу некогерентное рассеяние на классической траектории высокоэнергетичной частицы в усредненном потенциале цепочки атомов [6]. Кроме того, в работе [6] обнаружено, что неоднородность распределения ядер может приводить к отсутствию положительно определенной вероятности рассеяния на малые углы, и предложено моделировать отклонение частиц в этом случае при помощи среднего квадрата угла некогерентного рассеяния.

Для большинства ядер, расположенных в местах их высокой концентрации в центральных областях атомных цепочек и плоскостей, модификация процесса некогерентного рассеяния ограничивается переданными импульсами порядка $\frac{\hbar}{u_1} \sim 20\text{--}30$ кэВ/с (c – скорость света), связанными соотношением неопределенности Гейзенберга с характерным масштабом неоднородности распределения ядер, задаваемым амплитудой тепловых колебаний $u_1 \sim 10$ пм. При этом в областях пониженной концентрации становится существенным влияние удаленных областей локализации подавляющей массы ядер, в результате которого адекватное описание процесса рассеяния на малые углы на основе величины их локальной концентрации становится невозможным.

Эти сложности, однако, порождаются только требованием сохранения локальности описания некогерентного рассеяния на классической траектории, теряющим актуальность в случае продолжительного устойчивого движения. Действительно, в условиях каналирования на протяжении сотен и тысяч периодов определяющим является медленное достижение энергией поперечного движения пороговых величин быстро ускоряющегося ядерного деканалирования на расстоянии $x \leq 2,5u_1$ (рис. 1). Предшествующее ему медленное возрастание энергии поперечного движения носит стохастический характер, описываемый средней скоростью ее роста, которая может быть последовательно рассчитана на основе релятивистской квантовой механики при весьма реалистичных предположениях. Эта величина, нетривиально учитывающая также резкое изменение распределения плотности вероятности нахождения частиц вблизи точек отражения от атомных плоскостей, и будет положена в основу нижеследующего рассмотрения процесса деканалирования. Помимо этого, она позволит впервые ввести выражения для локальных характеристик некогерентного рассеяния, не содержащие дополнительных параметров.

Рост энергии поперечного движения при плоскостном каналировании

Переходя к расчету средней скорости вызываемого некогерентным рассеянием нарастания энергии поперечного движения, напомним, что поперечное движение каналирующих частиц, происходящее в направлении оси x , нормальной к кристаллическим, возможно изогнутым [1–4], плоскостям, определяется их эффективным потенциалом $U(x)$ и описывается учитывающим релятивистские эффекты «утяжеления» частиц [1] стационарным уравнением Шрёдингера для волновой функции $\varphi(x)$ (используется система единиц $c = \hbar = 1$)

$$\hat{H}_0 \varphi = \left[\frac{\hat{p}_x^2}{2p} + U(x) \right] \varphi = \left[-\frac{1}{2p} \frac{d^2}{dx^2} + U(x) \right] \varphi = \varepsilon_n \varphi, \quad (1)$$

¹Broad angular anisotropy of multiple scattering in a Si crystal / A. Mazzolari, A. Sytov, L. Bandiera, et al. // arXiv:1909.07691.

где p – практически равный полной энергии ϵ полный (трехмерный) импульс ультрарелятивистской частицы; $\hat{p}_x$ и ϵ_n – оператор одномерного импульса и величина энергии поперечного движения соответственно. С точки зрения описания устойчивости процесса каналирования основной интерес представляет начало ядерного деканалирования, наступающее при достижении точкой поворота x_0 области $\sim (2 \dots 3)u_1 \sim 20\text{--}25$ пм (см. рис. 1). Благодаря быстрому спадаанию в последней ядерной плотности

$$n_n(x_n) = \frac{n_0 d}{\sqrt{2\pi u_1}} e^{-\frac{x_n^2}{2u_1^2}} \quad (2)$$

(см. рис. 1), где d – межплоскостное расстояние, достаточно рассмотреть рассеяние в узком координатном интервале вблизи x_0 , используя линейное разложение потенциала

$$U(x \approx x_0) \approx \epsilon_n + U'(x_0)(x - x_0) = \epsilon_n - e\mathcal{E}(x - x_0), \quad (3)$$

превращающее общее уравнение (1) в уравнение Эйри [9]

$$\left[\frac{d^2}{dx^2} + 2pe\mathcal{E}(x - x_0) \right] \varphi(x) = \left[\frac{d^2}{d\xi^2} - (\xi_0 - \xi) \right] \varphi(\xi) = 0, \quad (4)$$

в котором введена безразмерная координата

$$\begin{aligned} \xi &= \xi'x = \sqrt[3]{2e|\mathcal{E}|p}x, \\ \xi_0 &= \xi'x_0 = \sqrt[3]{2e|\mathcal{E}|p}x_0, \\ \xi' &\equiv \frac{d\xi}{dx} = \sqrt[3]{2e|\mathcal{E}|p} = \text{const} > 0. \end{aligned} \quad (5)$$

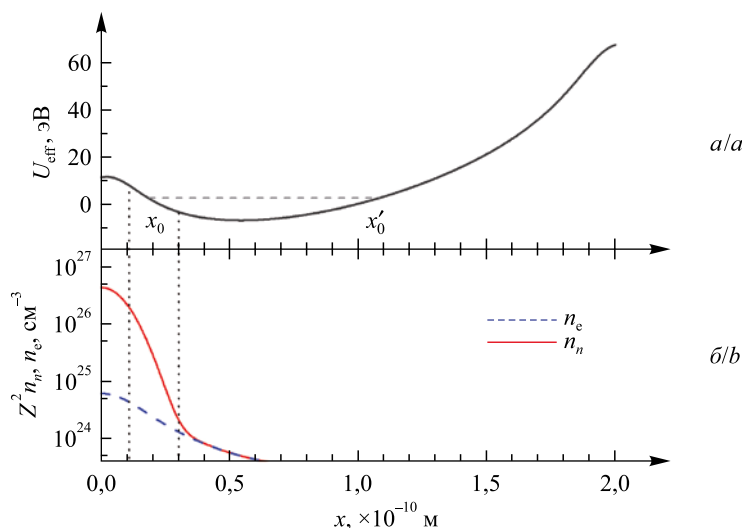


Рис. 1. Зависимости от поперечной координаты рассчитанного для положительно заряженных частиц с энергией 1 ТэВ эффективного потенциала плоскостей (110) кристалла германия, изогнутого с радиусом 5 м (а), концентрации электронов n_e и домноженной на квадрат атомного номера ($Z = 32$) концентрации ядер n_n (б).

Горизонтальный штриховой отрезок обозначает область устойчивого каналированного движения между точками поворота x_0 и x'_0 . Вертикальные пунктирные линии ограничивают область применения линейной аппроксимации эффективного потенциала в условиях резкого спада концентрации ядер вблизи левой точки поворота каналированного движения

Fig. 1. Effective potential of (110) germanium crystal planes evaluated for 1 TeV positively charged particles and 5 m bending radius (a); electron concentration n_e and multiplied by the atomic number $Z = 32$ squared nuclei concentration n_n (b).

The horizontal dashed line depicts the region of stable channeling motion between the turning points with coordinates of x_0 and x'_0 . The vertical dotted lines limit the region of linear effective potential approximation, applied under the sharp nuclear concentration drop near the left channeling motion turning point

Уравнение (4) имеет решение

$$\varphi(x - x_0) = \sqrt{\frac{2\pi p}{\xi'}} \text{Ai}(\xi_0 - \xi) = \sqrt{\frac{p}{2\pi\xi'}} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(i(\xi_0 - \xi)t + i\frac{t^3}{3}\right) dt, \quad (6)$$

в котором Ai – функция Эйри [10], а нормировка выбрана так, чтобы усредненная по быстрым пространственным осцилляциям плотность вероятности

$$\langle |\varphi(x)|^2 \rangle = v_x^{-1}(x), \quad (7)$$

где $v_x(x) = \sqrt{\frac{2e|\mathcal{E}|(x - x_0)}{p}}$ – скорость классического поперечного движения в точке x , одновременно соответствовала нормировке $\frac{d}{dt} = \frac{dx}{v_x(x)}$ на единицу времени.

Среднее изменение поперечной энергии каналированной частицы при некогерентном рассеянии на остоле отдельного атома можно рассчитать на основании уравнения Шрёдингера:

$$i \frac{d\psi}{dz} \approx \hat{H}\psi = -\frac{1}{2p} \frac{d^2\psi}{dx^2} + \varepsilon_n \psi + [U(x) + \delta U(x - x_n, y - y_n, z - z_n)]\psi, \quad (8)$$

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \delta U(x - x_n, y - y_n, z - z_n),$$

возмущенного эффективным потенциалом δU атома с ядром в произвольной точке (x_n, y_n, z_n) , учитывающим вклад этого атома в усредненный потенциал [6] (см. (10) ниже). Решение

$$\psi(x - x_n, y - y_n, z_n + 0) = \exp\left(-i \int_{-\infty}^{\infty} \delta U(x - x_n, y - y_n, z - z_n) \frac{dz}{v}\right) \varphi(x) \quad (9)$$

уравнения (8) в точке $z_n + 0$ непосредственно за возмущающим атомом находится методом эйконала и содержит интеграл от эффективного потенциала атома:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \delta U(x - x_n, y - y_n, z - z_n) \frac{dz}{v} = \frac{Z\alpha}{\pi v} \int \frac{e^{-i\chi_x x_n - i\chi_y y_n} - e^{-\chi^2 \frac{u_1^2}{2}}}{\chi^2 + k_s^2} e^{i\chi_x x + i\chi_y y} d\chi_x d\chi_y, \quad (10)$$

где $\alpha \approx \frac{1}{137}$ – постоянная тонкой структуры; параметр $k_s = \frac{\hbar}{R}$ учитывает экранирование потенциала ядра электронами, описываемое радиусом экранирования R , а гауссова экспонента – влияние тепловых колебаний кристаллической решетки [6]. Поясним также, что приводящее к выражению (9) пренебрежение производными от экспоненциального множителя основано на оценках $|\varphi'| \sim \sqrt{pU}|\varphi|$ и $\left|\int \frac{U' dz}{v}\right| \sim U$.

Благодаря тому что в момент рассеяния пространственное перераспределение плотности вероятности произойти не успевает, соотношение (9) оказывается достаточным для нахождения изменения поперечной энергии

$$\begin{aligned} \langle \Delta \varepsilon_n \rangle &= \int \psi^* \hat{H} \psi dx - \varepsilon_n = \\ &= \frac{2\pi p}{\xi'} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \left(\int_{-\infty}^{\infty} \frac{d}{dx} \delta U(x - x_n, y - y_n, z - z_n) \frac{dz}{v} \right)^2 \text{Ai}^2(x - x_0) dx dy, \end{aligned} \quad (11)$$

которое сводится к изменению ее кинетической составляющей, порождаемому скачком (10) фазы волновой функции (9).

В силу положительной определенности выражение (11) позволяет описать рассеяние на отдельном атоме решетки, что весьма затруднительно при использовании функции Вигнера, подобным свойством не обладающей [6]. Однако в данной статье мы рассмотрим результирующее действие некогерентного рассеяния на всех атомах плоскости, для чего свернем (11) с функцией их распределения (2). Подставляя далее интегральные выражения для функции Эйри (6) и модифицированного атомного потенциала (10), интегрируя по x, y , а также по t и χ_y в одном из интегралов (6) или (10), переходим от (11) к выражению

$$\langle \Delta \varepsilon_n \rangle = -\frac{Z^2 \alpha^2 n_0 d}{\pi v^2 \xi'^2} \times \\ \times \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-(\zeta+\eta)^2 \frac{u_1^2}{2}} - e^{-(\zeta^2+\eta^2) \frac{u_1^2}{2}}}{(\zeta^2 + \chi_y^2 + k_s^2)(\eta^2 + \chi_y^2 + k_s^2)} e^{i\xi_0(\zeta+\eta) + \frac{2i}{3}\left(\frac{\zeta+\eta}{2\xi'}\right)^3 + i\frac{\zeta+\eta}{\xi'} t^2} \zeta d\zeta \eta d\eta dt d\chi_y, \quad (12)$$

где переменные ζ и η играют роль переменной χ_x в двух входящих в (11) интегралах (10). Обозначив

$$k = \frac{\zeta + \eta}{2}, \quad q_x = \frac{\zeta - \eta}{2}, \quad q_y = \chi_y \quad (13)$$

для импульсной переменной интегрирования и двух компонент передаваемого импульса соответственно и выполнив интегрирование по t и q_y , преобразуем выражение (12) к виду

$$\langle \Delta \varepsilon_n(x_0, q_1 \leq |q_x| \leq q_2) \rangle = \frac{4Z^2 \alpha^2 n_0 d}{v^2 \xi'^2} \sqrt{\frac{\pi}{2\xi'}} \times \\ \times \int_{q_1}^{q_2} \int_0^{\infty} \frac{q_x^2 - k^2}{\sqrt{k}} \frac{\left(\exp(-2k^2 u_1^2) - \exp[-(q_x^2 + k^2) u_1^2] \right) \cos\left(2x_0 k + \frac{2k^3}{3\xi'^3} + \frac{\pi}{4}\right) dk dq_x}{\sqrt{(q_x + k)^2 + k_s^2} \sqrt{(q_x - k)^2 + k_s^2} \left(\sqrt{(q_x + k)^2 + k_s^2} + \sqrt{(q_x - k)^2 + k_s^2} \right)} \approx \\ \approx \frac{p}{2} \frac{4\pi Z^2 \alpha^2}{v^2 p^2 \xi'^2} \ln\left(\frac{q_2}{q_1}\right) \frac{n_0 dp}{\sqrt{2\xi' x_0}} e^{-\frac{x_0^2}{2u_1^2}}, \quad (14)$$

где для последующего разделения вкладов больших и малых углов рассеяния введена верхняя граница интервала интегрирования по переданному импульсу q_2 . Его нижняя граница q_1 использована для иллюстрации перехода к пределу однородной среды, соответствующему сечению рассеяния на экранированном электронами кулоновском потенциале атомного ядра:

$$\frac{d^2 \sigma_{\text{Coul}}}{dq^2} = \frac{4Z^2 \alpha^2}{v^2 (q^2 + k_s^2)^2}, \quad (15)$$

где $q^2 = q_x^2 + q_y^2$. Приведенное в (14) приближенное значение в пределе $q_2 > q_1 \gg \frac{\hbar}{u_1}$, как видно, равно произведению среднего изменения энергии поперечного движения при передаче x -компоненты импульса $q_1 < |q_x| < q_2$ одному ядру и приближенного значения интеграла от концентрации ядер на траектории частицы по времени ее движения от точки поворота x_0 до области исчезающе малых величин (2). Это равенство, поясняющее смысл исходного выражения (11), менее прямым путем, но более точно обосновывается ниже.

Основное предназначение полученных выражений – описание некогерентных процессов с малыми передачами импульса $|q_x| \sim \frac{\hbar}{u_1}$. При нормировке на основе определений (2), (7) и (15) как энергии поперечного движения, так и эффективного сечения и угла многократного рассеяния (см. ниже) все численные результаты (рис. 2–4) непосредственно визуализируют степень отличия наших предсказаний от итогов расчета по модели, основанной на сечении (15), не учитывающем влияния неоднородности распределения ядер на процесс рассеяния. При введении нормировки далее полагается $q_1 = 0$. А для перехода к выражению (12) в (14) следует положить $q_2 = \infty$.

Как видно из рис. 2, интенсивность некогерентного рассеяния, вызывающего возрастание энергии поперечного движения, может на порядок и более превышать предсказания, сделанные на основе сечения (15). Это превышение нарастает с удалением от плоскости, демонстрируя, что пропорциональная резко спадающей ядерной плотности локальная интенсивность рассеяния на большие углы существенно уступает интенсивности рассеяния на малые. Последнее происходит нелокально под действием основной, сравнительно удаленной массы ядер атомов плоскости, попадающих в относительно широкую область прицельных параметров $b \sim R > u_1$, и описывается здесь на квантовом языке впервые. Нетрудно также видеть, что изменение средней энергии поперечного движения, как

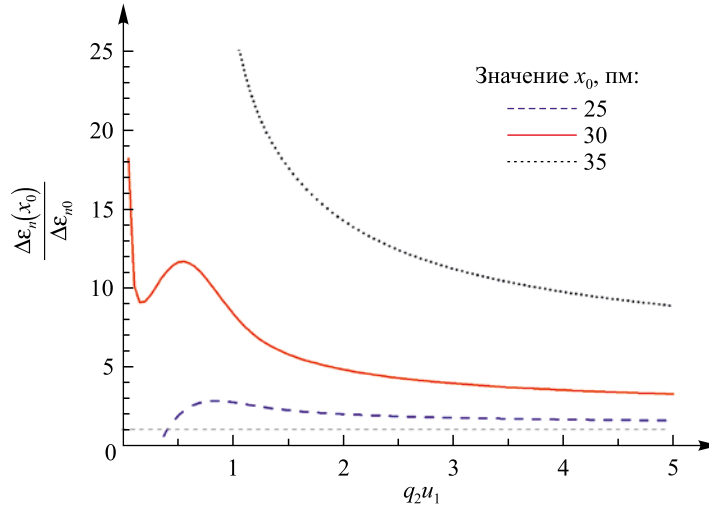


Рис. 2. Зависимость от верхней границы передаваемого импульса величины изменения поперечной энергии вследствие некогерентного рассеяния (14) при $q_1 = 0$ и трех указанных значений координаты точки поворота x_0 , лежащих в области перехода к ускоренному ядерному деканалированию. В качестве нормировки используется аналогичная (14) величина, рассчитанная для $q_1 = 0$ на основе кулоновского сечения (15). Граница передаваемого импульса q_2 выражена в характерных единицах u_1^{-1} .

Fig. 2. Incoherent transverse energy variation (14) dependence on the upper transferred momentum boundary at $q_1 = 0$ and three indicated values of the turning point coordinate x_0 , belonging to the region of the transition to the accelerated nuclear dechanneling. The value, evaluated with the use of Coulomb cross section (15) at $q_1 = 0$, was used for the normalization. The transferred momentum boundary q_2 is expressed in the typical units of u_1^{-1} .

и эффективное сечение (см. (21)) и средний квадрат угла рассеяния (см. (23)), может принимать отрицательные значения при малых переданных импульсах, теряя таким образом привычную физическую интерпретацию, для восстановления которой понадобится увеличить передаваемый импульс q_2 .

При нормировке волновой функции (7) выражение (14) описывает изменение средней энергии поперечного движения при движении между точкой поворота x_0 и областью, где концентрация ядер (2) становится пренебрежимо малой. Необходимая для моделирования процесса деканалирования средняя скорость нарастания энергии поперечного движения

$$\frac{d}{dt} \langle \epsilon_n(x_0, |q_x| \leq q_2) \rangle = \frac{2}{T(x_0, x'_0)} \left(\langle \Delta \mu_n(x_0, |q_x| \leq q_2) \rangle + \langle \Delta \mu_n(x'_0, |q_x| \leq q_2) \rangle \right) \quad (16)$$

представляет собой сумму ее изменений вблизи обеих точек поворота x_0 и x'_0 (см. рис. 1), деленную на время движения между ними, равное полупериоду каналирования:

$$\frac{T(x_0, x'_0)}{2} = \int_{x_0}^{x'_0} \frac{dx}{v_x(x)}. \quad (17)$$

Выделение однократного рассеяния и его моделирование на основе эффективного сечения

Известно [6; 10], что среднего квадрата угла многократного рассеяния на единичной длине, как и пропорциональной ему с коэффициентом $\frac{p}{2}$ средней скорости роста энергии поперечного движения (14), (16), недостаточно для адекватного описания процесса некогерентного рассеяния. Напомним [7; 6], что основной вклад в квадрат угла многократного рассеяния пропорционален логарифму отношения максимального угла рассеяния (переданного импульса) к минимальному. Корректному расчету величины последнего в присутствии когерентного рассеяния в кристаллах посвящены как развиваемая здесь теория, так и работа [6]. Максимальный же угол рассеяния определяется в логарифмическом приближении радиусом ядра и при всех доступных пока энергиях превышает, и, как правило, очень сильно, угол каналирования. Поэтому его подстановка в (14) либо в эквивалентную формулу для среднего квадрата угла многократного рассеяния [6] не является согласованной, поскольку включает

вклад рассеяния даже на самые большие углы в расчет кумулятивной характеристики процесса рассеяния на малые. С другой стороны, обсуждавшееся несколько десятилетий [11] понижение предела интегрирования по углам многократного рассеяния путем введения параметра, фиксируемого на основе различных качественных соображений, в действительности не является приемлемым [6; 11], поскольку исключает из рассмотрения любые катастрофические процессы, а также радикально изменяет расчет расходящейся на верхнем пределе интегрирования дисперсии квадрата угла рассеяния [5; 6].

Единственный выход из этой ситуации состоит в определении естественной физической границы между углами однократного и многократного рассеяния [10], задаваемой в данной статье граничным переданным импульсом q_2 , и моделировании рассеяния на малые углы с использованием среднеквадратичного угла, а на большие – при помощи сечения, отличающегося от (15) только поправками. Для рассматриваемых энергий легко возможен выбор численного значения границы раздела этих углов, существенно меньшего угла каналирования, поэтому результаты совместного моделирования многократного и однократного рассеяния вообще перестают зависеть от этого выбора, как это происходит в теории ионизационных потерь, источником которых также служит кулоновское рассеяние [9]. Кроме того, благодаря удобному аналитическому виду сечения (15), а также относительной редкости рассеяния на большие углы как теоретическая, так и техническая сторона его моделирования оказываются весьма простыми в полной противоположности моделированию рассеяния на малые, квантовая природа и количественный расчет характеристик которого являются основным содержанием работы [6] и данной статьи.

Введение верхней границы интегрирования $q_2 \sim \frac{\hbar}{u_1}$ позволяет использовать выражения (11)–(14) сугубо для представляющего наибольшие трудности описания сильно модифицирующегося в кристаллах рассеяния на малые углы, проявляющегося как средний по периоду каналирования рост энергии поперечного движения. Для моделирования же имеющего локальную природу однократного рассеяния на большие углы $\theta_x > \frac{q_2}{p}$ следует представить выражение (11) в виде интеграла по координате и переданному импульсу от эффективного сечения рассеяния, переходящего в пределе больших переданных импульсов $\vec{q} = (q_x, q_y)$ в сечение (15). Сделать это можно исходя как из выражения (12), так и (14) при помощи хорошо известных соотношений [12]

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{i\lambda x^2} dx = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{i\lambda(x_0 - x)} dx}{\sqrt{x_0 - x}} = \sqrt{\frac{\pi}{|\lambda|}} e^{i\frac{\pi\lambda}{4|\lambda|}}, \quad (18)$$

получая при этом

$$\langle \varepsilon_n(x_0, q_1 \leq |q_x| \leq q_2) \rangle = \int_{x_0}^{\infty} 2 \int_{q_1}^{q_2} \frac{q_x^2}{2p} \left(\int_{-\infty}^{\infty} \frac{d^2 \sigma_{\text{eff}}(q_x, q_y, x)}{dq_x dq_y} dq_y \right) dq_2 \frac{n(x) dx}{v(x)}, \quad (19)$$

где при помощи подстановки

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \sigma_{\text{eff}}(q_x, q_y, x)}{dq_x dq_y} n(x) &= \frac{8Z^2 \alpha^2 n_0 d}{\pi v^2} \times \\ &\times \int_0^{\infty} \left(1 - \frac{k^2}{q_x^2} \right) \frac{\left(\exp(-2k^2 u_1^2) - \exp(-(q_x^2 + k^2) u_1^2) \right) \cos\left(2xk + \frac{2k^3}{3\xi'^3} \right) dk}{\left((q_x + k)^2 + q_y^2 + k_s^2 \right) \left((q_x - k)^2 + q_y^2 + k_s^2 \right)} \end{aligned} \quad (20)$$

введено эффективное сечение рассеяния в точке x , переходящее при больших переданных импульсах в (15). В этом нетрудно убедиться, снова воспользовавшись гауссовым интегралом по переменной k в пределе $q \gg \frac{\hbar}{u_1}$.

Как уже отмечалось, основой адекватного моделирования некогерентного рассеяния является раздельное параллельное разыгрывание процессов отклонения частиц на малые и большие углы [10; 6]. При устойчивом движении в условиях плоскостного каналирования первое из них описывается скоростью медленного нарастания средней энергии поперечного движения (16). А рассеяние на большие углы адекватно моделируется методом розыгрыша однократного рассеяния с использованием

сечения (20), позволяющего, помимо процесса катастрофического деканализирования, описать также и рассеяние в перпендикулярном (параллельном атомным плоскостям) направлении оси y , либо сечения, дифференциального только по компоненте импульса, передаваемой в плоскости каналирования xz :

$$\frac{d^2\sigma_{\text{eff}}(q_x, x)}{d|q_x|} n(x) = 2n(x) \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d^2\sigma_{\text{eff}}}{dq_x dq_y} dq_y = \frac{16Z^2\alpha^2 n_0 d}{v^2} \times$$

$$\times \int_0^{\infty} \left(1 - \frac{k^2}{q_x^2}\right) \frac{\left(\exp(-2k^2 u_1^2) - \exp(-(q_x^2 + k^2) u_1^2)\right) \cos\left(2xk + \frac{2k^3}{3\xi'^3}\right) dk}{\sqrt{(q_x + k)^2 + k_s^2} \sqrt{(q_x - k)^2 + k_s^2} \left(\sqrt{(q_x + k)^2 + k_s^2} + \sqrt{(q_x - k)^2 + k_s^2}\right)}, \quad (21)$$

которое получается из (20) интегрированием по q_y . Нетрудно убедиться, что при больших переданных импульсах выражение (21) также согласуется с сечением рассеяния изолированным ядром в плоскости xz :

$$\lim_{|q_x| \gg u_1^{-1}} \frac{d^2\sigma_{\text{eff}}(x)}{d|q_x|} \approx \frac{4\pi Z^2\alpha^2}{v^2 |q_x|^3} \times$$

$$\times \left(1 - \sqrt{2} e^{-2q_x^2 u_1^2 - \frac{x^2}{2u_1^2}} + 2\sqrt{\frac{2}{\pi}} q_x e^{-2q_x^2 u_1^2 + \frac{x^2}{2u_1^2}} \operatorname{Re} \left(\frac{e^{2iq_x x}}{2q_x^2 u_1^2 - 3iq_x x - \frac{x^2}{u_1^2}} \right) \right). \quad (22)$$

Зависимость сечения (20) от модуля x -компоненты передаваемого импульса (рис. 3) демонстрирует, с одной стороны, значительные отклонения (20) от (22) в области $|q_x| \sim \frac{\hbar}{u_1}$, обусловленные вкладом удаленной от точки x_0 области $x \leq u_1$ максимальной концентрации ядер, а с другой – быстрое убывание этих отклонений уже при $|q_x| > \frac{1,5\hbar}{u_1}$.

Следует понимать, что локальные по координате x соотношения (20)–(22) получены из строгого выражения (12) для изменения энергии поперечного движения на основе специального представления интеграла по координате x , продиктованного пределом (15). Именно благодаря обладанию последним

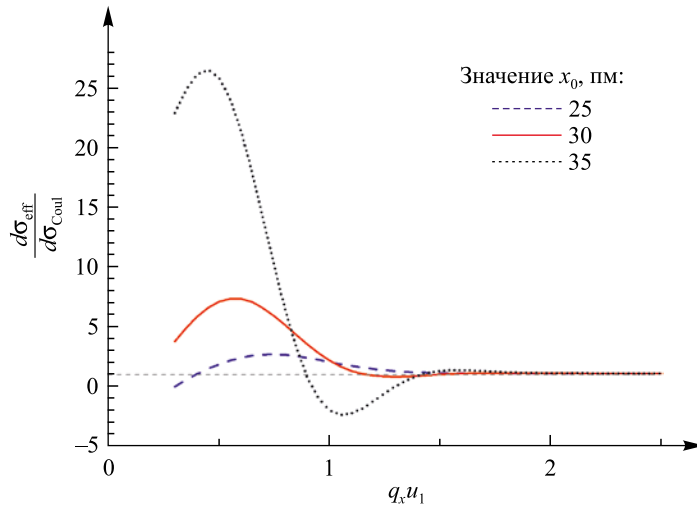


Рис. 3. Зависимость от компоненты передаваемого импульса эффективного сечения рассеяния в плоскости xz (21) при прежних значениях координаты x_0 , выраженного в единицах аналогичной величины, рассчитанной при помощи сечения (15)

Fig. 3. Dependence of the effective cross section of scattering in the xz plane (21) on the transferred momentum component, evaluated for the same coordinates x_0 and expressed in the units of the analogous value, evaluated using cross section (15)

эффективные сечения (20), (21) гарантированно корректно описывают процессы с большими передачами импульса. Вклады же в изменение движения малых передач $|q_x| \sim \frac{\hbar}{u_1}$ проявляются при моделировании сугубо кумулятивно, как описываемый (16) медленный рост энергии поперечного движения на протяжении многих периодов каналирования. При этом усредненная по координате величина (16) позволяет решить принципиальную проблему использования эффективных сечений рассеяния в области малых передач импульса, где их положительная определенность может нарушаться.

Обобщение результатов на случай отрицательно заряженных частиц и неканализованного движения

В качестве дальнейшего, более радикального шага выдвинем гипотезу применимости и предложим способ корректного использования эффективного сечения (21) для описания не только устойчивого каналированного движения положительно заряженных частиц с ограниченной поперечной энергией, но и движения как положительно, так и отрицательно заряженных частиц с произвольной величиной последней. Как и в осевом случае [6], проблема невозможности непротиворечивого определения локальных эффективных сечений рассеяния на малые углы решается введением средних квадратов углов рассеяния на единичной длине в плоскостях xz ($j = x$) и yz ($j = y$):

$$\frac{d\langle\theta_j^2(|q_x| \leq q_2)\rangle}{dz} \equiv 2n(x) \int_0^{q_2} \frac{q_j^2}{p^2} \frac{d\sigma_{\text{eff}}}{d|q_x|} dq_x = 2n(x) \int_0^{q_2} \frac{q_j^2}{p^2} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d^2\sigma_{\text{eff}}}{dq_x dq_y} dq_y dq_x, \quad (23)$$

поведение которых проиллюстрировано на рис. 4. Последний показывает (как и рис. 2 и 3), что интерференционные эффекты в рассеянии на неоднородном распределении ядер атомов плоскости приводят при малых передачах импульса $q < q_2 \leq \frac{\hbar}{u_1}$ к невозможности описания положительно определенными сечением и средним квадратом угла однократного и многократного рассеяния соответственно. Однако рис. 2–4 также позволяют убедиться, что повышение границы передаваемых импульсов до $q_2 \gg \frac{\hbar}{u_1}$ может обеспечить и необходимую для формулировки процедуры моделирования положительность, и традиционную физическую интерпретацию всех обсуждаемых величин везде, за исключением областей исчезающе малой плотности ядер $x > 3u_1$ (см. рис. 4). Однако, в силу того что при движении с достаточно большой поперечной энергией частицы (заряженные как положительно, так и отрицательно) быстро достигают областей плотности ядер, сравнимой с максимальной, вкладами областей исчезающе малой плотности на их фоне вполне допустимо пренебречь (см. рис. 1).

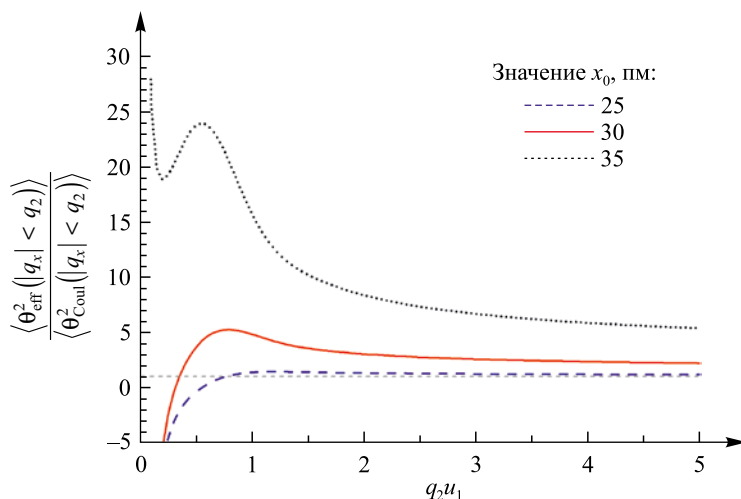


Рис. 4. Средний квадрат угла некогерентного рассеяния в плоскости xz , рассчитанный на основании эффективного сечения рассеяния (21) при прежних значениях координаты x_0 и выраженный в единицах аналогичной величины, найденной с использованием сечения (15)

Fig. 4. Average square of the incoherent scattering angle in the plane of xz , evaluated using effective cross section (21) at the same coordinates x_0 and expressed in the units of the analogous value, evaluated using (15) cross section

В широко распространенной упрощенной модели деканализации [11] некогерентное рассеяние на ядрах описывается исходя из плотности (2) и сечения (15), исключающих учет влияния неоднородности распределения (2), необходимость которого уже подтверждена экспериментально [8]. Помимо этого, сравнение интенсивности рассеяния на ядрах и электронах на основании пространственного распределения их плотностей (см. рис. 1, а) уже десятилетиями используется [11] для введения ядерного коридора, на границе которого $x_c \approx 20\text{--}25$ пм, как весьма упрощенно предполагается в [11], происходит «мгновенное включение» рассеяния на ядрах, приводящее к ускоренному деканализованию положительно заряженных частиц. На рис. 2–4 данные отражают неадекватность такого расчета, демонстрируя, что в действительности локальная интенсивность некогерентного рассеяния может на порядок и более превышать упрощенные предсказания на основе (2), (15), принципиально уточняя таким образом теорию рассеяния частиц ядрами в наиболее принципиальной для готовящихся экспериментов [2–4] пространственной области начала резкого роста интенсивности рассеяния частиц по мере приближения их к атомной плоскости. Действительно, сопоставляя результаты расчета, надо учитывать, что на рис. 3 и 4 представлены *локальные* значения эффективного сечения и среднего квадрата угла рассеяния, рассчитанные в точках x_0 с координатами 25; 30 и 35 пм, а на рис. 2 – величина изменения поперечной энергии, *интегральная* по области $x > x_0$, для которой те же координаты точки поворота x_0 играют уже роль нижних пределов интегрирования.

Кроме того, при нормировке, основанной на сечении (15), графики на рис. 2–4 непосредственно визуализируют предсказываемый коэффициент изменения рассматриваемых характеристик процесса некогерентного рассеяния. Это сразу позволяет убедиться, что большая по сравнению с локальными характеристиками (см. рис. 3 и 4) степень возрастания интегральной величины изменения поперечной энергии (см. рис. 2) объясняется вкладом в интеграл коэффициента модификации некогерентного рассеяния, большего при $x > x_0$, чем при $x = x_0$. При этом, помимо строго квантово-механического определения, достоинством интегральной величины изменения поперечной энергии является то, что ее использование позволяет избежать рассмотрения сложного поведения среднего квадрата угла рассеяния в каждой точке области исчезающе малой ядерной плотности. Однократное же рассеяние в последней может моделироваться по не содержащей интегралов асимптотической формуле (22) уже начиная с передач импульса $|q_x| > \frac{1,5\hbar}{u_1}$. Как показывает график на рис. 2 (штриховая линия), в области границы ядерного коридора описанный подход предсказывает интенсивность некогерентного рассеяния, в 1,5–2,0 раза превышающую величину, получаемую на основании сечения (15).

Таким образом, полученное на основании релятивистского квантово-механического расчета выражение для изменения поперечной энергии (14), а также введенные на его основе эффективные сечения (20), (21) позволяют впервые предложить метод моделирования процесса некогерентного рассеяния положительно и отрицательно заряженных частиц высоких энергий, свободный от параметров, десятки лет вводившихся на основании качественных соображений.

Библиографические ссылки

1. Барышевский ВГ. *Канализация, излучение и реакции в кристаллах при высоких энергиях*. Минск: БГУ; 1982. 256 с.
2. Baryshevsky VG, Tikhomirov VV. Crystal applications in high energy physics for new phenomena observation and acceleration technology development. *Proceedings of the National Academy of Sciences of Belarus. Physics and Mathematics Series*. 2017;4:20–32.
3. Baryshevsky VG. Electromagnetic dipole moment and time reversal invariance violating interactions of high energy short-lived particles in bent and straight crystals. *Physical Review Accelerators and Beams*. 2019;22:081004. DOI: 10.1103/PhysRevAccelBeams.22.081004.
4. Baryshevsky VG. Electromagnetic dipole moments and time reversal violating interactions for high energy charged baryons in bent crystals at LHC. *European Physical Journal C*. 2019;79(4):350. DOI: 10.1140/epjc/s10052-019-6857-6.
5. Tikhomirov VV. Quantitative theory of channeling particle diffusion in transverse energy in the presence of nuclear scattering and direct evaluation of dechanneling length. *European Physical Journal C*. 2017;77:483. DOI: 10.1140/epjc/s10052-017-5060-x.
6. Tikhomirov VV. Quantum features of high-energy particle incoherent scattering in crystals. *Physical Review Accelerators and Beams*. 2019;22(5):054501. DOI: 10.1103/PhysRevAccelBeams.22.054501.
7. Ter-Mikaelian ML. *High-energy electromagnetic processes in condensed media*. New York: Wiley; 1972. 457 p.
8. Tikhomirov VV, Bandiera L, Guidi V, Mazzolari A, Sytov A. Incoherent scattering reduction in crystals. *Proceedings of the 37th International Symposium on Dynamical Properties of Solids*. 2019;26(1):29. DOI: 10.3390/proceedings2019026029.
9. Ландау ЛД, Лифшиц ЕМ. *Квантовая механика. Нерелятивистская теория*. Москва: Наука; 1974. 752 с. (Теоретическая физика; том 3).
10. Tikhomirov VV. Simulation of multi-GeV electron energy losses in crystals. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 1989;36(3):282–285. DOI: 10.1016/0168-583X(89)90670-8.
11. Biryukov VM, Chesnokov YA, Kotov VI. *Crystal channeling and its application at high-energy accelerators*. Berlin: Springer; 2010. 219 p. (Accelerator Physics). DOI: 10.1007/978-3-662-03407-1.
12. Прудников АП, Брычков ЮА, Маричев ОИ. *Интегралы и ряды. Том 1. Элементарные функции*. Москва: Физматлит; 2002. 632 с.

References

1. Baryshevsky VG. *Kanalirovanie, izluchenie i reaktsii v kristallakh pri vysokikh energiakh* [Channeling, radiation and reactions in crystals at high energies]. Minsk: Belarusian State University; 1982. 256 p. Russian.
2. Baryshevsky VG, Tikhomirov VV. Crystal applications in high energy physics for new phenomena observation and acceleration technology development. *Proceedings of the National Academy of Sciences of Belarus. Physics and Mathematics Series*. 2017;4:20–32.
3. Baryshevsky VG. Electromagnetic dipole moment and time reversal invariance violating interactions of high energy short-lived particles in bent and straight crystals. *Physical Review Accelerators and Beams*. 2019;22:081004. DOI: 10.1103/PhysRevAccelBeams.22.081004.
4. Baryshevsky VG. Electromagnetic dipole moments and time reversal violating interactions for high energy charged baryons in bent crystals at LHC. *European Physical Journal C*. 2019;79(4):350. DOI: 10.1140/epjc/s10052-019-6857-6.
5. Tikhomirov VV. Quantitative theory of channeling particle diffusion in transverse energy in the presence of nuclear scattering and direct evaluation of dechanneling length. *European Physical Journal C*. 2017;77:483. DOI: 10.1140/epjc/s10052-017-5060-x.
6. Tikhomirov VV. Quantum features of high-energy particle incoherent scattering in crystals. *Physical Review Accelerators and Beams*. 2019;22(5):054501. DOI: 10.1103/PhysRevAccelBeams.22.054501.
7. Ter-Mikaelian ML. *High-energy electromagnetic processes in condensed media*. New York: Wiley; 1972. 457 p.
8. Tikhomirov VV, Bandiera L, Guidi V, Mazzolari A, Sytov A. Incoherent scattering reduction in crystals. *Proceedings of the 37th International Symposium on Dynamical Properties of Solids*. 2019;26(1):29. DOI: 10.3390/proceedings2019026029.
9. Landau LD, Lifshitz EM. *Kvantovaya mekhanika. Nerelyativistskaya teoriya* [Quantum Mechanics. Non-relativistic theory]. Moscow: Nauka; 1974. 752 p. (Teoreticheskaya fizika; tom 3). Russian.
10. Tikhomirov VV. Simulation of multi-GeV electron energy losses in crystals. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 1989;36(3):282–285. DOI: 10.1016/0168-583X(89)90670-8.
11. Biryukov VM, Chesnokov YA, Kotov VI. *Crystal channeling and its application at high-energy accelerators*. Berlin: Springer; 2010. 219 p. (Accelerator Physics). DOI: 10.1007/978-3-662-03407-1.
12. Prudnikov AP, Brychkov YuA, Marichev OI. *Integraly i ryady. Tom 1. Elementarnye funktsii* [Integrals and series. Volume 1. Elementary functions]. Moscow: Fizmatlit; 2002. 632 p. Russian.

Статья поступила в редакцию 01.11.2019.
Received by editorial board 01.11.2019.

УДК 53.082.53

ВОССТАНОВЛЕНИЕ ВЕРТИКАЛЬНОГО ПРОФИЛЯ КОНЦЕНТРАЦИИ ТРОПОСФЕРНОЙ ДВУОКИСИ АЗОТА ПО РЕЗУЛЬТАТАМ ИЗМЕРЕНИЙ В МИНСКЕ

И. И. БРУЧКОВСКИЙ^{1), 2)}

¹⁾Национальный научно-исследовательский центр мониторинга озоносферы БГУ,
ул. Курчатова, 7-816, 220045, г. Минск, Беларусь

²⁾Научно-исследовательский институт прикладных физических проблем им. А. Н. Севченко БГУ,
ул. Курчатова, 7, 220045, г. Минск, Беларусь

Представлены результаты первых измерений вертикального профиля концентрации двуокиси азота над г. Минском в 2017 г. при помощи многоосевого регистратора спектров MARS-B и анализ полученных пространственно-временных рядов. Восстановление вертикальных распределений двуокиси азота осуществлялось с использованием метода многоосевой дифференциальной оптической абсорбционной спектроскопии в диапазоне 338–370 нм и алгоритма PtiAM решения обратной задачи в течение светового дня. По итогам сравнительного анализа величин измерений предложен вариант классификации многообразия зарегистрированных профилей двуокиси азота по шести группам. Представлены ряды данных концентрации в приземном слое и общего содержания двуокиси азота, проведены их статистическое исследование, сравнения с уровнем предельно допустимой концентрации двуокиси азота для человека. Выполнено сравнение значений приземной концентрации с данными импактного газоанализатора сети мониторинга Белгидрометцентра (пост № 11). Анализ полученных величин отвергает гипотезу об их статистической связи на масштабе временного ряда 1 мес.

Ключевые слова: дифференциальная оптическая абсорбционная спектроскопия; двуокись азота; вертикальное распределение двуокиси азота.

Образец цитирования:

Бручковский ИИ. Восстановление вертикального профиля концентрации тропосферной двуокиси азота по результатам измерений в Минске. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика*. 2020;1:95–104.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-95-104>

For citation:

Bruchkouski I. First tropospheric measurements of the vertical profile of nitrogen dioxide concentration in Minsk. *Journal of the Belarusian State University. Physics*. 2020;1:95–104. Russian.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2020-1-95-104>

Автор:

Илья Игоревич Бручковский – научный сотрудник лаборатории оптических средств измерений¹⁾ и лаборатории оптико-физических измерений отдела аэрокосмических исследований²⁾.

Author:

Ilya I. Bruchkouski, scientific researcher at the optical measuring instruments laboratory^a and the laboratory of optical and physical measurements, aerospace research department^b.
bruchkovsky2010@yandex.ru

FIRST TROPOSPHERIC MEASUREMENTS OF THE VERTICAL PROFILE OF NITROGEN DIOXIDE CONCENTRATION IN MINSK

I. I. BRUCHKOUSKI^{a, b}

^aNational Ozone Monitoring Research and Education Center, Belarusian State University,
7-816 Kurčatava Street, Minsk 220045, Belarus

^bA. N. Sevchenko Institute of Applied Physical Problems, Belarusian State University,
7 Kurčatava Street, Minsk 220045, Belarus

The first measurement results of the vertical profiles of nitrogen dioxide over Minsk employing the multi-axis recorder of spectra MARS-B and analysis of the obtained spatio-temporal series for 2017 is presented. The vertical profiles of nitrogen dioxide have been retrieved in spectral region 338–370 nm by combining the multi-axis differential optical absorption spectroscopy method and PriAM algorithm for inverse problem solving during daylight. A comparative analysis of the measurement results has been carried out. The classification by dividing the obtained variety of registered nitrogen dioxide profiles into six groups has been presented. Obtained time series of surface layer nitrogen dioxide concentrations as well as nitrogen dioxide total columns have been presented, their statistics have been analyzed, and comparisons with the level of the maximum permissible concentration of nitrogen dioxide for a human have been performed. The values of near-surface concentrations have been compared with the impact gas analyzer data by monitoring network of the Belhydrometcentre (post No. 11), the analysis of the obtained data rejects the hypothesis of their statistical relationship on the scale of a 1-month time series.

Keywords: differential optical absorption spectroscopy; nitrogen dioxide; nitrogen dioxide profile.

Введение

В последние годы большое внимание уделяется вопросу влияния антропогенных эмиссий на глобальное состояние озонового слоя, исследуются механизмы воздействия антропогенных выбросов на погоду и климат. В настоящее время значительно изменяют состав атмосферы выбросы окислов азота, связанные со сгоранием органического топлива. Они оцениваются в пересчете на двуокись азота (NO_2), которая в основном образуется в результате окисления окиси азота.

Двуокись азота – ключевой компонент семейства азотных составляющих атмосферы, играющих важную роль в балансе озона. Окислы азота NO_x являются фотохимически активными газами, причем в процессе разрушения стратосферного озона доминирует природный азотно-окисный цикл благодаря большому содержанию в стратосфере частиц NO_x по сравнению с другими частицами [1]. В тропосфере в присутствии достаточного количества долгоживущих летучих органических соединений NO_2 , наоборот, способствует дополнительному образованию озона.

Различают естественную и антропогенную компоненты двуокиси азота. Естественная компонента проявляет себя в стратосфере в озоновом цикле. Антропогенная компонента, которая по своей абсолютной величине может превосходить естественную на порядок, в основном образуется в тропосфере в результате окисления окиси азота. Двуокись азота имеет класс опасности 3, характеризуется влиянием на репродуктивную функцию человека, мутагенной и канцерогенной активностью, а также играет одну из ключевых ролей в формировании климатических особенностей Земли. При этом NO_2 является одним из сильнейших загрязнителей атмосферы.

Цель работы – восстановление временных рядов вертикальных распределений общего содержания и приземной концентрации двуокиси азота над г. Минском в течение 2017 г. и проведение первичного анализа полученных рядов. Для достижения этой цели использовался пассивный метод дистанционного зондирования MAX-DOAS (multi-axis differential optical absorption spectroscopy) применительно к данным, полученным с помощью прибора MARS-B, созданного в Национальном научно-исследовательском центре мониторинга озоносферы (ННИЦ МО) БГУ.

Материалы и методы

Многоосевая модификация метода DOAS является относительно новым способом [2], позволяющим восстанавливать вертикальное распределение тех малых газовых составляющих, которые имеют полосы поглощения в видимом и ближнем УФ-диапазонах (двуокись азота, двуокись серы, оксид брома, формальдегид и глиоксаль).

Идея MAX-DOAS состоит в том, чтобы зарегистрировать солнечный свет, рассеянный из различных направлений визирования. На практике обычно используются углы возвышения над горизонтом. В основе лежит уравнение Бугера – Ламберта – Бэра, записанное для распространения излучения в атмосфере [3]:

$$I(\lambda, L) = I_0(\lambda) \exp \left(- \int_0^L \left(\sum_j \sigma_j(\lambda) c_j(l) + \varepsilon_R(\lambda, l) + \varepsilon_M(\lambda, l) \right) dl \right), \quad (1)$$

где I_0 – интенсивность источника в отсутствие поглотителей; σ_j – сечения поглощения малых газовых составляющих; c_j – концентрация j -й малой газовой составляющей; ε_R и ε_M – коэффициенты ослабления из-за рассеяния Рэлея и Ми соответственно. В таком случае измеряемая величина – наклонное содержание S_j – является интегральной концентрацией j -й газовой микропримеси вдоль неизвестного пути света длиной L :

$$S_j(L) = \int_0^L c_j(l) dl.$$

В целях уменьшения ошибки в качестве $I_0(\lambda)$ на практике используется измерение в зенитном направлении в полдень, называемое *опорным спектром* (англ. *reference spectrum*), а определяемые в ходе DOAS-анализа величины S_j именуются *дифференциальными наклонными содержаниями*, или *DSCD* (англ. *differential slant column density*).

Кроме описанных в формуле (1) трех основных процессов, есть еще один процесс второго порядка малости, пренебрежение которым накладывает на точность метода ограничение, а именно ринг-эффект. Сущность последнего проявляется в виде небольшого уширения линий поглощения и уменьшения их глубины при наблюдении с Земли в рассеянном атмосферой солнечном свете. Природа ринг-эффекта объясняется передачей части энергии излучения вращательным степеням свободы молекул воздуха (неэластичное вращательное рамановское рассеяние) [4]. Его величина не превышает нескольких процентов от интенсивности линии, однако она сравнима с вкладом в оптическую толщину поглощения двуокиси азота. Ринг-эффект учитывают с помощью введения в процедуру DOAS-анализа фиктивного сечения поглощения $\sigma_{\text{Ring}}(\lambda)$, которое рассчитывается методами квантовой механики.

Процедура DOAS-анализа (ее еще называют решением прямой задачи) представляет собой минимизацию целевой функции χ масштабированных сечений поглощения одновременно нескольких малых газовых составляющих, коэффициентов полинома, сечения ринг-эффекта и измеренного спектра поглощения, который получается путем удаления фраунгоферовых линий: $\ln I(\lambda, L) - \ln I_0(\lambda)$. Для минимизации функции χ обычно применяется нелинейный метод Левенберга – Марквардта в подходящем диапазоне длин волн $\lambda_1 - \lambda_2$:

$$\chi^2 = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \left(\ln I(\lambda, L) - \ln I_0(\lambda) + \sum_j \sigma_j(\lambda) DSCD_j(L) + \sum_m p_m \lambda^m \right) d\lambda \rightarrow \min, \quad (2)$$

где p_m – коэффициенты полинома степени m ; последнее слагаемое учитывает медленно меняющуюся часть для рассеяний Рэлея и Ми, а также для других атмосферных примесей с широкой полосой поглощения. Диапазон длин волн выбирается так, чтобы в нем содержались спектральные особенности сечений поглощений целевых малых газовых составляющих.

На практике также необходимо учитывать дополнительные эффекты, которые зависят от конкретной приборной реализации. Общая и обычная трудность состоит в том, что калибровка по длинам волн измеренных в лаборатории сечений поглощения и регистрируемого спектра всегда отличается, причем с течением времени она может изменяться. Учесть это можно путем замены в уравнении (2) величины $I(\lambda, L)$ на $I(a + b\lambda, L)$, где a и b – так называемые параметры сдвига и растяжения (англ. *shift* и *stretch*), которые участвуют в процедуре минимизации целевой функции одновременно со всеми сечениями поглощения и коэффициентами полинома.

Таким образом, предварительно проводится процедура DOAS-анализа в целях вычисления параметров *shift* и *stretch*, физический смысл которых есть не что иное, как параметры точной калибровки спектра по длинам волн. Обычно калибруемый спектр разбивается на несколько (9–15) окон, и для каждого из них рассчитываются величины *shift* и *stretch*.

Еще одна особенность практической реализации метода состоит в том, что уравнение (1) справедливо только для бесконечно узкой аппаратной функции спектрометра. В реальности есть разница между применением операции свертки до или после поглощения. Эта разница сильно зависит от спектральной структуры источника излучения: для сплошного источника она маленькая, а для солнечного спектра заметно проявляется при наличии сильных поглотителей, которые имеют структурные спектры [5]. Данное явление получило название I_0 -эффекта, учет которого осуществляется математически, на этапе выполнения операции свертки сечений поглощения малых газовых составляющих с аппаратной функцией спектрометра.

Таким образом, результатом решения прямой задачи для одной серии углов возвышения α будет набор дифференциальных наклонных содержаний $DSCD_j(\alpha)$, рассчитанных относительно опорного спектра, измеренного под углом 90° в полдень.

Физическое основание возможности восстановления информации о высотном распределении малой газовой составляющей состоит в том, что величины $DSCD_j(\alpha)$ различаются для неодинаковых углов возвышения α при расположении слоя исследуемой малой газовой составляющей на разных высотах. Однако чем выше находится этот слой, тем ближе величины измерений $DSCD_j(\alpha)$ для различных α , что определяет чувствительность метода по высоте. При этом распределение аэрозольного поглощения является важным фактором, оказывающим влияние на процедуру восстановления вертикального профиля малой газовой составляющей.

Распределение аэрозольного поглощения может быть восстановлено с использованием измеренных $DSCD(\alpha)$ димера кислорода. Димер кислорода – это столкновительный комплекс, который имеет спектральные особенности в диапазоне длин волн 340–490 нм, и вместе с тем его распределение в атмосфере известно, так как известно распределение кислорода. Единственный фактор, который может оказывать воздействие на изменчивость $DSCD(\alpha)$ димера кислорода – это аэрозольное поглощение. Подбирая параметры последнего в модели переноса излучения, можно минимизировать разницу между набором измеренных и моделированных $DSCD(\alpha)$ димера кислорода, получая таким образом параметры аэрозольного поглощения из спектральных измерений методом MAX-DOAS [3].

Решение задачи восстановления высотного распределения малой газовой составляющей в атмосфере по рассчитанным значениям $DSCD_j(\alpha)$ (ее также называют обратной задачей) может быть реализовано с применением модели переноса излучения *RTM* (от англ. *radiative transfer model*). В данной работе для обработки $DSCD_j(\alpha)$ в целях получения профиля концентрации двуокиси азота использовалась модель переноса излучения *SCIATRAN* [6] в составе алгоритма восстановления *PriAM*.

На первом шаге алгоритм итерационно запускает *RTM* для оптимизации профиля аэрозоля таким образом, чтобы обеспечивалось максимальное согласие между измеренными $DSCD(\alpha)$ и моделированными $DSCD(\alpha)$ димера кислорода. На втором шаге в *RTM* используются полученные на первом шаге профили аэрозоля, при этом алгоритм оптимизирует профиль концентрации двуокиси азота так, чтобы минимизировать разность между измеренными $DSCD(\alpha)$ и моделированными $DSCD(\alpha)$ двуокиси азота.

Измерения эпизодически проводились в г. Минске начиная с 2011 г. на площадке НИИЦ МО БГУ в точке с координатами: $53,837245^\circ$ с. ш., $27,475946^\circ$ в. д. при помощи многоосевого регистратора спектров MARS-B [7], разработанного на базе лабораторного спектрографа изображения Oriel MS257.

Измерения на постоянной основе в г. Минске начаты в январе 2017 г. и продолжаются по сей день в диапазоне длин волн 338–370 нм для углов возвышения $1^\circ, 2^\circ, 3^\circ, 4^\circ, 5^\circ, 6^\circ, 8^\circ, 15^\circ, 30^\circ$ и 90° в одном азимутальном направлении (на север). Время регистрации одного спектра занимает 4 с. За период наблюдений получено около 3 млн дневных спектров, которые обработаны методом DOAS в целях получения наклонных толщ двуокиси азота. DOAS-анализ проводился при помощи программного обеспечения *QDOAS v.2.111*. При этом для восстановления аэрозольного поглощения и $DSCD(\alpha)$ двуокиси азота применялись следующие настройки:

Диапазон длин волн	338–370 нм
Опорный спектр	Зенитный спектр, зарегистрированный около 11:30 UTC (± 15 мин)
Сечения поглощения:	
NO ₂ (298 K)	Vandaele et al. (1998) с I_0 -коррекцией (10^{17} молекул/см ²)
NO ₂ (220 K)	Vandaele et al. (1998) с I_0 -коррекцией (10^{17} молекул/см ²)
O ₃ (223 K)	Serdyuchnko et al. (2014) с I_0 -коррекцией (10^{20} молекул/см ²)
O ₃ (243 K)	Serdyuchnko et al. (2014) с I_0 -коррекцией (10^{20} молекул/см ²)
O ₄ (293 K)	Thalman and Volkamer (2013)
HCHO (293 K)	Meller and Moortgat (2000)
Сечение ринг-эффекта	Ring_QDOAS_SAO2010
Параметры полинома	Полином 5-го порядка (6 коэффициентов)
Сдвиг интенсивности	Постоянная величина (const)

В данных настройках имеется указание на коррекцию температурного смещения спектра, а параметры полинома соответствуют полиному для медленно меняющейся спектральной компоненты.

Предварительная обработка спектров включала в себя вычитание темнового сигнала, который измерялся в ночное время ежедневно.

Результаты и их обсуждение

Все многообразие восстановленных профилей концентрации двуокиси азота за исследуемый период наблюдений (2017) можно условно разделить на шесть групп.

К первой группе относятся профили «чистых» дней, для которых общее содержание двуокиси азота в столбе атмосферы составляет около $0,5 \cdot 10^{16}$ молекул/см², приземная концентрация равна 2–5 млрд⁻¹. Характерный профиль концентрации двуокиси азота для первой группы представлен на рис. 1.

Вторая группа характеризуется выраженными утренними и вечерними всплесками, совпадающими по времени с интенсивностью дорожного движения. При этом вся двуокись азота находится в слое до 50–100 м, приземная концентрация в часы пик достигает 10–20 млрд⁻¹, относительно быстрое перемещение воздушных масс приводит к уменьшению концентрации загрязнений в середине дня. Типичный профиль концентрации двуокиси азота для второй группы представлен на рис. 2.

В третью группу входят случаи наблюдаемого развития конвективных процессов, при которых происходит подъем загрязненного приземного слоя на высоту 100–1200 м. Лучше всего это заметно в первой половине дня, после прогрева солнечным излучением подстилающей поверхности. При этом воздух в нижнем слое очищается до 0–2 млрд⁻¹, тогда как общее содержание может оставаться постоянным. К вечеру загрязненный воздух может снова опускаться. Такие процессы наблюдались с апреля по октябрь, но преимущественно в летние месяцы. На рис. 3 представлен профиль концентрации двуокиси азота для одного из таких случаев.

К четвертой группе можно отнести наблюдение одиночных всплесков концентрации двуокиси азота, не связанных с дорожным движением. Наблюдаемые всплески имели продолжительность от 5 мин до 1 ч, причем за это время концентрация NO₂ могла возрастать до 20–80 млрд⁻¹ (рис. 4).

В пятую группу входят случаи аномально высоких концентраций двуокиси азота, характеризующиеся стабильно высокими значениями (15–30 млрд⁻¹) в течение 3–10 ч (рис. 5).

К шестой группе относится комбинированное загрязнение. Обобщение классификации дневных профилей представлено на рис. 6.

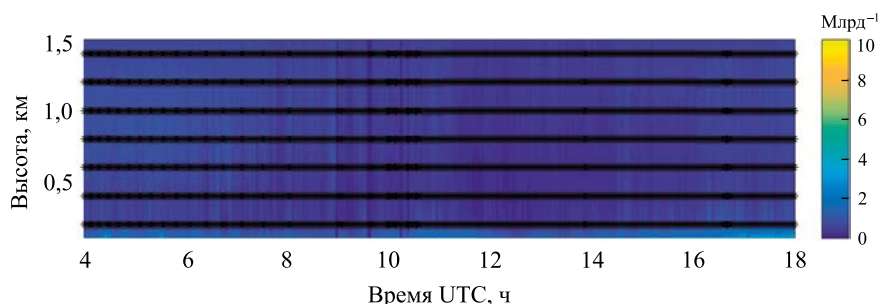


Рис. 1. Вертикальное распределение NO₂ для «чистого» дня (7 марта 2017 г.)

Fig. 1. NO₂ vertical profile: «clean» day (2017 March 7)

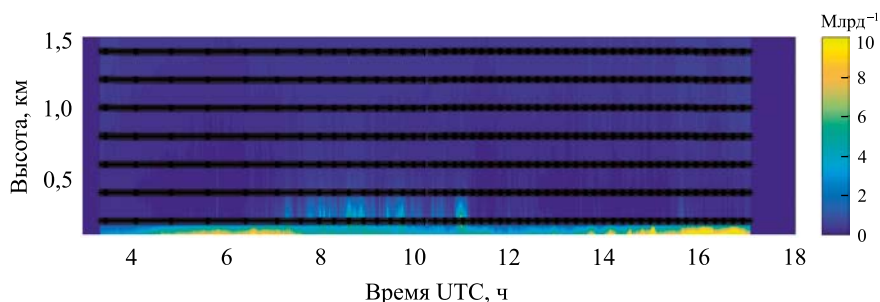


Рис. 2. Вертикальное распределение NO₂ при интенсивном движении автотранспорта (25 августа 2017 г.)

Fig. 2. NO₂ vertical profile: traffic pollution (2017 August 25)

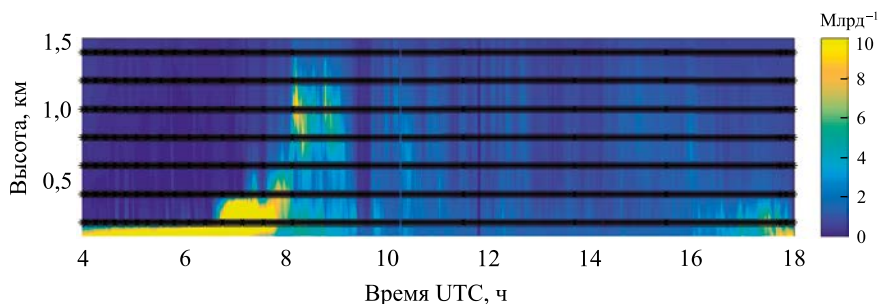


Рис. 3. Вертикальное распределение NO_2 при конвективном подъеме (10 июня 2017 г.)
Fig. 3. NO_2 vertical profile: upwelling convection (2017 June 10)

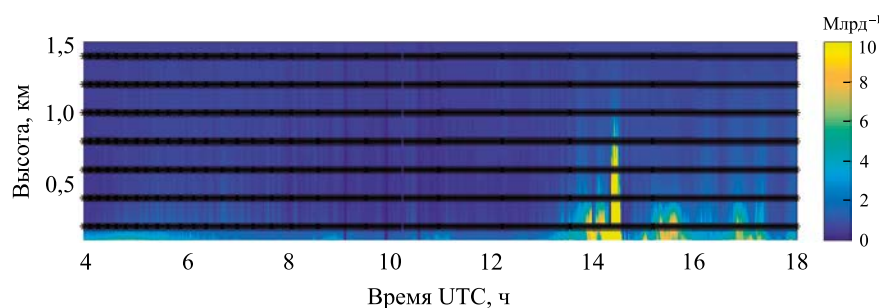


Рис. 4. Вертикальное распределение NO_2 : одиночные всплески (21 июня 2017 г.)
Fig. 4. NO_2 vertical profile: strong plumes (2017 June 21)

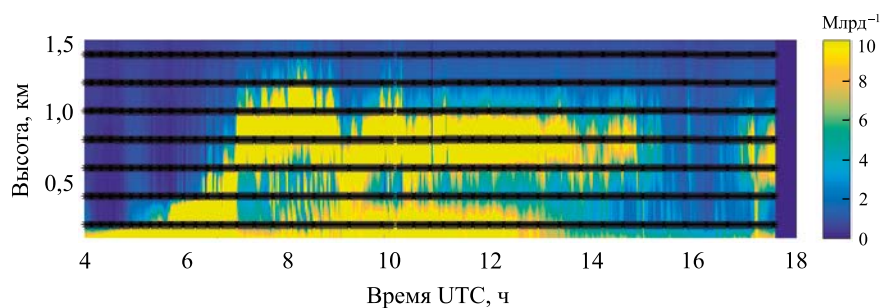


Рис. 5. Вертикальное распределение NO_2 : аномальный случай (19 мая 2017 г.)
Fig. 5. NO_2 vertical profile: anomaly case (2017 May 19)

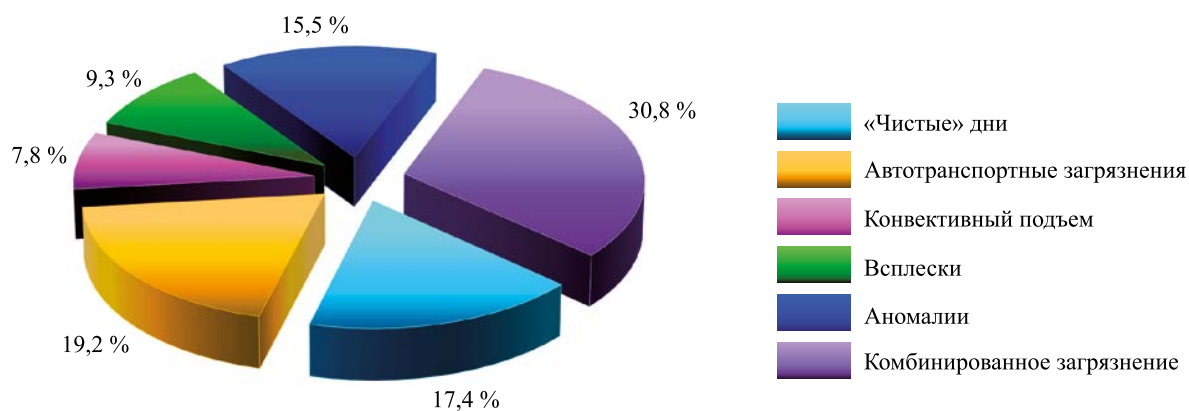


Рис. 6. Вертикальные распределения NO_2 по методу MAX-DOAS в г. Минске (2017)
Fig. 6. NO_2 profiles by MAX-DOAS method in Minsk (2017)

Для расчета общего содержания двуокиси азота полученный профиль концентрации интегрировался по высоте. Приземное содержание NO_2 вычислялось как концентрация в нижнем слое оптимизированного профиля в модели переноса излучения, которая затем пересчитывалась в единицы – млрд⁻¹. Результаты в виде временных рядов для 2017 г. представлены на рис. 7.

Предварительная обработка данных по общему содержанию двуокиси азота в целях проведения статистического анализа состояла в сглаживании соответствующего временного ряда и выявлении его аномальных значений. Сглаживание проводилось методом скользящего среднего по 50 точкам, что соответствует усреднению в интервале времени около 30 мин.

Замечено, что более 90 % всех изменений общего содержания двуокиси азота в течение года происходят в пределах до $1,5 \cdot 10^{16}$ молекул/см², при этом среднегодовое значение составляет $1,0 \cdot 10^{16}$ молекул/см².

Для приземной концентрации двуокиси азота установлена предельно допустимая среднесуточная величина – 0,04 мг/м³, или 19,7 млрд⁻¹. Интерес представляет исследование аномалий, значения которых превосходят $1,5 \cdot 10^{16}$ молекул/см², а также случаев превышения среднесуточной предельно допустимой концентрации (ПДК): в 5 % наблюдений за 2017 г. зарегистрировано такое превышение. Увеличение среднесуточной ПДК более чем в 2 раза наблюдалось в 0,2 % случаев.

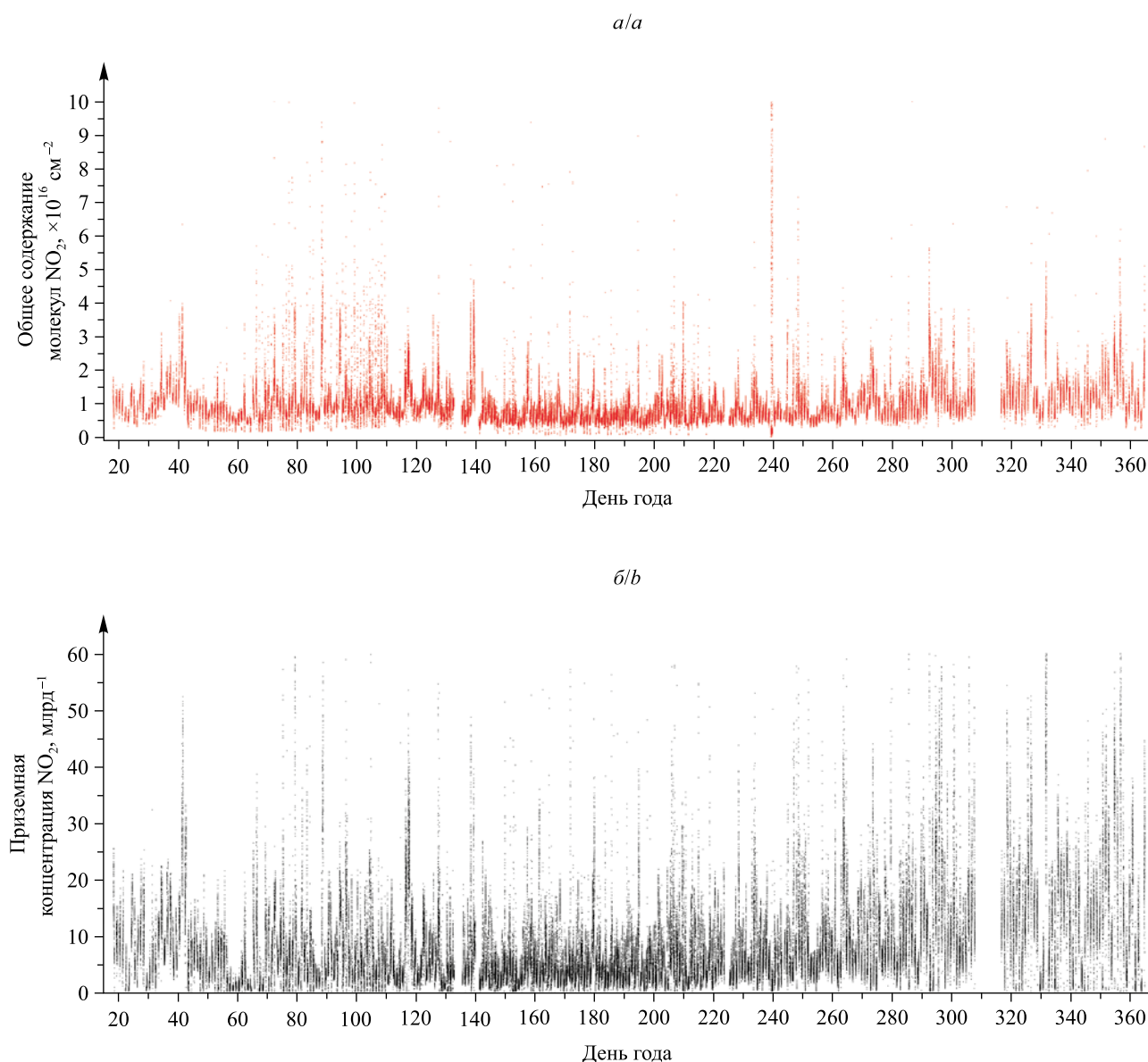


Рис. 7. Результаты наблюдений NO_2 по методу MAX-DOAS в г. Минске (2017):

a – общее содержание; *б* – приземная концентрация

Fig. 7. NO_2 MAX-DOAS measurements in Minsk (2017):

a – total column; *b* – near-surface concentration

На рис. 8 представлены гистограммы распределения временных рядов двуокиси азота над г. Минском для общего содержания и приземной концентрации. Стоит отметить, что идентичная форма распределения может указывать на преобладающий вклад в общее содержание локальных источников двуокиси азота.

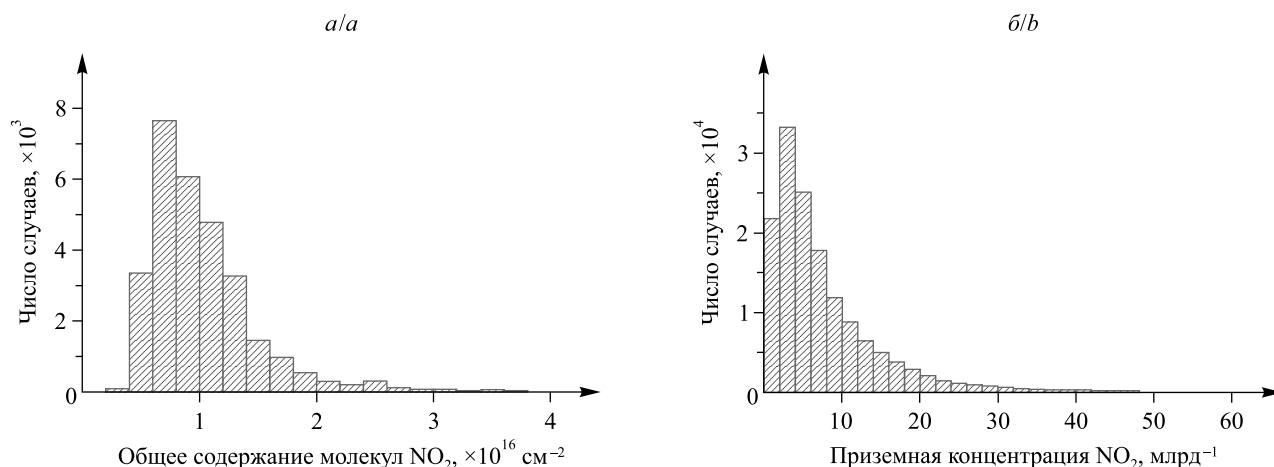


Рис. 8. Гистограммы распределения временных рядов двуокиси азота в г. Минске (2017):

a – общее содержание; *б* – приземная концентрация

Fig. 8. NO₂ time series statistical distribution in Minsk (2017):

a – total column; *b* – near-surface concentration

На рис. 9 представлено сравнение данных, найденных по методу MAX-DOAS, и ближайшей стационарной точки мониторинга Белгидрометцентра – поста № 11, полученных методом отбора проб на масштабе времени 1 мес.

В рамках данной работы проверялась следующая гипотеза: достаточно ли велика разность между стандартными отклонениями распределений двух временных рядов данных (см. рис. 9, *a*) для того, чтобы ее можно было объяснить действием независимого фактора, а не случайностью, связанной с малым объемом выборки.

Для обоих рядов были рассчитаны средние значения, коэффициент корреляции, стандартные отклонения и корреляционная таблица. Наглядной иллюстрацией последней служит корреляционное поле (см. рис. 9, *б*). Среднее значение для метода MAX-DOAS составило 6,09 млрд⁻¹, для импактного метода – 14,9 млрд⁻¹, стандартные отклонения – 4,2 и 14,2 млрд⁻¹ для MAX-DOAS и импактного методов соответственно, что позволило отвергнуть гипотезу о статистической связи двух рядов данных, полученных разными методами.

Кроме того, найденная величина коэффициента корреляции ($r = 0,24$) соответствует слабой связи исследуемых временных рядов (по шкале Чеддока).

Объяснить вышеуказанный факт можно тем, что импактные измерения в большей степени подвержены влиянию пространственных неоднородностей поля исследуемого объема воздуха, в то время как метод MAX-DOAS подразумевает усреднение измеряемой величины вдоль пути световых лучей в атмосфере, попадающих в прибор из малого телесного угла небесной сферы. Как правило, при этом речь идет о расстояниях 5–10 км в зависимости от прозрачности атмосферы. Кроме того, в данных газоанализатора возможно наличие значительной шумовой компоненты.

За 2017 г. проведено 146 500 измерений уровня тропосферной двуокиси азота, причем в 5 % случаев зафиксировано превышение ее среднесуточной ПДК. Во временном масштабе содержание двуокиси азота в атмосфере превышало среднесуточную ПДК в течение 73 ч в году.

На рис. 10 представлен среднегодовой (2017) дневной ход общего содержания двуокиси азота над г. Минском, полученный методом скользящего среднего по 500 точкам.

На рис. 10 заметно наличие суточной компоненты в виде фоновой подставки, т. е. плавная часть дневного хода двуокиси азота частично определяется выбросами автотранспорта. При этом в течение года можно наблюдать около 20 резких кратковременных выбросов (продолжительность выброса не превышает 30 мин), в ходе которых общее содержание двуокиси азота увеличивается в 1,5–6,0 раза по сравнению с фоновым среднегодовым значением 10¹⁶ молекул/см². При статистическом исследовании причинно-следственной связи выбросов с направлением ветра не выявлено преимущественного направления ветра, при котором выбросы происходят чаще всего.

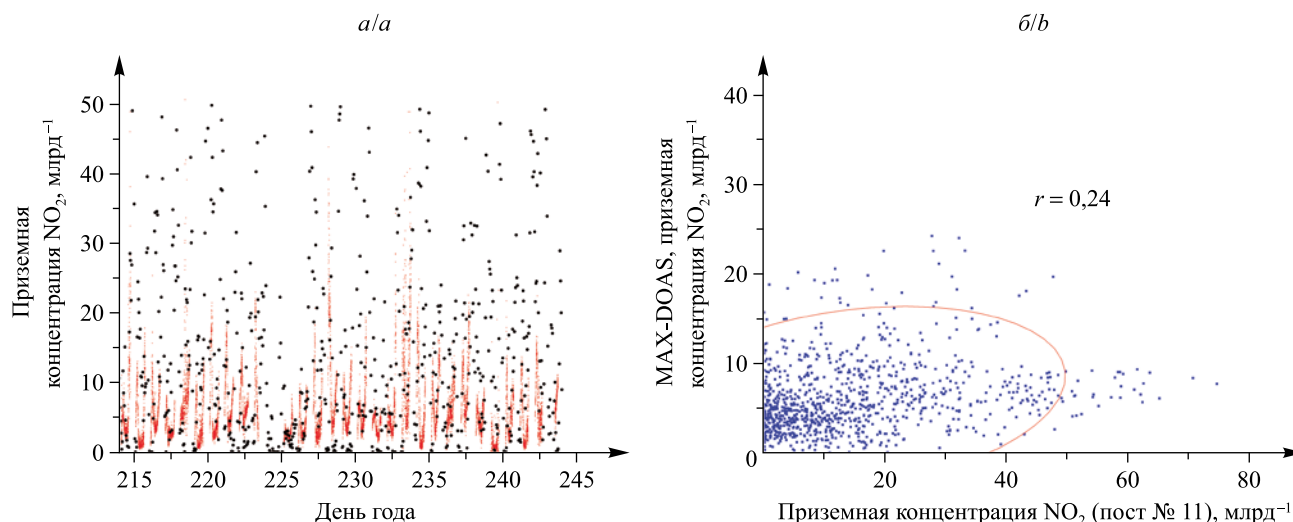


Рис. 9. Сравнение данных о приземной концентрации двуокиси азота в г. Минске (август 2017 г.), полученных методом MAX-DOAS (а, красные точки) и импактным методом отбора проб с использованием газоанализатора (а, черные точки), и корреляционное поле (б)

Fig. 9. NO_2 near-surface concentration time series comparison in Minsk (2017 August): MAX-DOAS method (a, red dots); impact sampling method by calibrated gas analyzer (a, black dots); correlation matrix (b)

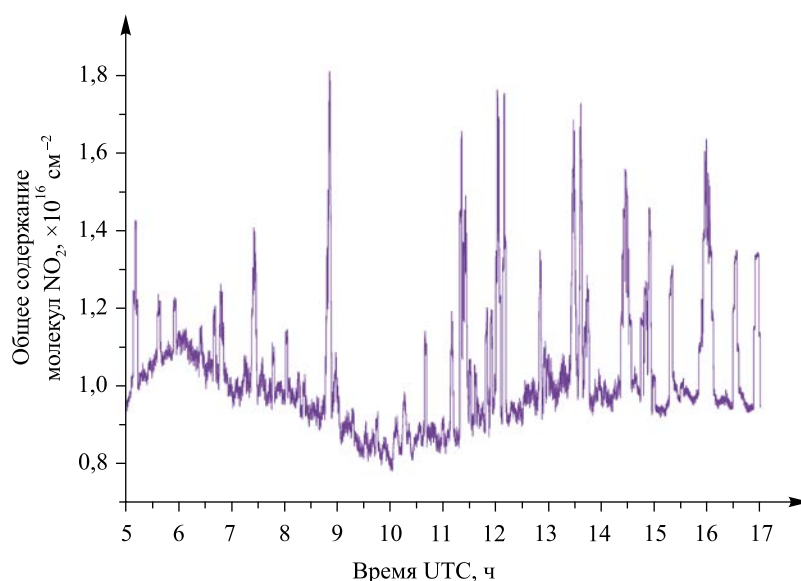


Рис. 10. Среднегодовой дневной ход двуокиси азота над г. Минском

Fig. 10. NO_2 total column averaged for 1 year time series, Minsk

Таким образом, проанализирована концентрация тропосферной двуокиси азота над г. Минском. Методом MAX-DOAS обработан массив данных, включающий в себя около 3 млн спектров за 2-летний период (с января 2017 по декабрь 2018 г.), приведены результаты статистической обработки для 2017 г., а именно:

- классифицированы вертикальные распределения двуокиси азота и представлены их шесть типичных дневных ходов;
- исследованы статистические распределения временных рядов общего содержания и приземной концентрации двуокиси азота;
- проведено сравнение ряда данных, полученного методом MAX-DOAS, с рядом данных импактного газоанализатора сети мониторинга Белгидрометцентра (пост № 11);
- проанализирован среднегодовой дневной ход тропосферной двуокиси азота.

Восстановленные по методу MAX-DOAS приземные концентрации двуокиси азота сравнивались с данными импактного газоанализатора стационарной точки мониторинга Белгидрометцентра. Анализ рядов данных, полученных вышеуказанными методами, отвергает гипотезу об их статистической связи.

Библиографические ссылки

1. Ларин ИК. *Химическая физика озонового слоя*. Москва: ГЕОС; 2013. 159 с.
2. Irie H, Kanaya Y, Akimoto H, Iwabuchi H, Shimizu A, Aoki K. First retrieval of tropospheric aerosol profiles using MAX-DOAS and comparison with lidar and sky radiometer measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*. 2008;8:341–350. DOI: 10.5194/acp-8-341-2008.
3. Platt U, Stutz J. *Differential optical absorption spectroscopy: principles and applications*. Berlin: Springer-Verlag; 2008. 598 p. DOI: 10.1007/978-3-540-75776-4.
4. Grainger JF, Ring J. Anomalous fraunhofer line profiles. *Nature*. 1962;193(4817):762. DOI: 10.1038/193762a0.
5. Wagner T, Dix B, von Friedeburg C, Frieß U, Sanghavi S, Sinreich R, et al. MAX-DOAS O₄ measurements: a new technique to derive information on atmospheric aerosols – principles and information content. *Journal of Geophysical Research*. 2004;109(D22):D22205. DOI: 10.1029/2004JD004904.
6. Reed AJ, Thompson AM, Kollonige DE, Martins DK, Tzortziou MA, Herman JR, et al. Effects of local meteorology and aerosols on ozone and nitrogen dioxide retrievals from OMI and pandora spectrometers in Maryland, USA during DISCOVER-AQ 2011. *Journal of Atmospheric Chemistry*. 2015;72(3–4):455–482. DOI: 10.1007/s10874-013-9254-9.
7. Бручковский ИИ, Боровский АН, Демин ВС, Красовский АН. Прибор для дистанционной регистрации двуокиси азота в атмосфере. *Вестник БГУ. Серия 1. Физика. Математика. Информатика*. 2013;1:41–45.

References

1. Larin IK. *Khimicheskaya fizika ozonovogo sloya* [Chemical physics of the ozone layer]. Moscow: GEOS; 2013. 159 p. Russian.
2. Irie H, Kanaya Y, Akimoto H, Iwabuchi H, Shimizu A, Aoki K. First retrieval of tropospheric aerosol profiles using MAX-DOAS and comparison with lidar and sky radiometer measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*. 2008;8:341–350. DOI: 10.5194/acp-8-341-2008.
3. Platt U, Stutz J. *Differential optical absorption spectroscopy: principles and applications*. Berlin: Springer-Verlag; 2008. 598 p. DOI: 10.1007/978-3-540-75776-4.
4. Grainger JF, Ring J. Anomalous fraunhofer line profiles. *Nature*. 1962;193(4817):762. DOI: 10.1038/193762a0.
5. Wagner T, Dix B, von Friedeburg C, Frieß U, Sanghavi S, Sinreich R, et al. MAX-DOAS O₄ measurements: a new technique to derive information on atmospheric aerosols – principles and information content. *Journal of Geophysical Research*. 2004;109(D22):D22205. DOI: 10.1029/2004JD004904.
6. Reed AJ, Thompson AM, Kollonige DE, Martins DK, Tzortziou MA, Herman JR, et al. Effects of local meteorology and aerosols on ozone and nitrogen dioxide retrievals from OMI and pandora spectrometers in Maryland, USA during DISCOVER-AQ 2011. *Journal of Atmospheric Chemistry*. 2015;72(3–4):455–482. DOI: 10.1007/s10874-013-9254-9.
7. Bruchkouski II, Borovski AN, Demin VS, Krasouski AN. Instrument for remote registration of atmospheric nitrogen dioxide. *Vestnik BGU. Seriya 1. Fizika. Matematika. Informatika*. 2013;1:41–45. Russian.

Статья поступила в редколлегию 25.11.2019.
Received by editorial board 25.11.2019.

ЮБИЛЕИ

JUBILEES

**Василий Иванович
СТРАЖЕВ**

**Vasilij Ivanovich
STRAZHEV**



Исполнилось 75 лет известному белорусскому физику, доктору физико-математических наук, профессору Василию Ивановичу Стражеву.

Василий Иванович родился 26 июля 1944 г. в г. Каменске Полтавской области УССР. В 1961 г. поступил на физический факультет БГУ, который окончил в 1966 г. по специализации «теоретическая физика», и продолжил учебу в аспирантуре Института физики АН БССР. Кандидатскую диссертацию на тему «К проблеме дуальной симметрии в электродинамике» защитил в 1971 г., а докторскую диссертацию на тему «Спиновые степени свободы и калибровочные симметрии» – в 1986 г.

С 1970 по 1988 г. работал научным сотрудником Института физики АН БССР, ученым секретарем Отделения физико-математических наук АН БССР, инструктором отдела науки и учебных заведений Минского обкома КПБ, заведующим отделом науки и учебных заведений Минского горкома КПБ, заведующим кафедрой теоретической механики Белорусского института механизации сельского хозяйства. С 1988 по 1994 г. в Министерстве образования БССР занимал должности заместителя начальника, затем начальника Главного управления высшей школы и науки, заместителя министра образования. С 1994 по 1997 г. – министр образования

и науки Республики Беларусь, с 1997 по 2001 г. – министр образования Республики Беларусь.

С 2001 по 2003 г. В. И. Стражев – ректор Республиканского института высшей школы БГУ, советник ректора БГУ, а с 2003 по 2008 г. – ректор Белорусского государственного университета. С 2008 г. по настоящее время – профессор кафедры теоретической физики и астрофизики физического факультета БГУ.

Основные научные исследования профессора В. И. Стражева посвящены развитию современных направлений теоретической физики – теории магнитного заряда, поляризационной симметрии в теории поля, исследованиям решений уравнения Дирака – Кэлера, калибровочным теориям с компактной группой внутренней симметрии. Он – автор свыше 200 научных работ, в том числе 8 монографий. Фундаментальный труд «Электродинамика с магнитным зарядом», написанный совместно с Л. М. Томильчиком, является первым и до настоящего времени наиболее ясным и наглядным изложением физических следствий, вытекающих из идеи магнитного монополя в электродинамике. Под научным руководством Василия Ивановича подготовлены семь кандидатов и два доктора физико-математических наук. Выполненные

совместно с учениками исследования дуальной симметрии электромагнитных полей привели к созданию в Беларуси научной школы по актуальной и разнообразной сегодня тематике, объединяемой термином «магнитный монополь». Будучи министром образования и науки Республики Беларусь, В. И. Стражев всемерно содействовал организации и проведению в стране крупных международных физических конференций, в том числе конференции «Квантовые системы: новые подходы и методы» на базе кафедры теоретической физики и астрофизики БГУ.

Исключительный творческий и организаторский талант позволил Василию Ивановичу достичь значимых результатов в образовательной сфере как на республиканском, так и на международном уровне. С 1997 г. он был председателем Комитета по сотрудничеству в области образования стран СНГ, а в 2001 г. – председателем правления республиканского общества «Знание». В 2005 г. избран иностранным членом Российской академии образования.

Существенный вклад В. И. Стражев внес в развитие и укрепление международных связей по подготовке иностранных студентов. Во время его работы ректором были подписаны договоры о сотрудничестве БГУ с университетами Турции, Швеции, Латвии, Польши, Республики Корея, Германии, Объединенных Арабских Эмиратов, Таджикистана. Значительны заслуги Василия Ивановича в становлении международных образовательных и культурных связей с Китайской Народной Республикой. На протяжении многих лет он являлся директором Республиканского института китаеведения имени Конфуция БГУ.

За достижения в развитии науки, образования и культуры В. И. Стражев награжден Почетной грамотой Совета Министров Республики Беларусь, медалью Международной академии наук высшей школы, медалью «За доблестный труд. В ознаменование 100-летия со дня рождения В. И. Ленина», медалью «60 лет освобождения Беларуси в Великой Отечественной войне», орденом Евфросинии Полоцкой и медалью святителя Кирилла Туровского (от Белорусской православной церкви), золотым почетным знаком имени Петра Великого «За благородные труды», медалью А. С. Пушкина.

Сохраняя оптимизм и высокую творческую активность, Василий Иванович и в настоящее время плодотворно занимается преподавательской и научной деятельностью. Многие годы он читает студентам физического факультета курс лекций по электродинамике, разрабатывает учебные пособия по этой дисциплине. Круг его интересов необычайно широк – это не только естественные, но и гуманитарные науки, в том числе социология. Не остаются без внимания В. И. Стражева также вопросы истории физики, в особенности проблемы становления и развития максвелловской теории электромагнетизма.

Активная жизненная позиция, талант исследователя в сочетании с большими педагогическими способностями, доброжелательностью, умением работать с людьми снискали Василию Ивановичу глубокое уважение, признание и авторитет.

Коллеги, друзья и ученики сердечно поздравляют Василия Ивановича Стражева с юбилеем и искренне желают ему долгих лет жизни, крепкого здоровья, счастья, благополучия, новых творческих успехов.

**Владимир Васильевич
МОГИЛЬНЫЙ****Uladzimir Vasilevich
MAHILNY**



Владимиру Васильевичу Могильному, доктору физико-математических наук, профессору, заслуженному работнику БГУ, исполнилось 70 лет.

В. В. Могильный родился 5 декабря 1949 г. в г. Минске. В 1967 г. окончил среднюю школу № 27 и поступил на отделение радиофизики физического факультета БГУ. После окончания учебы в университете в 1972 г. был распределен на работу в НИИ прикладных физических проблем, где трудился по 1982 г. в должности инженера, а затем младшего научного сотрудника.

Первые экспериментальные исследования Владимира Васильевича были посвящены хемилюминесценции, вызываемой термолизом пероксидных органических соединений в жидких растворах, но затем трансформировались в изучение светочувствительных полимеров, которые стали основным предметом научного интереса на все последующие годы. После окончания аспирантуры на кафедре физической оптики физического факультета БГУ В. В. Могильный подготовил и защитил в 1981 г. кандидатскую диссертацию «Спектрально-люминесцентное исследование фотопроецтов в слоях жесткоцепных сополимеров п-винилбензальдегида». В ней представлены результаты экспериментальных исследований процесса фотосшивания полимеров, включающих молекулы замещенного бензальдегида. Это позволило в дальнейшем разработать существенно более простые и дешевые методики химического синтеза полимеров подобной структуры, обладающих перспективными свойствами негативных фоторезистов для ультрафиолетовой области спектра. Решением этой проблемы Владимир Васильевич занимался вместе с сотрудниками кафедры физической оптики, где продолжил работу в должности старшего научного сотрудника (с 1982 г.) и доцента (с 1984 г.).

Результаты исследований процессов оптической записи в фоточувствительных синтетических полимерах и преобразования оптических свойств

ансамблей взаимодействующих фотохромных центров обобщены в докторской диссертации «Фотоиндуцированные преобразования структуры и оптических свойств неупорядоченных полимерных сред», которая была защищена в 1998 г. Ученое звание профессора В. В. Могильному было присвоено в 2004 г.

На протяжении всего периода своей профессиональной деятельности Владимир Васильевич уделяет внимание практическому использованию своих научных результатов. Под его руководством выполнены десятки научно-технических разработок фоточувствительных полимерных материалов и технологий их применения по договорам с организациями и предприятиями Беларуси, договорам в рамках государственных научно-технических программ. Он пользуется авторитетом в качестве эксперта, является членом совета по защита диссертаций.

В. В. Могильный опубликовал более 150 статей в отечественных и международных научных изданиях, стал соавтором 15 изобретений, подготовил 3 учебных пособия. Разработал и читает лекционные курсы «Основы волноводной оптики», «Оптическая память», «Светочувствительные полимерные материалы», «Полимеры в оптике».

За успешную научно-педагогическую работу Владимир Васильевич неоднократно награждался почетными грамотами БГУ, в 2010 г. получил благодарность ректора БГУ, в 2016 г. ему присвоено почетное звание «Заслуженный работник Белорусского государственного университета».

Глубокое уважение, признание и авторитет, которыми пользуется Владимир Васильевич, – результат его трудолюбия, таланта физика-экспериментатора и преподавателя, высоких душевных качеств. Коллеги, ученики и друзья горячо и сердечно поздравляют Владимира Васильевича Могильного с юбилеем и от всей души желают ему крепкого здоровья, счастья, благополучия и новых творческих успехов.



Алексей Леонидович ТОЛСТИК

Alexei Leonidovich
TOLSTIK

Исполнилось 60 лет доктору физико-математических наук, профессору, заслуженному работнику БГУ Алексею Леонидовичу Толстику.

Алексей Леонидович родился 2 ноября 1959 г. в г. Минске. После окончания с золотой медалью средней школы № 23 поступил на физический факультет Белорусского государственного университета, который окончил с отличием в 1981 г. С этого времени работал на кафедре лазерной физики и спектроскопии физического факультета БГУ в должности стажера-исследователя, младшего научного сотрудника (с 1983 г.), ассистента (с 1987 г.), доцента (с 1990 г.), профессора (с 2003 г.). С 1997 по 2010 г. – заместитель декана по научной работе, с 2010 по 2017 г. – проректор по учебной работе БГУ, с 2018 г. – заведующий кафедрой лазерной физики и спектроскопии.

В 1987 г. А. Л. Толстик защитил кандидатскую диссертацию по специальности «физическая электроника, в том числе квантовая». В 1992 г. присвоено ученое звание доцента по кафедре лазерной физики и спектроскопии. В 2003 г. защитил докторскую диссертацию по специальности «оптика». В 2007 г. присвоено ученое звание профессора по специальности «физика».

В сферу научных интересов Алексея Леонидовича входят лазерная физика, динамическая голография и нелинейная оптика, сингулярная оптика и оптическая обработка информации, эффекты самоорганизации в нелинейно-оптических системах, голографические технологии защиты ценных бумаг и документов, лазерно-оптическое и научно-учебное приборостроение. Он разработал теорию многоволновых процессов преобразования световых полей динамическими голограммами, предложил и экспериментально реализовал новые методы некогерентного управления нелинейно-оптическими свойствами многоуровневых резонансных сред, нелинейно-оптические методы управления про-

странственно-временной и фазовой структурой лазерных пучков, включая некогерентное оптическое усиление динамических голограмм, обращение волнового фронта с одновременным удвоением частоты излучения и др. На основе схем многоволнового смещения впервые реализовано мультиплицирование топологического заряда сингулярного пучка, развиты дифракционные методы измерения нелинейностей пятого и более высоких порядков. Построена теория многоволновых взаимодействий в нелинейных интерферометрах и созданы новые способы реализации оптической мультистабильности, самопульсаций интенсивности и оптического хаоса, предложены новые интерференционно-голографические методы контроля объемных изображений и формирования заданных структур световых полей с возможностью их адаптации к решению разнообразных задач управления лазерным излучением. Разработаны дифракционные и волноводные жидкокристаллические элементы, позволяющие осуществлять управление лазерными пучками и их фазово-поляризационными характеристиками.

Под его руководством созданы принципиально новые средства контроля голографических элементов и идентификации кодограмм, используемые для защиты от подделки ценных бумаг и документов в интересах Департамента государственных знаков Министерства финансов Республики Беларусь. Разработан не имеющий аналога комплекс лазерно-оптического оборудования, используемого в учебном процессе и научных исследованиях университетов нашей республики и зарубежных стран (Россия, Испания, Япония, Китай, Нигерия), включая такие ведущие вузы, как Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова (МГУ), Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Казанский государственный университет, Томский государственный уни-

верситет, Кантабрийский университет (Испания) и др. На петербургских технических ярмарках три разработки отмечены серебряными медалями в номинации «Лучший инновационный проект и лучшая научно-техническая разработка года».

Большое внимание А. Л. Толстик уделяет учебно-методической работе. Он – автор ряда учебных пособий, в том числе с грифом Министерства образования Республики Беларусь. Алексеем Леонидовичем поставлены и внедрены в учебный процесс на физическом факультете БГУ новые практикумы по оптической обработке информации, волоконной оптике и нанофотонике, проведена модернизация спецпрактикумов по лазерной физике, когерентной оптике и голографии. А. Л. Толстик разработал и читает курсы лекций «Нелинейная оптика», «Лазерная физика», «Оптическая обработка информации». Под его научным руководством подготовлено и защищено 8 кандидатских диссертаций (в том числе аспирантами из Кореи, Иордании, Боливии и Ирака).

Алексей Леонидович возглавляет выполнение заданий по государственным программам научных исследований, государственным научно-техническим программам (ГНТП), проекты Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований. Также выполняет научные работы по договорам о сотрудничестве с МГУ, Томским государственным университетом систем управления и радиоэлектроники, Санкт-Петербургским национальным исследовательским университетом информационных технологий, механики и оптики, Йенским университетом (Германия), Кантабрийским университетом, Австралийским национальным университетом. По результатам исследований А. Л. Толстик опубликовал более 500 работ, в том числе 8 монографий и учебных пособий, 150 статей в международных научных журналах, получил 10 патентов и сделал более 250 докладов на международных конференциях. Он – член программных комитетов более 80 международных конференций, ежегодно выступает с приглашенными докладами.

А. Л. Толстик является членом экспертного совета Высшей аттестационной комиссии Республики Беларусь, членом совета Д 02.01.17 по защите докторских диссертаций, заместителем председа-

теля научно-технического совета подпрограммы «Научно-учебное оборудование» ГНТП «Эталоны и научные приборы», членом научно-технического совета подпрограммы «Уникальное научное оборудование» и научных секций государственного экспертного совета № 1 «Естественные науки» и государственного экспертного совета № 5 «Фотоника, опто-, микроэлектроника, радиоэлектроника и приборостроение». Он – главный редактор междисциплинарного журнала «Nonlinear Phenomena in Complex Systems», член редакционного совета журнала «Высшая школа» и редколлегии издания «Журнал Белорусского государственного университета. Физика», член правления научно-технической ассоциации «Оптика и лазеры» и правления Белорусского физического общества. Начиная с 2011 г. четырежды избирался членом коллегии национальных экспертов стран СНГ по лазерам и лазерным технологиям.

Награжден медалями Франциска Скорины (2016), С. Э. Фриша (2009) и С. И. Вавилова (2019), почетным дипломом Оптического общества имени Д. С. Рождественского (2000), премией Национальной академии наук Беларуси за лучшую научную работу 2001 г., премией имени А. Н. Севченко (2012), нагрудным знаком «Выдатнік адукацыі» (2008). В 2011 г. удостоен персональной надбавки Президента Республики Беларусь за выдающийся вклад в социально-экономическое развитие страны, в 2014 г. присвоено почетное звание «Заслуженный работник Белорусского государственного университета». Неоднократно награждался грамотами Национальной академии наук Беларуси, Государственного комитета по науке и технологиям Республики Беларусь, Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований.

Широкая научная эрудиция, энергия, активная жизненная позиция, организаторские способности, трудолюбие, доброе и внимательное отношение к людям снискали Алексею Леонидовичу высокий авторитет среди коллег, многочисленных учеников, аспирантов и студентов.

Сотрудники физического факультета сердечно поздравляют Алексея Леонидовича Толстика с юбилеем и желают крепкого здоровья и успехов в научной и педагогической деятельности.

СОДЕРЖАНИЕ

ЛАЗЕРНЫЕ ТЕХНОЛОГИИ

<i>Микитчук Е. П., Козадаев К. В.</i> Характеристики волоконно-оптических фотоакустических преобразователей с монослоем металлических наночастиц для систем технической диагностики.....	4
<i>Трохимчук П. П.</i> Проблема моделирования филаментов при лазерно-индуцированном пробое среды	16

ФИЗИКА ЛАЗЕРОВ

<i>Новицкая Р. И., Сташкевич И. В., Воронай Е. С.</i> Разгрузка резонатора посредством генерации второй гармоники в Nd : YAG-лазере с модуляцией добротности	28
--	----

ТЕХНОЛОГИИ ОБРАБОТКИ ИНФОРМАЦИИ

<i>Давлатов Ш. Р., Кучинский П. В.</i> Расширение базового функционала программы <i>Maltego</i> на базе фреймворка <i>Canari</i> и поисковой системы <i>Shodan</i>	34
--	----

ФИЗИКА КОНДЕНСИРОВАННОГО СОСТОЯНИЯ

<i>Поклонский Н. А., Дерезяго А. Н., Вырко С. А., Ковалев А. И.</i> Миграция электронов по трехзарядным дефектам кристаллической матрицы.....	41
<i>Бурмаков А. П., Кулешов В. Н., Столяров А. В.</i> Комбинированное магнетронно-лазерное осаждение пленочных плазмонных структур оксида титана с наночастицами серебра.....	54
<i>Говор Г. А., Ларин А. О., Добрянский В. М.</i> Исследование свойств магнитно-мягких композиционных материалов в частотном диапазоне гармонических колебаний до 100 кГц.....	60
<i>Шепелевич В. Г., Зерница Д. А.</i> Структура быстрозатвердевшей фольги эвтектического сплава Sn – 8,8 мас. % Zn	67
<i>Яковлева М. А., Батраков К. Г.</i> Двухслойные графеновые гетероструктуры для замедления волн: операторный метод в применении к решению волноводной задачи	73

ФИЗИКА ЯДРА И ЭЛЕМЕНТАРНЫХ ЧАСТИЦ

<i>Тихомиров В. В.</i> Некогерентное рассеяние ультрарелятивистских частиц на ядрах при плоскостном каналировании.....	83
--	----

ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ

<i>Бручковский И. И.</i> Восстановление вертикального профиля концентрации тропосферной двуокиси азота по результатам измерений в Минске	95
--	----

ЮБИЛЕИ

Василий Иванович Стражев.....	105
Владимир Васильевич Могильный.....	107
Алексей Леонидович Толстик.....	108

CONTENTS

LASER TECHNOLOGY

<i>Mikitchuk A. P., Kozadaev K. V.</i> Characteristics of fiber-optic photoacoustic transducers with monolayer of metal nanoparticles for systems of technical diagnostics	4
<i>Trokhimchuk P. P.</i> Problem of the modeling the filaments after laser-induced breakdown the matter....	16

LASER PHYSICS

<i>Navitskaya R. I., Stashkevich I. V., Voropay E. S.</i> Cavity dumping by the second harmonic generation in the Q-switched Nd : YAG laser	28
---	----

INFORMATION PROCESSING TECHNOLOGIES

<i>Davlatov Sh. R., Kuchynski P. V.</i> Extending the basic functionality of <i>Maltego</i> based on the <i>Canari</i> framework and <i>Shodan</i> search engine	34
--	----

CONDENSED STATE PHYSICS

<i>Poklonski N. A., Dzeraviah A. N., Vyrko S. A., Kavaleu A. I.</i> Migration of electrons via triple-charged defects of crystal matrix.....	41
<i>Burmakov A. P., Kuleshov V. N., Stoliarov A. V.</i> Combined magnetron-laser deposition of titanium oxide thin-film plasmonic structures with silver nanoparticles	54
<i>Govor G. A., Larin A. O., Dobriansky V. M.</i> Investigation of the properties of soft magnetic composite materials in the frequency range of harmonic oscillations up to 100 kHz	60
<i>Shepelevich V. G., Zernitsa D. A.</i> The structure of rapidly solidified foil of the eutectic Sn – 8.8 wt. % Zn alloy	67
<i>Yakovleva M. A., Batrakov K. G.</i> Two layer graphene heterostructures for waves slowing down: operator approach to waveguide problem.....	73

ATOMIC NUCLEUS AND ELEMENTARY PARTICLE PHYSICS

<i>Tikhomirov V. V.</i> Incoherent ultrarelativistic particle scattering by nuclei at planar channeling	83
---	----

OPTICS AND SPECTROSCOPY

<i>Bruchkouski I. I.</i> First tropospheric measurements of the vertical profile of nitrogen dioxide concentration in Minsk	95
---	----

JUBILEES

Vasilij Ivanovich Strazhev	105
Uladzimir Vasilevich Mahilny	107
Alexei Leonidovich Tolstik.....	108

Журнал включен Высшей аттестационной комиссией Республики Беларусь в Перечень научных изданий для опубликования результатов диссертационных исследований по физико-математическим наукам (в области теоретической, экспериментальной и прикладной физики).

Журнал включен в библиографическую базу данных научных публикаций «Российский индекс научного цитирования» (РИНЦ).

**Журнал Белорусского
государственного университета. Физика.
№ 1. 2020**

Учредитель:
Белорусский государственный университет

Юридический адрес: пр. Независимости, 4,
220030, г. Минск.

Почтовый адрес: пр. Независимости, 4,
220030, г. Минск.

Тел. (017) 259-70-74, (017) 259-70-75.

E-mail: jphys@bsu.by

URL: <https://journals.bsu.by/index.php/physics>

«Журнал Белорусского государственного
университета. Физика» издается с января 1969 г.
До 2017 г. выходил под названием «Вестник БГУ.
Серия 1, Физика. Математика. Информатика»
(ISSN 1561-834X).

Редактор *Т. Р. Джум*
Технический редактор *В. В. Пишкова*
Корректор *Л. А. Меркуль*

Подписано в печать 31.01.2020.

Тираж 130 экз. Заказ 80.

Республиканское унитарное предприятие
«Информационно-вычислительный центр
Министерства финансов Республики Беларусь».
ЛП № 02330/89 от 03.03.2014.
Ул. Кальварийская, 17, 220004, г. Минск.

© БГУ, 2020

**Journal
of the Belarusian State University. Physics.
No. 1. 2020**

Founder:
Belarusian State University

Registered address: 4 Niezaliežnasci Ave.,
Minsk 220030.

Correspondence address: 4 Niezaliežnasci Ave.,
Minsk 220030.

Tel. (017) 259-70-74, (017) 259-70-75.

E-mail: jphys@bsu.by

URL: <https://journals.bsu.by/index.php/physics>

«Journal of the Belarusian State University. Physics»
published since January, 1969.
Until 2017 named «Vestnik BGU.
Seriya 1, Fizika. Matematika. Informatika»
(ISSN 1561-834X).

Editor *T. R. Dzhum*
Technical editor *V. V. Pishkova*
Proofreader *L. A. Merkul'*

Signed print 31.01.2020.

Edition 130 copies. Order number 80.

Republican Unitary Enterprise
«Informatsionno-vychislitel'nyi tsentr
Ministerstva finansov Respubliki Belarus'».
License for publishing No. 02330/89, 3 March 2014.
17 Kal'varyjskaja Str., Minsk 220004.

© BSU, 2020