

ՀԱՅԱՍՏԱՆԻ ՀԱՆՐԱՊԵՏՈՒԹՅԱՆ ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ԱԶԳԱՅԻՆ ԱԿԱԴԵՄԻԱ

НАЦИОНАЛЬНАЯ АКАДЕМИЯ НАУК РЕСПУБЛИКИ АРМЕНИЯ

ՏԵՂԵԿԱԳԻՐ ИЗВЕСТИЯ

ՖԻԶԻԿԱ ФИЗИКА

ՀԱՏՈՐ ТОМ

60

№ 2

ՀՀ ԳԱԱ "ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆ" ՀՐԱՏԱՐԱԿՉՈՒԹՅՈՒՆ

ИЗДАТЕЛЬСТВО "ГИТУТЮН" НАН РА

ԵՐԵՎԱՆ

ЕРЕВАН

2025

Журнал издается с 1966 г.
Выходит 4 раза в год
на русском и английском языках

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

Карен М. Гамбарян, главный редактор
Арам В. Папоян, зам главного редактора
Нателла Р. Агамалян, ответственный секретарь

А.А. Ахумян, Э.М. Казарян, Р.Б. Костанян, Х.В. Неркарян, Е.Ш. Мамасаклисов,
А.О. Меликян, А.Г. Мкртчян, Д.Г. Саркисян, А.А. Саркисян, А.А. Саарян, Г. Пихлер
(Хорватия), С.Г. Казарян (Великобритания), Д.В. Рошупкин (Россия), М. Аузинш
(Латвия), Д. Будкер (Германия, США), Т.А. Вартанян (Россия)

ԽՄԲԱԳՐԱԿԱՆ ԿՈՒԵՓԻՍ

Կարեն Մ. Ղամբարյան, գլխավոր խմբագիր
Արամ Վ. Պապոյան, գլխավոր խմբագրի տեղակալ
Նատելլա Ռ. Աղամալյան, պատասխանատու քարտուղար

Ա.Ա. Հախումյան, Է.Մ. Ղազարյան, Ռ.Բ. Կոստանյան, Խ.Վ. Ներկարարյան,
Ե.Շ. Մամասախլիսով, Ա.Օ. Մելիքյան, Ա.Հ. Մկրտչյան, Դ.Գ. Սարգսյան,
Հ.Ա. Սարգսյան, Ա.Ա. Սահարյան, Գ. Պիկլեր (Խորվաթիա), Ս.Գ. Կազարյան
(Մեծ Բրիտանիա), Դ.Վ. Ռոշչուպկին (Ռուսաստան), Մ. Աուզինշ (Լատվիա),
Դ. Բուդկեր (Գերմանիա, ԱՄՆ), Տ.Ա. Վարտանյան (Ռուսաստան)

EDITORIAL BOARD

Karen M. Gambaryan, editor-in-chief
Aram V. Papoyan, associate editor
Natella R. Aghamalyan, executive secretary

A.A. Hakhumyan, E.M. Ghazaryan, R.B. Kostanyan, K.V. Nerkararyan,
E.Sh. Mamasakhlisov. A.H. Melikyan, A.H. Mkrtchyan, D.H. Sarkisyan,
H.A. Sarkisyan, A.A. Saharyan, G. Pichler (Croatia), S.G. Kazarian (UK),
D.V. Roschupkin (Russia), M. Auzinsh (Latvia), D. Budker (Germany, USA),
T.A. Vartanyan (Russia)

Адрес редакции: Республика Армения, 0019
Ереван, пр. Маршала Баграмяна, 24-г.

Խմբագրության հասցեն՝ Հայաստանի Հանրապետություն,
0019, Երևան, Մարշալ Բաղրամյան պող., 24-գ:

Editorial address: 24-g, Marshal Baghramyan Ave.,
Yerevan, 0019, Republic of Armenia.

e-mail: izvestiya-fizika@sci.am

ԲՈՎԱՆԴԱԿՈՒԹՅՈՒՆ

Ա.Ս. Հակոբյան, Լ.Ռ. Վահրադյան, Լ.Ա. Պողոսյան, Տ.Վ. Քոթանջյան, Հ.Հ. Մարություն. ԱՍԳԼ-ի (ԵրՖԻ) ԼՈՒԷ-75 էլեկտրոնային գծային արագացուցիչի փնջի ցրման և պրոֆիլի վերաբերյալ	163
Հ.Հ. Ասատրյան. Ֆեյնմանի դիագրամների հաշարկի զանազան մեթոդների համեմատություն $b \rightarrow sy$ տրոհման համար	174
Ռ.Ն. Բալասանյան, Վ.Ս. Արաքելյան, Գ.Ռ. Բադալյան, Ի.Գ. Գրիգորյան, Պ.Հ. Մոխիկյան, Ռ.Բ. Կոստանյան. Նատրիումի ատոմների փոխակերպումը մագնեզիումի էլեկտրոլիզի ընթացքում	184
Լ.Գ. Մարդոյան. Շտարկի էֆեկտը ընդհանրացված ՄԻԿ-Կեպլերի խնդրում	190
D. Das, G. Jorjadze, L. Megreldze. Functional Integral Representation for the S-Matrix in Integrable 2D Conformal Field Theories	197
Ա.Գ. Ղազարյան, Ն.Օ. Առուստամյան, Գ.Հ. Չոպուռյան, Խ.Վ. Սեդրակյան. Էլիպտիկ բևառացված բարձր լազերային հարմոնիկներ վեցանկյուն գրաֆենային քվանտային կետում	198
Ա.Դ. Սարգսյան, Դ.Հ. Սարկիսյան. Կապույտ լազերային ֆլուորեսցենցիա Cs-ի ատոմական գոլորշիներում առաջացած 852 նմ ճառագայթմամբ.....	205
D. Tripathi, T. Singh, A. Vijay, K. Walia. Second Harmonic Generation of Q-Gaussian Laser Beam in Thermal Quantum Plasma	212
Ա.Հ. Դավթյան, Ս.Դ. Արսենտև, Հ.Ա. Հարությունյան. Կալիումի յոդիդի ջրային լուծույթների վրա ուլտրաձայնային ճառագայթման ազդեցության ուսումնասիրություն	215
Ա.Ա. Նահապետյան, Լ.Ա. Թադևոսյան, Դ.Ա. Բադդասարյան, Վ.Ա. Հարությունյան. Էքսիտոնային կլանումը և ֆոտոլյումինեսցենցիան CdSe նանոթիթեղներում՝ համասեռ էլեկտրական դաշտի ազդեցությունը	222
Ռ.Կ. Հովսեփյան, Ն.Ռ. Աղամալյան, Ա.Ա. Առաքելյան, Տ.Ա. Վարսանյան, Ե.Ա. Կաֆադարյան, Վ.Գ. Լազարյան, Հ.Գ. Մնացականյան, Ս.Ի. Պետրոսյան, Ա.Ռ. Պողոսյան. Փոփոխական հոսանքի հաղորդականության ջերմաստիճանային կախումը լիթիումով լեզիրված ցինկի օքսիդի թաղանթներում ...	232
Լ.Ա. Մաթևոսյան, Ս.Ա. Պետրոսյան, Վ.Պ. Մկրտչյան, Ա.Պ. Այվազյան, Վ.Ս. Հարությունյան. Վակուումային ջերմային գոլորշիացմամբ սինթեզված CsPbBr ₃ թաղանթների կառուցվածքի և մորֆոլոգիայի ռենտգենադիֆրակտային և օպտիկական մանրադիտակային հետազոտություններ.	241

Ս.Գ. Պետրոսյան, Ա.Ս. Մուսայելյան, Ա.Ս. Թոքմաջյան, Վ.Ֆ. Գրեմենոկ, Օ.Վ. Կորոլիկ, Ա.Վ. Ստանչիկ, Կ.Բ. Բուսկիս. Քիմիական վաննայից պոլիիմիդային տակդիրի վրա ձևավորված CdS բարակթաղանթներ.....	252
Տ.Ի. Բուտանա, Ա.Վ. Եզանյան. GSAG:Ce բյուրեղների սպեկտրալ հատկությունները	269
Ա.Վ. Շահվերդյան, Վ.Վ. Մարգարյան, Յու.Մ. Չերեպեննիկով, Կ.Գ. Թրունի, Ս.Ն. Նորեյան, Ա.Ս. Մամյան, Ռ.Կ. Միրզոյան, Հ.Հ. Սամսոնյան, Վ.Ռ. Քոչարյան. Եռաչափ տպագրությամբ պատրաստված նմուշների վերլուծության համար համակարգչային տոմոգրաֆիայի վերականգնման ալգորիթմների կիրառումը թվային սինթեզված օբյեկտների համար	281
Տ.Հ. Էյրամջյան, Թ.Ս. Մնացականյան, Լ.Ա. Հարությունյան. Կոշտ ԼԼԼ ինտերֆերաչափում գեներացված դիսլոկացիաների ռենտգենաինտերֆերենցային արտապատկերումը	289

CONTENTS

A.S. Hakobyan, L.R. Vahradyan, L.A. Poghosyan, T.V. Kotanjyan, H.H. Marukyan. On the Divergence and Profile of the Beam of the LUE-75 Linear Electron Accelerator Operating at the AANL (YerPhI)	163
H.H. Asatryan. Comparison of Various Feynman Diagram Calculation Methods for the Decay $b \rightarrow s\gamma$	174
R.N. Balasanyan, V.S. Arakelyan, G.R. Badalyan, I.G. Grigoryan, P.H. Muzhikyan, R.B. Kostanyan. Transformation of Sodium Atoms into Magnesium During Electrolysis.....	184
A L.G. Mardoyan. Stark Effect in the Generalized MIC–Kepler Problem.....	190
D. Das, G. Jorjadze, L. Megrelidze. Functional Integral Representation for the S-Matrix in Integrable 2D Conformal Field Theories.....	197
A.G. Ghazaryan, N.O. Arustamyan, G.H. Chopuryan, Kh.V. Sedrakian. Elliptically Polarized High Laser Harmonics in the Hexagonal Graphene Quantum Dot.....	198
A.D. Sargsyan, D.H. Sarkisyan. Blue Laser-Induced Fluorescence in Cs Atomic Vapor Caused by 852 nm Radiation.....	205
D. Tripathi, T. Singh, A. Vijay, K. Walia. Second Harmonic Generation of Q-Gaussian Laser Beam in Thermal Quantum Plasma	212
A.H. Davtyan, S.D. Arsentev, H.A. Harutyunyan. Study of the Influence of Ultrasonic Radiation on Aqueous Solutions of Potassium Iodide.....	215
A.A. Nahapetyan, L.A. Tadevosyan, D.A. Baghdasaryan, V.A. Harutyunyan. Exciton Absorption and Luminescence in CdSe Nanoplatelets: the Influence of Uniform Electric Field	222
R.K. Hovsepyan, N.R. Aghamalyan, A.A. Arakelyan, T.A. Vartanyan, Y.A. Kafadaryan, V.G. Lazaryan, H.G. Mnatsakanyan, S.I. Petrosyan, A.R. Poghosyan. Temperature Dependence of AC Conductivity in Lithium-Doped Zinc Oxide Films.....	232
L.A. Matevosyan, S.A. Petrosyan, V.P. Mkrtchyan, A.P. Ayvazyan, V.S. Harutyunyan. X-Ray Diffraction and Optical Microscopy Investigations of the Structure and Morphology of CsPbBr ₃ Films Deposited by Vacuum Thermal Evaporation	241
S.G. Petrosyan, A.S. Musayelyan, A.S. Tokmajyan, V.F. Gremenok, O.V. Korolik, A.V. Stanchik, K.P. Buskis. Thin Films of CdS Formed on a Polyimide Substrate by Chemical Bath Deposition Method	252

T.I. Butaeva, A.V. Yeganyan. Spectral Properties of GSAG:Ce Crystals.....	269
A.V. Shahverdyan, V.V. Margaryan, Yu.M. Cherepennikov, K.G. Trouni, S.N. Noreyan, A.M. Mamyan, R.K. Mirzoyan, H.H. Samsonyan, V.R. Kocharyan. An Approach to Applying CT Reconstruction Algorithms to Numerically Synthesized Objects for the Analysis of 3D-Printed Samples	281
T.H. Eyramjyan, T.S. Mnatsakanyan, L.A. Haroutunyan. X-Ray Interferometric Imaging of Dislocations Generated in Hard LLL Interferometer.....	289

СОДЕРЖАНИЕ

А.С. Акопян, Л.Р. Ваградян, Л.А. Погосян, Т.В. Котанджян, Г.О. Марукян. К расходимости и профилю пучка линейного ускорителя электронов ЛУЭ-75 ННЛА (ЕрФИ).....	163
Г.Г. Асатрян. Сравнение различных методов вычисления диаграмм Фейнмана для распада $b \rightarrow s\gamma$	174
Р.Н. Баласанян, В.С. Аракелян, Г.Р. Бадалян, И.Г. Григорян, П.Г. Мужикян, Р.Б. Костанян. Преобразование атомов натрия в магний в процессе электролиза.....	184
Л.Г. Мардоян. Эффект Штарка в обобщенной задаче МИК–Кеплера.....	190
D. Das, G. Jorjadze, L. Megrelidze. Functional Integral Representation for the S-Matrix in Integrable 2D Conformal Field Theories.....	197
А.Г. Казарян, Н.О. Арустамян, Г.Г. Чопурян, Х.В. Седракян. Эллиптически поляризованные высокие лазерные гармоники в гексагональной графеновой квантовой точке	198
А.Д. Саргсян, Д.Г. Саркисян. Синяя лазерно-индуцированная флуоресценция в атомарных парах Cs, вызванная излучением 852 нм	205
D. Tripathi, T. Singh, A. Vijay, K. Walia. Second Harmonic Generation of Q-Gaussian Laser Beam in Thermal Quantum Plasma.....	212
А.Г. Давтян, С.Д. Арсентьев, А.А. Арутюнян. Исследование влияния ультразвукового излучения на водные растворы йодида калия	215
А.А. Наапетян, Л.А. Тадевосян, Д.А. Багдасарян, В.А. Арутюнян. Экситонное поглощение и люминесценция в нанопластинках CdSe: влияние однородного электрического поля.....	222
Р.К. Овсепян, Н.Р. Агамалян, А.А. Аракелян, Т.А. Варганян, Е.А. Кафадарян, В.Г. Лазарян, Г.Г. Мнацаканян, С. И. Петросян, А.Р. Погосян. Температурная зависимость проводимости на переменном токе в легированных литием пленках оксида цинка.....	232
Л.А. Матевосян, С.А. Петросян, В.П. Мкртчян, А.П. Айвазян, В.С. Арутюнян. Исследования структуры и морфологии пленок CsPbBr ₃ , осажденных методом вакуумного термического испарения.	241
С.Г. Петросян, А.С. Мусаелян, А.С. Токмаджян, В.Ф. Гременок, А.В. Станчик, К.П. Бускис, О.В. Королик. Тонкие пленки CdS, сформированные на полиимидной подложке методом химического осаждения.....	252

Т.И. Бутаева, А.В. Еганян. Спектральные свойства кристаллов GSAG:Ce	269
А.В. Шахвердян, В.В. Маргарян, Ю.М. Черепенников, К.Г. Труни, С.Н. Нореян, А.М. Мамян, Р.К. Мирзоян, А.А. Самсонян, В.Р. Кочарян. К вопросу о применимости алгоритмов реконструкции компьютерной томографии (КТ) к численно синтезированным объектам для анализа образцов, изготовленных методом 3D-печати..	281
Т.О. Эйрамджян, Т.С. Мнацаканян, Л.А. Арутюнян. Рентгеноинтерференционное отображение дислокаций, генерируемых в жестком ЛЛЛ интерферометре.....	289

К РАСХОДИМОСТИ И ПРОФИЛЮ ПУЧКА ЛИНЕЙНОГО УСКОРИТЕЛЯ ЭЛЕКТРОНОВ ЛУЭ-75 ННЛА (ЕрФИ)

**А.С. АКОПЯН, Л.Р. ВАГРАДЯН*, Л.А. ПОГОСЯН,
Т.В. КОТАНДЖЯН, Г.О. МАРУКЯН**

Национальная научная лаборатория им. А.И. Алиханяна, Ереван, Армения

*e-mail: l.vahradyan@yerphi.am

(Поступила в редакцию 30 мая 2025 г.)

Представлены рассчитанные и измеренные угловые расходимости и профили электронного пучка линейного ускорителя электронов ЛУЭ-75, действующего в Национальной научной лаборатории им. А.И. Алиханяна. Результаты получены при различных энергиях и удаленностях мишени на выходе вакуумной камеры. Установка дистанционно управляемого сканера и сетевых камер обеспечивает визуальный компьютерный мониторинг и точное расположение облучаемого образца.

1. Введение

Линейный ускоритель ЛУЭ-75 является одним из основных инструментов научных групп Армении, ведущих исследования в области прикладных и фундаментальных задач ядерной физики низких энергий. Для планирования эксперимента пользователю необходимо наряду с такими параметрами как энергия, интенсивность, форма, длительность и устойчивость пучкового импульса, также знать расходимость и профиль пучка, иметь информацию о распределении электронов в поперечной плоскости пучка в месте установления изучаемого объекта. Такие данные важны в работах по энергетической калибровке детекторов элементарных частиц на пучках сверхнизкой интенсивности, исследованию излучения каналированных электронов в кристалле [1, 2] и для других, проводимых либо запланированных, экспериментов на электронных пучках ЛУЭ-75.

Энергетические потери электронов при прохождении разделительных окон ЛУЭ-75 были представлены в работе [3]. В настоящей работе приведены результаты расчетов и измерений расходимости и профиля электронного пучка за вакуумно-плотными окнами выходного пучкопровода. При измерениях использовался дистанционно управляемый сканер, позволяющий перемещение мишени в горизонтальной плоскости в поперечном и продольном относительно пучка направлениях (рис.1). При обработке изображений пучка использовалась программа ImageJ.

2. Угловая расходимость электронного пучка при прохождении через выводные окна

Электроны, проходя через слой вещества, наряду с потерей части своей кинетической энергии, претерпевают также угловое отклонение от первоначальных траекторий из-за многократного рассеяния при столкновениях с атомами среды, что приводит к расширению поперечных размеров пучка.

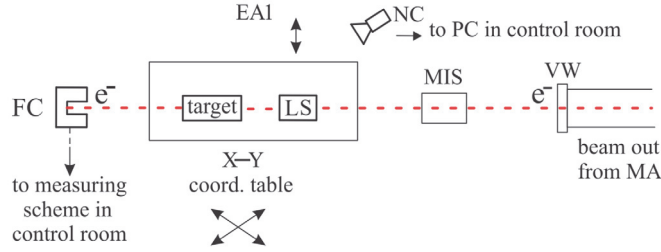


Рис.1. Схема экспериментальной установки облучения мишени и измерений, используемая на линейном ускорительном комплексе ЛУЭ-75. MIS – магнитноиндукционный датчик, LS – дистанционно управляемый люминофорный экран, FC – цилиндр Фарадея, от которого сигнал поступает на измерительную схему в пультовой комнате, NC – сетевая камера, VW – вакуумное окно, EA1 – экспериментальная зона 1, МА – магнитный анализатор.

Расходимость пучка важно знать для оценки эффективности воздействия пучка на облучаемый образец, правильного выбора места его расположения под пучком и, в случае необходимости, применить коллимацию. На ЛУЭ-75 в выводных окнах используются стальные фольги и каптоновая пленка $(C_{22}H_{10}N_2O_5)_n$.

2.1. Кулоновское рассеяние в стальной фольге

Формула дисперсии многократного рассеяния электронов в кулоновском поле ядер, выражающая статистический характер процесса, имеет вид: [4, 5]

$$\overline{\theta^2} = 0.157 \frac{Z(Z+1)}{A} \frac{L\rho}{(E+mc^2)^2} \ln \left(1.13 \times 10^4 \frac{Z^3 L \rho}{A \beta^2} \right), \quad (1)$$

где E – кинетическая энергия электрона в МэВ, m – его масса покоя, c – скорость света, β – относительная скорость падающих электронов, Z – заряд ядра атома, A – относительная атомная масса, ρ – плотность вещества среды в г/см³, L – толщина слоя, проходимого пучком в см. Выразим β через кинетическую энергию,

$$\beta = \sqrt{1 - \frac{1}{\left(\frac{E}{E_0} + 1\right)^2}}. \quad (2)$$

Тогда формула (1) примет вид, удобный для расчета зависимости среднего квадрата угла рассеяния от кинетической энергии:

$$\overline{\theta^2} = 0.157 \frac{Z(Z+1)}{A} \frac{L\rho}{(E+E_0)^2} \ln \left(1.13 \times 10^4 \frac{Z^3 L \rho (E+E_0)^2}{A E (E+2E_0)} \right), \quad (3)$$

где $E_0 = mc^2$ – энергия покоя электрона. Среднеквадратичный угол многократного рассеяния равен

$$\theta = \sqrt{\overline{\theta^2}}. \quad (4)$$

На рис.2а (пунктирная кривая) показана зависимость среднего угла многократного кулоновского рассеяния электрона от кинетической энергии при пересечении стальной фольги толщиной 50 мкм, рассчитанная по формулам (3) и (4).

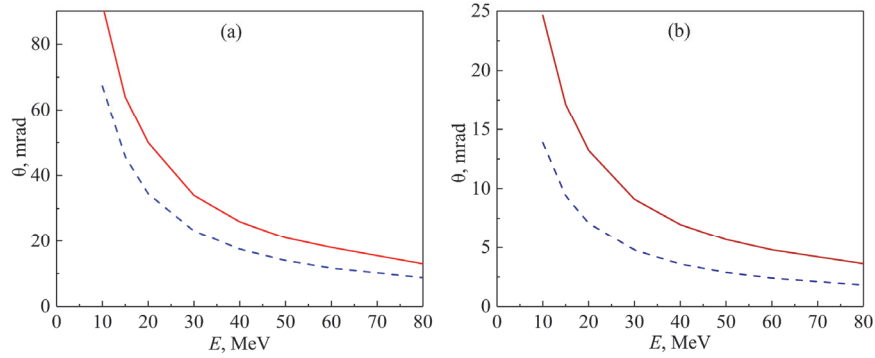


Рис.2. Зависимость среднего угла рассеяния электрона от кинетической энергии при прохождении через вакуумно-плотные окна. Пунктиром обозначены зависимости среднего угла многократного кулоновского рассеяния падающих электронов в (а) стальной фольге толщиной 50 мкм и (б) каптоновой плёнке толщиной 70 мкм от кинетической энергии. Сплошные кривые – зависимости среднего угла отклонения в (а) стальной фольге толщиной 50 мкм и (б) каптоновой плёнке толщиной 70 мкм от кинетической энергии, согласно работе [6].

2.2. Кулоновское рассеяние в каптоновой плёнке

Воспользуемся приведенным в работе [7] удобным для расчета выражением для аналитического определения угла многократного кулоновского рассеяния для каптоновой и других полимерных плёнок:

$$\theta = \frac{13.6}{\beta c p} \sqrt{\frac{L}{X_0}} \left(1 + 3.8 \times 10^{-2} \ln \left(\frac{L}{X_0} \right) \right), \quad (5)$$

где p – импульс электрона в единицах МэВ/с, X_0 – радиационная длина в см (для каптона 28.58).

Полная энергия и импульс частицы связаны известным соотношением:

$$(E + E_0)^2 = E_0^2 + p^2 c^2,$$

откуда

$$p = \frac{\sqrt{E(E + 2E_0)}}{c}. \quad (6)$$

С учетом (2) и (6) получим зависимость среднего значения угла многократного кулоновского рассеяния в каптоне от кинетической энергии падающей частицы (рис.2б, пунктирная кривая):

$$\theta = \frac{13.6(E + E_0)}{E(E + 2E_0)} \sqrt{\frac{L}{X_0}} \left(1 + 3.8 \times 10^{-2} \ln \left(\frac{L}{X_0} \right) \right). \quad (7)$$

Формулы (1) и (5) не учитывают степень экранирования ядра электронами атома на разном удалении налетающего электрона от ядра: с приближением к ядру экранирование уменьшается и, наоборот, на расстояниях больших радиуса атома вещества экранирование ядра считается полным [4, 8]. Приведенные выше формулы носят приближенный характер. В Докладе 35 Международного комитета по радиационным единицам и измерениям приведена формула на основании работ Rossi и Brahme [6, 9], учитывающая более строгую оценку эффектов экранирования. В обозначениях и с учетом рекомендаций ссылаемой

работы массовая рассеивающая способность имеет вид:

$$\frac{1}{\rho} \frac{d\bar{\theta}^2}{dl} = \pi \left(\frac{2r_e}{(\tau+1)\beta^2} \right)^2 \frac{Z(Z+1)N_A}{M_A} \left\{ \ln \left[1 + \left(\frac{\theta_m}{\theta_\mu} \right)^2 \right] - 1 + \left[1 + \left(\frac{\theta_m}{\theta_\mu} \right)^2 \right]^{-1} \right\}, \quad (8)$$

где $\theta_m = \frac{2A^{-1/3}}{\alpha\beta(\tau+1)}$, $\theta_\mu = 1.13 \frac{\alpha Z^{1/3}}{\beta(\tau+1)}$. При $\theta_m > 1$ следует брать $\theta_m = 1$.

Здесь M_A – молярная масса вещества, A – массовое число, N_A – число Авогадро, α – постоянная тонкой структуры, τ – отношение кинетической энергии падающего электрона к его энергии покоя, r_e – радиус электрона, θ_m – граничный угол для больших отклонений, θ_μ – угол экранировки для малых отклонений, l – путь электрона в веществе.

Для сложного вещества, каковым является каптон, массовую рассеивающую способность можно определить с учетом массовых долей, в качестве которых следует принять коэффициенты химической формулы звена полимера $(C_{22}H_{10}N_2O_5)_n$:

$$\frac{1}{\rho} \frac{d\bar{\theta}^2}{dl} = \frac{1}{M_A} \sum_i n_i A_i \left(\frac{1}{\rho} \frac{d\bar{\theta}^2}{dl} \right)_i. \quad (9)$$

где n_i – массовая доля i – ого элемента в составе молекулы.

На рис.2b (сплошная кривая) приведена зависимость среднего угла рассеяния электрона от его кинетической энергии в диапазоне десятков МэВ, характерных для ЛУЭ-75, при прохождении каптоновой плёнки толщиной 70 мкм; на рис.2a (сплошная кривая) – стальной фольги толщиной 50 мкм. Результаты получены с помощью выражений (9) и (4) и данных, приведенных в [6], которые для сокращения объёма статьи здесь не приводятся.

Из рис.2 видно, что в результате многократного рассеяния в зависимости от энергии падающей частицы каптон вносит примерно в три–пять раз меньшее расхождение пучка по сравнению со сталью. Объясняется это низкой плотностью каптона и структурным различием этих веществ. Хотя каптон и вносит малое расхождение, но при больших пучковых токах и высокой поглощенной дозе металлические вакуумные окна надежнее [3, 7, 10]. Приведенные кривые показывают, что с увеличением энергии электронов расходимость пучка уменьшается: объясняется это тем, что ускоряется продольная составляющая скорости при практически неизменной поперечной.

2.3. Рассеяния пучка, проходящего сквозь оконные фольги и слои воздуха

Большинство экспериментов на ЛУЭ-75 проводятся вне вакуумного объема – в воздухе после вакуумно-плотного окна, когда нет возможности поместить мишень в вакуумную камеру. Поэтому следует учитывать также расходимость в воздушном промежутке между окном и мишенью. Расходимости электронов в средах носят статистический характер, поэтому результирующая расходимость определяется суммой квадратов средних углов рассеяния в фольге и воздухе – рассеяния в них представляют собой независимые случайные процессы:

$$\bar{\theta}^2 = \bar{\theta}_{Fe}^2 + \bar{\theta}_{air}^2. \quad (10)$$

Средний угол отклонения определяется по формуле (4). Табл.1 отображает зависимость среднего угла рассеяния электронов от первоначального

Табл.1. Суммарный средний угол отклонения электронов при прохождении стальной фольги толщиной 50 мкм и разных расстояний до мишени в воздухе в мрад (в скобках – в градусах) в зависимости от кинетической энергии

Расстояние, см	E, MeV							
	10	15	20	30	40	50	60	80
1	92.47 (5.3)	64.62 (3.7)	49.81 (2.85)	34.42 (1.97)	26.45 (1.52)	21.2 (1.21)	17.73 (1.06)	13.32 (0.76)
5	94.4 (5.4)	65.95 (3.77)	50.84 (2.91)	35.13 (2.01)	27 (1.55)	21.65 (1.24)	18.11 (1.04)	13.61 (0.78)
10	96.75 (5.54)	67.59 (3.87)	52.1 (3)	36 (2.1)	27.66 (1.58)	22.2 (1.27)	18.58 (1.06)	13.96 (0.8)
15	99.05 (5.68)	69.18 (3.96)	53.33 (3.06)	36.85 (2.11)	28.31 (1.62)	22.73 (1.3)	19.04 (1.09)	14.31 (0.82)
20	101.3 (5.8)	70.74 (4.05)	54.53 (3.12)	37.68 (2.16)	28.95 (1.66)	23.25 (1.33)	19.49 (1.12)	14.64 (0.84)
25	103.5 (5.9)	72.26 (4.14)	55.71 (3.19)	38.49 (2.21)	29.57 (1.69)	23.76 (1.36)	19.92 (1.14)	14.97 (0.86)

направления в зависимости от расстояния до расположенной в воздухе мишени в зоне EA1 (рис.1), где проводится большинство экспериментов по активационному анализу.

В табл.2 приведена зависимость среднего угла рассеяния электрона при прохождении каптоновой плёнки и расстояния в воздухе до мишени в экспериментальной зоне, где ведутся исследования кристаллических детекторов [3]. На этом участке испытываемые образцы устанавливаются на расстоянии 130 см от выходного окна в воздухе, необходимом для монтажа элементов, используемых при измерениях. Сравнение данных рис.2b и табл.2 показывает, что основной вклад в расходимость пучка на этом участке вносит значительный слой воздуха. Расхождение получается существенным, что делает необходимым применение коллимации при получении и использовании тестовых пучков.

3. Измерения расходимости и профиля пучка

В приведенных выше формулах полагается, что падающие на поверхность материала электронные пучки являются мононаправленными нормально к поверхности материала и имеют гауссово поперечное распределение частиц. Ускорительные установки, даже одного и того же класса машин, могут иметь свои особенности как конструктивные, так и электрические – лишь измерения

Табл.2. Суммарный средний угол отклонения электрона при прохождении каптоновой плёнки толщиной 70 мкм и расстояния 130 см до мишени в воздухе в мрад (в скобках – в градусах) в зависимости от его кинетической энергии

Рассчитанная расходимость	E, МэВ							
	10	15	20	30	40	50	60	80
	111 (6.36)	77.21 (4.42)	59.54 (3.41)	41.09 (2.35)	31.51 (1.81)	25.61 (1.47)	21.7 (1.24)	16.32 (0.94)

могут дать нужные для экспериментаторов характеристики. В настоящее время применяется несколько методов определения расходимости и профиля пучков [11–14]. Нами использовался приближенный метод измерения: сравнение размеров следов, оставляемых проходящим пучком на экране на разном удалении от выходного коллиматора. Измерения проводились в зоне за поворотным магнитом анализатора и на участке работ по исследованию кристаллов [3]: в этих зонах проводится подавляющее большинство экспериментов на ЛУЭ-75. Из-за отсутствия возможности поместить мишень в вакуумный объем измерения проводились в воздухе, т. е. измерялась расходимость в зависимости от расстояния мишени от коллиматора при данной энергии.

На участке EA1 (рис.1) пучок после магнитного анализатора, пройдя дрейфом 0.5-метровый прямой участок пучкопровода, пересекает стальную фольгу выходного фланца и, пролетая коллимирующее отверстие, попадает на экран. Источником электронов в измерениях считалась коллимационная щель диаметром 14 мм. В качестве экрана использовалось либо стекло, либо тонкая пластинка с люминесцентным покрытием. По изображениям пучка (след на экране) можно определить расходимость пучка и его профиль в измеряемом месте. Рис.3 поясняет геометрию измерений угла расходимости, определяемого по формуле

$$\theta = \arctan \frac{d_2 - d_1}{2L}. \quad (11)$$

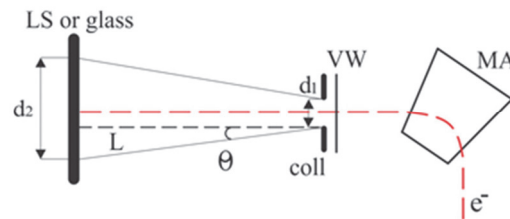


Рис.3. Геометрия измерения угла расходимости в экспериментальной зоне EA1: L – расстояние от выходного коллиматора до мишени; d_1 и d_2 – диаметры коллиматора и пучка на расстоянии L , соответственно.

На рис.4 и 5 приведены изображения пучков электронов с энергиями 22 и 40 МэВ и их профили, полученные во время осенних сеансов 2024 г. (масштабы фотоснимков неодинаковы). Горизонтальный и вертикальный профили 22 МэВ-го пучка (рис.4b, c) имеют приемлемо симметричную форму. Горизонтальный профиль на рис.5b показывает, что центр тяжести 40-МэВ-го пучка («голова» пучка) смещен влево относительно направления движения пучка, что свидетельствует о недостройке пучка; профиль показывает не только форму выходного пучка, но содержит важную информацию об относительной плотности потока частиц.

Из табл.3 следует, что углы расходимости, рассчитанные по формуле (11), превышают рассчитанные для тех же энергий и расстояний в воздухе, согласно данным работы [6], в среднем до (20–58)%. На рис.4а и рис.5а видно, что вокруг пучка имеется гало. Оно образуется в основном из-за вторичных излучений, создаваемых первичным релятивистским пучком. Увеличение слоя воздуха, а также само стекло, служащее в данном случае мишенью, увеличивает область

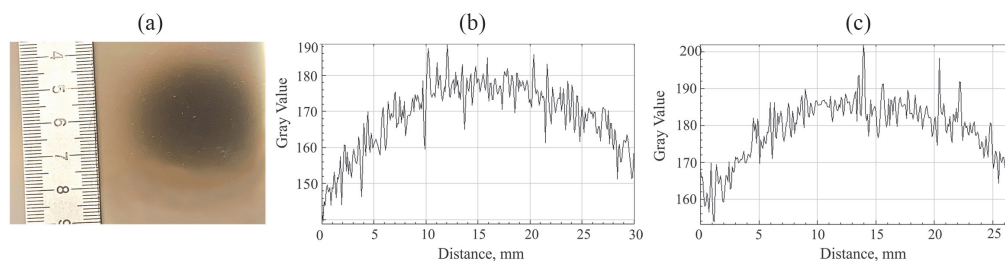


Рис.4. (а) След пучка с энергией 22 МэВ на стекле на расстоянии 21 см от коллиматора Ø14 мм в воздухе: средний ток пучка 0.65 мкА, время экспозиции 12 мин.; (b) и (с) – горизонтальный и вертикальный профили, соответственно.

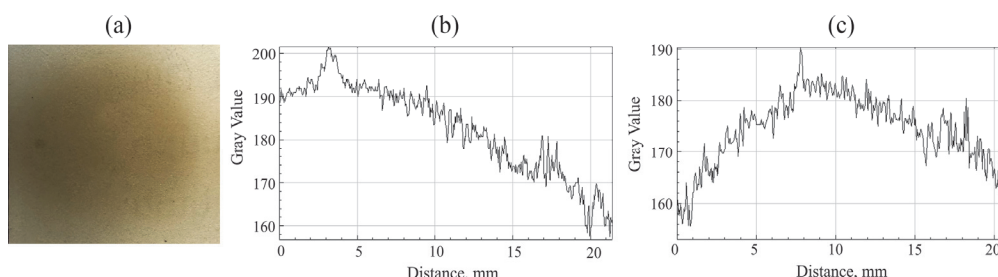


Рис.5. (а) След пучка с энергией 40 МэВ на стекле на расстоянии 21 см от коллиматора Ø14 мм в воздухе; средний ток пучка 0.6 мкА, время экспозиции 10 мин.; (b) и (с) – горизонтальный и вертикальный профили, соответственно.

Табл.3. Сравнение измеренных углов рассеяния в воздухе и рассчитанных по данным работы [6] в мрад (в скобках – в градусах).

Энергия, МэВ	Углы отклонения в мрад (градусы)	
	измеренные	рассчитанные по ICRU
22	гориз.34 (1.95); верт.31 (1.78)	22 (1.26)
40	гориз.19 (1.08); верт.14.4 (0.83)	12 (0.69)

гало вокруг пучка. Любые нестабильности пучка приводят к расширению гало: флуктуации в продольном и поперечном плоскостях (отметим, что флуктуации пучка в поперечной плоскости приводят к нестабильности в продольной), нестабильность энергии и др.; проходя через слой воздуха, пучок ионизирует молекулы последнего – взаимодействие пучка с плазмой также вносит вклад в размеры, форму и неоднородность гало. Это явление «загрязняет» пучок, размывая его границы, что вносит свой вклад в приближенность измерений.

Разница измеренных после магнитного анализатора и рассчитанных по данным работы [6] углов рассеяния объясняется не только приближенностью применяемого метода из-за наличия гало. В аналитических формулах, по которым рассчитывается расходимость, полагается, что пучок моноэнергетичен и нерасходящийся и падает на поверхность строго перпендикулярно; пучок ЛУЭ-75 имеет спектр (полная ширина на полувысоте) порядка от 4 на низких энергиях

до 1.7% на высоких энергиях, контролируемый с помощью магнитного анализатора. Измерения магнитного поля в зазоре в связи с профилактикой и проверкой калибровки магнитного анализатора, проведенные осенью 2024 г., показали высокую однородность поля в зазоре в диапазоне энергий 10–75 МэВ; калибровочная кривая с большой точностью соответствовала известному соотношению

$$E = \frac{ec}{\beta} BR - E_0, \quad (12)$$

где B – индукция магнитного поля в зазоре, R – радиус поворота частицы. На рис.6 приведена зависимость индукции в гауссах от энергии в МэВ влетающей в зазор электромагнита заряженной частицы при радиусе поворота действующего анализатора, равном 50 см, с помощью которой определяется калибровочная кривая магнитного анализатора $E = f[B(I)]$, где I – ток через обмотку электромагнита анализатора. Несмотря на хорошую укомплектованность электромагнита и анализатора в целом на выходе за зазором были обнаружены слабые рассеянные поля. Эти поля, а также выше приведенные замечания, обуславливают разницу рассчитанных и измеренных углов расходимости. Также было обнаружено незначительное отклонение оси пучка от нормали к плоскости поперечного сечения.

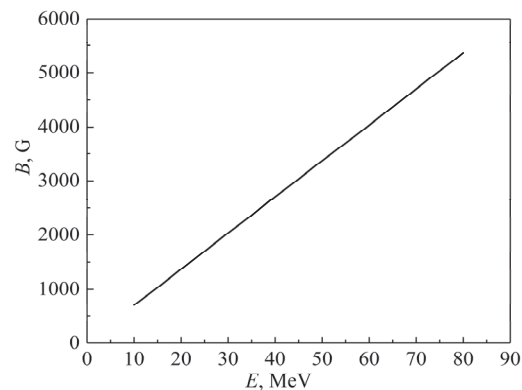


Рис.6. Зависимость индукции магнитного поля от энергии электрона при радиусе поворота 0.5 м.

Для точного определения оптимального места установления мишени был изготовлен и смонтирован сканер дистанционного управления с пульта ЛУЭ-75. Сетевая камера наблюдения обеспечивает визуальный компьютерный мониторинг рабочего места, подвижная пластинка с сцинтилляционным покрытием позволяет оптимально настроить пучок. Создана возможность дистанционным передвижением последовательно облучать несколько образцов, не прерывая сеанс, что сокращает времязатратность.

На другом электронном выводе, где проводятся испытания кристаллических детекторов [3], образцы устанавливаются на расстоянии 130 см от каптонового окна, поэтому облучаемые стекла устанавливались там же.

На этом участке тракта нет анализирующего магнита. Пучок после каптоновой пленки до мишени пролетает в воздухе. Измеренные углы расходимости (в настоящей работе не приведены с целью сокращения ее объема) отличаются от приведенных в табл.4, рассчитанных с учетом данных работы [6],

Табл.4. Зависимость среднего угла рассеяния электрона в мрад (в скобках – в градусах) при прохождении различных расстояний в воздухе от его кинетической энергии

Расстояние, см	E, MeV						
	10	20	30	40	50	60	80
10	30.01 (1.72)	16.1 (0.92)	11.1 (0.64)	8.52 (0.49)	6.93 (0.4)	5.87 (0.34)	4.41 (0.25)
20	42.44 (2.43)	22.77 (1.3)	15.71 (0.9)	12.05 (0.69)	9.8 (0.56)	8.3 (0.48)	6.24 (0.36)
30	51.97 (2.98)	27.89 (1.6)	19.24 (1.1)	14.76 (0.85)	12 (0.69)	10.17 (0.58)	7.64 (0.44)
70	79.39 (4.55)	42.6 (2.44)	29.4 (1.68)	22.55 (1.29)	18.33 (1.05)	15.53 (0.89)	11.68 (0.67)
130	108.19 (6.2)	58.06 (3.33)	40.06 (2.3)	30.73 (1.76)	24.98 (1.43)	21.16 (1.21)	15.91 (0.91)

не более (10–15)%, что приемлемо для большинства проводимых опытов. Естественная расходимость пучка в воздухе на таком удалении значительна, поэтому использование коллиматора необходимо. В настоящее время используются коллиматоры разных диаметров в зависимости от условий эксперимента.

На рис.7 приведены профили пучков на участке, где тестировались кристаллы; измерения проводились при энергиях 50 и 60 МэВ. На рис.7а видно, что центр пучка несколько смещен. Это может быть следствием неоптимальной

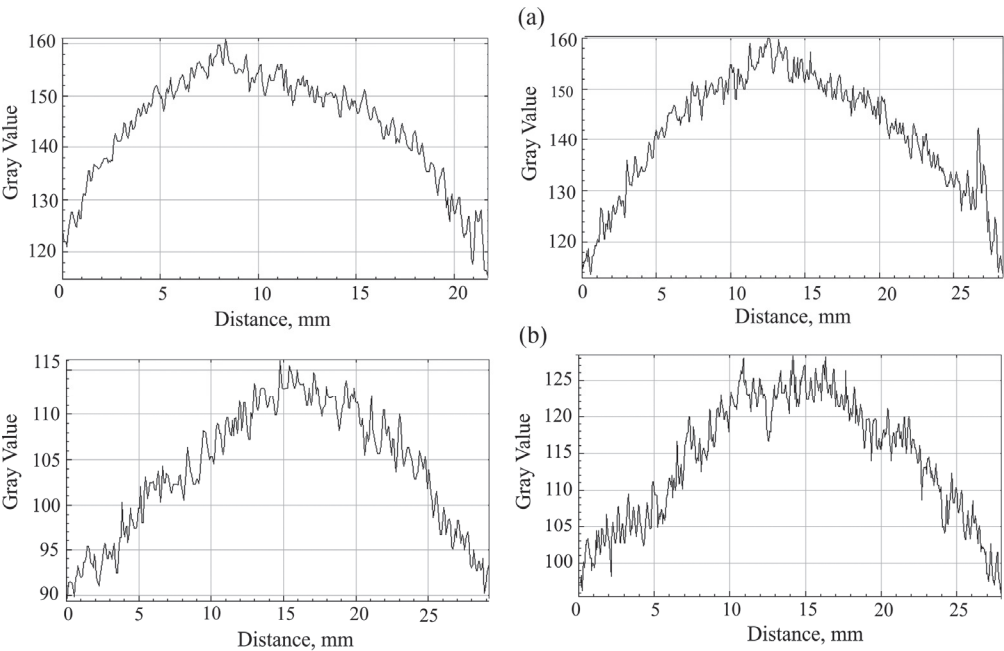


Рис.7. Горизонтальные и вертикальные профили пучков с энергиями (а) 50 и (b) 60 МэВ.

настройки. В дальнейшем планируется применение визуального компьютерного мониторинга и соответствующих программ, что позволит контролировать и корректировать профиль пучка в режиме онлайн. При пролете пучка через вакуумно-плотное окно, прохождении воздушного слоя и столкновении с мишенью образуется широкий спектр гамма-излучения. Под действием этого излучения возникала желтизна на стеклах, приводящая к появлению «пьедесталов» различной высоты в зависимости от интенсивности пучка и времени экспозиции. При обработке изображений пьедесталы срезались, чем и определялся «нулевой» уровень на профилях, приведенных на рис.7, – нас интересовали формы профилей.

На рис.8 показан горизонтальный профиль 40 МэВ-го низкоинтенсивного пучка на участке тестирования сцинтилляционных кристаллов с использованием пальчикового (finger counters) пластикового счетчика; перемещение счетчика поперек пучка осуществлялось дискретно с шагом 5 мм с помощью дистанционно управляемого компьютером сканера; максимум соответствует интенсивности 60–70 е⁻/с [3].

Как указывалось выше при внедрении контроля профиля пучка в режиме реального времени с использованием соответствующих программ, позволит получить профили с хорошей симметрией и формой, близкой к гауссовой.

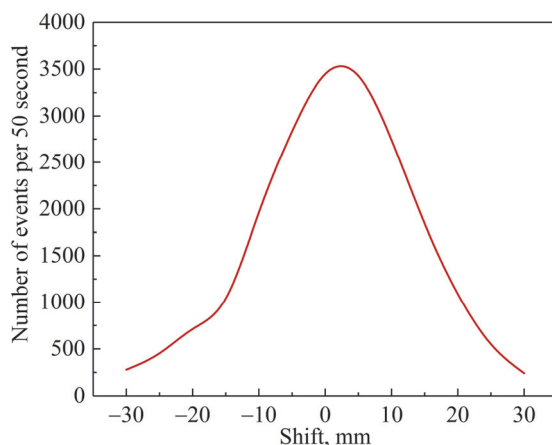


Рис.8. Горизонтальный профиль пучка экстремально низкой интенсивности со средней энергией 40 МэВ на выходе тракта в зоне тестирования кристаллов.

4. Заключение

Рассмотрены расходимости и профили пучка методом измерения следов, оставленных на стеклах и люминофорном экране. Влияние рассеянных полей магнитного анализатора значительно увеличивает расходимость, полученные профили обладают симметрией, приемлемой для проводимых в настоящее время экспериментов. Примененный метод приближенный. Для более точного измерения расходимости целесообразно использование переходного излучения. В дальнейшем предполагается изготовление либо приобретение датчиков переходного излучения, которые также могут быть использованы для неразрушающего контроля энергии пучка. Применение визуального компьютерного мониторинга и программ контроля пучка в режиме реального времени существенно сократит времязатратность и повысит качество проводимых опытов.

Авторы выражают благодарность сотруднику ННЛА К. Мадунцу за изготовление устройства дистанционного сканирования мишени.

ЛИТЕРАТУРА

1. A.R. Mkrtchyan, A.H. Mkrtchyan, L.Sh. Grigoryan, A.A. Saharian, H.A. Aslanyan, E.M. Harutunyan, V.R. Kocharyan, G.A. Aivazyan, V.V. Nalbandyan, T.G. Dovlatyan, A.E. Movsisyan, E.A. Mkrtchyan, H.R. Muradyan, S.A. Mirakyan, A.H. Aslanyan. *J. Contemp. Phys.*, **48**, 154 (2013).
2. A.R. Mkrtchyan, E.A. Mkrtchyan. *J. Contemp. Phys.*, **48**, 158 (2013).
3. L.R. Vahradyan, A.S. Hakobyan, L.A. Poghosyan, G.D. Movsesyan, H.H. Marukyan. *J. Contemp. Phys.*, **59**, 450 (2024).
4. К.Н. Мухин. Экспериментальная ядерная физика, кн.1. Москва, Энергоатомиздат, 1993.
5. Б.А. Алексеев, А.В. Вуколов, А.П. Потылицын, М.В. Шевелев. *Письма в ЭЧАЯ*. **17**, № 1(226), 18 (2020).
6. Radiation Dosimetry. Electron Beams with Energies Between 1 and 50 MeV. ICRU REPORT, 35, (1984).
7. J. Engel, M. Gross, G. Koss, O. Lishilin, G. Loisch, S. Philipp, D. Richter, F. Stephan. *AIP Advances*, **10**, 025224 (2020).
8. Е.А. Мурзина, Взаимодействие излучения высокой энергии с веществом. Ядерная физика в интернете. <http://nuclphys.sinp.msu.ru>.
9. I. Lax, A. Brahme. *Acta Radiologica Oncology*, **19**, 3 (1980).
10. D. Kapton. Summary of Properties <https://ru.scribd.com/document/387357734/advances>.
11. T. Mukoyama, Y. Watanabe. *Bull. Inst. Chem. Res., Kyoto Univ.*, **55**, no. 1, 46 (1977).
12. A.G. Shkvarunets, R.B. Fiorito, P.G. O'Shea, J.G. Power, M.E. Conde, Wei Gai. TUPTPF048 Proceedings of BIW08, Tahoe City, California (2008).
13. В.В. Полянский, А.В. Кольцов, А.В. Серов. *ЖЭТФ*, **146**, 240 (2014).
14. А.В. Серов, И.А. Мамонов, А.В. Кольцов. *ЖЭТФ*, **148**, 658 (2015).

ON THE DIVERGENCE AND PROFILE OF THE BEAM OF THE LUE-75 LINEAR ELECTRON ACCELERATOR OPERATING AT THE AANL (YerPhI)

A.S. HAKOBYAN, L.R. VAHRADYAN, L.A. POGHOSYAN,
T.V. KOTANJYAN, H.H. MARUKYAN

The calculated and measured angular divergences and profiles of the electron beam of the LUE-75 linear electron accelerator, operating at the A.I. Alikhanyan National Science Laboratory, are presented. The results were obtained at various energies and target distances at the exit of the vacuum chamber. The installation of a remotely controlled scanner and network cameras enables visual computer monitoring and precise positioning of the irradiated sample.

СРАВНЕНИЕ РАЗЛИЧНЫХ МЕТОДОВ ВЫЧИСЛЕНИЯ ДИАГРАММ ФЕЙНМАНА ДЛЯ РАСПАДА $b \rightarrow s\gamma$

Г. Г. АСАТРЯН*

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: hrachya.asatryan@ysu.am

(Поступила в редакцию 4 июня 2025 г.)

В недавних работах был вычислен полный набор трехпетлевых диаграмм (порядка α_s^2), связанных с ток-токовыми операторами O_1 и O_2 , вносящими вклад в амплитуду распада $b \rightarrow s\gamma$. В данной статье одна пара таких диаграмм вычисляется при различных значениях массы очарованного кварка m_c с использованием различных методов, а точность и удобство численных методов сравниваются с аналитическими результатами, полученными другими. Точные численные результаты в широком диапазоне значений массы очарованного кварка были получены с использованием AMFlow и DiffExp для решения дифференциальных уравнений на мастер интегралы. Кроме того, были выполнены асимптотические разложения и разложение в ряд Тейлора вокруг точек $z = m_c^2/m_b^2 = 0$ и $z = 1/10$, соответственно. Также было выполнено полностью численное вычисление мастер-интегралов с помощью программы PySecDec.

1. Введение

Редкие распады B -мезонов, такие как инклюзивный радиационный переход $B \rightarrow X_s\gamma$, в Стандартной Модели (СМ) подавлены петлевыми диаграммами, что делает их чувствительными индикаторами возможных виртуальных эффектов новой физики. Текущее экспериментальное среднее значение коэффициента ветвления при нижнем пороге энергии фотона $E_\gamma > 1.6$ ГэВ составляет $\mathcal{B}(B \rightarrow X_s\gamma) = (3.49 \pm 0.19) \times 10^{-4}$ [1]. В ближайшем будущем эксперимент Belle II, как ожидается, улучшит текущую экспериментальную точность.

Теоретически предсказания получаются с помощью низкоэнергетического эффективного гамильтониана с пятью активными ароматами кварков, в котором тяжелые электрослабые бозоны и t -кварк интегрированы. Для соответствия ожидаемой экспериментальной точности требуется полный анализ на уровне NNLL (next-to-next-to-leading logarithmic order), то есть включение двухпетлевых матричных элементов, а также трёхпетлевых аномальных размерностей и двухпетлевых вкладов от излучения (bremsstrahlung).

Постоянным источником теоретической неопределённости долгое время оставалась NNLL-интерференция между ток-токовыми операторами $O_{1,2}$ и электромагнитным дипольным оператором O_7 . До недавнего времени этот вклад был известен лишь посредством интерполяции между пределами $m_c \gg m_b$ и $m_c \rightarrow 0$ [2, 3], что вносило ошибку порядка $O(3\%)$ в общее предсказание. В работах [4–7]

данная интерполяция была устранена путем вычисления точной зависимости интерференционной амплитуды операторов $O_{1,2}-O_7$ от массы очарованного кварка. В этих работах был аналитически вычислен полный набор диаграмм порядка α_s^2 , вносящих вклад в переход $b \rightarrow s\gamma$, при физическом значении массы кварка m_c .

В настоящем исследовании проводится сравнительный анализ современных численных техник вычисления многоцикловых интегралов с использованием амплитуды перехода $B \rightarrow X_s\gamma$ в качестве эталона. Для этого были выбраны две характерные диаграммы из аналитического вычисления, проведённого в работе [4], для которых доступны точные аналитические результаты (рис. 1). Эти диаграммы были пересчитаны с помощью нескольких современных численных методов, таких как метод разложения по секторам с использованием PySecDec [8], решение дифференциальных уравнений с помощью DiffExp [9] и метод вспомогательного массового потока AMFlow [10]. Сравнение численных результатов с известными аналитическими выражениями позволяет количественно оценить достижимую точность и практическое удобство применения каждого из методов и может служить ориентиром для будущих теоретических исследований редких распадов B -мезонов с высокой точностью.

2. Теория

Вычисление амплитуд распада B -мезона (или b -кварка) наиболее удобно проводить в рамках эффективной теории слабых взаимодействий (Weak Effective Theory, WET), в которой все частицы СМ с массами порядка электрослабого масштаба уже интегрированы. Получающийся низкоэнергетический лагранжиан содержит обычные взаимодействия лёгких кварков в рамках квантовой хромодинамики и квантовой электродинамики, дополненные бесконечной серией локальных операторов более высокой размерности, которая на практике обрывается на операторах размерности 6 [11, 12]. Для вкладов, рассматриваемых в данной работе, WET-лагранжиан можно записать в виде:

$$L_{\text{WET}} = L^4 + \frac{4G_F}{\sqrt{2}} V_{ts}^* V_{tb} [C_1 O_1 + C_2 O_2 + C_7 O_7],$$

где

$$O_1 = (\bar{s}\gamma_\mu P_L T^a c)(\bar{c}\gamma^\mu P_L T^a b),$$

$$O_2 = (\bar{s}\gamma_\mu P_L c)(\bar{c}\gamma^\mu P_L b),$$

$$O_7 = \frac{e}{16\pi^2} m_b(\mu)(\bar{s}\sigma_{\mu\nu} P_R b)F^{\mu\nu}.$$

Член $L^{(4)}$ включает кинетические и массовые члены для лёгких кварков u, d, s, c, b , а также их взаимодействия с фотонами и глюонами. Используются обозначения $P_{L,R} = (1 \mp \gamma_5)/2$ для операторов киральной проекции и $\sigma_{\mu\nu} \equiv (i/2)[\gamma_\mu, \gamma_\nu]$. Принятые соглашения для калибровочно-ковариантной производной имеют вид: $D_\mu q = (\partial_\mu + ieQ_q A_\mu + ig_s T^A G_\mu^A)q$, а величина $m_b(\mu)$ в операторе O_7 обозначает массу b -кварка в $\overline{MS}$ -схеме, ренормированную при масштабе μ .

На протяжении всей работы масса странного кварка m_s последовательно опускается во всех выражениях.

3. Вычислительные методы

Для вычисления трёхпетлевых мастер-интегралов были использованы как методы решения дифференциальных уравнений, так и методы разложения по секторам. Программы DESolver (встроенный решатель дифференциальных уравнений в AMFlow), метод вспомогательного массового потока (AMFlow), DiffExp и SeaSyde [13] решают дифференциальные уравнения для мастер-интегралов (обычно с помощью разложений в ряды) и обеспечивают высокоточную численную оценку. Напротив, программы PySecDec и FIESTA5 [14] используют метод разложения по секторам с последующим прямым численным интегрированием. Далее описан каждый инструмент с указанием того, является ли метод полуаналитическим или полностью численным, а также как в нем обеспечивается обработка граничных условий.

Среди аналитических подходов ключевым методом является решение систем дифференциальных уравнений, которым удовлетворяют мастер интегралы. В благоприятных случаях эти системы можно привести к каноническому виду, в котором явно факторизуется зависимость от параметра размерностной регуляризации ϵ :

$$\partial_x \mathbf{M}(\epsilon, x) = \epsilon \mathbf{A}(x) \mathbf{M}(\epsilon, x),$$

где $\mathbf{M}(\epsilon, x)$ — вектор мастер-интегралов, а $\mathbf{A}(x)$ — матрица рациональных функций, имеющая лишь логарифмические сингулярности. В этом виде решение представляется рядом по ϵ , коэффициенты которого выражаются через итеративные интегралы над структурой сингулярностей $\mathbf{A}(x)$ — обычно через обобщённые полилогарифмы Гончарова (GPL). Для решения системы требуется как выбор подходящего преобразования к каноническому виду, так и фиксация констант интегрирования через граничные условия, чаще всего выбираемые в пределах $x \rightarrow 0$ или $x \rightarrow \infty$. Данный подход был применён для вычисления соответствующих мастер-интегралов в работах [4, 15].

Метод вспомогательного массового потока является систематическим вариантом подхода на основе дифференциальных уравнений и реализован в пакете

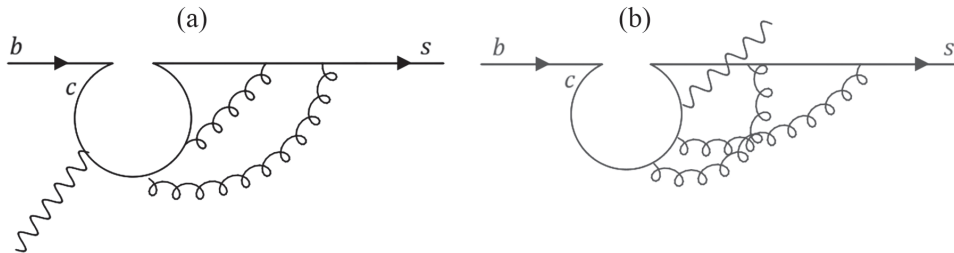


Рис.1. Две диаграммы, для которых выполнены вычисления. Диаграммы имеют одинаковый набор пропагаторов, но различаются порядком вершин вдоль s -линии: (а) фотон испускается из s -линии до присоединения глюонных линий; глюонные линии не пересекаются, (б) фотон испускается между двумя глюонными вершинами на s -линии; глюонные линии пересекаются.

AMFlow. Вводится фиктивный массовый параметр η во все пропагаторы, в результате чего каждый интеграл становится $I(\eta)$, причём при $\eta \rightarrow \infty$ задача упрощается. Затем выводятся дифференциальные уравнения $\partial_\eta I(\eta) = A(\eta)I(\eta)$. Ключевым преимуществом является простота задания граничных условий при $\eta \rightarrow \infty$ (обычно это рациональные значения для старших по ϵ членов). Система решается аналитическим продолжением от $\eta \rightarrow \infty$ до $\eta = 0$ через комплексную плоскость η , с выбором пути в обход точек ветвления и выполнением серии разложений Фробениуса в промежуточных точках $\{\eta_0, \eta_1, \dots, \eta_l\}$. В частности, в AMFlow процедура делится на три этапа: первый этап — разложение всех интегралов при $\eta \rightarrow \infty$ и вычисление первой точки η_0 ; второй этап — для каждого сегмента $i = 0, \dots, l-1$ осуществляется разложение в точке η_i и с его помощью результат переносится в следующую точку η_{i+1} ; третий этап — формальное разложение около точки $\eta = 0$ с подгонкой в точке η_l для восстановления оставшихся неизвестных коэффициентов ряда. Затем определяется предел $\eta \rightarrow i0^+$ для получения физических интегралов при $\eta = 0$. Каждое разложение приводит к рекуррентным соотношениям для коэффициентов по степеням $\eta - \eta_i$ и ϵ , фиксируемыми граничными условиями при $\eta \rightarrow \infty$, и условием непрерывности. Этот метод существенно упрощает как структуру системы ДУ, так и обработку граничных условий. Таким образом, метод вспомогательного массового потока является полуаналитическим, поскольку он опирается на аналитические разложения в η , которые, однако, численно суммируются. Метод полностью реализован в AMFlow и активно используется для многоцикловых задач.

Пакет AMFlow также включает встроенный решатель дифференциальных уравнений, называемый DESolver, который принимает систему линейных дифференциальных уравнений для мастер-интегралов и «переносит» граничные значения вдоль выбранной переменной (например, кинематического соотношения). Пользователь предоставляет матрицу дифференциальных уравнений и граничные условия в начальной точке; затем DESolver численно интегрирует эти уравнения до новых точек. На практике DESolver использует разложения в ряды (ряды Фробениуса) и высокоточную арифметику для продвижения решения. Решатель не требует канонического базиса — он способен работать с любым набором мастер-интегралов, полученным путём редукции методом интеграции по частям, что делает его гибким для произвольных систем дифференциальных уравнений.

В процессе работы DESolver строит усечённые степенные ряды вокруг последовательных точек и согласует их, чтобы продолжить решение. В тестовых расчётах этот решатель был отмечен как «высокопроизводительный» инструмент, подходящий для вычислений с очень высокой численной точностью. Высокая точность, достигаемая с помощью AMFlow, в сочетании с его возможностью работать напрямую с исходными дифференциальными уравнениями и мастер-интегралами без дополнительных преобразований, делает его особенно мощным инструментом для вычислений диаграмм Фейнмана. Таким образом, DESolver представляет собой полуаналитический интегратор дифференциальных уравнений.

Пакет DiffExp, реализованный на языке Mathematica, также решает систему дифференциальных уравнений для мастер-интегралов с помощью одномерного

интегрирования в виде рядов, но делает это непосредственно вдоль контуров в физическом кинематическом пространстве. В подходе DiffExp выбирается одномерный контур (линия в пространстве параметров), соединяющий точку с известными граничными условиями и целевую точку. Затем система связанных линейных дифференциальных уравнений решается путём разложения решения в степенной ряд по параметру линии последовательно по порядкам размерностного регулятора ε . На практике DiffExp вычисляет усечённый степенной ряд вокруг начальной точки, а затем шаг за шагом осуществляет аналитическое продолжение: на каждом сегменте используется либо метод вариации постоянных, либо методы Вронского, чтобы согласовать решения в виде рядов через особые точки. Это позволяет получить численные результаты высокой точности для мастер-интегралов. Пользователь должен предоставить численные граничные условия, которые затем DiffExp переносит к целевой точке.

Основным результатом работы DiffExp является само решение в виде степенного ряда. Пакет строит ряды Фробениуса и явно решает уравнения для коэффициентов этих рядов; лишь после этого процесса полученные ряды вычисляются численно. Таким образом, DiffExp также представляет собой полуаналитический метод. Он способен работать с системами в неканоническом базисе и обрабатывает потенциально вырожденные линии с помощью малых сдвигов и аналитического продолжения. Поскольку DiffExp работает вдоль выбранного пути сегмент за сегментом, он может гибко обрабатывать многомасштабные задачи, соединяя несколько разложений. Пакет DiffExp требует предварительного приведения системы дифференциальных уравнений к форме, свободной от полюсов $1/\varepsilon$, тогда как DESolver может работать без таких преобразований, обеспечивая большую гибкость применения.

В пакете PySecDec применяется метод разложения по секторам, принципиально отличный от подходов на основе дифференциальных уравнений. Сначала каждый петлевой интеграл записывается в форме параметров Фейнмана (с использованием многочленов Симанзика U и F). В этом представлении ультрафиолетовые или инфракрасные расходимости проявляются как сингулярности при стремлении параметров Фейнмана $x_i \rightarrow 0$. Алгоритм разложения по секторам систематически выделяет эти сингулярности, разбивая область интегрирования на секторы и перенормируя переменные таким образом, чтобы явно выделить каждый фактор вида x_i^α . В каждом секторе многочлены подынтегрального выражения факторизуются в виде произведения одночлена, ненулевой константы и остаточного многочлена. Точнее, единичный гиперкуб разбивается на области (например, $x_1 \geq x_2 \geq \dots$) и вводятся новые переменные таким образом, чтобы каждый многочлен в знаменателе $P(x)$ приобрёл вид $\prod_j x_j^{\alpha_j} (c + p(x))$, где $c \neq 0$. Повторяя это подразделение, все расходимости проявляются только в виде полюсов, явно умноженных на выделенные одночлены. Пакет PySecDec полностью автоматизирует всю последовательность: создание начального разложения на сектора, итеративное подразделение подсекторов (или геометрическую стратегию), и подготовку подынтегрального выражения к выделению полюсов. После извлечения полюсов (разложения по регулятору ε) оставшиеся конечные интегралы вычисляются численно. Пакет обычно использует интеграторы библиотеки Cuba (Vegas, QMC и др.) для многомерного численного интегрирования

конечных частей. Таким образом, PySecDec преобразует каждый интеграл в сумму численных интегралов, разложенных по ϵ . Алгоритм стремится факторизовать каждый многочлен в виде произведения одночлена и многочлена с ненулевой константой при нулевом порядке. В результате PySecDec — полностью численный метод: после разложения по секторам и выделения полюсов все интегралы вычисляются численно.

Наконец, следует упомянуть ещё два общедоступных инструмента для вычисления многоцикловых мастер-интегралов — пакеты SeaSyde и FIESTA5. Оба реализуют стратегии, аналогичные основным методам, использованным в данной работе, хотя имеют отличия в подходах и технических деталях. Первый, SeaSyde — это пакет на языке Mathematica, который строит решения систем дифференциальных уравнений для мастер-интегралов в виде рядов Фробениуса. Он осуществляет аналитическое продолжение решений в комплексной плоскости кинематических инвариантов, преодолевая разрезы путём согласования решений в промежуточных точках. Хотя в принципе эта программа является мощным и универсальным инструментом, способным обрабатывать задачи с несколькими масштабами и сложными внутренними массами, в данной работе, в итоге, не удалось включить её в расчёты. Несмотря на значительные усилия, затраченные на установку и тестирование, после многих попыток настройки и тестирования ряд технических сложностей не позволил успешно применить её в рамках доступного времени. Предполагается вернуться к использованию данного инструмента в будущих работах по мере его дальнейшей доработки и улучшения документации.

Второй, пакет FIESTA5 — это инструмент на основе C++ и Mathematica, использующий разложение по секторам и численное интегрирование в пространстве параметров Фейнмана. Хотя он чрезвычайно универсален по своему назначению, его сложность в настройке и конфигурации делает эффективное использование затруднительным. Более того, в предыдущих работах в рамках нашей коллаборации для вычисления нескольких граничных условий использовался пакет FIESTA5, и при этом наблюдалось значительное снижение численной точности в некоторых компонентах результата. В работе [6] было указано, что классы диаграмм из [4], которые вычислялись с использованием пакета FIESTA5, совпадали лишь до 5 значащих цифр, в то время как классы диаграмм, которые не использовали FIESTA5, совпадали до 10 значащих цифр включительно. На основе этих результатов, а также принимая во внимание трудоёмкость и сложность использования, пакет FIESTA5 не использовался в дальнейших расчётах данной работы.

4. Результаты

В этом разделе аналитические результаты сравниваются с ранее доступными численными оценками амплитуды. Цель состоит в том, чтобы подтвердить правильность и точность аналитических выражений. Проведено покомпонентное сравнение в различных физически значимых кинематических конфигурациях. Относительная разница между аналитическими и численными результатами вычислялась по формуле

$$\Delta_{\text{rel}} = \left| \frac{I_{\text{analytic}} - I_{\text{numeric}}}{I_{\text{numeric}}} \right|,$$

где I_{analytic} — значение, полученное из нашего аналитического решения на основе GPL, а I_{numeric} — результат, полученный с помощью проверенных численных методов. Эти сравнения проводились при физических значениях безразмерного параметра $z = m_c^2/m_b^2$. Результаты сведены в табл.1. Графические сравнения также представлены на рис.2.

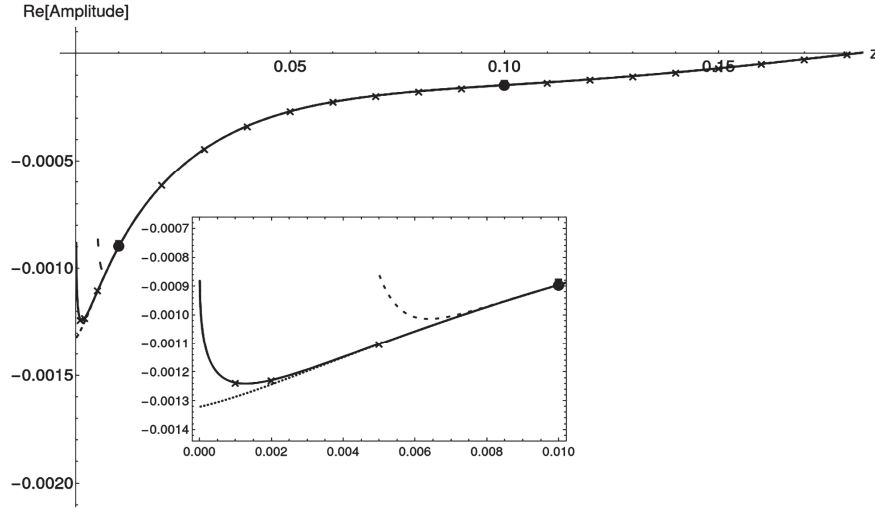


Рис.2. Реальная часть коэффициента при ϵ^0 для вклада O_1 в интервале $z \in [0, 0.18]$. На основном графике видно, что во всем физически важном диапазоне $z \in [0.04; 0.16]$ результаты AMFlow (прямая оценка ●, перенос X, Тейлор ..., асимптота —), DiffExp (- - -), и PySecDec (■) совпадают с аналитической кривой; асимптотика AMFlow полностью накладывается на аналитику, тогда как обе Тейлоровы серии расходятся при $z \rightarrow 0$. На вставке показано поведение в области $z \leq 0.01$, где расхоженность Тейлоровских разложений и устойчивость асимптотического совпадения видны наиболее отчетливо.

При численном вычислении в конкретных кинематических точках AMFlow выделяется как исключительно удобный и надёжный инструмент. Он вычисляет все мастер-интегралы одновременно, обеспечивает чрезвычайно высокую точность и требует минимального ввода данных — только определения самих мастер-интегралов. Также он является гибким и относительно быстрым. Напротив, метод PySecDec, хотя и обеспечивает качественно корректные результаты, демонстрирует существенно более низкую точность и требует больших вычислительных усилий, поскольку каждый интеграл приходится обрабатывать отдельно, а сходимость может существенно зависеть от выбранных параметров.

При выполнении разложений в ряды пакет AMFlow также демонстрирует отличные результаты. И разложение Тейлора, и асимптотическое разложение показывают хорошее согласие с аналитическими выражениями. Существенным преимуществом AMFlow является то, что он может работать с исходной системой дифференциальных уравнений без необходимости предварительного

Табл.1. Сравнение относительных различий и уровня совпадения по цифрам с аналитическими результатами для различных методов в точках z , равных 0.1 и 0.01. Рассматривается действительная часть коэффициента при ε^0 амплитуды

Метод	Отн. разн., $z = 0.1$	Совп. цифр, $z = 0.1$	Отн. разн., $z = 0.01$	Совп. цифр, $z = 0.01$
Разложение AMFlow при $z = 0.1$	6.5×10^{-7}	6	1.0×10^{-5}	4
Асимптотическое разложение AMFlow	6.5×10^{-7}	6	2.2×10^{-18}	17
Вспомогательный массовый поток AMFlow	6.5×10^{-7}	6	2.2×10^{-18}	17
Перенос AMFlow от $z = 0.01$	6.5×10^{-7}	6	2.2×10^{-18}	17
PySecDec	1.4×10^{-2}	2	7.5×10^{-3}	1
Разложение DiffExp при $z = 0.1$	6.5×10^{-7}	6	6.8×10^{-5}	3

преобразования в форму, свободную от полюсов вида $1/\varepsilon$. В отличие от него, DiffExp требует выполнения такого преобразования, что добавляет дополнительный шаг к подготовке задачи и может быть нетривиальным. Важно отметить, что как для AMFlow, так и для DiffExp, в пределах физически значимых диапазонов значений z , точность численного результата в первую очередь ограничена точностью начальных граничных условий — обычно получаемых из прямого вычисления с помощью AMFlow — и сохраняется на этом уровне в пределах радиуса сходимости соответствующего ряда.

Радиусы сходимости, тем не менее, различаются. Асимптотическое разложение AMFlow начинает расходиться лишь после $z = 0.25$ (что не отображено на графике), тогда как разложение Тейлора AMFlow демонстрирует ухудшение при приближении $z \rightarrow 0$. В случае DiffExp, разложение Тейлора также начинает расходиться ближе к $z \rightarrow 0$ и раньше при приближении $z = 0.2$. Таким образом, DiffExp показывает такую же высокую точность, как и AMFlow, в ограниченной области $z \in [0.04; 0.16]$, соответствующей физическим значениям, однако вне этой области его точность может снижаться. Дополнительно, как уже было отмечено, для использования DiffExp требуется нетривиальное преобразование системы дифференциальных уравнений в каноническую форму, что усложняет подготовку расчётов по сравнению с AMFlow.

Учитывая высокую точность, надёжность и простоту использования, AMFlow остаётся предпочтительным инструментом для будущих вычислений. Вместе с тем DiffExp является мощной альтернативой в пределах своего оптимального диапазона.

5. Заключение

Полученные численные результаты демонстрируют отличное совпадение с известными аналитическими выражениями во всех исследованных кинематических областях. Пакет AMFlow стабильно давал высокоточную оценку, часто совпадая с аналитическими результатами более чем по десяти значащим цифрам при прямом вычислении в отдельных точках. Разложения Тейлора и асимптотические разложения пакета AMFlow также показывают отличное согласие с аналитикой в физически значимом диапазоне $z \in [0.04; 0.16]$, однако разложение Тейлора становится ненадёжным при приближении к точке $z \rightarrow 0$, а асимптотическое разложение начинает расходиться после $z \approx 0.25$. Тем не менее, пакет остаётся простым и удобным в использовании, поскольку требуются только исходные дифференциальные уравнения и мастер-интегралы без необходимости предварительных преобразований в каноническую форму. Пакет DiffExp также давал точные результаты в физически значимом диапазоне, однако его разложение Тейлора становится ненадёжным как при $z \rightarrow 0$, так и при увеличении z . Кроме того, необходимость предварительного преобразования системы дифференциальных уравнений усложняет использование данного пакета. Инструменты, использующие метод разложения по секторам (например, PySecDec), также были протестированы и показали хорошее согласие с аналитическими результатами в отдельных точках. Тем не менее, их численная точность ниже, а использование требует значительных усилий, поскольку каждый мастер-интеграл необходимо обрабатывать отдельно. Эти сравнения подтверждают как корректность проведённых расчётов, так и надёжность подхода, основанного на решении дифференциальных уравнений.

Автор выражает благодарность Г.М. Асатрян за обсуждения и рекомендации, связанные с радиационными распадами B -мезонов, а также за полезные замечания. Работа автора поддержана Комитетом по науке и высшему образованию Республики Армения в рамках программного гранта № 21AG-1C084 и гранта № 24AA-1C025.

ЛИТЕРАТУРА

1. Y.S. Amhis et al. Phys. Rev. D, **107**, 052008 (2023).
2. M. Misiak, H.M. Asatrian, K. Bieri, M. Czakon, A. Czarnecki, T. Ewerth, A. Ferroglia, P. Gambino, M. Gorbahn, C. Greub, U. Haisch, A. Hovhannisyan, T. Hurth, A. Mitov, V. Poghosyan, M. Slusarczyk, M. Steinhauser. Phys. Rev. Lett., **98**, 022002 (2007).
3. M. Misiak, H.M. Asatrian, R. Boughezal, M. Czakon, T. Ewerth, A. Ferroglia, P. Fiedler, P. Gambino, C. Greub, U. Haisch, T. Huber, M. Kaminski, G. Ossola, M. Poradzinski, A. Rehman, T. Schutzmeier, M. Steinhauser, J. Virto. Phys. Rev. Lett., **114**, 221801 (2015).
4. C. Greub, H.M. Asatrian, F. Saturnino, C. Wiegand. JHEP, **05**, 201 (2023).
5. C. Greub, H.M. Asatrian, H. H. Asatryan, L. Born, J. Eicher. JHEP, **11**, 058 (2024).
6. M. Fael, F. Lange, K. Schönwald, M. Steinhauser. JHEP, **11**, 166 (2023).
7. M. Czaja, M. Czakon, T. Huber, M. Misiak, M. Niggetiedt, A. Rehman, K. Schönwald, M. Steinhauser. Eur. Phys. J. C, **83**, 1108 (2023).

8. **S. Borowka, G. Heinrich, S. Jahn, S.P. Jones, M. Kerner, J. Schlenk, T. Zirke.** Comput. Phys. Commun., **222**, 313 (2018).
9. **M. Hidding.** Comput. Phys. Commun., **269**, 108125 (2021).
10. **X. Liu, Y.Q. Ma.** Comput. Phys. Commun., **283**, 108565 (2023).
11. **G. Buchalla, A.J. Buras, M.E. Lautenbacher.** Rev. Mod. Phys., **68**, 1125 (1996).
12. **J. Aebischer, M. Fael, C. Greub, J. Virto.** JHEP, **09**, 158 (2017).
13. **T. Armadillo, R. Bonciani, S. Devoto, N. Rana, A. Vicini.** Comput. Phys. Commun., **282**, 108545 (2023).
14. **A.V. Smirnov, N.D. Shapurov, L.I. Vysotsky.** Comput. Phys. Commun. **277**, 108386 (2022).
15. **H.H. Asatryan, H.M. Asatrian.** J. Contemp. Phys., **56N3**, 177 (2021).

**ՖԵՅՆՄԱՆԻ ԴԻԱԳՐԱՄՆԵՐԻ ՀԱՇՎԱՐԿԻ ՉԱՆԱԶԱՆ ՄԵԹՈԴՆԵՐԻ
ՀԱՄԵՄԱՏՈՒԹՅՈՒՆ $b \rightarrow s\gamma$ ՏՐՈՂՄԱՆ ՀԱՄԱՐ**

Հ.Հ. ԱՍԱՏՐՅԱՆ

Վերջերս հաշվարկվել է երեք օղականի դիագրամների ամբողջական հավաքածու (α_s^2 կարգի), որոնք կապված են O_1 և O_2 հոսանք-հոսանք օպերատորների հետ և ներդրում ունեն $b \rightarrow s\gamma$ տրոհման ամպլիտուդի մեջ: Այս հոդվածում նման դիագրամների մի զույգ հաշվարկվում է c քվարկի m_c զանգվածի տարբեր արժեքների համար՝ կիրառելով տարբեր մեթոդներ, և համեմատվում են այս մեթոդների թվաբանական ճշգրտությունն այլոց կողմից ստացված անալիտիկ արդյունքների հետ: Հաշվի է առնվում նաև օգտագործման հարմարավետությունը: Օգտագործելով AMFlow և DiffExp ծրագրերը վարպետ ինտեգրալների նկատմամբ դիֆերենցյալ հավասարումների լուծման համար՝ ստացվել են ճշգրիտ թվային արդյունքներ c քվարկի զանգվածի լայն տիրույթի համար: Բացի այդ, հաշվարկվել են ասիմպտոտիկ վերլուծություններ և Թեյլորի շարքեր՝ համապատասխանաբար $z = m_c^2/m_b^2 = 0$ և $z = 1/10$ կետերի շուրջ: Բերվել է նաև վարպետ ինտեգրալների բացառապես թվային հաշվարկ՝ օգտագործելով PySecDec ծրագիրը:

**COMPARISON OF VARIOUS FEYNMAN DIAGRAM
CALCULATION METHODS FOR THE DECAY $b \rightarrow s\gamma$**

H.H. ASATRYAN

In recent works, the full set of three-loop diagrams (of order α_s^2) associated with the current-current operators O_1 and O_2 contributing to the decay amplitude for $b \rightarrow s\gamma$ were calculated. In this paper, one pair of these diagrams is calculated at various values of the charm-quark mass m_c using different methods, and the numerical accuracy/ease of use of these methods are compared to the analytic results obtained by others. Using the programs AMFlow and DiffExp to solve the differential equations for the master integrals, precise numerical results were obtained across a range of charm-quark mass values. In addition, asymptotic and Taylor series expansions were performed around $z = m_c^2/m_b^2 = 0$ and $z = 1/10$, respectively. A fully numerical evaluation of the master integrals using PySecDec was also carried out.

ПРЕОБРАЗОВАНИЕ АТОМОВ НАТРИЯ В МАГНИЙ В ПРОЦЕССЕ ЭЛЕКТРОЛИЗА

Р.Н. БАЛАСАНЯН, В.С. АРАКЕЛЯН, Г.Р. БАДАЛЯН,
И.Г. ГРИГОРЯН*, П.Г. МУЖИКЯН, Р.Б. КОСТАНИЯН

Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

*e-mail: irina.g.grigoryan@gmail.com

(Поступила в редакцию 21 января 2025 г.)

Впервые экспериментально исследована возможность преобразования атомов Na в Mg в процессе электролиза. Эксперименты выполнены в электролизере с алюминиевыми электродами в среде водного раствора хлорида натрия в качестве электролита. Питание электролизера осуществлено электрическими импульсами с крутыми фронтами. Проводился анализ химического состава поверхности катода до и после воздействия на электролизер короткими электрическими импульсами при помощи сканирующего электронного микроскопа. В результате воздействия получено значительное накопление химического элемента магния на участках поверхности алюминиевого катода. Обсужден физический механизм появления нового элемента (Mg).

1. Введение

В научной литературе имеются сообщения, посвященные физическим явлениям, представленным как низкоэнергетические трансмутации атомных ядер. Среди многообразия этих явлений особое место занимают ядерные преобразования при физическом воздействии на изотопы водорода. В работах [1–18] показано, что при механическом воздействии на дейтерий содержащие твердые тела наблюдается эмиссия нейтронов, которая проявляется также при использовании дейтерированных титановых и палладиевых электродов в процессе электролиза в тяжелой воде (D_2O) [3].

В работе [6] показана корреляция между изменениями интенсивности нейтронных вспышек и сигналами акустического излучения, прикладываемыми к тяжелой воде. Растрескивание дейтерий содержащих металлических образцов титана и палладия сопровождается возникновением свечения в видимой области спектра, радиоизлучением, а также излучением в рентгеновской области спектра, обнаруживаемыми при явлении кавитации в тяжелой воде [4]. Эти данные свидетельствуют о возникновении сильных электрических полей (10^6 – 10^7 В/см), аналогичных полям, возникающим при растрескивании диэлектрических кристаллов [5]. По данным работ [7–16], вследствие кавитации пузырей за короткий промежуток времени достигается высокая температура и возникает явление, называемое сонолюминесценцией. Это явление сопровождается ядерным синтезом в тяжелой воде, внутри схлопывающихся пузырьков газа. В приведенных

работах авторы достаточно убедительно доказывают факт наличия эмиссии нейтронов под воздействием ультразвукового излучения и связывают его с реализацией низкотемпературного ядерного синтеза.

Доказательства возникновения ядерных явлений, при определённых условиях электрического воздействия на обычную воду, представлены в работах [19, 20]. В работе [19] показано изменение концентрации кремния на поверхности катода из алюминия, что подтверждает возникновение ядерного преобразования по каналу $Al(n,\gamma)Si$. Эта реакция является экзоэнергетической ядерной реакцией, что и подтверждено в работе [19]. На основе образования квазинейтронов, которые участвуют в ядерных преобразованиях по каналу (n, γ) реакции, регистрировались изменения концентрации примесей в водной среде. В работах [21–23] показана реализация ядерных явлений под действием крутых механических воздействий на воду при помощи генераторов акустических колебаний. Питание акустических генераторов осуществлялось электрическими импульсами с крутыми фронтами. При синусоидальном питании акустического генератора γ -излучение не регистрировалось. В работе [21] показано, что интенсивность γ -излучения повышается с уменьшением величины pH воды, т.е. с повышением концентрации ионов водорода в воде, что является одним из необходимых компонентов для образования квазинейтронов. В работе [22] приведены результаты изменения концентрации примесей в тяжелой воде после воздействия на неё акустическими колебаниями с крутыми фронтами. В приведенных работах как обычная, так и тяжелая вода без наличия специальных примесей подвергались внешним физическим воздействиям. Очевидно, что наблюдаемые явления представляют большой интерес, как для академической науки, так и для прикладной области материаловедения.

В настоящей работе исследуется возможность превращения атомов Na в Mg в процессе электролиза в электролизере с алюминиевыми электродами в среде водного раствора хлорида натрия и при внешнем воздействии электрических импульсов с крутыми фронтами. Обсуждается физический механизм появления нового элемента посредством возможной ядерной реакции $Na(n,\gamma)Mg$.

2. Результаты исследований и их обсуждение

В качестве экспериментальной установки использовался электролизер с алюминиевыми электродами, а в качестве электролита использовался водный раствор поваренной соли (NaCl). Электролизер питался короткими, длительностью 8 микросекунд, импульсами с амплитудой 8 В и частотой следования 22 кГц. Длительность выдержки питания электролизера составила 72 часа. На рис.1 представлена картина внутренней поверхности катода, полученная на электронном микроскопе, после воздействия на электролизер короткими электрическими импульсами.

Из рис.1 следует, что после электролиза на поверхности алюминиевого катода появились неоднородные участки. Для исследования составов указанных участков выбраны три области, рельефы которых существенно отличаются.

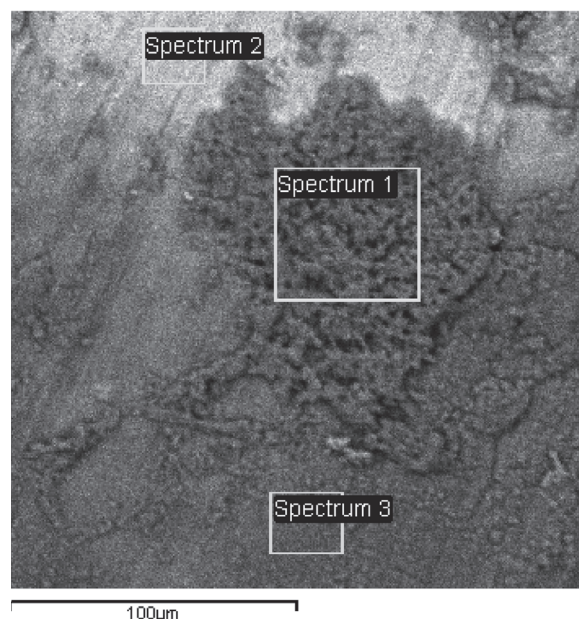


Рис.1. Рельеф внутренней поверхности алюминиевого катода после электролиза.

Исследования химического состава указанных областей проводились на сканирующем электронном микроскопе VEGA TS 5130MM, оборудованном системой энергодисперсионного рентгеновского микроанализа INCA Energy 300. На рис.2 представлены характеристические рентгеновские спектры выделенных участков поверхности катода. На спектрах видна существенная разница в концентрациях химических элементов на поверхности выделенных участков катода. В табл.1 приведены величины концентрации химических элементов в вес% на выделенных участках поверхности катода из алюминия (рис.1). Из таблицы следует, что в пределах чувствительности метода измерения (доли вес %) на катоде отсутствуют следы химического элемента натрия несмотря на то, что электролиз осуществлялся в водном растворе NaCl. Однако на участках с изменёнными рельефами (Spectrum 1 и Spectrum 3) наблюдается значительное накопление химического элемента магния с концентрацией до 16.84 вес% (Spectrum 1). Очевидно, что наблюдаемое явление не может быть объяснено на основе только электрохимических процессов. Следовательно, можно предположить, что механизм преобразования Na в Mg связан с ядерным преобразованием по каналу $\text{Na}(n, \gamma)\text{Mg}$.

Табл.1. Результаты квазиколичественных измерений концентрации химических элементов в вес% на поверхности катода из алюминия на выделенных участках рис.1 после электролиза

Номер спектра	C	O	Mg	Al	Si	Ca	Общий
Spectrum 1	5.28	59.70	16.84	15.84	1.88	0.45	100.00
Spectrum 2	8.61	8.14	0.30	82.30	0.65		100.00
Spectrum 3	4.83	50.63	9.64	30.80	2.85	1.24	100.00

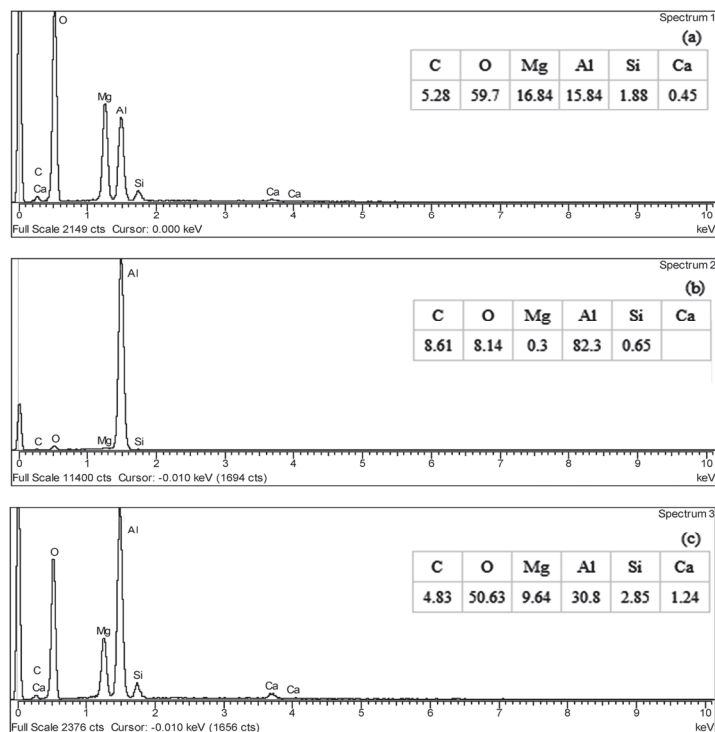


Рис.2. Характеристические рентгеновские спектры выделенных участков поверхности катода из алюминия после электролиза в водном растворе поваренной соли: (a), (b) и (c) – спектры выделенных участков на рис.1 соответственно Spectrum 1, Spectrum 2, Spectrum 3.

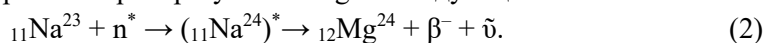
Механизм образования нейтронов при электрическом воздействии на электролизер описан в работах [19, 20]. В работе [19] показано, что при определенных параметрах воздействия на электролизер, состоящий из алюминиевых электродов и обычной воды в качестве электролита, наблюдалось повышение концентрации кремния на поверхности катода из алюминия. Это явление сопровождалось избыточным тепловыделением по сравнению с теплом Джоуля–Ленца в сумме с возможными экзотермическими электрохимическими процессами. На основе приведенных экспериментальных фактов сделано предположение о возникновении ядерного преобразования по каналу $\text{Al}(n, \gamma)\text{Si}$, которое и является экзотергической реакцией. Механизм образования нейтронов основан на процессе возникновения двойных электрических слоёв, возникающих при контакте металлических электродов с водой. При внешнем воздействии на двойной электрический слой происходит электростатическое взаимодействие между преодолевшим электрический барьер электрода электроном и диссоциированным ионом водорода. Под действием взаимного электростатического притяжения электрон ускоряется и сталкивается с ионом водорода. Достигнув столь близкого расстояния, создаются условия для слабых ядерных взаимодействий, в результате чего происходит синтез квазинейтронов по каналу:



где e^- – электрон, H^+ – ион водорода, n^* – квазинейтрон, ν – нейтрино, X – фотон

рентгеновского излучения, возникающий при резком торможении электрона при столкновении с ионом водорода [24]. Известно, что квазинейтрон по сравнению с нейтроном обладает дефектом массы и для его компенсации он входит в связь с ядрами близко находящихся атомов.

В представленных условиях эксперимента в водном растворе NaCl возникают диссоциированные ионы Na^+ и Cl^- , которые под действием приложенного электрического поля должны двигаться к соответствующим электродам. Однако отсутствие следов натрия на катоде, в пределах чувствительности сканирующего электронного микроскопа, свидетельствует о параллельном процессе в электролизере, связанном с генерацией квазинейтронов (1) и возникновении ядерных процессов, при которых Na преобразуется в Mg по следующей схеме:



Нестабильный изотоп $({}_{11}\text{Na}^{24})^*$ подвержен β^- -распаду с периодом полураспада ~ 15 часов, что находится в согласии с условием времени выдержки электролиза в течение 72 часов. Масса радиоизотопа $({}_{11}\text{Na}^{24})^*$ состоит из суммы масс ${}_{11}\text{Na}^{23}$, протона, электрона и составляет 23.9976006066 а.е.м. Масса магния ${}_{12}\text{Mg}^{24}$ равна 23.985041689 а.е.м. и в сумме с массой электрона составляет 23.9855902689 а.е.м. Из этого следует, что сумма масс материнского атома и квазинейтрона больше массы дочернего атома в сумме с массой электрона:

$$M({}_{11}\text{Na}^{24})^* > M({}_{12}\text{Mg}^{24}) + M(e^-), \quad (3)$$

т.е. выполняется условие закона сохранения энергии.

3. Заключение

Впервые показана экспериментальная возможность превращения атомов Na в Mg в процессе электролиза. При воздействии на водный раствор поваренной соли (NaCl) короткими импульсами длительностью 8 микросекунд с амплитудой 8 В и частотой следования 22 кГц в электролизере наблюдается значительное накопление химического элемента магния на катоде с концентрацией до 16.84 вес%. Учитывая, что наблюдаемое явление не может быть объяснено химическими процессами, предложен механизм преобразования Na в Mg на основе возможного ядерного преобразования по каналу $\text{Na}(n, \gamma)\text{Mg}$.

ЛИТЕРАТУРА

1. V.A. Klyuev, A.G. Lipson, Y.P. Toporov, B.V. Deryagin, V.I. Luschikov, A.V. Strelkov, E.P. Shabalin. Letters to ZhTF, **12**, 1333 (1986).
2. A.G. Lipson, D.M. Sakhov, V.A. Klyuev. Letters to ZhTF, **49**, 588 (1989).
3. A.G. Lipson, B.V. Deryagin, V.A. Klyuev, Y.P. Toporov, O.B. Khavroshkin. Technical Physics, **62**, 121 (1992).
4. R. Knapp, J. Dale, F. Hemmitt. Cavitation, Moscow (1974).
5. B.V. Deryagin, N.A. Krotova, V.P. Smilga. Adhesion of Solids. Nauka, Moscow, 1973.
6. R.P. Taleyarkhan, C.D. West, R.T. Lahey Jr, R.I. Nigmatulin, R.C. Block, Y.Xu. Phys. Rev. Lett., **96**, 101 (2006).
7. T.J. Matula, R.A. Roy, P.D. Mourad, W.B. McNamara III, K.S. Suslick. Phys. Rev. Lett., **75**, 2602 (1995).
8. W.C. Moss, D.B. Clarke, J.W. White, D.A. Young. Physics Letters A, **211**, 69 (1996).

9. **C. Eberlein.** Phys. Rev. Lett, **76**, 3842 (1996).
10. **W.B. McNamara III, Y.T. Didenko, K.S. Suslick.** Nature, **401**, 772 (1999).
11. **K. Yasui.** Phys. Rev. Lett, **83**, 4297 (1999).
12. **I.K. Gimaltdinov, R. Nigmatulin, V.S. Shagapov.** Fluid Dynamics, **36**, 458 (2001).
13. **R. Nigmatulin, V.S. Shagapov, I.K. Gimaltdinov, M.N. Galimzyanov.** Doklady Physics, **46**, 445 (2001).
14. **R.I. Nigmatulin, I.S. Akhatov, A.S. Topolnikov, R.K. Bolotnova, N.K. Vakhitova, R.T. Lahey, R.P. Taleyarkhan.** Physics of Fluids, **17**, 107106 (2005).
15. **R.T. Lahey Jr, R.P. Taleyarkhan, R.I. Nigmatulin.** Nuclear Engineering and Design, **237**, 1571 (2007).
16. **R.I. Nigmatulin, R. Lahey, R.P. Taleyarkhan, C. West, R.C. Block.** Physics-USpekhi, **57**, 877 (2014).
17. **R.P. Taleyarkhan, C. West, J. Cho, R.T. Lahey Jr, R.I. Nigmatulin, R.C. Block.** Science **295**, 1868 (2002).
18. **Huang, BJ., Pan, YH., Wu, PH.** Scientific Reports **14**, 214 (2024).
19. **G.R. Badalyan, R.N. Balasanyan, I.A. Gambaryan.** Armenian J. Phys., **8**, 85 (2015).
20. **R.N. Balasanyan, R.B. Kostanyan.** Phys. J., **2**, 45 (2016).
21. **V.S. Arakelyan, R.N. Balasanyan, S.G. Minasyan, R.B. Kostanyan.** Armenian J. Phys., **12**, 17 (2019).
22. **V.S. Arakelyan, R.N. Balasanyan, I.G. Grigoryan, R.B. Kostanyan, S.G. Minasyan.** J. Contemp. Phys., **57**, 218 (2022).
23. **R.N. Balasanyan, S.G. Minasyan, V.S. Arakelyan, R.B. Kostanyan.** Applied Physics, **2**, 15 (2019).
24. **V.S. Arakelyan, R.N. Balasanyan, I.G. Grigoryan, P.H. Muzhikyan, R.B. Kostanyan.** J. Contemp. Phys., **58**, 129 (2023).

TRANSFORMATION OF SODIUM ATOMS INTO MAGNESIUM DURING ELECTROLYSIS

R.N. BALASANYAN, V.S. ARAKELYAN, G.R. BADALYAN,
I.G. GRIGORYAN, P.H. MUZHIKYAN, R.B. KOSTANYAN

For the first time, the possibility of transforming Na atoms into Mg during electrolysis has been experimentally studied. The experiments were conducted in an electrolyzer with aluminum electrodes in an aqueous sodium chloride solution as the electrolyte, under the external influence of steep-front electric pulses. The chemical composition of the cathode surface was analyzed before and after exposure to short electric pulses. As a result of this influence, a significant accumulation of magnesium was observed on certain areas of the aluminum cathode surface. The physical mechanism of the appearance of the new element (Mg) is discussed.

ЭФФЕКТ ШТАРКА В ОБОБЩЕННОЙ ЗАДАЧЕ МИК–КЕПЛЕРА

Л.Г. МАРДОЯН*

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: mardoyan@theor.jinr.ru, mardoyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 10 марта 2025 г.)

Рассмотрен эффект Штарка в обобщенной задаче МИК–Кеплера. Приведены волновая функция обобщенной задачи МИК–Кеплера для дискретного спектра энергии в параболических координатах, а также интегралы движения, собственными функциями которых является параболический базис. Показано, что в обобщенной задаче МИК–Кеплера имеется линейный эффект Штарка, полностью снимающий вырождение энергетических уровней по азимутальному квантовому числу, и вычислен ее дипольный момент. Получено явное выражение для добавочного интеграла движения для обобщенной задачи МИК–Кеплера при наличии постоянного однородного электрического поля.

1. Введение

Предложенную нами [1] модель минимально суперинтегрируемой системы, описываемую гамильтонианом

$$\hat{H} = \frac{1}{2\mu} \left(-i\hbar \nabla - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right)^2 + \frac{\hbar^2 s^2}{2\mu r^2} - \frac{e^2}{r} + \frac{\lambda_1}{r(r+z)} + \frac{\lambda_2}{r(r-z)}, \quad (1)$$

где λ_1 и λ_2 неотрицательные постоянные, мы назвали обобщенной задачей МИК–Кеплера. При $\lambda_1 = \lambda_2 = 0$ гамильтониан (1) переходит в гамильтониан

$$\hat{H}_0 = \frac{1}{2\mu} \left(-i\hbar \nabla - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right)^2 + \frac{\hbar^2 s^2}{2\mu r^2} - \frac{e^2}{r}, \quad (2)$$

который описывает задачу МИК–Кеплера, построенную Цванцигером [2], а потом заново открытую МакИнтошем и Кизнеросом [3]. Здесь векторный потенциал

$$\mathbf{A} = \frac{g}{r(r-z)} (y, -x, 0) \quad (3)$$

соответствует монополю Дирака [4] с магнитным зарядом $g = \hbar cs/e$ ($s = 0, \pm 1/2, \pm 1, \dots$) и с осью сингулярности $z > 0$.

Отличительной особенностью этой системы является кулоновская скрытая симметрия, определяемая следующими интегралами движения:

$$\hat{\mathbf{J}} = \mathbf{r} \times \left(-i\hbar \nabla - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right) - s \frac{\mathbf{r}}{r}, \quad (4)$$

$$\hat{\mathbf{I}} = \frac{1}{2\sqrt{\mu}} \left[\hat{\mathbf{J}} \times \left(-i\hbar \nabla - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right) - \left(-i\hbar \nabla - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right) \times \hat{\mathbf{J}} \right] - \frac{e\sqrt{\mu}}{\hbar} \frac{\mathbf{r}}{r}. \quad (5)$$

Здесь оператор $\hat{\mathbf{J}}$ определяет угловой момент системы, а оператор $\hat{\mathbf{I}}$ является аналогом вектора Рунге–Ленца. Подобно задаче Кулона эти интегралы движения вместе с гамильтонианом (2) образуют квадратичную алгебру. При фиксированных

отрицательных значениях энергии интегралы движения составляют алгебру $so(4)$, а при положительных значениях энергии – $so(3,1)$. В силу скрытой симметрии задача МИК–Кеплера факторизуется не только в сферических и параболических координатах, а также в вытянутых сфероидальных координатах. Таким образом, система МИК–Кеплера является естественным обобщением кулоновской проблемы при наличии монополя Дирака.

Система МИК–Кеплера может быть построена путем редукции четырехмерного изотропного осциллятора с использованием так называемого преобразования Кустаанхеймо–Штифеля (KS-преобразование) [5] как на классическом, так и на квантовом уровнях [6–8].

Для целых значений s система МИК–Кеплера описывает относительное движение двух дираковских дионов (заряженных магнитных монополей), где вектор $\mathbf{r}$ определяет положение второго диона относительно первого [2]. Для полуцелого s предполагается наличие магнитного поля соленоида, придающего системе спин $1/2$ [9, 10].

Гамильтониан (1) при $s = 0$ и $\lambda_i \neq 0$ ($i = 1, 2$) переходит в гамильтониан обобщенной системы Кеплера–Кулона [11]

$$\hat{H} = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta - \frac{e^2}{r} + \frac{\lambda_1}{r(r+z)} + \frac{\lambda_2}{r(r-z)}. \quad (6)$$

Потенциальная энергия

$$V = -\frac{e^2}{r} + \frac{\lambda_1}{r(r+z)} + \frac{\lambda_2}{r(r-z)} \quad (7)$$

является одним из потенциалов типа Смородинского–Винтерница [12]. Потенциалы типа Смородинского–Винтерница были возрождены и исследованы Эвансом [13]. В случае, когда $\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda$ потенциал (7) сводится к потенциалу Хартмана, который использовался для описания аксиально-симметричных систем, подобных кольцеобразным молекулам [14–17].

Наконец, при $s = \lambda_1 = \lambda_2 = 0$ мы приходим к обычной задаче Кеплера–Кулона.

Также следует отметить, что переменные в уравнение Шредингера для обобщенной задачи МИК–Кеплера разделяются не только в сферических и параболических координатах [1], но также и в вытянутых сфероидальных координатах [18]. В работе [19] показано, что обобщенная система МИК–Кеплера и четырехмерный двойной сингулярный осциллятор дуальны друг другу, а преобразование дуальности является обобщенной версией преобразования Кустаанхеймо–Штифеля. В работе [20] вычислены сферические и параболические волновые функции для обобщенной задачи МИК–Кеплера в непрерывном спектре и решена квантово-механическая задача рассеяния заряженных частиц в обобщенной системе МИК–Кеплера.

Отметим также, что обобщенная задача МИК–Кеплера и дуальный ей четырехмерный двойной сингулярный осциллятор с разных точек зрения рассматривались в работах [21–34].

2. Параболический базис

Согласно работе [1] (см. также [35]), нормированная на единицу волновая функция обобщенной задачи МИК–Кеплера в параболических координатах $\xi, \eta \in [0, \infty)$, $\varphi \in [0, 2\pi)$, которые определяются формулами

$$x = \sqrt{\xi\eta} \cos \varphi, \quad y = \sqrt{\xi\eta} \sin \varphi, \quad z = \frac{1}{2}(\xi - \eta), \quad (8)$$

имеет вид

$$\Psi_{n_1 n_2 m}^{(s)}(\xi, \eta, \varphi; \delta_1^{(s)}, \delta_2^{(s)}) = \kappa^2 \sqrt{\frac{r_0}{\pi}} \Phi_{n_1 m_1}(\xi; \delta_1^{(s)}) \Phi_{n_2 m_2}(\eta; \delta_2^{(s)}) e^{i(m-s)\varphi}, \quad (9)$$

где

$$\Phi_{pq}(x; \delta_i^{(s)}) = \sqrt{\frac{\Gamma(p+q+1)}{p!} \frac{e^{-\kappa x/2}}{\Gamma(q+1)}} (\kappa x)^{q/2} F(-p; q+1; \kappa x). \quad (10)$$

Здесь $\kappa = \sqrt{-2\mu E}/\hbar$, $F(a; c; x)$ – вырожденная гипергеометрическая функция, m – азимутальное квантовое число, n_1 и n_2 – параболические квантовые числа, а

$$m_1 = |m - s| + \delta_1^{(s)} = \sqrt{(m - s)^2 + 4\mu\lambda_1/\hbar^2},$$

$$m_2 = |m + s| + \delta_2^{(s)} = \sqrt{(m + s)^2 + 4\mu\lambda_2/\hbar^2}.$$

Энергетический спектр обобщенной задачи МИК–Кеплера определяется формулой

$$E_n^0 = -\frac{\mu e^4}{2\hbar^2 \left(n + \frac{\delta_1^{(s)} + \delta_2^{(s)}}{2}\right)^2}, \quad n = |s| + 1, |s| + 2, \dots, \quad (11)$$

где n – главное квантовое число и оно связано с параболическими квантовыми числами следующим образом:

$$n = n_1 + n_2 + m_+ + 1. \quad (12)$$

Здесь

$$m_{\pm} = \frac{|m+s| \pm |m-s|}{2}.$$

Отметим, что параболическая волновая функция обобщенной задачи МИК–Кеплера является собственной функцией системы коммутирующих операторов $\{\hat{H}, \hat{\Omega}^{(s)}, \hat{J}_z\}$, и имеют место следующие спектральные задачи:

$$\hat{\Omega}^{(s)} \Psi_{n_1 n_2 m}^{(s)} = \Omega^{(s)} \Psi_{n_1 n_2 m}^{(s)} = \frac{\kappa\hbar}{\sqrt{\mu}} \left(n_1 - n_2 - m_- + \frac{\delta_1^{(s)} - \delta_2^{(s)}}{2} \right) \Psi_{n_1 n_2 m}^{(s)},$$

$$\hat{J}_z \Psi_{n_1 n_2 m}^{(s)} = \left(s - i \frac{\partial}{\partial \varphi} \right) \Psi_{n_1 n_2 m}^{(s)} = m \Psi_{n_1 n_2 m}^{(s)}.$$

Здесь оператор $\hat{\Omega}^{(s)}$ имеет вид:

$$\hat{\Omega}^{(s)} = \hat{I}_z + \frac{\sqrt{\mu}}{\hbar} \left[\lambda_1 \frac{r-z}{r(r+z)} - \lambda_2 \frac{r+z}{r(r-z)} \right], \quad (13)$$

где $\hat{I}_z$ – z-компонента аналога вектора Рунге–Ленца (5). Оператор $\hat{\Omega}^{(s)}$ получается путем исключения энергии E из уравнений, полученных после разделения переменных в уравнении Шредингера в параболических координатах, собственным значением которого является параболическая постоянная разделения $\Omega^{(s)}$.

В конце отметим, что оператор $\hat{\Omega}^{(s)}$ в параболических координатах имеет вид:

$$\hat{\Omega}^{(s)} = \frac{\hbar}{\sqrt{\mu}} \left\{ \frac{2}{\xi+\eta} \left[\xi \frac{\partial}{\partial \eta} \left(\eta \frac{\partial}{\partial \eta} \right) - \eta \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\xi \frac{\partial}{\partial \xi} \right) \right] + \frac{\xi-\eta}{2\xi\eta} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} - \frac{2is\xi}{\eta(\xi+\eta)} \frac{\partial}{\partial \varphi} - \frac{2s^2\xi}{\eta(\xi+\eta)} \right\}$$

$$+ \frac{2\sqrt{\mu}}{\hbar} \left[\lambda_1 \frac{\eta}{\xi(\xi+\eta)} - \frac{\lambda_2 \xi}{\eta(\xi+\eta)} \right]. \quad (14)$$

3. Эффект Штарка

Гамильтониан обобщенной задачи МИК–Кеплера во внешнем постоянном однородном электрическом поле имеет вид

$$\hat{H} = \frac{1}{2\mu} \left(-i\hbar \nabla - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right)^2 + \frac{\hbar^2 s^2}{2\mu r^2} - \frac{e^2}{r} + \frac{\lambda_1}{r(r+z)} + \frac{\lambda_2}{r(r-z)} + |e|\varepsilon z. \quad (15)$$

Мы считаем, что электрическое поле ε направлено в положительном, а действующая на электрон сила – в отрицательном направлении оси z . Поскольку гамильтониан (15) обладает аксиальной симметрией, уравнение Шредингера обобщенной задачи МИК–Кеплера во внешнем постоянном однородном электрическом поле удобно рассмотреть в параболических координатах. Таким образом, для вычисления матричных элементов переходов между взаимно вырожденными состояниями удобно выбрать в качестве невозмущенных волновых функций параболические волновые функции (9) обобщенной задачи МИК–Кеплера.

Нас интересуют матричные элементы переходов $n_1 n_2 m \rightarrow n'_1 n'_2 m'$ при фиксированном значении главного квантового числа n . Так как оператор возмущения есть $\hat{V} = |e|\varepsilon z = |e|\varepsilon(\xi - \eta)/2$, то согласно теории возмущений, поправка первого приближения к собственному значению энергии E_n^0 (11) есть

$$E_n^{(1)} = \int \psi_{n_1 n_2 m}^{(s)*} (\xi, \eta, \varphi; \delta_1^{(s)}, \delta_2^{(s)}) \hat{V} \psi_{n_1 n_2 m}^{(s)} (\xi, \eta, \varphi; \delta_1^{(s)}, \delta_2^{(s)}) dV. \quad (16)$$

С учётом (9) имеем

$$E_n^{(1)} = \frac{|e|\varepsilon}{4r_0^3 \left(n + \frac{\delta_1^{(s)} + \delta_2^{(s)}}{2} \right)^4} (\Im_{n_1 m_1} I_{n_2 m_2} - I_{n_1 m_1} \Im_{n_2 m_2}), \quad (17)$$

где $r_0 = \hbar^2/\mu e^2$ – боровский радиус, а

$$I_{pq} = \int_0^\infty [\Phi_{pq}(x)]^2 dx, \quad \Im_{pq} = \int_0^\infty x^2 [\Phi_{pq}(x)]^2 dx, \quad (18)$$

Далее мы воспользуемся формулами [36, 37]

$$\int_0^\infty e^{\lambda x} x^\nu F(\alpha; \gamma; kx) dx = \frac{\Gamma(\nu+1)}{\lambda^{\nu+1}} F\left(\alpha, \nu+1; \gamma; \frac{k}{\lambda}\right),$$

$$F(a, b; c; 1) = \frac{\Gamma(c)\Gamma(c-a-b)}{\Gamma(c-a)\Gamma(c-b)},$$

где $F(a, b; c; x)$ – гипергеометрическая функция. Отметим, что согласно [37], последнее формула имеет место при условии $\text{Re } c > \text{Re } a > 0$, $\text{Re } (c - a - b) > 0$. В нашем случае эти условия соблюдаются. В результате мы получим для интегралов I_{pq} и $\Im_{pq}$ следующие выражения:

$$I_{pq} = \frac{1}{\kappa} = r_0 \left(n + \frac{\delta_1^{(s)} + \delta_2^{(s)}}{2} \right), \quad \Im_{pq} = \frac{2}{\kappa^3} \left[3p(p+q+1) + \frac{1}{2} q(q+3) + 1 \right].$$

Теперь, пользуясь вычисленными интегралами, можно найти поправку первого приближения к собственному значению энергии (11):

$$E_n^{(1)} = \frac{1}{2} r_0 |e|\varepsilon \left\{ 3 \left[\left(n + \frac{\delta_1^{(s)} + \delta_2^{(s)}}{2} \right) \left(n_1 - n_2 - m_- + \frac{\delta_1^{(s)} - \delta_2^{(s)}}{2} \right) + \frac{m_s}{3} \right. \right. \\ \left. \left. + \left(n_1 - n_2 - \frac{m_-}{3} \right) \left(\delta_1^{(s)} + \delta_2^{(s)} \right) \right] - \frac{\mu}{\hbar^2} (\lambda_1 - \lambda_2) \right\}. \quad (19)$$

Таким образом, как и в случае атома водорода, линейный член по n пропорционален z -компоненте вектора Рунге–Ленца. Однако имеются дополнительные линейные по m поправки, снимающие вырождение по z -компоненте вращательного момента.

Итак, в обобщенной задаче МИК–Кеплера, как и в системе заряд–дираковский дион [38], имеется линейный эффект Штарка, полностью снимающий вырождение по азимутальному квантовому числу m .

При фиксированном s , согласно формуле (12), две крайние компоненты расщепившегося уровня соответствуют следующим значениям параболических квантовых чисел: $n_1 = n - |s| - 1$, $n_2 = 0$ и $n_1 = 0$, $n_2 = n - |s| - 1$. Согласно (19), расстояние между этими крайними уровнями есть

$$\Delta E_n = 3r_0|e|\epsilon n(n - |s| - 1),$$

т.е., как и в случае атома водорода, общее расщепление уровня при эффекте Штарка примерно пропорционально n^2 .

Наличие линейного эффекта Штарка означает, что в невозмущенном состоянии обобщенная задача МИК–Кеплера обладает дипольным моментом со средним значением

$$\bar{d}_z = -\frac{1}{2}r_0|e|\left\{3\left[\left(n + \frac{\delta_1^{(s)} + \delta_2^{(s)}}{2}\right)\left(n_1 - n_2 - m_- + \frac{\delta_1^{(s)} - \delta_2^{(s)}}{2}\right) + \frac{ms}{3}\right.\right. \\ \left.\left.+ \left(n_1 - n_2 - \frac{m_-}{3}\right)\left(\delta_1^{(s)} + \delta_2^{(s)}\right)\right] - \frac{\mu}{\hbar^2}(\lambda_1 - \lambda_2)\right\}. \quad (20)$$

Из выражения для среднего дипольного момента естественно следует определение оператора

$$\hat{d} = -\frac{1}{2}r_0|e|\left\{3\left[\frac{r_0\sqrt{\mu}}{\hbar}\left(n + \frac{\delta_1^{(s)} + \delta_2^{(s)}}{2}\right)^2\hat{\Omega}^{(s)} + \frac{s}{3}\hat{f}_z\right.\right. \\ \left.\left.+ \left(n_1 - n_2 - \frac{m_-}{3}\right)\left(\delta_1^{(s)} + \delta_2^{(s)}\right)\right] - \frac{\mu}{\hbar^2}(\lambda_1 - \lambda_2)\right\}. \quad (21)$$

или, с учетом формулы для энергетического спектра обобщенной задачи МИК–Кеплера (11), имеем

$$\hat{d} = \frac{3}{2}|e|\left\{\frac{\hbar\hat{\Omega}^{(s)}}{2\sqrt{\mu}E_n^0} - r_0\left[\frac{s}{3}\hat{f}_z + \left(n_1 - n_2 - \frac{m_-}{3}\right)\left(\delta_1^{(s)} + \delta_2^{(s)}\right)\right] - \frac{|e|}{2e^2}(\lambda_1 - \lambda_2)\right\}. \quad (22)$$

Уравнение Шредингера для обобщенной задачи МИК–Кеплера во внешнем постоянном однородном электрическом поле, описываемое гамильтонианом (15), как и уравнение Шредингера с гамильтонианом (1) с $\epsilon = 0$, допускает разделение переменных в параболических координатах. Подстановка

$$\psi(\xi, \eta, \varphi) = \Phi_1(\xi)\Phi_2(\eta)\frac{e^{i(m-s)\varphi}}{\sqrt{2\pi}}$$

приводит к двум уравнениям:

$$\frac{d}{d\xi}\left(\xi\frac{d\Phi_1}{d\xi}\right) + \left[\frac{\mu E}{2\hbar^2}\xi - \frac{m_1^2}{4\xi} + \frac{\sqrt{\mu}}{2\hbar}M^{(s)}(\epsilon, \delta_1^{(s)}, \delta_2^{(s)}) + \frac{1}{2r_0}\right]\Phi_1 = 0, \quad (23)$$

$$\frac{d}{d\eta}\left(\eta\frac{d\Phi_2}{d\eta}\right) + \left[\frac{\mu E}{2\hbar^2}\eta - \frac{m_2^2}{4\eta} - \frac{\sqrt{\mu}}{2\hbar}M^{(s)}(\epsilon, \delta_1^{(s)}, \delta_2^{(s)}) + \frac{1}{2r_0}\right]\Phi_2 = 0. \quad (24)$$

Здесь энергию E будем рассматривать как параметр, а постоянную разделения $M^{(s)}(\epsilon, \delta_1^{(s)}, \delta_2^{(s)})$ – как собственное значение оператора $\hat{M}^{(s)}$, явный вид которого получаем путем исключения энергии E из уравнений (23) и (24). Этот добавочный интеграл движения в параболических координатах имеет вид:

$$\hat{M}^{(s)} = \frac{\hbar}{\sqrt{\mu}}\left\{\frac{2}{\xi+\eta}\left[\xi\frac{\partial}{\partial\eta}\left(\eta\frac{\partial}{\partial\eta}\right) - \eta\frac{\partial}{\partial\xi}\left(\xi\frac{\partial}{\partial\xi}\right)\right] + \frac{\xi-\eta}{2\xi\eta}\frac{\partial^2}{\partial\varphi^2} - \frac{2is\xi}{\eta(\xi+\eta)} - \right. \\ \left. \frac{2s^2}{\eta(\xi+\eta)} + \frac{\xi-\eta}{r_0(\xi+\eta)}\right\} + \frac{2\sqrt{\mu}}{\hbar}\left[\frac{\lambda_1\eta}{\xi(\xi+\eta)} - \frac{\lambda_2\xi}{\eta(\xi+\eta)}\right] + \frac{\sqrt{\mu}|e|\epsilon}{4\hbar}\xi\eta.$$

Далее, учитывая формулу (14), последнее соотношение можно записать в виде

$$\hat{M}^{(s)} = \hat{\Omega}^{(s)} + \frac{\sqrt{\mu}|e|\varepsilon}{4\hbar}\xi\eta + \frac{\sqrt{\mu}|e|\varepsilon}{4\hbar}(x^2 + y^2).$$

Отметим, что при $\lambda_1 = \lambda_2 = 0$ полученные в этой работе формулы переходят в соответствующие формулы для эффекта Штарка в системе заряд–дираковский дион полученные нами в работе [38].

И наконец важно отметить, что при $s = 0$, полученные нами результаты описывают линейный эффект Штарка для обобщенной системы Кеплера–Кулона (6), и как нам известно эта задача до сих пор не была рассмотрена, а при $s = \lambda_1 = \lambda_2 = 0$ полученные нами формулы переходят в соответствующие формулы для атома водорода.

4. Заключение

Рассмотрен эффект Штарка в обобщенной задаче МИК–Кеплера, описывающей взаимодействие заряда с дираковским дионом в поле обобщенного кольцеобразного потенциала. Найдено, что несмотря на сходство обобщенной задачи МИК–Кеплера, и следовательно системы заряд–дион, с атомом водорода, отношение первой к эффекту Штарка качественно иное. Именно в обобщенной задаче МИК–Кеплера и в системе заряд–дираковский дион имеет место линейный эффект Штарка, полностью снимающий вырождение энергетического спектра по азимутальному квантовому числу m . Наличие линейного эффекта Штарка, как и ненулевого дипольного момента обобщенной задачи МИК–Кеплера являются следствием присутствия магнитного монополя.

Наконец, было бы интересно провести аналогичный анализ эффекта Штарка в обобщенной задаче МИК–Кеплера на трехмерной сфере и гиперboloиде с целью выяснения его зависимости от кривизны пространства. Еще более поучительным может быть исследование эффекта Штарка в пятимерной задаче $SU(2)$ монополя Янга–Кулона [39, 40] в силу наличия изоспиновых степеней свободы.

ЛИТЕРАТУРА

1. L. Mardoyan. J. Math. Phys., **44**, 4981 (2003).
2. D. Zwanziger. Phys. Rev., **176**, 1480 (1968).
3. H. McIntosh, A. Cisneros. J. Math. Phys., **11**, 896 (1970).
4. P.A.M. Dirac. Proc. Roy. Soc. A, **133**, 60 (1931).
5. P.Kustaanheimo, E.Stiefel. J. ReineAngew. **218**, 204 (1965).
6. T. Iwai, Y. Uwano. J. Phys. A, **21**, 4083 (1988).
7. A. Nersessian, V. Ter-Antonyan. Mod. Phys. Lett. A, **9**, 2431 (1994).
8. A. Nersessian, V. Ter-Antonyan. Mod. Phys. Lett. A, **10**, 2633 (1995).
9. A. Nersessian, V. Ter-Antonyan, M.M.Tsulaia. Mod. Phys. Lett. A, **11**, 1605 (1996).
10. A. Nersessian, V. Ter-Antonyan. Phys. At. Nucl., **61**, 1756 (1998).
11. M. Kibler, L.G. Mardoyan, G.S.Pogosyan. Int. J. Quan. Chem., **52**, 1301 (1994).
12. J. Fris, V. Mandrosov, Ya.A. Smorodinsky, M. Uhler, P.Winternitz. Phys. Lett., **16**, 354, (1965).
13. N.W. Evans. Phys. Lett. A, **147**, 483 (1990).
14. H. Hartmann. Theor. Chim. Acta, **24**, 201 (1972).

15. **H. Hartmann, R. Schuch, J. Radke.** Theor. Chim. Acta, **42**, 1 (1976).
16. **H. Hartmann, R. Schuch.** Int. J. Quant. Chem., **18**, 125 (1980).
17. **C. Quesne.** J. Phys. A., **21**, 3093 (1988).
18. **L.G. Mardoyan.** Phys. At. Nucl., **68**, 1746 (2005).
19. **L.G. Mardoyan, M.G. Petrosyan.** Phys. At. Nucl., **70**, 572 (2007).
20. **Л.Г. Мардоян.** ТМФ, **217**, 285 (2023).
21. **N. Ünal.** J. Math. Phys., **47**, 122105 (2006).
22. **P.R. Giri.** Mod. Phys. Lett. A, **22**, 2365 (2007).
23. **P.R. Giri.** Mod. Phys. Lett. A, **23**, 895 (2008).
24. **P.R. Giri.** Int. J. Mod. Phys. A, **25**, 155 (2010).
25. **A. Nersessian, V. Yeghikyan.** J. Phys. A, **41**, 155203 (2008).
26. **I. Marquette.** J. Math. Phys., **51**, 102105 (2010).
27. **I. Marquette.** J. Phys. A, **44**, 235203 (2011).
28. **M.F. Hoque, I. Marquette, Y.-Z. Zhang.** J. Phys. A, **48**, 445207 (2015).
29. **M.F. Hoque, I. Marquette, Y.-Z. Zhang.** J. Math. Phys., **57**, 092104 (2016).
30. **M. Salazar-Ramirez, D. Martinez, V.D. Granados, R.D.Mota.** ArXiv: quant-ph/1005.3973.
31. **M. Salazar-Ramirez, D. Ojeda-Guillé, R.D. Mota.** J. Math. Phys., **57**, 021704 (2016).
32. **H. Shmavonyan.** Phys. Lett. A., **383**, 1223 (2019).
33. **A. Lavrenov.** ArXiv: math-ph/1908.03572.
34. **M.G. Petrosyan.** Phys. At. Nucl., **71**, 1094 (2008).
35. **L.G. Mardoyan.** ArXiv: math-ph/2411.07733.
36. **Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц.** Квантовая механика. Москва, Наука, 1974.
37. **Г. Бейтмен, А. Эрдейи.** Высшие трансцендентные функции. Т. 1. Москва, Наука, 1973.
38. **Л.Г. Мардоян, А.П. Нерсисян, М.Г. Петросян.** ТМФ, **140**, 78 (2004).
39. **Л.Г. Мардоян, А.Н. Сисакян, В.М. Тер-Антонян.** ЯФ, **61**, 1859 (1998).
40. **L.G. Mardoyan, A.N. Sissakian, V.M. Ter-Antonyan.** Mod. Phys. Lett. A, **14**, 1303 (1999).

STARK EFFECT IN THE GENERALIZED MIC-KEPLER PROBLEM

L.G. MARDOYAN

The Stark effect in the generalized MİK-Kepler problem is considered. The wave function of the generalized MİK-Kepler problem for a discrete energy spectrum in parabolic coordinates are presented, as well as the integrals of motion whose eigenfunctions is the parabolic basis. It is shown that in the generalized MİK-Kepler problem there is a linear Stark effect, completely removing the degeneracy of energy levels in the azimuthal quantum number, and its dipole moment is calculated. An explicit expression for the additional integral of motion for the generalized MİK-Kepler problem in the presence of a constant uniform electric field is obtained.

FUNCTIONAL INTEGRAL REPRESENTATION FOR THE S-MATRIX IN INTEGRABLE 2D CONFORMAL FIELD THEORIES

D. DAS¹, G. JORJADZE^{2,3*}, L. MEGRELIDZE⁴

¹Department of Physics, Indian Institute of Technology-Kanpur, Kanpur, India

²Free University of Tbilisi, Georgia

³Razmadze Mathematical Institute of TSU, Tbilisi, Georgia

⁴Ilia State University, Tbilisi, Georgia

*e-mail: g.jorjadze@freeuni.edu.ge

(Поступила в редакцию 03 Марта 2025 г.)

We study semiclassical scattering in Liouville theory, in $SL(2, \mathbb{R})/U(1)$ WZW theory and in $SL(3, \mathbb{R})$ Toda theory, using the relations between the in and out fields defined by the chiral currents of these theories. By these relations we investigate the generating functional F that corresponds to the semiclassical S-matrix. In particular, we construct the Legendre transform of F in a closed form. The construction scheme is similar for these three theories and the obtained functionals have a compact form. This provides a basis for the functional integral representation of the S-matrix in these theories, which earlier was known only for Liouville theory.

ЛИТЕРАТУРА

1. Jorjadze, G. and Theisen, S., *JHEP*, 2021, 02, 111.
2. Jorjadze, G. and Theisen, S., *PoS*, 2021, vol. 394, p. 0013.
3. Seiberg, N., *Prog. Theor. Phys. Suppl.*, 1990, vol. 102, p. 319.
4. Teschner, J., *Class. Quant. Grav.*, 2001, vol. 18, p. 153.
5. Chatterjee, S. and Witten, E., *JHEP*, 2025, 02, 153.
6. Witten, E., *Phys. Rev. D*, 1991, vol. 44, p. 314.
7. Mandal, G., Sengupta, A.M., and Wadia, S.R., *Mod. Phys. Lett.*, 1991, vol. A6, p. 1685.
8. Leznov A.N. and Saveliev, M.V., *Lett. Math. Phys.*, 1979, vol. 3, p. 489.
9. Fateev V.A. and Litvinov, A.V., *JHEP*, 2007, 11, 002.
10. Fateev V.A. and Litvinov, A.V., *JHEP*, 2009, 01, 033.
11. Forgacs, P., Wipf, A., Balog, J., Feher L., and O'Raiheartaigh, L., *Phys. Lett. B*, 1989, vol. 227, p. 214.
12. Muller, U. and Weigt, G., *Commun. Math. Phys.*, 1999, vol. 205, p. 421.
13. Zamolodchikov A.B. and Zamolodchikov, A.B., *Nucl. Phys. B*, 1996, vol. 477, p. 577.
14. Dorn, H., and Otto, H.J., *Nucl. Phys. B*, 1994, vol. 429, p. 375.
15. Fateev, V. and Ribault, S., *JHEP*, 2010, 12, 089.

ЭЛЛИПТИЧЕСКИ ПОЛЯРИЗОВАННЫЕ ВЫСОКИЕ ЛАЗЕРНЫЕ ГАРМОНИКИ В ГЕКСАГОНАЛЬНОЙ ГРАФЕНОВОЙ КВАНТОВОЙ ТОЧКЕ

А.Г. КАЗАРЯН*, Н.О. АРУСТАМЯН, Г.Г. ЧОПУРЯН, Х.В. СЕДРАКЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: amarkos@ysu.am

(Поступила в редакцию 2 апреля 2025 г.)

В настоящей работе исследовано преобразование света в гексагональной графеновой квантовой точке при генерации высоких гармоник в интенсивном лазерном поле. Линейно-поляризованное лазерное поле приводит к интенсивному излучению эллиптически поляризованных гармоник. Эллиптичность и ориентация эллипса поляризации выводятся из параметров Стокса, рассчитанных с учетом различных компонентов поляризации. Численные результаты показывают, что эллиптичность гармоник, генерируемых в квантовой точке, можно легко настроить, изменяя угол наклона линейно-поляризованного лазерного импульса без необходимости использования сложных систем управления.

1. Введение

В последние десятилетия резко вырос интерес к изучению оптических нелинейных свойств твердых тел посредством генерации высоких гармоник [1, 2]. В этом процессе решающее значение имеет повышение эффективности выхода генерации высоких гармоник, которое сильно зависит от плотности излучателя и возможных каналов возбуждения. По сравнению с трехмерными твердыми телами процессы генерации высоких гармоник в двумерном графене [3] и дихалькогенидах переходных металлов [4] привлекли большее внимание из-за их необычных оптических и электронных свойств. Более того, низкоразмерные наноструктуры, такие как графеновая квантовая точка (ГКТ), широко изучаются для преодоления ограничения, связанного с отсутствием щели у однослойного неограниченного графена, т.е. приобретения запрещенной зоны в результате пространственного ограничения графена. При этом, изменяя поперечную форму, размер и тип края графена, можно изменять и настраивать запрещенную зону в ГКТ необходимым образом.

Недавние исследования, особенно связанные с процессом генерации высоких гармоник в двумерных материалах и наноструктурах, также показывают сильную зависимость квантового выхода процесса ГВГ от поляризации импульсов возбуждающей электромагнитной волны, что обеспечивает возможность реализации контролируемой поляризации при генерации жестко-ультрафиолетовых или мягко-рентгеновских импульсов [5]. Следует отметить, что осуществление гармоник с эллиптической или круговой поляризацией является сложной

задачей, требующей специальных комбинаций эллиптического или кругового поляризованных импульсов, и методов молекулярного выравнивания [6].

Целью рассматриваемой статьи является исследование преобразования интенсивного лазерного поля в процессе генерации высоких гармоник в плоской шестиугольной ГКТ с зигзагообразными краями: линейно-поляризованные лазерные импульсы генерируют эллиптически поляризованные гармоники, а эллиптически поляризованные импульсы могут генерировать линейно или эллиптически поляризованные гармоники. Последнее откроет пути для дальнейшего использования возможностей ГКТ в процессе генерации высоких гармоник.

2. Теоретический метод

Для моделирования выбрана плоская шестиугольная ГКТ, которая подвергается воздействию линейно-поляризованного лазерного поля в дипольном приближении, с напряженностью $\mathbf{E}(t) = \mathbf{e}E_0 f(t)\sin(\omega t)$, где $\mathbf{e}$ – единичный вектор поляризации в плоскости графена (XY), E_0 – амплитуда и ω – частота поля; $f(t) = \sin(\pi t/T)$ – медленно меняющаяся огибающая с длительностью импульса T , которая принимается равной 12 периодам волны: $T = 24\pi/\omega$. Мы рассмотрели электромагнитную волну длиной 3 мкм ($\omega = 0.4$ эВ/ $\hbar$). Пиковая интенсивность лазера составляет 5×10^{10} Вт/см². Геометрическая структура ГКТ показана на вставке рис.1. Мы исследовали ГКТ с зигзагообразными краями. Длина между ближайшими узлами в ГКТ составляет 1.42 Å. Мы пренебрегли колебаниями решетки в гамильтониане, используя приближение среднего поля ближайших соседей эмпирической модели сильной связи (МСС) [7, 8] для плоской ГКТ, при взаимодействии с интенсивным лазерным полем. Применена микроскопическая квантовая теория, описывающая нелинейное взаимодействие ГКТ – лазерное поле в динамическом приближении Хартри–Фока [8]. Полный гамильтониан в приближении МСС имеет вид:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{int}}, \quad (1)$$

где свободный гамильтониан ГКТ представлен в виде:

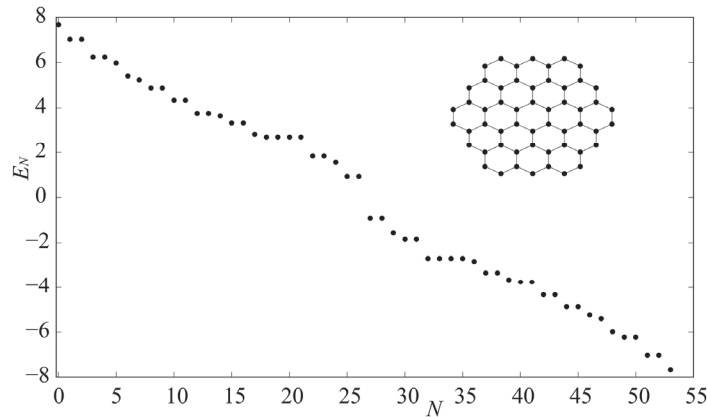


Рис.1. Зависимость энергий E_N собственных состояний от порядка состояния N для гексагональной ГКТ, решетка которой показана на вставке к рисунку. Положительные значения энергии соответствуют зоне проводимости, отрицательные – валентной зоне.

$$\hat{H}_0 = -\sum_{\langle i,j \rangle \sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + \frac{1}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} V_{ij} n_i n_j + \frac{U}{2} \sum_{i\sigma} n_{i\sigma} n_{i\bar{\sigma}}. \quad (2)$$

Здесь $c_{i\sigma}^\dagger$ – оператор рождения и $c_{i\sigma}$ – оператор уничтожения электрона со спиновой поляризацией $\sigma = (\downarrow, \uparrow)$ в узле i , $\langle i,j \rangle$ описывает суммирование по ближайшим соседним узлам с энергией переноса t_{ij} ($\bar{\sigma}$ соответствует противоположной спиновой поляризации); $n_{i\sigma} = c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma}$ – оператор электронной плотности, $n_i = n_{i\uparrow} + n_{i\downarrow}$ – полная электронная плотность в узле i . Второй и третий члены в (2) соответствуют электрон-электронному взаимодействию (ЭЭВ) в расширенном приближении Хаббарда (с кулоновским отталкиванием с межузловыми энергиями V_{ij} и энергиями в узлах U) [9]. Межузловое кулоновское взаимодействие описывается расстоянием d_{ij} между парами ближайших соседей и энергией $V_{ij} = V d_{\min} / d_{ij}$ ($d_{\min}$ – минимальное расстояние до ближайшего соседа). Первый член в свободном гамильтониане (2) – это часть кинетической энергии гамильтониана в эмпирическом режиме МСС с матричным элементом туннелирования t_{ij} соседних узлов. Интеграл перескока между ближайшими соседними узлами ГКТ в данном приближении взят равным $t_{ij} = 2.7$ эВ, и энергии ЭЭВ $V=0.3U$, $U = 2.75$ эВ выбраны близкими к эмпирическим данным [5]. Взаимодействие лазерного поля с ГКТ описывается в калибровке длины с помощью скалярного потенциала

$$\hat{H}_{int} = e \sum_{i\sigma} \mathbf{r}_i \mathbf{E}(t) c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma}, \quad (3)$$

с радиус-вектором $\mathbf{r}_i$ и элементарным зарядом e . Из уравнения Гейзенберга [10] получим эволюционные уравнения для одночастичной матрицы плотности $\rho_{ij}^{(\sigma)} = \langle c_{j\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \rangle$. Также предположим, что система релаксирует со скоростью γ к равновесному распределению $\rho_{0ij}^{(\sigma)}$. Чтобы описать замкнутую систему уравнений для одночастичной матрицы плотности $\rho_{ij}^{(\sigma)}$; ЭЭВ будем рассматривать в приближении Хартри–Фока [8]. Тогда гамильтониан (2) аппроксимируется следующим образом:

$$\begin{aligned} \hat{H}_0^{HF} = & -\sum_{\langle i,j \rangle \sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + U \sum_i (\bar{n}_{i\uparrow} - \bar{n}_{0i\uparrow}) n_{i\downarrow} \\ & + U \sum_{i\sigma} (\bar{n}_{i\downarrow} - \bar{n}_{0i\downarrow}) n_{i\uparrow} + \sum_{\langle i,j \rangle} V_{ij} (\bar{n}_j - \bar{n}_{0j}) n_i \\ & - \sum_{\langle i,j \rangle \sigma} V_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} \left(\langle c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} \rangle - \langle c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} \rangle_0 \right). \end{aligned} \quad (4)$$

Таким образом, для элемента матрицы плотности $\rho_{ij}^{(\sigma)}$ получается уравнение

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}^{(\sigma)}}{\partial t} = & e \sum_k \left(\tau_{kj\sigma} \rho_{ik}^{(\sigma)} - \tau_{ik\sigma} \rho_{kj}^{(\sigma)} \right) + (V_{i\sigma} - V_{j\sigma}) \rho_{ij}^{(\sigma)} \\ & + e \mathbf{E}(t) (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) \rho_{ij}^{(\sigma)} - i\hbar \gamma (\rho_{ij}^{(\sigma)} - \rho_{0ij}^{(\sigma)}), \end{aligned} \quad (5)$$

где матрицы $V_{i\sigma}$, $\tau_{i\sigma}$ определяются через матрицу плотности $\rho_{ij}^{(\sigma)}$ следующим образом:

$$V_{i\sigma} = U(\rho_{ii}^{(\bar{\sigma})} - \rho_{0ii}^{(\bar{\sigma})}) + \sum_{j\alpha} V_{ij} (\rho_{ii}^{(\alpha)} - \rho_{0ii}^{(\alpha)}), \quad (6)$$

$$\tau_{ij\sigma} = t_{ij} + V_{ij} (\rho_{ji}^{(\sigma)} - \rho_{0ji}^{(\sigma)}). \quad (7)$$

Интегрирование уравнений (5) по времени для $\rho_{ij}^{(\sigma)}$ выполняется с помощью метода Рунге–Кутты 4-го порядка.

3. Численные результаты и обсуждение

Для изучения процесса генерации высоких гармоник в гексагональной ГКТ мы рассматриваем спектр высоких гармоник с помощью Фурье-преобразования $\mathbf{a}(\Omega)$ дипольного ускорения: $\mathbf{a}(t) = \partial^2 \mathbf{d}(t) / \partial t^2$, где $\mathbf{d}(t) = \langle \sum_{i\sigma} \mathbf{r}_i c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \rangle$ – дипольный момент перехода. Удобно нормализовать дипольное ускорение на множитель $a_0 = \bar{\omega}^2 \bar{d}$, где $\bar{\omega} = 1$ эВ/ $\hbar$ и $\bar{d} = 1$ Å. Мощность, излучаемая на данной частоте, пропорциональна $|\mathbf{a}(\Omega)|^2$. Для прояснения основных аспектов многофотонного процесса генерации высоких гармоник в ГКТ мы предполагаем частоту лазерного возбуждения из ближнего инфракрасного диапазона, равной $\omega = 0.4$ эВ/ $\hbar$, что намного меньше типичных энергий t_{ij} , U , V . Напряженность лазерного поля равна $E_0 = 0.3$ В/Å. Скорость релаксации принимается равной $\hbar\gamma = 0.16$ эВ. Мы также ввели угол θ (угол наклона воздействующего линейно-поляризованного лазерного поля) между вектором поляризации $\mathbf{e} = \{\cos \theta, \sin \theta\}$ и осью x .

На рис.1 показаны собственные энергетические состояния в ГКТ. Рис.2а демонстрирует спектры излучения генерации высоких гармоник в линейно-поляризованном поле, выраженные через величину $\mathbf{a}(\Omega)/a_0$ как функции порядка гармоник для различных углов поляризации $\theta = \arctan(E_y/E_x)$. Величины $\mathbf{a}(\Omega)/a_0$, полученные из компонент $a_x(\Omega)$, $a_y(\Omega)$, задаются соотношением:

$$a(\Omega) = \sqrt{a_x(\Omega)^2 + a_y(\Omega)^2} / a_0. \quad (8)$$

Тот факт, что спектры на рис.2а не идентичны, демонстрирует нелинейную

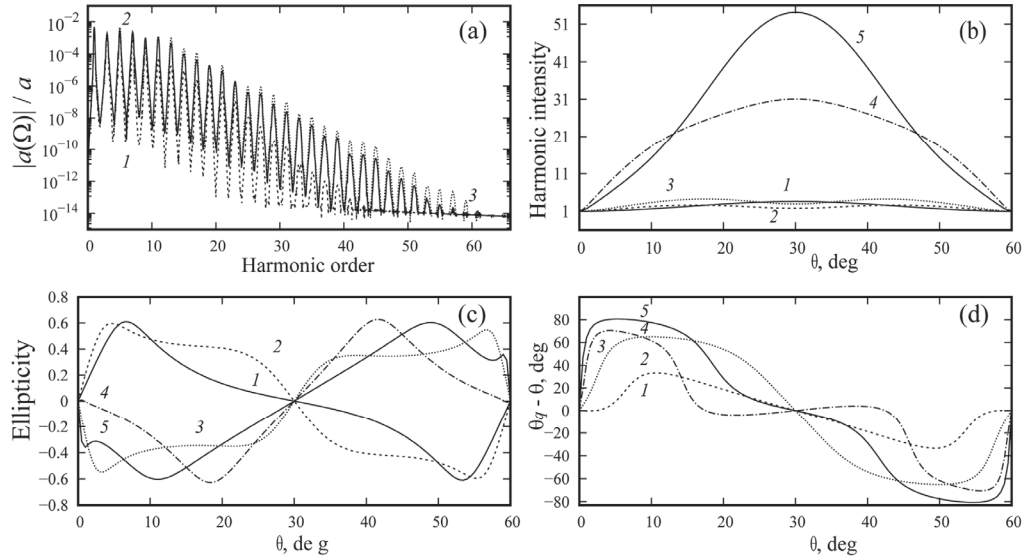


Рис.1. (а) Общий выход процесса генерации высоких гармоник в гексагональной ГКТ с зигзагообразными краями, состоящей из 54 атомов, в линейно-поляризованном поле лазерного импульса для различных составленных с осью x углов наклона: $1 - \theta = 0$, $2 - \theta = 15$, $3 - \theta = 30^\circ$; общий выход для каждого угла получается путем сложения спектральных компонентов параметров Стокса S_x , S_y . (б) Интенсивности испускаемых гармоник как функция θ ; для каждой гармоники интенсивность нормализуется к значению при $\theta = 0$. (в) Эллиптичность испускаемой гармоники как функция θ ; положительные значения эллиптичности указывают на левостороннюю поляризацию. (г) Сдвиг угла наклона эллипса гармоники относительно угла наклона лазерного поля как функция θ . Для (б–г) имеем: $1 - \text{H}5$, $2 - \text{H}7$, $3 - \text{H}9$, $4 - \text{H}11$, $5 - \text{H}13$.

анизотропную природу оптического отклика в процессе генерации высоких гармоник в интенсивных лазерных полях с существенным удалением места отсечки спектров (cut-off) для разных ориентаций электромагнитного волнового поля, по сравнению с линейно-поляризованным полем электромагнитной волны (также, см. для графена в [11]). Из-за инверсионной симметрии в системе ГКТ – лазер в спектрах генерации высоких гармоник появляются только нечетные гармоники. Рис.2а показывает многократные плато, которые являются следствием интерференции двух различных результатов: внутризонных и межзонных переходов [12, 13]. Вследствие симметрии в гексагональной ГКТ оптический отклик относительно направления поляризации лазерного поля обладает симметрией с периодом угла 60° . Поэтому спектры гармоник, например, для угла поляризации 30° и 90° одинаковы.

На рис.2б показана зависимость интенсивности выхода гармоники от угла поляризации θ линейно-поляризованной электромагнитной волны для различных гармоник. Интенсивность каждой гармоники нормализована к соответствующему значению при $\theta = 0$. Из анализа рис.2б видно заметное различие между гармониками низкого и высокого порядков: 7 и 9-ые гармоники имеют максимальное значение интенсивности для $\theta = 15^\circ$ и 45° , которое увеличивается с порядком гармоники, и минимальную эффективность для $\theta = 30^\circ$. Для гармоник до 7-го и с 11-го и более высоких порядков интенсивности имеют одно максимальное значение при $\theta = 30^\circ$, которое увеличивается с порядком гармоники. Поэтому следует отметить, что оси симметрии ГКТ не соответствуют оптимальному направлению поляризации приложенного лазерного поля для эффективной генерации гармоник.

Далее была изучена ориентация эллипса поляризации гармоники (угол наклона θ_q его главной оси). На рис.2с и рис.2д показаны зависимости от угла θ двух величин: эллиптичности гармоники ε и угла наклона $\theta_q - \theta$ относительно направления поляризации лазера. Последние выводятся из параметров Стокса $(S_0^q, S_1^q, S_2^q, S_3^q)$ с помощью соотношений:

$$\varepsilon_q = \tan \left(0.5 \arctan \left(S_3^q \left(S_1^{q^2} + S_2^{q^2} \right)^{-1/2} \right) \right), \quad (10)$$

$$\theta_q = 0.5 \arctan(S_2^q/S_1^q). \quad (11)$$

Рис.2с демонстрирует, что в процессе генерации высоких гармоник все гармоники линейно-поляризованы, когда действующее лазерное поле совпадает с осью симметрии решетки ГКТ ($\theta = 0$ и 30° , и т. д.), и эллиптически поляризованы в остальных случаях. Эллиптичности гармоник для углов $\theta < 30^\circ$ и $\theta > 30^\circ$ связаны зеркальной симметрией. Мы обнаруживаем заметное различие между гармониками низшего и высшего порядков: для углов $\theta < 30^\circ$ пятая и седьмая гармоники представляют левостороннюю эллиптическую поляризацию, в то время как девятая, одиннадцатая и тринадцатая – правостороннюю. Напротив, в случае выровненных молекул зависимость эллиптичности гармоники от наклона направления действующего поля одинакова для всех порядков гармоник [14]. Согласно [14], частота испускаемой гармоники соответствует мгновенной энергии рекомбинации пары электрон–дырка. А именно, третья и выше гармоники генерируются вблизи точек Дирака, где структура зон изотропна, и, следовательно, излучение третьей и выше гармоник становится нечувствительным к ориентации

поляризации лазерного поля в случае выровненных молекул. Рис.2b и 2c показывают, что ГКТ наиболее эффективна как источник эллиптически поляризованных гармоник, когда ось поляризации лазерного импульса повернута от осей симметрии ГКТ на 4° для 9-й и ниже гармоник и на 15° для 11-й и 13-й гармоник.

Рис.2d показывает, что главная ось постепенно вращается с увеличением порядка гармоники, достигая для 7-ой и ниже гармоник максимальной угловой разницы около $\theta = 15$ или 45° . Для этих углов наклона главная ось эллипса поляризации гармоник уже с 9-ой и выше почти перпендикулярна направлению поляризации действующего лазерного импульса. Итак, анализ рис.2 показывает, что эллиптичность гармоник, генерируемых в ГКТ, можно легко настроить, изменяя угол наклона действующего линейно-поляризованного лазерного импульса, без необходимости сложных конфигураций полей для управления.

4. Заключение

Мы изучили поляризационные свойства излучения при когерентном явлении генерации высоких гармоник в ГКТ под воздействием интенсивных импульсов инфракрасного линейно-поляризованного лазера. Полученные численные результаты показывают, что нелинейный анизотропный отклик ГКТ вызывает трансформацию поляризации генерированных гармоник и возбуждает эллиптически поляризованные гармоники из линейно-поляризованных ведущих инфракрасных импульсов. Сравнение теоретических и численных результатов показывает сверхбыстрое (фемтосекундное) изменение состояния поляризации гармоники при возбуждающих фемтосекундных импульсах эллиптической поляризации. Такое поведение динамики взаимодействия с ГКТ может быть наблюдаемо экспериментально с помощью специальной спектральной интерферометрии [15]. Кроме того, такие импульсы обеспечивают необычный способ для сверхбыстрых экспериментов с зондированием.

Авторы глубоко признательны профессору Г.К. Аветисяну за постоянные ценные рекомендации.

Исследование поддержано Комитетом по Высшему Образованию и Науке МОН РА (исследовательский проект № 24WS-1C004).

ЛИТЕРАТУРА

1. **H.K. Avetissian.** Relativistic Nonlinear Electrodynamics: The QED Vacuum and Matter in Super-Strong Radiation Fields. Springer, New York, 2015.
2. **P. Agostini.** Rev. Mod. Phys., **96**, 030501 (2024).
3. **B. Shan, S. Ghimire, Z. Chang.** Phys. Rev. A, **69**, 021404(R) (2004).
4. **S.K. Tiwari, V. Kumar, A. Huczko, R. Oraon, A.D. Adhikari, G.C. Nayak.** Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences, **41**, 257 (2016).
5. **Z.-Y. Chen, R. Qin.** Opt. Express, **27**, 3761 (2019).
6. **O. Zurrón-Cifuentes, R. Boyero-Garcia, C. Hernandez-Garcia, A. Picon, L. Plaja.** Optics Express, **27**, 7776 (2019).
7. **D. Pfannkuche, V. Gudmundsson, P.A. Maksym.** Phys. Rev. B, **47**, 2244 (1993).
8. **A.D. Guclu, P. Potasz, M. Korkusinski, P. Hawrylak.** Graphene Quantum Dots. Springer, Berlin, 2014.

9. **B.R. Avchyan, A.G. Ghazaryan, K.A. Sargsyan, Kh.V. Sedrakian**, JETP Letters, **116**, 428 (2022).
10. **G.P. Zhang**, Phys. Rev. Lett., **91**, 176801 (2003).
11. **N. Yoshikawa, T. Tamaya, K. Tanaka**, Science, **356**, 736 (2017).
12. **K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S.V. Dubonos, I.V. Grigorieva, A.A. Firsov**, Science, **306**(5696), 666 (2004).
13. **H.K. Avetissian, A.G. Ghazaryan, G.F. Mkrtchian**, Phys. Rev. B, **104**, 125436 (2021).
14. **G. Vampa, C.R. McDonald, G. Orlando, D.D. Klug, P.B. Corkum, T. Brabec**, Phys. Rev. Lett., **113**, 073901 (2014).
15. **M.-W. Lin, I. Jovanovic**, Scientific Reports, **6**, 32839 (2016).

ԷԼԻՊՏԻԿ ԲԵՎԱՌԱՑՎԱԾ ԲԱՐՁՐ ԼԱԶԵՐԱՅԻՆ ՀԱՐՄՈՆԻԿՆԵՐ
ՎԵՑԱՆԿՅՈՒՆ ԳՐԱՖԵՆԱՅԻՆ ՔՎԱՆՏԱՅԻՆ ԿԵՏՈՒՄ

Ա.Գ. ՂԱԶԱՐՅԱՆ, Ն.Օ. ԱՌՈՒՍՏԱՄՅԱՆ, Գ.Հ. ՉՈՊՐՅԱՆ, Խ.Վ. ՍԵԴՐԱԿՅԱՆ

Այս աշխատանքում մենք հետազոտել ենք լույսի փոխակերպումը վեցանկյուն գրաֆենային քվանտային կետում ինտենսիվ լազերային դաշտում բարձր հարմոնիկների գեներացիայի պրոցեսում: Գծային բևեռացված լազերային դաշտը առաջացնում է էլիպտիկ բևեռացված հարմոնիկների ինտենսիվ ճառագայթում: Ստացված հարմոնիկի բևեռացման էլիպսի էլիպսությունը և կողմնորոշումը ստացվում են Մթոքսի պարամետրերից, որոնք հաշվարկվել են՝ հաշվի առնելով բևեռացման տարբեր բաղադրիչներ: Թվային արդյունքները ցույց են տալիս, որ քվանտային կետում առաջացած հարմոնիկների էլիպտիկությունը կարելի է կարգավորել փոխելով գծային բևեռացված լազերային իմպուլսի թեքության անկյունը՝ առանց բարդ կառավարման համակարգերի անհրաժեշտության:

ELLIPTICALLY POLARIZED HIGH LASER HARMONICS
IN THE HEXAGONAL GRAPHENE QUANTUM DOT

A.G. GHAZARYAN, N.O. ARUSTAMYAN, G.H. CHOPURYAN, Kh.V. SEDRAKIAN

In this paper, we studied the transformation of light in a hexagonal graphene quantum dot during the generation of high harmonics in an intense laser field. A linearly polarized laser field leads to intense emission of elliptically polarized harmonics. The ellipticity and orientation of the polarization ellipse are derived from the Stokes parameters calculated, considering various polarization components. Numerical results show that the ellipticity of harmonics generated in a quantum dot can be easily tuned by changing the tilt angle of a linearly polarized laser pulse without complex control systems.

СИНЯЯ ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННАЯ ФЛУОРЕСЦЕНЦИЯ В АТОМАРНЫХ ПАРАХ Cs, ВЫЗВАННАЯ ИЗЛУЧЕНИЕМ 852 НМ

А.Д. САРГСЯН*, Д.Г. САРКИСЯН

Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

*e-mail: sarmeno@mail.ru

(Поступила в редакцию 16 июня 2025 г.)

С использованием лазерного излучения с длиной волны 852 нм, находящегося в резонансе с переходом $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ атомов Cs, изучена яркая лазерно-индуцированная флуоресценция (LIF) на синих линиях 456 и 459 нм (переходы $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ и $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$). Применялась Т-образная сапфировая ячейка длиной 1 см, содержащая пары атомов Cs. Мощность LIF исследовалась в зависимости от температуры ячейки. Наблюдалась линейная зависимость мощности LIF от излучения накачки. LIF достигала максимума при 100°C. Показано, что ячейка с Cs может служить эффективным оптическим фильтром-ап-конвертором излучения с длиной волны 852 нм в излучение с длиной волны 456 нм.

1. Введение

В работе [1] экспериментально продемонстрировано, что излучение синего лазера успешно использовалось для беспроводной подводной связи на расстояниях до 36 км в Желтом море. Это стало возможно из-за того, что синее лазерное излучение с длиной волны 456 нм имеет сравнительно небольшой коэффициент поглощения водой некоторых океанов, равный 0.01 м^{-1} [2]. Поэтому важно изучить условия эффективной регистрации и преобразования синего излучения. Регистрируя LIF на 456 нм, можно полностью подавить излучение 852 нм, при этом ячейка с парами Cs может служить оптическим фильтром-ап-конвертором [3, 4].

В настоящее время активно исследуются переходы атома Cs $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2, 3/2}$ с линиями на длинах волн 456 и 459 нм, соответственно. Переходы Cs D_2 были теоретически исследованы в работе [5] и сравнены с переходами D_1 ($\lambda = 459 \text{ нм}$). В работе [6] переходы линии D_2 исследовались с использованием метода насыщенного поглощения (SA), который позволяет проводить субдоплеровскую спектроскопию. Переходы линии Cs D_1 были исследованы в [7]. В работе [8] наблюдалась инверсия населенностей между уровнями $7S_{1/2}$ и $6P_{3/2}$ в цезиевой ячейке лазером на 455.5 нм, вследствие чего возникала лазерная генерация на 1470 нм. В работе [4] показано, что, используя излучение на 456 нм и дополнительное излучение на 1070 нм, можно также исследовать высоко лежащий ридберговский уровень $32S_{1/2}$.

Бихроматическая накачка с использованием лазеров с длинами волн 852 и 917 нм переводит атомы Cs на возбужденный уровень $6D_{5/2}$, после чего происходит каскадный распад, в результате которого в условиях фазового согласования

образуется когерентное синее лазерное излучение длиной волны 456 нм [9, 10]. Генерация полихроматического и коллимированного света на 456, 459 и 761 нм посредством двухфотонного возбуждения перехода $6S_{1/2} \rightarrow 8S_{1/2}$ с накачкой двумя лазерами, имеющими длины волн 852 и 795 нм, продемонстрирована в работах [11, 12]. В работе [9] отмечается, что генерация на 456 нм посредством двухфотонного возбуждения перехода $6S_{1/2} \rightarrow 6D_{5/2}$ может быть предпочтительнее, чем использование двухфотонного возбуждения перехода $6S_{1/2} \rightarrow 8S_{1/2}$.

В настоящей работе лазерное излучение с длиной волны 852 нм, находящееся в резонансе с переходом $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$, создает яркую лазерно-индуцированную флуоресценцию (LIF) синего цвета на длинах волн 456 и 459 нм на переходах $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2, 3/2}$. Используется полностью сапфировая ячейка длиной 1 см, которая содержит пары атомов Cs и может нагреваться до 500°C [13].

В отличие от некоторых из вышеупомянутых работ, данное исследование демонстрирует простую схему преобразования красного излучения в синее с использованием только одного лазерного излучения с длиной волны 852 нм, без необходимости использования двух или более лазеров.

2. Эксперимент

Экспериментальная установка показана на рис.1. Для резонансного возбуждения переходов $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ атома Cs использовался перестраиваемый диодный лазер с внешним резонатором (ECDL) со спектральной шириной линии ~0.1 МГц и возможностью перестройки длины волны вблизи $\lambda = 852$ нм.

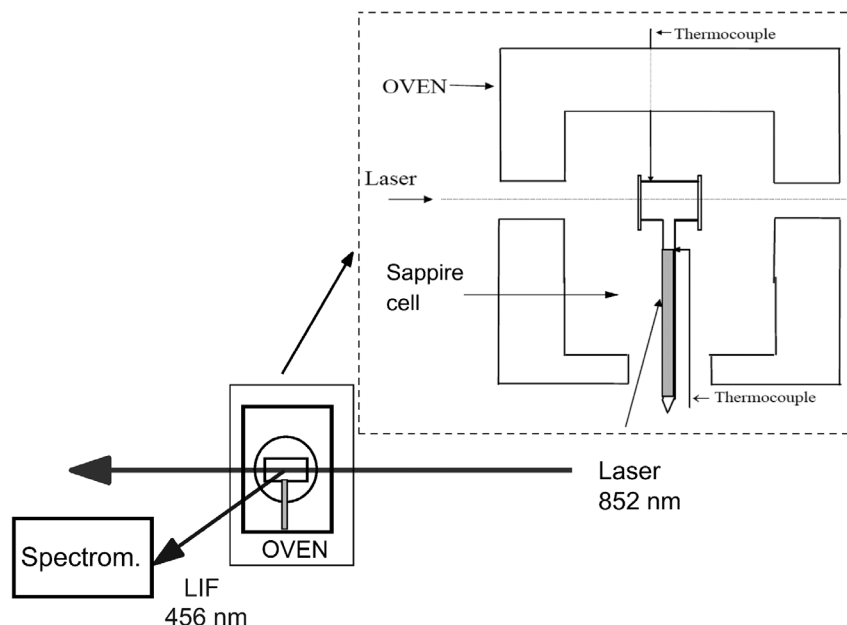


Рис.1. Экспериментальная установка: диодный лазер с длиной волны 852 нм сканировался вблизи переходов $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ атомов Cs. На вставке – оригинальная Т-образная ячейка длиной 1 см, изготовленная из сапфира и содержащая пары атомов Cs. Oven – печь, Thermocouple – термопара для определения температуры на корпусе и хвосте ячейки, Spectrom. – спектрометр.

Лазерный луч направлялся нормально к окнам самодельной Т-образной сапфировой ячейки (ASC) длиной 1 см, содержащей атомарные пары Cs, которая схематически изображена на вставке рис.1. Специально разработанная печь состоит из двух нагревателей: нагревателя для корпуса ячейки и нагревателя для бокового отвода (хвоста), содержащего металлический Cs. Благодаря оригинальной конструкции давление атомарных паров Cs определяется температурой границы столба металлического Cs в хвостовой части ячейки. Печь имеет три отверстия: два отверстия для прохождения лазерного излучения и одно отверстие для регистрации LIF излучения в боковом направлении, перпендикулярном направлению распространения лазерного луча.

Диаграмма уровней атома Cs и длины волн излучений возможных переходов, создаваемых лазером с длиной волны 852 нм, показаны на рис.2. Одно из возможных объяснений формирования синего излучения следующее. Излучение 852 нм эффективно заселяет уровень $6P_{3/2}$ (энергия $\sim 11\,740\text{ см}^{-1}$), с которого атом Cs поглощает еще 2 фотона 852 нм (энергия $\sim 23\,470\text{ см}^{-1}$), что в сумме превышает энергию ионизации атома цезия, которая составляет $\sim 31\,400\text{ см}^{-1}$. Поэтому происходит ионизация атомов Cs с последующей рекомбинацией, в результате которой атом Cs оказывается на верхних уровнях. Далее путем каскадного спонтанного излучения заселяется, в частности, уровень $7P_{1/2,3/2}$ с последующей яркой синей флуоресценцией на переходах $7P_{1/2,3/2} \rightarrow 6S_{1/2}$. Уровни $7P_{1/2,3/2}$ могут также заселяться вследствие эффекта «объединения энергии» (energy pooling): столкновения между возбужденными атомами Cs приводят к заселению более высоких возбужденных уровней с последующим их распадом на уровни $7P_{1/2,3/2}$, что приводит к появлению ярко-синей флуоресценции на переходах $7P_{1/2,3/2} \rightarrow 6S_{1/2}$ [3, 14]. Одно из наиболее ярких проявлений эффекта «energy pooling» в парах атомов Rb было представлено в работе [15], где был экспериментально продемонстрирован узкополосный фильтр и оптическое усиление с использованием электромагнитно-индуцированной прозрачности лестничного типа в оптически плотных атомарных парах.

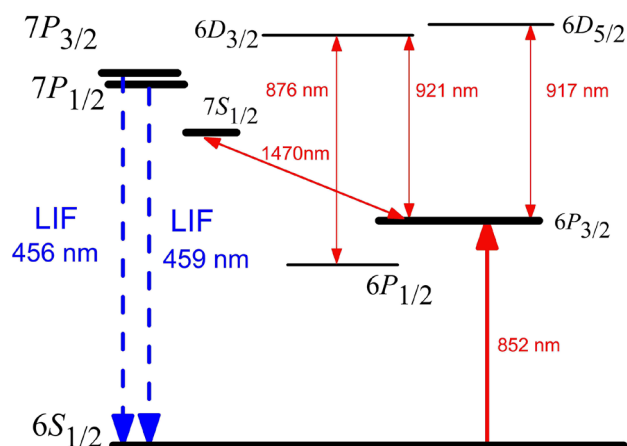


Рис.2. Диаграммы энергетических уровней атомарного цезия. Возбуждение переходов $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2,3/2}$ происходит при накачке излучениями 852 и 895 нм путем каскадных переходов с верхних уровней. LIF наблюдается на длинах волн 456 и 459 нм.

Для выделения LIF на 456 и 459 нм использовались интерференционные узкополосные фильтры. Мощность излучений определялась измерителем мощности Thorlabs PM 100 D, а также регистрировалась фотодиодом ФД-24 и четырехканальным осциллографом Tektronix TDS2014B. Для определения длины волны излучения в эксперименте использовался спектрометр фирмы Tunder Optics.

На рис.3а показано ярко-синее свечение при температуре ячейки $\sim 100^\circ\text{C}$, которое регистрируется обычной фотокамерой. LIF синего цвета на длинах волн 456 и 459 нм возникает с применением лазерного излучения с длиной волны 852 нм. Плотность паров Cs, $N = 1.6 \times 10^{13} \text{ см}^{-3}$.

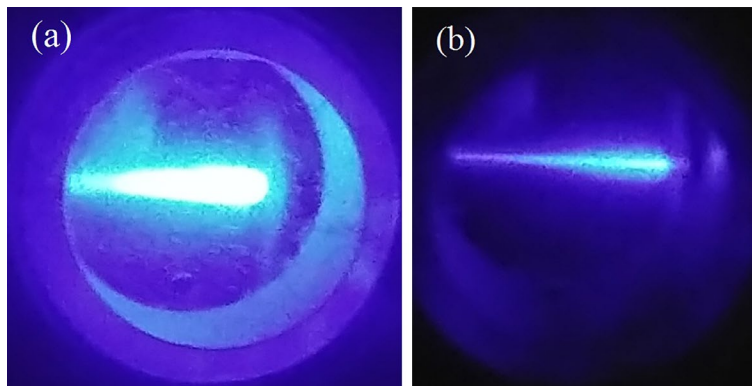


Рис.3. (а) Ярко-синее свечение, регистрируемое обычной фотокамерой на длинах волн 456 и 459 нм. LIF формируется накачкой с длиной волны 852 нм и мощностью 62 мВт. (б) LIF формируется лазером с длиной волны 895 нм и мощностью 12 мВт поэтому LIF слабее, чем при накачке 852 нм.

Падающее на ячейку лазерное излучение с $\lambda = 852 \text{ нм}$ фокусировалось линзой (не показано на рис.1) с фокусным расстоянием 20 см в пятно с диаметром 1.5 мм. Отметим, что при отстройке частоты излучения 852 нм на $\sim 2 \text{ ГГц}$ от резонансной частоты синий LIF исчезает. На рис.3б показано, что синяя LIF также формируется с применением накачки с длиной волны 895 нм. Зависимость мощности LIF на длине волны 456 нм от температуры ячейки представлена на рис.4а. Как видно, максимальная мощность излучения достигается при 100°C , а при более высоких температурах она уменьшается. Это происходит из-за конкуренции двух процессов: при увеличении температуры ячейки происходит увеличение концентрации атомов цезия и увеличение населенностей уровней $7P_{1/2,3/2}$, что приводит к усилению LIF-излучения в синей области.

В то же время увеличение концентрации Cs на основном уровне $6S_{1/2}$ приводит к увеличению поглощения LIF излучения на переходах $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2,3/2}$. Поэтому имеется оптимальная концентрации атомов цезия. Пересчет общей мощности излучения на 456 нм, которое излучается в телесный угол 4π (то есть спонтанно излучается во всех направлениях) показывает, что эффективность преобразования излучения 852 нм составляет $\sim 1.7\%$. Зависимость мощности LIF на длине волны 456 нм от мощности излучения на длине волны 852 нм при температуре 100°C представлена на рис.4б. Заметим, что наблюдается почти линейная

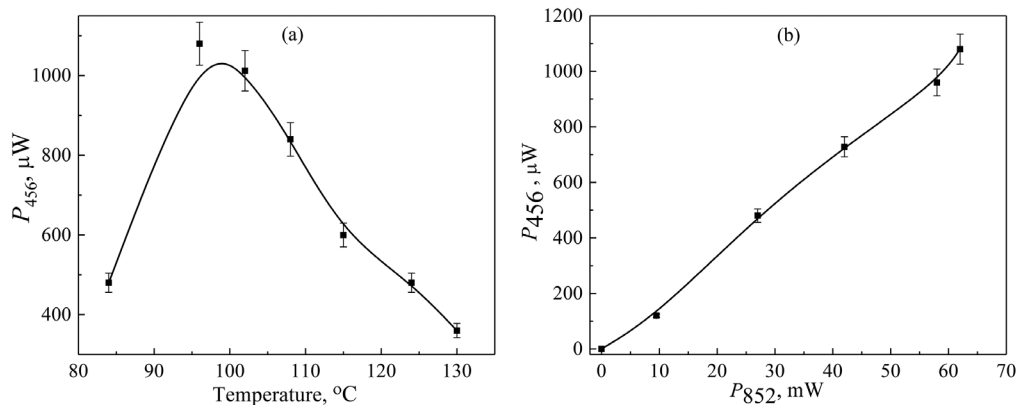


Рис.4. Зависимость мощности LIF на длине волны 456 нм от (а) температуры ячейки и (б) мощности излучения на длине волны 852 нм при температуре 100°C.

зависимость мощности LIF от мощности лазера с длиной волны 852 нм.

На рис.5. показан спектр излучения LIF, который регистрируется с помощью спектрометра Thunder Optics (спектральное разрешение около 2 нм) в боковом направлении. Оптическими фильтрами отсекалось излучение с длинами волн выше 500 нм.

Из рисунка видно, что спектр LIF регистрируется на длинах волн 456 и 459 нм. Эффективность преобразования мощности излучения 852 на длине волны 459 нм составляет $\sim 1.4\%$. Отношение сил осцилляторов $f_{456}/f_{459} = 2$, поэтому ожидалось, что отношение амплитуд в спектре также будет равно двум. Однако из рис.5 видно, что отношение амплитуд $A_{456}/A_{459} = 1.2$. Следовательно, населенность уровня $7P_{1/2}$ атомов Cs больше населенности уровня $7P_{3/2}$. Отметим, что преобразование синего излучения в красное, то есть даун-конверсия с уменьшением частоты фотона, в парах атомов цезия было осуществлено в работах [3, 16].

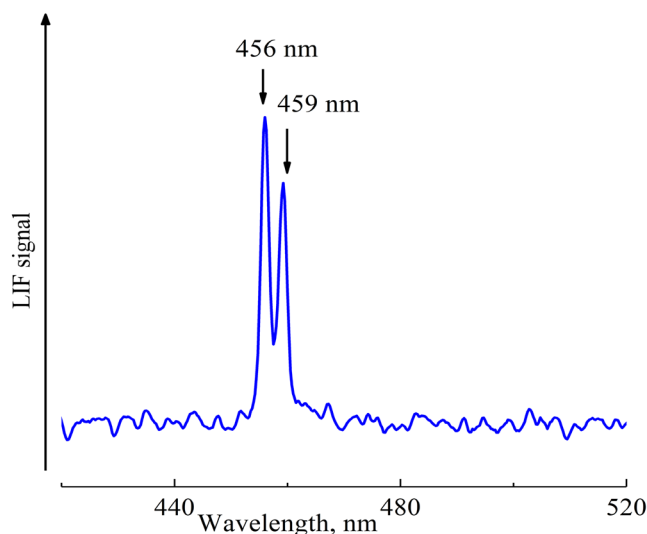


Рис.5. Спектр LIF, зарегистрированный в боковом направлении с помощью спектрометра фирмы Thunder Optics, при температуре ячейки 100°C.

3. Заключение

Используя лазерное излучение с длиной волны 852 нм, резонансное с переходом $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ атомов Cs, и сапфировую ячейку, содержащую пары атомов Cs и способную быть нагретой до 500°C, были изучены яркие LIF излучения на длинах волн 456 и 459 нм (переходы $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2,3/2}$). Эффективность преобразования красного излучения на длине волны 852 в синее с длинами волн 456 и 459 нм составляет ~1.7 и 1.4%, соответственно. Показано, что уровень $7P_{1/2}$ заселяется больше, чем уровень $7P_{3/2}$. Мощность LIF излучения демонстрирует почти линейную зависимость до 62 мВт мощности лазера накачки на 852 нм. Оптимальная температура, при которой сигнал LIF максимальный на длинах волн 456 и 459 нм, составляет 100°C. Дальнейшее увеличение температуры приводит к ослаблению сигнала LIF. На входе фотодетектора излучение 852 нм может быть полностью подавлено без уменьшения мощности LIF излучения, поэтому цезиевая ячейка может служить эффективным оптическим преобразователем – ап-конвертором излучения 852 нм в 456/459 нм. Отметим, что слабая LIF на 456 нм также наблюдалась в тонкой Cs ячейке толщиной $L = 5$ мкм, но эффективность преобразования составила всего около 0.1% при температуре ячейки 220°C.

Важно отметить, что красное смещение частоты атомного перехода, вызванное взаимодействием Ван-дер-Ваальса между атомами Cs и поверхностью диэлектрика (сапфировое окно ячейки с парами цезия) на длине волны 456 нм почти в 20 раз больше, чем при 852 нм [17]. Это мотивирует наш дальнейший интерес к изучению перехода $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ (вторая резонансная линия D_2). Так как узкополосные непрерывные диодные лазеры на длине волны 852 нм, а также стеклянные ячейки, содержащие пары атомов, доступны и широко распространены, то мы надеемся, что настоящая работа стимулирует дальнейшее изучение процесса 852 нм $\rightarrow$ 456/459 нм. Также интересным и важным будет применение импульсного лазера с длительностью импульса накачки нс, пс и фс для процесса 852 нм $\rightarrow$ 456/459 нм.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке РА в рамках проекта N 25RG-1C008.

ЛИТЕРАТУРА

1. L. Ji, J. Gao, A.-L. Yang, Z. Feng, X.-F. Lin, Z.-G. Li, X.-M. Jin. Optics Express, **25**, 19795 (2017).
2. B. Wozniak, J. Dera. Light Absorption in Sea Water. Springer Science Business Media, LLC, 2007.
3. J. Huennekens, Z. Wu, T.G. Walker. Phys. Rev. A, **31**, 196 (1985).
4. A. Urvoy. Diploma Thesis, University of Stuttgart, 2011 - pi5.uni-stuttgart.de
5. A. Damitz, G. Toh, E. Putney, C.E. Tanner, D.S. Elliott. Phys. Rev. A, **99**, 062510 (2019).
6. W. Williams, M. Herd, W. Hawkins. Laser Physics Letters, **15**, 095702 (2018).
7. E. Klinger, A. Mursa, C.M. Rivera-Aguilar, R. Vicarini, R. Boudot. Optics Letters, **49**, 1953 (2024).
8. Y. Wang, D. Wang, T. Zhang, Y. Hong, S. Zhang, Z. Tao, X. Xie. J. Chen. Science China Physics, Mechanics & Astronomy, **56**, 1107 (2013).

9. S.V. Kargapol'tsev, V.L. Velichansky, A.V. Yarovitsky, A.V. Taichenachev, V.I. Yudin. Quantum Electronics, **35**, 591 (2005).
10. G. Ge, L. Tian, G. Zhang, N. Zheng, W. Liu, V. Sovkov, J. Wu, Y. Li, Y. Fu, P. Li, J. Ma, L. Xiao, S. Jia. Front. Phys., **18**, 42302 (2023).
11. B. Yang, J. Fan, J. Xu, L. Zheng, W. Huang, H. Zhou. Opt. Express, **32**, 3492 (2024).
12. B. Yang, J. Xu, J. Fan, H. Zhou. Optics Letters, **49**, 3846 (2024).
13. D. Sarkisyan, U. Hinze, L. Meyer, B. Wellegehausen. Appl. Phys. B, **70**, 351 (2000).
14. L. Weller, R.J. Bettles, C.L. Vaillant, M.A. Zentile, R.M. Potvliege, C.S. Adams, I.G. Hughes. <https://doi.org/10.48550/arXiv.1308.0129> .
15. J. Keaveney, A. Sargsyan, D. Sarkisyan, A. Papoyan, C.S. Adams. Physics B: At. Mol. Opt. Phys., **47**, 075002 (2014).
16. A. Sargsyan, A. Gogyan, D. Sarkisyan. JQSRT, **345**, 109549 (2025).
17. A. Sargsyan, E. Klinger, R. Boudot, D. Sarkisyan. Opt. Lett., **50**, 3229 (2025).

ԿԱՊՈՒՅՑ ԼԱԶԵՐԱՅԻՆ ՖԼՈՒՈՐԵՍԵՆՑԻԱ Cesium-ի ԱՏՈՄԱԿԱՆ
ԳՈԼՈՐԾԻՆԵՐՈՒՄ ԱՌԱՋԱՑԱԾ 852 ՆՄ ՃԱՌԱԳԱՅԹՄԱՄԲ

Ա.Դ. ՍԱՐԳՍՅԱՆ, Դ.Հ. ՍԱՐԿԻՍՅԱՆ

Օգտագործելով 852 նմ ալիքի երկարությամբ լազերային ճառագայթը, որը գտնվում է Cs ատոմների հետ ռեզոնանսի մեջ, ուսումնասիրվել է լազերային ճառագայթմամբ առաջացրած պայծառ ֆլուորեսցենցիան (ԼՊՖ) 456 և 459 նմ կապույտ գծերի տիրույթում ($6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ և $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$ անցումներ): Օգտագործվել է 1 սմ երկարությամբ T-աձև շափյուղա բջիջ, որը պարունակում է Cs-ի ատոմական գոլորշիներ: Ուսումնասիրվել է ԼՊՖ-ի հզորությունը բջջի ջերմաստիճանից կախվածությունը: Գրանցվել է մոդոլ ճառագայթումից ԼՊՖ-ի հզորության գծային կախվածություն: ԼՊՖ-ն հասել է իր առավելագույն արժեքին 100°C ջերմաստիճանում: Ցույց է տրված, որ Cs-ի բջիջը կարող է ծառայել որպես 852 նմ ալիքի երկարությամբ ճառագայթումը՝ 456 նմ ճառագայթման արդյունավետ օպտիկական գտիչ՝ փոխարկիչ:

BLUE LASER-INDUCED FLUORESCENCE IN Cs ATOMIC VAPOR
CAUSED BY 852 NM RADIATION

A.D. SARGSYAN, D.H. SARKISYAN

Using laser radiation with a wavelength of 852 nm, which is in resonance with Cs atoms, the bright laser-induced fluorescence (LIF) on the blue lines of 456 and 459 nm (transitions $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$ and $6S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$) was studied by the transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$. A 1 cm long T-shaped sapphire cell containing Cs atomic vapors was used. The LIF power was studied as a function of the cell temperature. A linear dependence of the LIF power on the pump radiation was observed. The LIF reached a maximum at 100°C. It is shown that Cs cell can serve as an effective optical up-converter filter of radiation with a wavelength of 852 nm to radiation with a wavelength of 456 nm.

SECOND HARMONIC GENERATION OF Q -GAUSSIAN LASER BEAM IN THERMAL QUANTUM PLASMA

D. TRIPATHI¹, T. SINGH², A. VIJAY³, K. WALIA^{2*}

¹Guru Gobind Singh Indraprastha University, Delhi, India

²DAV University Jalandhar, India

³GLA University Mathura (U.P.), India

*e-mail: keshavwalia86@gmail.com

(Поступила в редакцию 14 Апреля 2025 г.)

Second harmonic generation of q -Gaussian laser beam in thermal quantum plasma is investigated in present communication. There is production of transverse gradients of intensity in relativistic plasma due to self-focusing of main beam. These intensity gradients cause electron plasma wave excitation at frequency of main beam. The interaction of excited electron plasma wave with main beam generates 2nd harmonics. Nonlinear differential equation denoting behavior of beam waist of main beam and 2nd harmonics efficiency are derived by using paraxial theory. These equations are numerically solved for investigating impact of usual parameters of laser, plasma along with quantum contribution on beam waist and efficiency of 2nd harmonics. Comparison of current study is also done with cold quantum plasma and classical relativistic plasma cases.

ЛИТЕРАТУРА

1. Wilks, S.C., Dawson, J.M., Mori, W.B., Katsouleas, T., and Jones, M.E., *Phys. Rev. Lett.*, 1989, vol. 62, p. 2600.
2. Walia, K. and Singh, A., *Contrib Plasm Phys.*, 2011, vol. 51, p. 375.
3. Singh, A. and Walia, K., *Appl. Phys. B Lasers Opt.*, 2010, vol. 101, p. 617.
4. Corkum, P.B., Rolland, C., and Rao, T., *Phys. Rev. Lett.*, 1986, vol. 57, p. 2268.
5. Sprangle, P., Esarey, E., and Krall, J., *Phys. Plasmas*, 1996, vol. 3, p. 2183.
6. Utlaut, W.F. and Cohen, R., *Science*, 1971, vol. 174, p. 245.
7. Brueckner, K.A. and Jorna, S., *Rev. Mod. Phys.*, 1974, vol. 46, p. 325.
8. Faure, J., Glinec, Y., Pukhov, A., Kiselev, S., Gordienko, S., Lefebvre, E., Rousseau, J.P., Burgu, F., and Malka, V., *Nature*, 2004, vol. 431, p. 541.
9. Young, P.E., Baldis, H.A., Drake, R.P., Campbell, E.M., and Estabrook, K.G., *Phys. Rev. Lett.*, 1988, vol. 61, p. 2336.
10. Bers, A., Shkarofsky, I.P., and Shoucri, M., *Phys. Rev. E Stat. Phys. Plasmas Fluids Relat. Interdiscip. Topics*, 2009, vol. 16, p. 022104.
11. Lemoff, B.E., Yin, G.Y., Gordon III, C.L., Barty, C.P.J., and Harris, S.E., *Phys. Rev. Lett.*, 1995, vol. 74, p. 1574.

12. Deutsch, C., Bret, A., Firpo, M.C., Gremillet, L., Lefebvre, E., and Lifschitz, A., *Laser Part. Beams*, 2008, vol. 26, p. 157.
13. Singh, T., Walia, K., Tripathi, D., *J Opt* (2024). <https://doi.org/10.1007/>.
14. Walia, K., Tyagi, Y., Tripathi, D., Alshehri, A.M., and Ahmad, N., *Optik*, 2019, vol. 195, p. 163166.
15. Walia, K., *Commun. Theor. Phys.*, 2023, vol. 75, p. 95501.
16. Walia, K., *Optik*, 2020, vol. 219, p. 165040.
17. Walia, K. and S. Kaur, S., *Commun. Theor. Phys.*, 2016, vol. 65, p. 78.
18. Walia, K., *J. Fusion Energ*, 2016, vol. 35, p. 446.
19. Kaw, P., Schmidt, G., and Wilcox, T., *Phys. Fluids*, 1973, vol. 16, p. 1522.
20. Walia, K., Tripathi, D., and Tyagi, Y., *Commun. Theor. Phys.*, 2017, vol. 68, p. 245.
21. Walia, K., *Optik*, 2023, vol. 277, p. 170681.
22. Kumar, M. and Tripathi, V.K., *Phys. Plasmas*, 2013, vol. 20, p. 023302.
23. Liu, C.S., Tripathi, V.K. and Kumar, M., *Phys. Plasmas*, 2014, vol. 21, p. 103101.
24. Kumar, M., Kang, T., Song, H.S., and Hur, M.S., *Phys. Plasmas*, 2022, vol. 29, p. 033102.
25. Askaryan, G.A., *JETP*, 1962, vol. 15, p. 1088.
26. Teubner, U. and Gibbon, P., *Rev. Mod. Phys.*, 2009, vol. 8, p. 445.
27. Stamper, J.A., Lehmberg, R.H., Schmitt, A., Herbst, M.J., Young, F.C., Gardner, J.H., and Obenschain, S.P., *Phys. Fluids*, 1985, vol. 28, p. 2563–2569.
28. Gisselbrecht, M., Descamps, D., Lyng, C., Huillier, A.L., Wahlstrm, C.G., and Meyer, M., *Phys. Rev. Lett.*, 1999, vol. 82, p. 4607.
29. Bauer, M., Lei, C., Read, K., Tobey, R., Gland, J., Murnane, M.M., and Kapteyn, H.C., *Phys. Rev. Lett.*, 2001, vol. 87, p. 025501.
30. Winterfeldt, C., Spielmann, C., and Gerber, G., *Rev. Mod. Phys.*, 2008, vol. 80, p. 117.
31. Glandorf, L.N., Scheer, M., Samuels, D.A., Mulhisen, A.M., Grant, E.R., Yang, X., Bierbaum, V.M., and Leone, S.R., *Phys. Rev. Lett.*, 2001, vol. 87, p. 193002.
32. Tobey, R.I., Siemens, M.E., Cohen, O., Murnane, M.M., Kapteyn, H.C., and Nelson, K.A., *Opt. Lett.*, 2007, vol. 32, p. 286.
33. Singh, T. and Walia, K., *J. Contemp. Phys.*, 2024, vol. 59, p. 254.
34. Erokhin, N., Zakharov, V.E., and Moiseev, S.S., *Sov. Phys. JETP*, 1969, vol. 29, p. 101.
35. Bobin, J.L., *Phys. Rep.*, 1985, vol. 122, p. 173.
36. Sodha, M.S., Sharma, J.K., Tewari, D.P., Sharma, R.P., and Kaushik, S.C., *Plasma Phys.*, 1978, vol. 20, p. 825.
37. Parashar, J., Pandey, H.D., *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 1992, vol. 20, p. 996.
38. Brunel, F., *J. Opt. Soc. Am. B*, 1990, vol. 7, p. 521.
39. Walia, K., Singh, A., *J. Fusion Energy*, 2014, vol. 33, p. 83.
40. Singh, A., Walia, K., *Laser Part, Beams*, 2011, vol. 29, p. 407.
41. Singh, A., Walia, K., *J. Fusion Energy*, 2011, vol. 30, p. 555.
42. Walia, K., *Optik*, 2016, vol. 127, p. 6618.
43. Walia, K., Kakkar, V., and Tripathi, D., *Optik*, 2020, vol. 204, p. 164150.
44. Kaur, S., Sharma, A.K., and Salih, H.A., *Phys. Plasmas*, 2009, vol. 16, p. 042509.

45. Burnett, N.H., Baldis, H.A., Richardson, M.C., and Enright, G.D., *Appl. Phys. Lett.*, 1977, vol. 31, p. 172.
46. Carman, R.L., Forslund, D.W., and Kindel, J.M., *Phys. Rev. Lett.*, 1981, vol. 46, p. 29.
47. Singh, T., Walia, K., and Singh, A., *J. Opt.*, 2024. <https://doi.org/10.1007/s12596-024-02101-8>.
48. Singh, K. and Walia, K., *J. Contemp. Phys.*, 2024, vol. 59, p. 244.
49. Agarwal, R.N., Pandey, B.K., and Sharma, A.K., *Phys. Scr.*, 2001, vol. 63, p. 243.
50. Kant, N. and Sharma, A.K., *J. Phys. D Appl. Phys.*, 2004, vol. 37, p. 998.
51. Ozbay, E., *Science*, 2006, vol. 311, p. 189.
52. Wei, L. and Wang, Y., *Phys. Rev. B*, 2007, vol. 75, p. 193407.
53. Shpatakovskaya, G., *J. Exp. Theor. Phys.*, 2006, vol. 102, p. 466.
54. Chunyang, Z., Zhanjun, L., Shao-ping, Z., and Xiantu, H., *J. Plasma Fusion Res.*, 2004, vol. 6, p. 333.
55. Andreev, A.V., *J. Exp. Theor. Phys. Lett.*, 2000, vol. 72, p. 238.
56. Lai, D., *Rev. Mod. Phys.*, 2001, vol. 73, p. 629.
57. Jung, Y. and Murakami, I., *Phys. Lett. A*, 2009, vol. 373, p. 969.
58. Sodha, M.S., Ghatak, A.K., and Tripathi, V.K., *Progress in Optics, North Holland, Amsterdam*, 1976.
59. Akhmanov, S.A., Sukhorukov, A., and Khokhlov, R., *Sov. Phys. Uspekhi.*, 1968, vol. 10, p. 609.

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ УЛЬТРАЗВУКОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ВОДНЫЕ РАСТВОРЫ ЙОДИДА КАЛИЯ

А.Г. ДАВТЯН, С.Д. АРСЕНТЬЕВ*, А.А. АРУТЮНЯН

Институт химической физики им. А.Б. Налбандяна НАН Армении, Ереван, Армения

*e-mail: arsentiev53@mail.ru

(Поступила в редакцию 26 марта 2025 г.)

Впервые установлено, что водный раствор йодида калия под действием ультразвукового излучения при возникновении кавитации выделяет молекулярный йод. При этом процесс выделения йода протекает в колебательном режиме. Показано, что скорость выделения йода и его максимальная концентрация зависят от интенсивности ультразвука, концентрации раствора йодида калия и частоты ультразвука. При этом увеличение концентрации йодида калия в исходном растворе выше 5–6% не приводит к дальнейшему увеличению концентрации образующегося йода. Зависимость максимальной концентрации йода от амплитуды колебаний торца волновода имеет нелинейный характер.

1. Введение

Как известно, введение ультразвуковых колебаний в водные растворы может при определенных условиях приводить к возникновению кавитации, выражающейся в возникновении и схлопывании парогазовых пузырьков. При этом сравнительно низкая средняя энергия ультразвуковых колебаний концентрируется в малом объеме парогазовых пузырьков, достигая высоких значений [1, 2]. В результате внутри парогазовых пузырьков реализуются высокие температуры (порядка нескольких тысяч градусов) и высокие давления (сотни атмосфер) [3]. Например, в работе [4] показано, что внутри холодной жидкости создаются необычные условия (температуры порядка 20 000°C; давления в несколько тысяч бар и скорости нагрева и охлаждения $> 1000^\circ\text{C s}^{-1}$). При этом становится возможным образование химически активных частиц, таких как атомы, радикалы, ионы, ион-радикалы, возбужденные частицы, что, несомненно, влияет на скорость и направление химических реакций, протекающих в растворах. В ряде случаев могут происходить процессы, невозможные в обычных условиях [1, 5–10].

Следует особо подчеркнуть, что диапазон частот ультразвуковых колебаний существенно ниже частот собственных колебаний молекул, а удельные энергии значительно ниже энергии активации. Очевидно, что влияние ультразвука на химические реакции в растворах является следствием концентрации сравнительно небольшой энергии, выделяемой в раствор, в малых объемах парогазовых пузырьков. Высокие температуры и давления, достигаемые при схлопывании парогазовых пузырьков, в сочетании с большой скоростью охлаждения продуктов реакции [11], а также возникновение ударных волн [9, 12, 13] позволяют

предположить определенное сходство процессов, происходящих в парогазовых пузырьках, образующихся в растворах в условиях кавитации, с процессами в ударных трубах [14–18]. Возникновение электрических разрядов в парогазовых пузырьках также рассматривается как одна из возможных причин влияния ультразвука на химические процессы, протекающие в водных растворах [19, 20].

Несмотря на многочисленные работы в области звукохимического инициирования химических реакций, в настоящее время не существует общей теории, которая позволяла бы иметь полное представление о процессах, происходящих в условиях кавитации. В связи с этим, с целью сокращения числа сложных процессов, протекающих в системе, и упрощения интерпретации экспериментальных данных представляется логичным проводить исследования в простых системах с ограниченным числом компонентов. Такой модельной системой может служить процесс превращения йодида калия в водных растворах.

Превращению йодида калия под воздействием ультразвуковых колебаний на его водные растворы были посвящены работы [6, 21]. Классическая реакция разложения водного раствора KI под действием ультразвука также изучалась на гидродинамической кавитационной установке [22].

Целью данной работы было более детальное изучение процесса превращения йодида калия в условиях кавитации, возникающей при воздействии ультразвуковых колебаний на его водные растворы.

2. Экспериментальная часть

Исследование воздействия ультразвука на водный раствор йодида калия проводилось при частотах ультразвука $\nu = 22$ и 44 кГц в кварцевом реакторе, схематически представленном на рис.1. Для исключения попадания воздуха в систему реактор и все коммуникации были герметизированы.

Объем озвучиваемого раствора составлял 30 мл. Перед приготовлением растворов йодистый калий перекристаллизовывали для очистки от примесей йода.

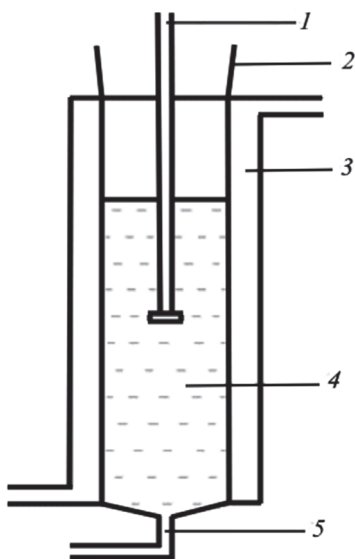


Рис.1. Схема реакционного узла: 1 – волновод, 2 – шлиф, 3 – водяная «рубашка», 4 – реакция зона, 5 – капилляр.

За развитием процесса следили по количеству накапливающегося в растворе молекулярного йода, концентрацию которого измеряли с помощью фотоэлектрокolorиметра КФК-2 с использованием фильтра 440 нм. Для этого в заданный момент времени прекращали ультразвуковую обработку раствора и отбирали пробу (15 мл) из реактора для анализа. При использовании растворов KI с исходной концентрацией менее двух процентов количество образовавшегося в результате реакции йода было недостаточным для точного определения его концентрации. В этом случае концентрацию йода определяли в присутствии специфического индикатора – крахмала. При этом анализируемая проба содержала 5 мл реакционной смеси, 8 мл дистиллированной воды и 1 мл 0.5% раствора крахмала. При колориметрическом измерении таких проб использовали светофильтр 540 нм.

Предварительные эксперименты показали, что наличие воздуха в растворе йодида калия влияет на количество выделяющегося в реакции йода. Поэтому для исключения влияния воздуха на процесс через раствор перед сонифицированием в течение 15 минут барботировали аргон. Газ подавался через капилляр 5 и выходил из реактора через шлиф 2, герметично соединенный с выходной трубкой. В связи с тем, что в условиях кавитации выделяется большое количество тепла, реактор охлаждался с помощью водяной «рубашки», чтобы избежать перегрева реакционной смеси. Эксперименты показали, что после ~5 мин воздействия ультразвука температура раствора достигает 300–310 К и далее остается на этом уровне.

3. Результаты и обсуждение

При проведении химических процессов важно знать количество энергии, вводимой извне в реагирующую систему. Существуют различные методы оценки мощности, передаваемой источником ультразвука в раствор: термоэлектрические, оптические, калориметрические, химические и др. [1, 2, 23–28].

В данной работе использован метод измерения амплитуды колебаний торца излучающего элемента. Для этого установлена связь между током обмотки возбуждения магнитостриктора и амплитудой колебаний волновода, погруженного в раствор. Эксперименты показали, что между током возбуждающей обмотки (I) и квадратом амплитуды (A) колебаний конца волновода существует линейная зависимость. Полученный результат представлен на рис.2. Наличие столь простой зависимости позволило измерить в относительных единицах мощность, выделяемую в раствор непосредственно при воздействии ультразвука, поскольку известно [1, 29], что

$$N = \alpha A^2,$$

где N – мощность, излучаемая в раствор, A – амплитуда излучателя колебаний, α – постоянный коэффициент.

В результате экспериментов установлено, что процесс превращения KI при ультразвуковой обработке его водного раствора происходит с переменной скоростью. При этом наблюдаются колебания концентрации молекулярного йода, накапливающегося в растворе. На рис.3 представлены кинетические кривые накопления молекулярного йода при воздействии ультразвука разной частоты на раствор KI.

Как видно из рис.3, образование молекулярного йода при ультразвуковой обработке водного раствора KI происходит на ранних стадиях процесса в

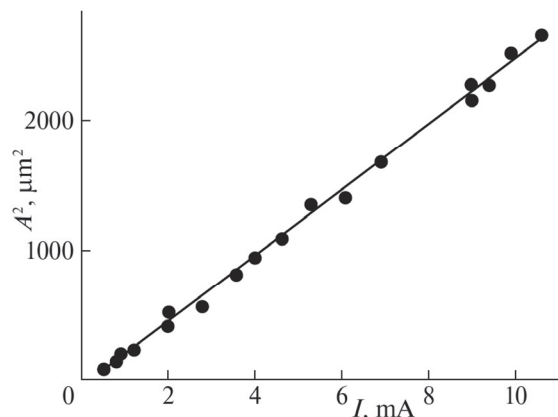


Рис.2. Зависимость квадрата амплитуды колебаний конца волновода (A^2) от тока обмотки возбуждения (I) излучающего волновода.

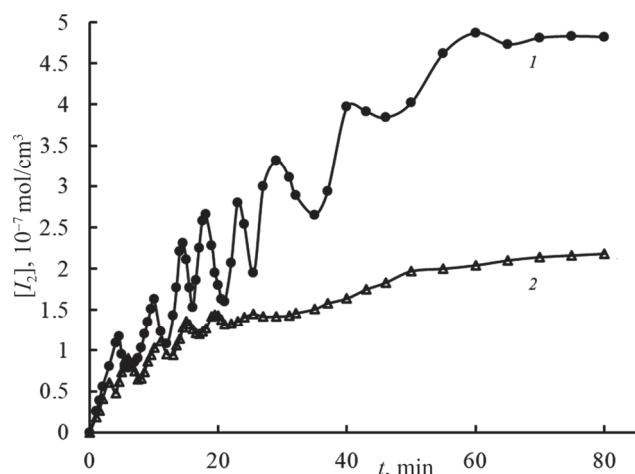


Рис.3. Кинетические кривые накопления молекулярного йода при ультразвуковой обработке раствора йодида калия: 1 – $\nu = 22$, 2 – $\nu = 44$ кГц; $[KI]_0 = 10\%$.

колебательном режиме. При этом ход процесса зависит от частоты ультразвукового излучения. В частности, стационарная концентрация йода при частоте 44 кГц достигается через 50 мин, а при частоте 22 кГц – через 70 мин. При этом стационарная концентрация йода, достигаемая на частоте 22 кГц, в 2.2 раза выше, чем на частоте 44 кГц. Следует отметить, что амплитуда колебаний концентрации йода на частоте 22 кГц также значительно больше, чем на частоте 44 кГц.

На рис.4 представлены зависимости максимальной концентрации молекулярного йода, накопленного в растворе при его ультразвуковой обработке, от начальной концентрации раствора KI для двух различных частот. Измерения проводились через 80 мин после начала процесса.

Из рис.4 видно, что с увеличением исходной концентрации раствора йодида калия до значений 5–7% максимальная концентрация йода увеличивается, а затем достигает своего максимального значения.

На рис.5 представлена зависимость максимальной концентрации молекулярного йода, образующегося в водном растворе под действием кавитации, от

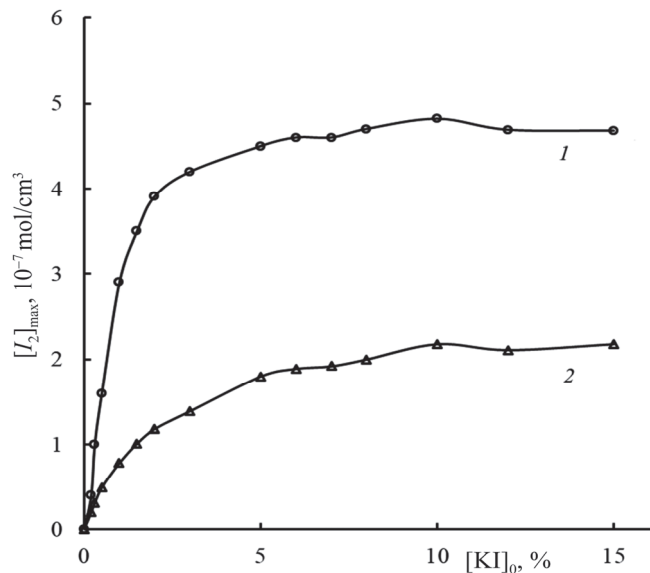


Рис.4. Зависимости максимальной концентрации молекулярного йода, образующегося в водном растворе под действием кавитации, от начальной концентрации йодида калия: 1 – $\nu = 22$ и 2 – $\nu = 44$ кГц; $A = 31$ мкм, $t = 80$ мин.

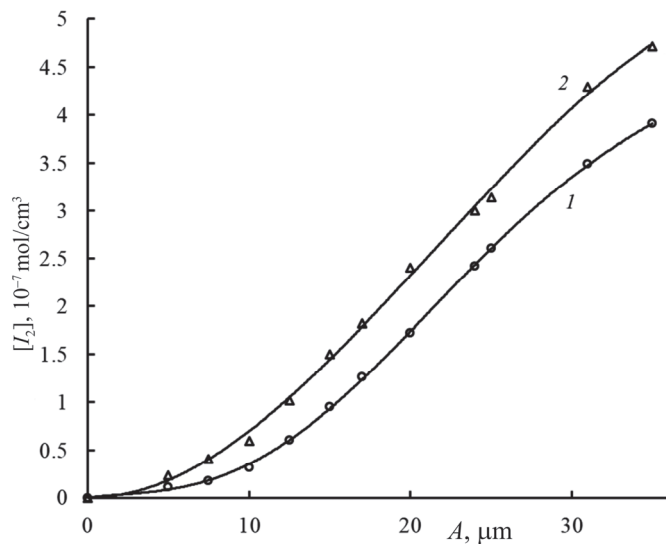


Рис.5. Зависимость максимальной концентрации молекулярного йода, образующегося в водном растворе под действием кавитации, от амплитуды колебаний конца волновода: 1 – $[KI]_0 = 2\%$ и 2 – $[KI]_0 = 5\%$; $\nu = 22$ кГц.

амплитуды колебаний конца волновода. Данные получены при начальных концентрациях 2 и 5% раствора KI.

Очевидно, что средняя скорость накопления в растворе молекулярного йода максимальна при амплитуде колебаний торца волновода 17–24 мкм. Однако говорить о максимальной скорости процесса не имеет смысла, так как процесс происходит в колебательном режиме. Можно определить лишь среднюю скорость.

4. Заключение

При воздействии ультразвукового излучения на водный раствор йодида калия было установлено, что при возникновении кавитации ионы I^- восстанавливаются до молекулярного йода. При этом процесс выделения йода происходит в колебательном режиме. Показано, что скорость выделения йода и его максимальная концентрация зависят от интенсивности ультразвука, концентрации раствора йодида калия и частоты ультразвука. При этом увеличение концентрации йодида калия в исходном растворе выше 5–6% не приводит к дальнейшему увеличению концентрации образующегося йода. Зависимость максимальной концентрации йода от амплитуды колебаний торца волновода нелинейна, а средняя скорость накопления молекулярного йода в растворе максимальна при амплитуде колебаний торца волновода 17–24 мкм.

ЛИТЕРАТУРА

1. **M.A Margulis.** *Ultrason. Sonochem.*, **1**, S87 (1994).
2. **K.S. Suslick, Yu. Didenko, M.M. Fang, T. Hyeon, K.J. Kolbeck., W.B. McNamara, M.M. Mdleleni, M. Wong.** *Philosop. Trans. Royal Soc. A*, **357**, 335 (1999).
3. **A.Yu. Dnestrovskij, S.A. Voropaev, N.V. Dushenko, S.G. Naimushin, E.M. Galimov.** *Dokl. Phys.*, **65**, 8 (2020).
4. **K.S. Suslick, D.J. Flannigan.** *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **59**, 659 (2008).
5. **J.C. Colmenares, G. Chatel.** *Sonochemistry. From Basic Principles to Innovative Applications.* Springer, Berlin, Heidelberg, 2017.
6. **D. Bernard, B. Primus.** *Ultrason. Sonochem.*, **15**, 78 (2008).
7. **S.A. Voropaev, N.V. Dushenko, A.Yu. Dnestrovski, A.P. Krivenko.** *Geochem. Intern.*, **59**, 1052 (2021).
8. **S.A. Voropaev, A.Yu Dnestrovskii, V.N. Skorobogatskii, A.S. Aronin, V.M. Shkinev, O.L. Bondarev, V.V. Strazdovskii, A.A. Eliseev, E.A. Zevakin, E.A. Ponomareva, E.M. Galimov.** *Dokl. Phys.*, **59**, 567 (2014).
9. **S.J. Shaw, P.D. Spelt.** *J. Fluid Mech.*, **646**, 363 (2010).
10. **R.I. Nigmatulin, A.A. Aganin, D.Yu. Toporkov, M.A. Ilgamov.** *Dokl. Phys.*, **61**, 138 (2016).
11. **H. Xu, B.W. Zeiger, K.S. Suslick.** *Chem. Soc. Rev.*, **42**, 2555 (2013).
12. **R.I. Nigmatulin, A.A. Aganin, D.Yu. Toporkov, M.A. Ilgamov.** *Rep. Russ. Acad. Sci.*, **458**, 282 (2014).
13. **M. Tinguely, K. Ohtani, M. Farhat, T. Sato.** *Energies*, **15**, 2305 (2022).
14. **A.G. Gaydon, I.R. Hurle.** *The Shock Tube in High-Temperature Chemical Physics.* Reinhold Pub. Corp., 1963.
15. **S.P. Medvedev, A.N. Ivantsov, A.I. Mikhailin, M.V. Silnikov, A.M. Tereza, S.V. Khomik.** *Russ. J. Phys. Chem. B*, **14**, 600 (2020).
16. **S. Li, A. Campos, D.F. Davidson, R.K. Hanson.** *Fuel*, **118**, 398 (2014).
17. **J.M. Hall, M. Rickard, E.L Petersen.** *Comb. Sci. Tech.*, **177**, 455 (2025).
18. **O.G. Penyazkov, K.A. Ragotner, A.J. Dean, B. Varatharajan.** *Proceed. Comb. Inst.*, **30**, 1941 (2005).
19. **M.A. Margulis.** *Russ. J. Phys. Chem.*, **82**, 1407 (2008).

20. **M.A. Margulis, N.N. Kuznetsov.** Russ. J. Phys. Chem., **85**, 130 (2011).
21. **S. Merouani, O. Hamdaoui, S. Fethi, M. Chiha.** J. Hazard. Mater., **178**, 1007 (2010).
22. **P.S. Kumar, M.S. Kumar, A.B. Pandit.** Chem. Engin. Sci., **55**, 1633 (2000).
23. **M.A. Margulis.** High Energy Chem., **38**, 135 (2004).
24. **M.A. Margulis, I.M. Margulis.** Russ. J. Phys. Chem., **77**, 1183 (2003).
25. **M.A. Margulis, I.M. Margulis.** Ultrason. Sonochem., **10**, 343 (2003).
26. **I.M. Margulis, M.A Margulis.** Acoust. Phys., **51**, 695 (2005).
27. **S. Umchid, K. Prasanpanich.** Development of the Ultrasound Power Meter for Therapeutic Applications. The 5th Engineering International Conference (BMEiCON), Muang, Ubon Ratchathani, Thailand, 415–420 (2012).
28. **K.M. Swamy, F.J. Keil.** Ultrason. Sonochem., **9**, 305 (2002).
29. **M.A Margulis.** Physics-Uspekhi, **43**, 259 (2000).

**ԿԱԼԻՈՒՄԻ ՅՈՂԻՂԻ ՋՐԱՅԻՆ ԼՈՒՐՈՒՅԹՆԵՐԻ ՎՐԱ ՈՒԼՏՐԱՋԱՅՆԱՅԻՆ
ՃԱՌԱԳԱՅԹՄԱՆ ԱԶԴԵՅՈՒԹՅԱՆ ՈՒՍՈՒՄՆԱՍԻՐՈՒԹՅՈՒՆ**

Ա.Հ. ԴԱՎԹՅԱՆ, Ս.Դ. ԱՐՍԵՆՏԵՎ, Հ.Ա. ՀԱՐՈՒԹՅՈՒՆՅԱՆ

Առաջին անգամ հաստատվել է, որ կալիումի յոդիդի ջրային լուծույթը, երբ ենթարկվում է ուլտրաձայնային ճառագայթման և առաջանում է կավիտացիա, ազատում է մոլեկուլային յոդ: Այս դեպքում յոդի արտազատման գործընթացը տեղի է ունենում տատանողական ռեժիմով: Ապացուցված է, որ յոդի արտազատման արագությունը և դրա առավելագույն կոնցենտրացիան կախված են ուլտրաձայնային ինտենսիվությունից, կալիումի յոդիդի լուծույթի կոնցենտրացիայից և ուլտրաձայնային հաճախականությունից: Միևնույն ժամանակ, կալիումի յոդիդի կոնցենտրացիայի ավելացումը նախնական լուծույթում 5–6%-ից բարձր չի հանգեցնում ստացված յոդի կոնցենտրացիայի հետագա աճի: Յոդի առավելագույն կոնցենտրացիայի կախվածությունը ալիքատարի ծայրի տատանումների ամպլիտուդից ոչ գծային է:

**STUDY OF THE INFLUENCE OF ULTRASONIC RADIATION
ON AQUEOUS SOLUTIONS OF POTASSIUM IODIDE**

A.H. DAVTYAN, S.D. ARSENTEV, H.A. HARUTYUNYAN

It has been established for the first time that an aqueous solution of potassium iodide under the influence of ultrasound radiation when cavitation occurs releases molecular iodine. In this case, the process of iodine release occurs in an oscillatory mode. It has been shown that the rate of iodine release and its maximum concentration depend on the ultrasound intensity, the concentration of potassium iodide solution and the ultrasound frequency. In this case, increasing the concentration of potassium iodide in the initial solution above 5–6% does not lead to a further increase in the concentration of the resulting iodine. The dependence of the maximum iodine concentration on the amplitude of the waveguide end oscillations is nonlinear.

ЭКСИТОННОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ И ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ В НАНОПЛАСТИНКАХ CdSe: ВЛИЯНИЕ ОДНОРОДНОГО ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПОЛЯ

А.А. НААПЕТЯН^{1*}, Л.А. ТАДЕВОСЯН²,
Д.А. БАГДАСАРЯН¹, В.А. АРУТЮНЯН¹

¹Институт прикладных проблем физики НАН Армении, Ереван, Армения

²Российско–Армянский университет, Ереван, Армения

*e-mail: n.aram2097@gmail.com

(Поступила в редакцию 12 марта 2025 г.)

Рассмотрены процессы экситонного поглощения и фотолюминесценции при наличии перпендикулярного к направлению квантования однородного электростатического поля в нанопластинке (НПЛ) CdSe. В рамках модели Такагахары в аксиальном направлении учтены эффекты поляризации носителей заряда. Для каждого из коэффициентов экситонного поглощения и люминесценции, рассчитанных в рамках той же модели, определены зависимости от энергии падающего фотона, а также рассмотрено влияние геометрических параметров НПЛ и значения напряженности внешнего поля на величины коэффициентов поглощения и люминесценции. Показано, что высоты пиков поглощения и люминесценции уменьшаются с увеличением величины внешнего поля. Одновременно при увеличении поля наблюдается уширение соответствующих пиков.

1. Введение

Как известно, оптические свойства полупроводниковых нанопластинок (НПЛ) существенно отличаются от таковых не только в массивных образцах, но и в размерно-квантованных структурах предыдущего поколения квантовых пленок, квантовых нитей и квантовых точек [1–6]. Важную роль в формировании оптических свойств НПЛ играют экситонные состояния. Это обусловлено, в первую очередь, тем фактором, что вследствие уменьшения размеров образца вплоть до нескольких атомных слоев в одном направлении, энергия связи низкоразмерного ($2D$) экситона принимает большие значения, по сравнению с энергией связи экситона как в массивном образце, так и в квантовой яме. Например, для интересующего нас в дальнейшем случае НПЛ CdSe в массивном полупроводнике энергия экситона 15 мэВ, а в квантовой яме – примерно 60 мэВ, то в НПЛ она достигает двух сотен мэВ [6–8]. Подобное увеличение энергии связи экситона в НПЛ обусловлено тем обстоятельством, что вследствие уменьшения размерности образца и скачка значения диэлектрической проницаемо-

сти на границе раздела материал–среда увеличивается кулоновские притяжение между электроном и дыркой [1, 2, 58]. Вследствие этого экситоны в НПЛ оказываются долгоживущими, и влияние на оптические свойства образца могут оказывать уже не только собственно экситонные состояния, но и коллективные свойства экситонов в этих структурах [9–12].

Наряду с изменением геометрических размеров, приводящим к регулируемому изменению энергетического спектра носителей путем размерного квантования, другим мощным модулирующим фактором является внешнее однородное электрическое поле. Совместное воздействие этих двух факторов приводит к появлению новых особенностей в спектре оптического поглощения в низкоразмерных полупроводниковых материалах по сравнению с массивными образцами. Влиянию однородного электрического поля на экситонные состояния и на полосу оптических переходов в массивных и квазидвумерных (квантовые пленки) и квазиодномерных (квантовые нити, цилиндры) полупроводниковых структурах посвящено большое количество как теоретических, так и экспериментальных работ [13–15]. В связи с прогрессом в получении и исследовании полупроводниковых НПЛ определенный интерес представляет рассмотрение влияния однородного электрического поля на экситонные состояния в НПЛ. В работе [16] рассмотрено влияние однородного электрического поля на оптическое поглощение в НПЛ CdSe при толщине квантующего слоя образца в 5 атомных монослоев (МС) и показано, что под действием поля наблюдается понижение экситонных пиков поглощения в НПЛ. В работе [17] рассмотрено воздействие внешнего электрического поля на энергию связи и оптические свойства экситонов в $2D$ структурах с учетом изменения эффективных масс носителей заряда под действием внешнего поля. В работах [18–20] рассмотрено влияние внешнего поля на экситонные состояния в квазидвумерных материалах, когда вектор внешнего поля лежит в плоскости структуры. В этих работах показано, что экситоны в рассматриваемых структурах имеют достаточно большую энергию связи, и в них не наблюдается распад на электрон и дырку вплоть до напряженностей внешнего поля порядка 100 кВ/см; рассчитана также величина штарковского сдвига энергии $2D$ экситона в зависимости от напряженности поля. Изменения экситонных состояний и соответственно линейных и нелинейных оптических свойств образца под действием электрического поля, когда поле направлено вдоль оси квантования НПЛ, рассмотрены в работе [21]. Вместе с тем вызывает интерес исследование характера экситонного поглощения в НПЛ, когда электрическое поле является латеральным.

В настоящей работе рассмотрено влияние однородного электрического поля на экситонное поглощение и непосредственно связанный с ним процесс фотолюминесценции в НПЛ CdSe, когда вектор напряженности внешнего поля направлен вдоль оси OY в плоскости НПЛ (XOY).

2. Экситонные состояния в НПЛ CdSe при наличии поперечного электрического поля

В общем виде гамильтониан, описывающий взаимодействие электрона и дырки при наличии латерального электрического поля, можно представить следующим выражением:

$$\hat{H} = -\frac{\hbar^2 \Delta_{\mathbf{p}_e}}{2\mu_{\parallel,e}} - \frac{\hbar^2 \Delta_{\mathbf{p}_h}}{2\mu_{\parallel,h}} - \frac{\hbar^2 \Delta_{z_e}}{2\mu_{z,e}} - \frac{\hbar^2 \Delta_{z_h}}{2\mu_{z,h}} + U(z_e, z_h, \mathbf{p}_e, \mathbf{p}_h) + |e|(\mathbf{F} \cdot (\mathbf{p}_e - \mathbf{p}_h)). \quad (1)$$

Здесь $\Delta_{\mathbf{p}_i}, \Delta_{z_i}$ — лапласианы электрона и дырки в плоскости XOY и вдоль направления укладки, $\mu_{\parallel,i}$ и $\mu_{z,i}$ — эффективные массы в плоскости XOY и вдоль оси OZ для частицы $i = e, h$ (электрон или дырка), соответственно, $\mathbf{p}_{e,h} = \mathbf{p}_{e,h}(x_{e,h}; y_{e,h}; 0)$ — двумерные радиус-векторы электрона и дырки в той же плоскости, e — элементарный заряд, а $\mathbf{F} = \mathbf{F}(F_x, F_y, 0)$ — напряженность электрического поля в плоскости. В данной модели мы предполагаем, что зонная структура и, в частности, эффективная масса экситона не изменяются под воздействием электрического поля. Потенциальную энергию пары электрон – дырка можно записать следующим образом:

$$U(z_e, z_h, \mathbf{p}) = U^e(z_e) + U^h(z_h) + U_{\text{conf}}^e(x_e, y_e) + U_{\text{conf}}^h(x_h, y_h) + V(z_e, z_h, \mathbf{p}), \quad (2)$$

где $\mathbf{p} = \mathbf{p}_e - \mathbf{p}_h$, $V(z_e, z_h, \mathbf{p})$ — потенциал взаимодействия электрона и дырки, $U^e(z_e)(U^h(z_h))$ — одночастичный потенциал электрона (дырки), образующийся из-за смещений валентной зоны и зоны проводимости и включающий также собственную энергию $U_{\text{self}}^e(z_e)(U_{\text{self}}^h(z_h))$, возникающую из-за несоответствия диэлектрических проницаемостей в областях барьера и ямы [22]:

$$U^i(z_i) = U_{\text{conf}}^i(z_i) + U_{\text{self}}^i(z_i), \quad i = e, h. \quad (3)$$

Ограничивающий потенциал, определяемый энергетическим разрывом на поверхности НПЛ–среда, описывается ямой конечной глубины [6], а движение в плоскости XOY рассматриваем в приближении бесконечно глубокой потенциальной ямы:

$$U_{\text{conf}}^i(z_i) = \begin{cases} U_0^i, & |z_i| > L_z/2 \\ 0, & |z_i| \leq L_z/2 \end{cases}; \quad U_{\text{conf}}^i(x_i, y_i) = \begin{cases} 0, & (x_i, y_i) \in \text{НПЛ} \\ \infty, & (x_i, y_i) \notin \text{НПЛ} \end{cases} \quad (i = e, h). \quad (4)$$

Здесь U_0^i — глубина потенциальной ямы для электрона ($i = e$) и дырки ($i = h$), соответственно. Несоответствие диэлектрических проницаемостей приводит к дополнительному ограничению, описываемому самоиндуцированным потенциалом $U_{\text{self}}^i(z)$ для каждого типа носителей заряда [2, 6, 23]:

$$\begin{aligned} U_{\text{self}}(z) &= \sum_{m=\pm 1, \pm 2, \dots} \frac{k^{|m|} e^2}{2\epsilon_w |z - (-1)^m z + mL_z|}, \quad |z| < L_z/2, \\ U_{\text{self}}(z) &= \frac{2\epsilon_w}{\epsilon_w + \epsilon_b} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{k^{2m+1} e^2}{(\epsilon_w + \epsilon_b) |2z + (2m+1)L_z|} - \frac{ke^2}{2\epsilon_b |2z - L_z|}, \quad z > L_z/2, \\ U_{\text{self}}^i(z) &= U_{\text{self}}^i(-z), \quad z < -L_z/2. \end{aligned} \quad (5)$$

Здесь $k = \frac{\varepsilon_w - \varepsilon_b}{\varepsilon_w + \varepsilon_b}$, ε_w и ε_b являются диэлектрическими проницаемостями мате-

риала НПЛ и окружающей среды, соответственно, а L_z — толщина НПЛ вдоль направления квантования. Для типичных НПЛ всегда выполняются следующие условия между продольными L_z и поперечными L_x, L_y размерами:

$$L_z^2 \ll (a_{\text{ex}})^2; \quad a_{\text{ex}} \ll L_{x(y)}. \quad (6)$$

Здесь a_{ex} — боровский радиус экситона. Условие (6) позволяет разделить аксиальное и плоское движения носителей заряда. Решение уравнения Шредингера с гамильтонианом (1) в этом случае с достаточной точностью можно провести в рамках адиабатического приближения [24]. Соответственно запишем полную волновую функцию взаимодействующей электронно-дырочной пары во внешнем поле в следующем виде:

$$\Psi(\mathbf{p}_e, \mathbf{p}_h, F, z_e, z_h) = \psi_{\perp}(z_e, z_h) \psi_{\parallel}(\mathbf{p}_e, \mathbf{p}_h, F). \quad (7)$$

Используя ограничивающий потенциал вдоль оси квантования из (4) и (5) и разделяя переменные в уравнение (1) для движения вдоль оси OZ , получаем волновые функции $\psi_{\perp}(z_e, z_h)$, которые, в свою очередь, представим как произведение функций одночастичных состояний электрона и дырки [6]:

$$\psi_{\perp}(z_e, z_h) = \psi_{\perp}(z_e) \psi_{\perp}(z_h). \quad (8)$$

По аналогии с работами [2, 6, 23], потенциал электронно-дырочного взаимодействия $V(z_e, z_h, \mathbf{p})$ определяется усреднением по одночастичным состояниям (8):

$$V_{e-h}^{2D}(\varepsilon_w, \varepsilon_b, \mathbf{p}_e, \mathbf{p}_h) = -e^2 \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{q_n}{\varepsilon_w} \int_0^{L_z} \int_0^{L_z} \frac{|\psi_{\perp,e}(z_e)|^2 |\psi_{\perp,h}(z_h)|^2 dz_e dz_h}{\sqrt{(\mathbf{p}_e - \mathbf{p}_h)^2 + [z_e - (-1)^n z_h - nL_z]^2}}; \quad (9)$$

$$q_n = \left(\frac{\varepsilon_w - \varepsilon_b}{\varepsilon_w + \varepsilon_b} \right)^{|n|}.$$

Соответственно, для определения экситонных состояний в плоскости НПЛ получаем следующий гамильтониан:

$$\hat{H}_{\text{ex},F}^{2D} = -\frac{\hbar^2 \Delta_{\mathbf{p}_e}}{2\mu_{\parallel,e}} - \frac{\hbar^2 \Delta_{\mathbf{p}_h}}{2\mu_{\parallel,h}} + V_{e-h}^{2D}(\varepsilon_w, \varepsilon_b, \mathbf{p}_e, \mathbf{p}_h) + |e|(\mathbf{F} \cdot (\mathbf{p}_e - \mathbf{p}_h)). \quad (10)$$

Для определения волновой функции $\psi_{\parallel}(x_e, y_h, F) = \psi_{N_x, N_y}(X, Y) \psi_{\text{ex}}(x, y, F)$ из уравнения (7), а также энергии поперечного движения $E_{\parallel} = E_{N_x, N_y}^{c.m.} + E_{\text{ex}, F}$, взаимодействующей в плоскости XOY электронно-дырочной пары в присутствии внешнего электрического поля, мы можем записать следующие два отдельных уравнения соответственно для центра масс и относительного движения пары:

$$-\frac{\hbar^2}{2M} \left(\frac{\partial^2}{\partial X^2} + \frac{\partial^2}{\partial Y^2} \right) \psi_{N_x, N_y}(X, Y) = E_{N_x, N_y}^{c.m.} \psi_{N_x, N_y}(X, Y); \quad (11)$$

$$M = \mu_{\parallel,e} + \mu_{\parallel,h}; \quad N_x, N_y = 1, 2, 3, \dots; \quad X = \frac{\mu_{\parallel,e} x_e + \mu_{\parallel,h} x_h}{\mu_{\parallel,e} + \mu_{\parallel,h}}; \quad Y = \frac{\mu_{\parallel,e} y_e + \mu_{\parallel,h} y_h}{\mu_{\parallel,e} + \mu_{\parallel,h}};$$

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu_{\text{ex}}} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) + V_{e-h}^{2D}(\varepsilon_w, \varepsilon_b, x, y) + |e|Fy \right] \Psi_{\text{ex}}(x, y, F) = E_{\text{ex},F} \Psi_{\text{ex}}(x, y, F); \quad \mu_{\text{ex}} = \frac{\mu_{\parallel,e} \mu_{\parallel,h}}{\mu_{\parallel,e} + \mu_{\parallel,h}}; \quad x = x_e - x_h; \quad y = y_e - y_h. \quad (12)$$

Здесь $(\mu_{\parallel})_{e,h}$ – эффективные массы электрона и дырки в плоскости НПЛ, $E_{N_x, N_y}^{c,m}$ – энергия движения центра масс $2D$ экситона в плоскости XOY , $E_{\text{ex},F}$ – энергия связанного экситонного состояния электрона и дырки в плоскости НПЛ при наличии внешнего поля. Для определенности мы выбрали внешнее поле направленным вдоль оси OY .

$$\mathbf{F} = \mathbf{F}(0, F, 0); (\mathbf{F} \cdot \boldsymbol{\rho}) = Fy. \quad (13)$$

При такой ориентации внешнего поля оно не оказывает влияния на состояния носителей заряда при их движении вдоль оси квантования OZ . Энергия носителей в этом направлении зависит от толщины квантующего слоя (числа монослоев (ML)) и эффективной массы носителей, значения которых в свою очередь зависят от числа монослоев [6].

В табл.1 приведены значения первых двух уровней энергии размерного квантования в НПЛ CdSe при различном числе монослоев, когда глубина потенциальной ямы для электрона и дырки вдоль оси z соответственно $U_0^e = 2$ эВ, $U_0^h = 2.5$ эВ [6].

Табл.1. Значения первых двух уровней энергии размерного квантования в НПЛ CdSe при различном числе монослоев для глубины потенциальной ямы электрона и дырки вдоль оси OZ соответственно $U_0^e = 2$ эВ, $U_0^h = 2.5$ эВ [6]

ML	$\mu_{z,e} / m_0$	$\mu_{z,h} / m_0$	$E_{n_z=1}^e$, мэВ	$E_{n_z=2}^e$, мэВ	$E_{n_z=1}^h$, мэВ	$E_{n_z=2}^h$, мэВ
3.5	0.157	0.96	439	—	280	937
4.5	0.144	0.92	341	1700	197	665
5.5	0.138	0.90	277	1330	147	483
7.5	0.130	0.88	197	887	92	294

Здесь m_0 – масса свободного электрона.

Если воспользоваться методикой работ [6, 23], то уравнение (12), описывающее движение электронно-дырочной пары в плоскости НПЛ, может быть решено численно. В случае $F = 0$ значения энергий основных экситонных состояний и боровских радиусов совпадают с результатами работы [6].

В табл.2 показаны значения основного экситонного состояния $(E_{\text{ex}}(F = 0))_1$ и боровского радиуса $a_{\text{ex}}^{\text{NPL}}(F = 0)$ в НПЛ CdSe при различном числе монослоев в отсутствие внешнего поля, полученные путем численного решения уравнения (12) при $F = 0$.

Здесь μ_{ex} – приведенная эффективная масса $2D$ экситона в плоскости НПЛ, значения которой зависят от числа монослоев [6].

Табл.2. Значения основного экситонного состояния $(E_{\text{ex}}(F=0))_1$ и боровского радиуса $a_{\text{ex}}^{\text{NPL}}(F=0)$ в НПЛ CdSe при различном числе монослоев в отсутствие внешнего поля. Диэлектрические проницаемости материала НПЛ и среды соответственно равны: $\epsilon_w = 6$ и $\epsilon_b = 2$

ML	3.5	4.5	5.5	7.5
μ_{ex} / m_0	0.103	0.09	0.081	0.076
$(E_{\text{ex}}(F=0))_1$, мэВ	312	257	220	180
$a_{\text{ex}}^{\text{NPL}}(F=0)$, нм	1.493	1.775	2.031	2.380

Из таблицы видно, что с увеличением числа монослоев вдоль оси OZ энергия связи экситона в НПЛ уменьшается. Это объясняется тем обстоятельством, что с увеличением числа монослоев уменьшается влияние размерного квантования, вследствие чего и ослабляется связь между электроном и дыркой.

При $F \neq 0$ численное решение уравнения (12) показывает, что наличие поля приводит к изменению положения энергетических уровней (штарковскому сдвигу) и изменению поведения волновой функции пары. Для слабых полей зависимость энергии от поля соответствует известной из квантовой механики квадратичной зависимости штарковского сдвига от величины напряженности поля [20, 25 – 27]:

$$\Delta E(F) = (E_{\text{ex}}(F))_1 - (E_{\text{ex}}(F=0))_1 \sim F^2. \quad (14)$$

Наряду со сдвигом энергии становится возможной диссоциация экситона путем туннелирования. Увеличение значения электрического поля приводит к увеличению вероятности туннелирования и, следовательно, к уменьшению времени ионизации. Время ионизации можно оценить с помощью квазиклассического подхода, используя следующую известную формулу [28]:

$$\Gamma = 1/\tau_{\text{ion}} = \frac{\sqrt{\pi}}{64} \frac{\hbar}{R_y^*} \left(\frac{eFa_{\text{ex}}}{R_y^*} \right)^{1/2} \exp \left(\frac{4}{3} E_B \frac{\sqrt{2\mu_{\text{ex}} E_B}}{\hbar e F} \right), \quad (15)$$

где E_B — энергия связи экситона в отсутствие электрического поля, а $R_y^* = \mu_{\text{ex}} e^4 / 2\hbar^2 \epsilon^2$ — постоянная Ридберга для экситона. Возможность туннелирования под действием поля, естественно, будет влиять на спектр оптических переходов в НПЛ. Это влияние на поглощение и фотолюминесценцию изучены в следующем параграфе.

3. Поглощение и фотолюминесценция в НПЛ во внешнем поле

Рассмотрим теперь специфику оптических межзонных спектров поглощения и фотолюминесценции во внешнем электрическом поле. Для коэффициента поглощения $K(\omega)$ в зависимости от частоты падающего фотона ω можно записать [6]:

$$K(\omega) = \sum_{c,v} |M_{c,v}|^2 \delta(\hbar\omega - \hbar\omega_0),$$

$$\hbar\omega_0 = E_g + \frac{\pi^2 \hbar^2}{2\mu_{\perp}^{c,v} L_z^2} + \frac{\pi^2 \hbar^2}{2\mu_{\parallel}} \left(\frac{1}{L_x^2} + \frac{1}{L_y^2} \right) - |E_{\text{ex}}^{2D}|, \quad (16)$$

$$M_{c,v} = A_{c,v} \int \Psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) \delta(\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h) d\mathbf{r}_e d\mathbf{r}_h.$$

В выражениях (16) $A_{c,v}$ — матричный элемент оператора импульса, рассчитанный по блоховским функциям для валентной зоны (v) и зоны проводимости (c), $\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h$ — радиус-векторы электрона и дырки, соответственно, $\Psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h)$ — огибающие волновые функции электрона и дырки, $\delta(\hbar\omega - \hbar\omega_0)$ — дельта-функция Дирака. Для наших расчетов при наличии внешнего поля дельта-функция в выражении (16) заменяется лоренцианом:

$$\delta(\hbar\omega - \hbar\omega_0) \rightarrow \frac{1}{2\pi} \frac{\Gamma}{[(\hbar\omega - \hbar\omega_0)^2 + (\Gamma/2)^2]}, \quad (17)$$

ширина которого в данном случае определяется обратным временем ионизации Γ из выражения (15).

На рис.1 показаны кривые поглощения в зависимости от внешнего электрического поля F и различного числа монослоев n НПЛ.

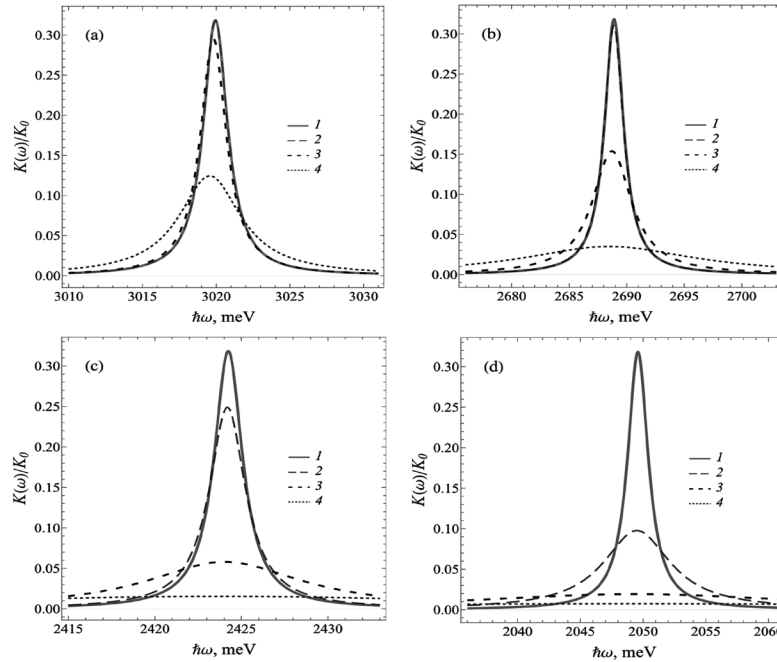


Рис.1. Коэффициент межзонного поглощения $K(\omega)/K_0$ в зависимости от энергии падающего фотона $\hbar\omega$ для числа монослоев НПЛ: (а) $n=3$, (б) $n=4$, (с) $n=5$, (д) $n=7$. Значения внешнего электрического поля: $F=0$ (кривая 1), $F=250$ кВ/см (кривая 2), $F=400$ кВ/см (кривая 3) и $F=600$ кВ/см (кривая 4).

Как видно из рис.1, влияние внешнего поля на межзонное экситонное поглощение проявляется как в уменьшении интенсивности, так и в увеличении ширины кривой поглощения. Наличие внешнего планарного поля приводит к уширению пиков экситонного поглощения (штарковское уширение) [28]. Особенно ярко эти изменения начинают проявляться для тех значений полей, когда доминирующим механизмом воздействия поля на экситонные состояния становится ионизация экситона. В то же время эффект сдвига Штарка приводит к смещению пика поглощения в низкочастотную область по сравнению со случаем отсутствия электрического поля. Из представленных графиков также видно, что влияние внешнего поля тем сильнее, чем больше толщина нанопластины. Это связано с тем, что с увеличением толщины НПЛ энергия связи $2D$ экситона уменьшается и, соответственно, увеличивается влияние внешнего поля.

Спектры фотолюминесценции в присутствии электрического поля можно рассчитать с помощью соотношения Ван-Русбрека – Шокли [29, 30]:

$$R(\hbar\omega) = R_0 \hbar\omega K(\hbar\omega) \frac{f_c(1-f_v)}{f_v - f_c}, \quad (18)$$

где R_0 пропорционален квадрату модуля матричного элемента дипольного момента, взятому по блоховским функциям, f_c и $(1-f_v)$ – вероятности заселенности состояний в зоне проводимости и незаселенности состояний в валентной зоне, соответственно.

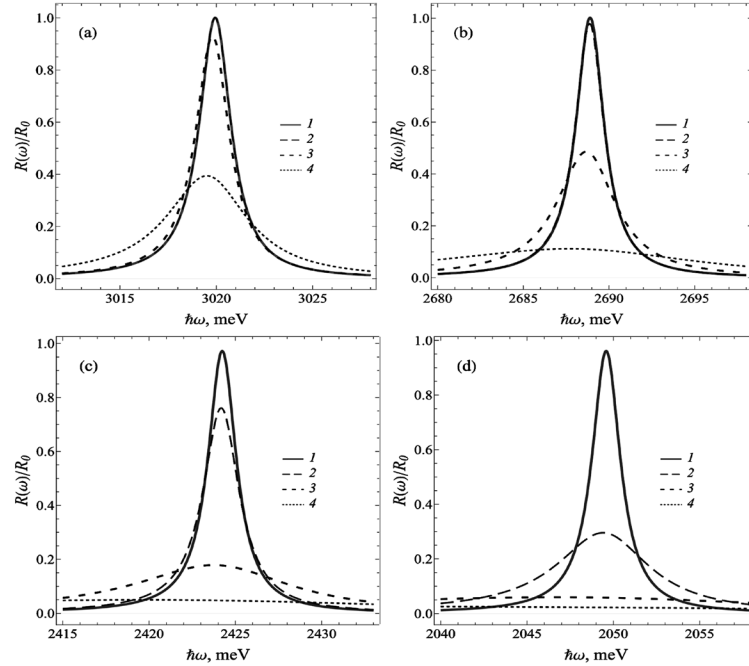


Рис.2. Интенсивность люминесценции $R(\omega)/R_0$ в зависимости от энергии падающего фотона $\hbar\omega$ для числа монослоев НПЛ: (a) $n = 3$, (b) $n = 4$, (c) $n = 5$, (d) $n = 7$. Значения внешнего электрического поля: $F = 0$ (кривая 1), $F = 250$ кВ/см (кривая 2), $F = 400$ кВ/см (кривая 3) и $F = 600$ кВ/см (кривая 4).

Кривые интенсивности люминесценции $R(\hbar\omega)$ в зависимости от величины электрического поля показаны на рис.2. Как видно из графиков, уменьшение высоты пиков и их ширины в зависимости от величины внешнего поля в процессе люминесценции проявляется так же, как и в случае поглощения. Увеличение числа монослоев в аксиальном направлении, в свою очередь, приводит к смещению пиков интенсивности люминесценции в длинноволновую область (энергия связи экситона уменьшается), что объясняется ослаблением размерного квантования вдоль OZ . В результате увеличивается влияние внешнего электрического поля на систему.

4. Заключение

Электрическое поле приводит к сдвигу положения пика экситонного поглощения в низкочастотную область по сравнению со случаем отсутствия поля. Наличие внешнего планарного поля приводит к уширению пиков экситонного поглощения. Внешнее электрическое поле приводит к снижению высоты пиков экситонного поглощения и люминесценции.

При приложении внешнего поля в плоскости НПЛ вдоль оси OY оно напрямую влияет на энергетический спектр экситонного состояния. Появляющаяся при этом определенная вероятность туннелирования приводит к уширению линий энергетического спектра экситона под действием внешнего поля. При данном значении внешнего поля его влияние как на коэффициент поглощения, так и на интенсивность люминесценции тем сильнее, чем больше толщина НПЛ.

ЛИТЕРАТУРА

1. S. Ithurria, B. Dubertret. J. Am. Chem. Soc., **130**, 16504 (2008).
2. B.T. Diroll, B. Guzelturk, H. Po, C. Dabard, N. Fu, L. Makke, E. Lhuillier, S. Ithurria. Chem. Rev., **123**, 3543 (2023).
3. M.W. Swift, A.L. Efros, S.C. Erwin. Nat. Commun., **15**, 7737 (2024).
4. A. Hu, L. Ma, X. Yang, Y. Yao, Y. Zhu, J. Qiu, Sh. Wang, Ch. Lu, Y. Gao. Nano Research, **17**, 10412 (2024).
5. J. Yu, R. Chen. InfoMat, **2**, 905 (2020).
6. D.A. Baghdasaryan, V.A. Harutyunyan, D.B. Hayrapetyan, E.M. Kazaryan, S. Baskoutas, H.A. Sarkisyan. Nanomaterials, **12**, 3690 (2022).
7. E.V. Shornikova, D.R. Yakovlev, N.A. Gippius, G. Qiang, B. Dubertret, A.H. Khan, A. Giacomo, I. Moreels, M. Bayer. Nanolett., **21**, 10525 (2021).
8. P. Geiregat, C. Rodá, I. Tanghe, S. Singh, A. di Giacomo, D. Lebrun, G. Grimaldi, J. Maes, D. Van Thourhout, I. Moreels, A.J. Houtepen, Z. Hens. Light Sci. Appl., **10**, 112 (2021).
9. A. Hu, L. Ma, X. Yang, Y. Yao, Y. Zhu, J. Qiu, Sh. Wang, Ch. Lu, Y. Gao. Nano Research, **17**, 10412 (2024).
10. S. Mazotti, M.U. Muhlematter, G. Galli, D.J. Norris. Phys. Rev. B, **110**, 195433 (2024).
11. G. Flórez, F. Kulkarni, A. Siebbeles, H.T.C. Stoof. Phys. Rev. B, **100**, 245302 (2019).
12. D.A. Baghdasaryan, V.A. Harutyunyan, E.M. Kazaryan, H.A. Sarkisyan, L.S. Petrosyan, T. Shahbazyan. Nanomaterials, **13**, 2734 (2023).
13. M. Kumagai, T. Takagahara. Phys. Rev. B, **18**, 12359 (1989).
14. V.A. Harutyunyan. J. Appl. Phys., **109**, 014325 (2011).

15. **M.V. Artemyev, A.V. Prudnikau, M.V. Ermolenko, L.I. Gurinovich, S.V. Gaponenko.** Physics, Chemistry and applications of nanostructures, Minsk, 2013.
16. **M. Brunetti, O. Berman, R. Kezerashvili.** Phys. Rev. B, **98**, 125406 (2018).
17. **L.S.R. Cavalcante, D.R. Costa, G.A. Farias, D.R. Reichman, A. Chaves.** Phys. Rev. B, **98**, 245309 (2018).
18. **H.C. Kamban.** Field-induced Dissociation of Excitons in Mono- and Bilayer Structures. Aalborg University Press, Aalborg, 2022.
19. **Z. Lian, Y.M. Li, L. Yan, L. Ma, D. Chen, T. Taniguchi, K. Watanabe, C. Zhang, S.F. Shi.** Nano Lett., **24**, 4843 (2024).
20. **M. Massicotte, F. Violla, P. Schmidt, M.B. Lundeberg, S. Latini, S. Haastrup, M. Danovich, D. Davydovskaya, K. Watanabe, T. Taniguchi, V. Fal'ko, K. Thygesen, T. Pedersen, F. Koppens.** Nat. Commun., **9**, 1633 (2018).
21. **D.A. Baghdasaryan, V.A. Harutyunyan, H.A. Sarkisyan.** Optical Quantum Electronics, **56**, 1221 (2024).
22. **F.M. Vázquez, Q. Yu, L.F. Klepzig, L.D.A. Siebbeles, R.W. Crisp, J. Lauth.** J. Phys. Chem. Lett., **12**, 680 (2021).
23. **D.A. Baghdasaryan, E.S. Hakobyan, D.B. Hayrapetyan, I.V. Iorsh, I.A. Shelykh, V. Shahnazaryan.** Phys. Rev. Mat., **6**, 034003 (2022).
24. **В.М. Галицкий, Б.М. Карнаков, В.И. Коган.** Задачи по квантовой механике. Наука, Москва 1992.
25. **V.A. Harutyunyan, K.S. Aramyan, H.S. Petrosyan, G.H. Denirjian.** Phys. E, **24**, 1173 (2004).
26. **B. Scharf, T. Frank, M. Gmitra, J. Fabian, I. Zutic, V. Perebeinos.** Phys. Rev. B, **94**, 245434 (2016).
27. **T. Handa, M. Halbrook, M. Olsen, L.N. Holtzman, L. Huber, H.I. Wang, M. Bonn, K. Barmak, J.C. Hone, A.N. Pasupathy, X. Zhu.** Sci. Adv., **10**, 4060 (2024).
28. **D.A.B. Miller, D.S. Chemla, T.C. Damen, A.C. Gossard, W. Wiegmann, T.H. Wood, C.A. Burrus.** Phys. Rev. B, **32**, 1043 (1985).
29. **W. Van Roosbroeck, W. Shockley.** Phys. Rev., **94**, 1558 (1954).
30. **R. Bhattacharya, B. Pal, B. Bansal.** Appl. Phys. Lett., **100**, 222103 (2012).

EXCITON ABSORPTION AND LUMINESCENCE IN CdSe NANOPATELETS: THE INFLUENCE OF UNIFORM ELECTRIC FIELD

A.A. NAHAPETYAN, L.A. TADEVOSYAN,
D.A. BAGHDASARYAN, V.A. HARUTYUNYAN

The processes of exciton absorption and photoluminescence in the presence of a uniform electrostatic field perpendicular to the quantization direction in a CdSe nanoplatelet (NPL) are considered. Within the Takagahara model, the effects of charge carrier polarization in the axial direction are taken into account. For each of the exciton absorption and luminescence coefficients calculated within the same model, the dependence on incident photon energy is analyzed. The effects of the NPL's geometric parameters and the strength of the external field on the absorption and luminescence coefficients are also examined. The results show that as the external field increases, the heights of both the absorption and luminescence peaks decrease. Simultaneously, the corresponding peaks broaden with increasing field strength.

ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ПРОВОДИМОСТИ НА ПЕРЕМЕННОМ ТОКЕ В ЛЕГИРОВАННЫХ ЛИТИЕМ ПЛЕНКАХ ОКСИДА ЦИНКА

Р.К. ОВСЕПЯН^{1,2*}, Н.Р. АГАМАЛЯН¹, А.А. АРАКЕЛЯН¹,
Т.А. ВАРТАНЯН³, Е.А. КАФАДАРЯН^{1,2}, В.Г. ЛАЗАРЯН¹,
Г.Г. МНАЦКАНЯН¹, С. И. ПЕТРОСЯН¹, А.Р. ПОГОСЯН¹

¹Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

²Российско–Армянский университет, Ереван, Армения

³Национальный исследовательский университет информационных технологий,
механики и оптики, Санкт-Петербург, Россия

*e-mail: ruben.hovsepyan@gmail.com

(Поступила в редакцию 1 апреля 2025 г.)

Механизмы транспорта носителей заряда для переменного тока определены в пленках оксида цинка (ZnO) с примесью Li, которая создает акцепторные и донорные центры. Проведено сравнительное изучение применимости двух моделей – квантово-механического туннелирования (QMT) и коррелированных барьерных прыжков (CBH) – для интерпретации экспериментальных данных по электропроводности на переменном токе. На основе анализа температурной зависимости проводимости на различных частотах сделан выбор в пользу модели CBH. Изучена зависимость энергии термической активации проводимости от концентрации легирующей примеси Li в пленках ZnO. Установлено, что правило Мейера–Нельделя, связывающее предэкспоненциальный множитель в температурной зависимости проводимости на переменном токе с энергией активации, выполняется для компенсированных полупроводников, в которых одновременно существуют донорные и акцепторные центры.

1. Введение

Пленки оксида цинка (ZnO), являющиеся альтернативой широко используемым пленкам оксида индия-олова (ITO), привлекли значительный интерес как прозрачный проводящий электрод. Благодаря своей прямой запрещенной зоне (3.37 эВ) и большой энергии связи экситона 40 мэВ [1] пленки ZnO имеют большой потенциал для использования в различных областях, включая газовые датчики, светоизлучающие диоды, УФ-лазеры и устройства на поверхностных акустических волнах. Электрические свойства пленок ZnO могут быть изменены путем легирования литием, алюминием и серебром [2]. Несмотря на большое количество публикаций по изучению влияния различных примесей на физические свойства пленок ZnO [3], зависимость энергии активации в металл-оксидных полупроводниках изучена слабо. Наблюдаемое при комнатной температуре поведение проводимости объясняется прыжковым механизмом, однако примени-

мость правила Мейера–Нельделя [4] к температурной зависимости проводимости пленок ZnO на переменном токе не установлена.

Известно, что легирование литием приводит к созданию акцепторных состояний ниже зоны проводимости и электрическое поведение пленок ZnO определяется концентрацией примеси лития. Процессы генерации и рекомбинации делокализованных носителей заряда в полупроводниках с квантовыми точками лежат в основе функционирования нового поколения приборов, таких как лазеры и фотодетекторы, принцип действия которых основан на квантовых эффектах в системах низкой размерности. Такие эффекты описываются уравнением Майера–Нельделя [5].

Таким образом, представляет интерес изучение проводимости на переменном токе и применение правила Майера–Нельделя для объяснения полученных результатов по температурной зависимости проводимости в пленках ZnO. В настоящей работе исследованы механизмы проводимости в компенсированных полупроводниках оксида цинка с акцепторными и донорными центрами в частотном диапазоне от 80 до 240 МГц и температурном диапазоне 100–400 К.

2. Экспериментальная часть

Легированные литием и номинально чистые пленки ZnO были получены методом электронно-лучевого вакуумного напыления на подложках из сапфира с ориентацией (001) [1]. Используемый метод обеспечивает получение пленок с дефицитом кислорода, поэтому они подвергались послеростовому отжигу на воздухе для насыщения кислородом. Это приводит к уменьшению кислородных вакансий и, как следствие, к уменьшению донорных центров. В результате были получены компенсированные полупроводники, содержащие как донорные центры, обусловленные кислородными вакансиями, так и акцепторные центры, обусловленные ионами лития [6]. Общее изменение проводимости, обусловленное изменением концентрации делокализованных носителей, можно объяснить замещением ионов Zn^{2+} ионами Li^+ с созданием дополнительных локализованных состояний для электрона на дне зоны проводимости, что приводит к уменьшению дрейфовой проводимости [7].

XRD-измерения показали формирование гексагональной структуры ZnO и ZnO:Li и преимущественную ориентацию полученных пленок вдоль оси (002), перпендикулярной плоскости подложки. В качестве омических контактов использовались алюминиевые электроды, полученные методом вакуумного термического напыления. Для исключения фотохимических процессов на поверхности пленок их покрывали защитным слоем диэлектрика MgF_2 [8]. Проводимость измерялась с использованием переменного напряжения смещения при напряженности электрического поля 10 В/см. Регистрация тока осуществлялась с помощью селективного усилителя. Регистрация электрического сигнала и управление экспериментом осуществлялись с использованием DAQ системы фирмы National Instruments. Разработано математическое обеспечение и созданы виртуальные инструменты для измерения электрических характеристик пленок.

3. Результаты и их обсуждение

3.1. Частотная зависимость проводимости

Основными механизмами транспорта носителей заряда в полупроводниках являются дрейфовый механизм (дрейфовое перемещение носителей заряда под воздействием электрического поля) и прыжковый механизм перемещения носителей заряда по локализованным состояниям (проводимость осуществляется за счет прыжков носителей заряда из одного локализованного состояния в другое). Зависимость проводимости от частоты электрического поля описывается соотношением Мотта. Для всех исследованных пленок зависимость проводимости от частоты мы аппроксимируем выражением

$$\sigma_{ac}(\omega) = \sigma_{dc} + A\omega^s, \quad (1)$$

где A – константа, σ_{dc} – проводимость на постоянном токе, $\omega = 2\pi f$ – угловая частота внешнего напряжения смещения, s – показатель степени. Такой вид частотной зависимости характерен для многих широкозонных полупроводников и молекулярных материалов [9]. Существует несколько моделей для объяснения такого поведения. Модели квантово-механического туннелирования (QMT – quantum mechanical tunnelling) и коррелированных барьерных прыжков (CBH – correlated barrier hopping) широко используются для оценки частотной зависимости проводимости. Более детально прыжковая модель поляронной проводимости описана в работах [10–13, 14]. В модели QMT предполагается движение носителей заряда между двумя локализованными состояниями вблизи уровня Ферми. Согласно модели QMT, частотная зависимость проводимости должна подчиняться уравнению

$$\sigma_{ac}(\omega) = \frac{2}{3} \pi e^2 k T N_F \beta^{-5} \omega \left(\ln \frac{v_0}{\omega} \right)^4, \quad (2)$$

где e – заряд электрона, N_F – плотность локализованных состояний на уровне Ферми, β – обратная длина локализации волновой функции и v_0 – характерная частота фонона полярона. Согласно модели QMT, показатель s должен быть независимым от температуры и с постоянным значением около 0.8.

На рис. 1а представлена зависимость проводимости от частоты для пленок ZnO номинально чистых и легированных акцепторной примесью Li (0.5; 0.6; 0.8; 1 ат%). На подложку напылялись пленка оксида цинка и омические электроды (рис. 1б). Вся поверхность пленки оксида цинка и омические электроды покрывались пленкой фторида магния толщиной 400 нм. Учитывая низкую проводимость пленки MgF_2 $\sigma_{dc} = 10^{-16} \text{ (Ом}\times\text{см)}^{-1}$, покрытие образца этой пленкой не приводило к изменению результатов измерения сопротивления.

Модель CBH предполагает, что перенос заряда происходит посредством прыжка полярона через потенциальный барьер, разделяющий локализованные состояния. В модели CBH частотная зависимость определяется как

$$\sigma_{ac}(\omega) = \frac{\pi^2}{24} (N_F)^2 \varepsilon \left(\frac{8q}{\varepsilon E_g} \right)^6 \frac{\omega^s}{\tau_0}, \quad (3)$$

где E_g – оптическая ширина запрещенной зоны и ε – диэлектрическая проницаемость материала. Модель CBH определяет зависящий от температуры параметр s , который задается как

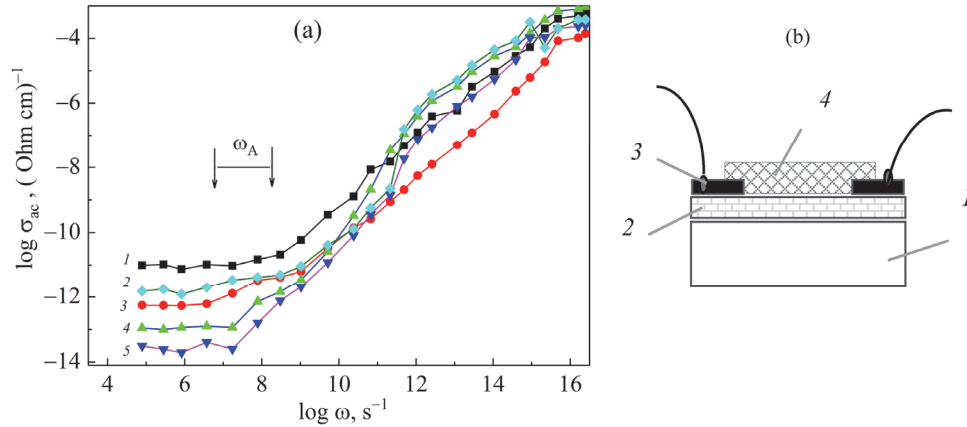


Рис.1. (а) Зависимость проводимости от частоты для чистых и легированных акцепторной примесью Li пленок ZnO (1 – ZnO, 2 – Li 0.5, 3 – Li 0.6, 4 – Li 0.8, 5 – Li 1 ат%), Стрелками обозначена частота кроссовера ω_A . (б) Схема для измерения проводимости: 1 – подложка из сапфира, 2 – пленка ZnO:Li, 3 – металлические электроды, 4 – защитное покрытие MgF₂.

$$s = \frac{6kT}{E_0 + kT \ln(\omega\tau_0)}, \quad (4)$$

где E_0 – высота барьера, k – постоянная Больцмана, τ_0 – характерное время релаксации полярона в локализованном состоянии. Прямых измерений характерного времени релаксации τ_0 для пленок ZnO нет, однако существуют измерения времени термализации свободных экситонов в структурах с квантовыми ямами для пленок ZnSe; эти измерения показали время термализации 20–100 пс. Термализация происходит путем испускания одного LO-фонона [14, 15]. Мы используем величину $\tau_0 \approx 1/\nu_0 (20\text{--}100) \times 10^{-12}$ с для расчета параметра s по формуле (4).

Точки кроссовера частоты, при которых происходит смена механизма переноса заряда и где происходит переход от независимости проводимости от частоты к степенной зависимости проводимости $\log(\sigma)$ от частоты $\log(\omega)$. Как показали измерения, частота точки кроссовера зависит от концентрации примеси лития и расположена в диапазоне $\omega_A = 1400\text{--}4630 \text{ c}^{-1}$. Чтобы определить, какой механизм более подходит для наблюдаемой частотной зависимости $\log(\sigma)$ от $\log(\omega)$, экспериментальные зависимости аппроксимировались согласно выражению (4). Параметры s были вычислены из кривых на частотах выше точки кроссовера [16–18], точка кроссовера для исследуемых образцов находилась в частотном диапазоне от $\omega_A = 1.036 \times 10^6$ до $\omega_A = 177.24 \times 10^6 \text{ c}^{-1}$ (рис.1).

Изменения параметра s с температурой для всех исследованных пленок представлены на рис.2, из которого видно, что s уменьшается с ростом температуры. Учитывая полученный результат, можно сделать вывод, что модель QMT не подходит для моделирования проводимости на переменном токе в чистых и легированных литием пленках ZnO, так как модель QMT не описывает зависимость параметра s от температуры; в этой модели s является постоянной величиной. Уменьшение параметра s с ростом температуры подтверждает, что проводимость переменного тока в исследованных пленках подчиняется модели СВН.

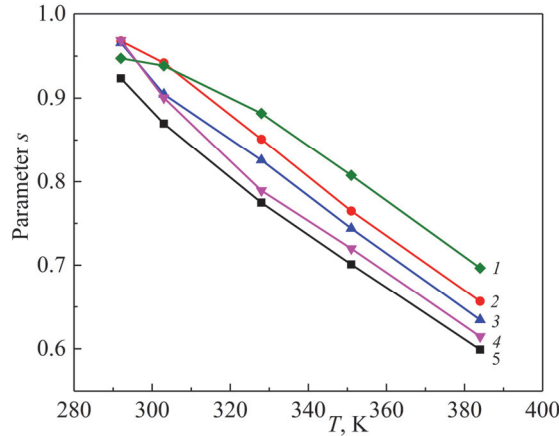


Рис.2. Температурная зависимость параметра s для пленок $\text{ZnO:Li:I} - \text{ZnO}$, 2 – Li 0.5, 3 – Li 0.6, 4 – Li 0.8, 5 – Li 1 ат%.

3.2. Температурная зависимость проводимости. Правило Мейера–Нельделя

В модели СВН зависимость проводимости σ от температуры T определяется термически активированными процессами перескока носителей заряда через барьер и описывается как

$$\sigma(T) = \sigma_0 \exp\left(-\frac{E_A}{kT}\right), \quad (5)$$

где константа σ_0 – предэкспоненциальный множитель, E_A – термическая энергия активации, не зависящая от температуры. Мейер и Нельдель [19, 20] обнаружили, что термическая энергия активации изменяется и ее можно соотнести с предэкспоненциальным множителем $\sigma_0(T)$ как

$$\sigma_0(T) = \sigma_{00} \exp\left(-\frac{W_{MN}}{kT_{MN}}\right), \quad (6)$$

где σ_{00} – константа, а W_{MN} – характеристическая температура Мейера–Нельделя. Этот тип зависимости наблюдался во многих термически активированных процессах [19, 20] и известен как уравнение Мейера–Нельделя. Сочетая уравнения (5) и (6), получим

$$\sigma_0 = \sigma_{00} \exp\left(-\frac{W_{MN}}{kT_{MN}}\right) \exp\left(-\frac{E_A}{kT}\right). \quad (7)$$

Применимость правила Мейера–Нельделя к измеренным данным по проводимости переменного тока была изучена путем определения термической энергии активации E_A . Для этой цели изменения проводимости на переменном токе на различных фиксированных частотах были построены на основе уравнения Аррениуса. На рис.3 представлены зависимости проводимости на фиксированных частотах от обратной температуры для пленки ZnO:Li (0.8 ат%); эта пленка имеет минимальную проводимость. Эти зависимости показывают, что перенос заряда происходит через процесс, который имеет единую энергию активации в указанном диапазоне температур. Полученные результаты свидетельствуют, что уравнение (5) можно использовать для представления температурной зависимости проводимости на переменном токе для исследованных образцов.

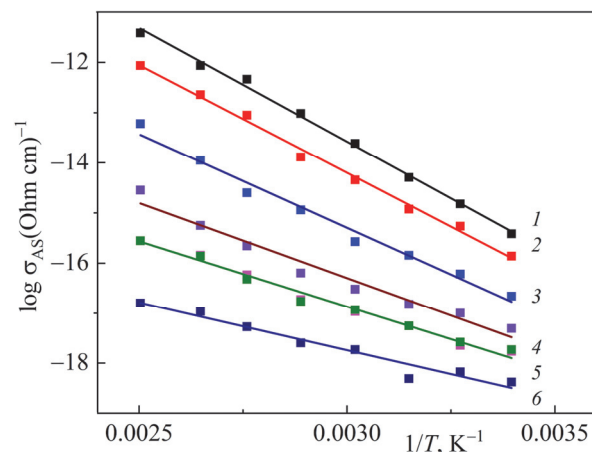


Рис.3. Зависимости проводимости пленки ZnO:Li (0.8 ат%) с минимальной проводимостью, измеренные на различных частотах переменного тока: 1 – 14×10^6 ; 2 – 10×10^6 ; 3 – 1×10^6 ; 4 – 500; 5 – 300; 6 – 80 Hz.

Методом аппроксимации экспериментальной зависимости проводимости от температуры с помощью уравнения (5) вычислялись значения энергии активации E_A и предэкспоненциального множителя σ_0 , полученные из наклона и пересечения кривых с осью абсцисс.

Зависимости полученных значений предэкспоненциального множителя σ_0 от характеристической температуры W_{MN} в модели Мейера–Нельделя показаны на рис.4. Линейная зависимость между предэкспоненциальным множителем и термической энергией активации переменного тока для образцов пленок ZnO, легированных Li с концентрациями 0.8, 0.5 и 0.6%, очевидна.

Множество работ посвящено исследованию различных моделей для объяснения правила Мейера–Нельделя. В частности, разработанная в работе [21] модель описывает температурные зависимости, подчиняющиеся правилу Мейера–

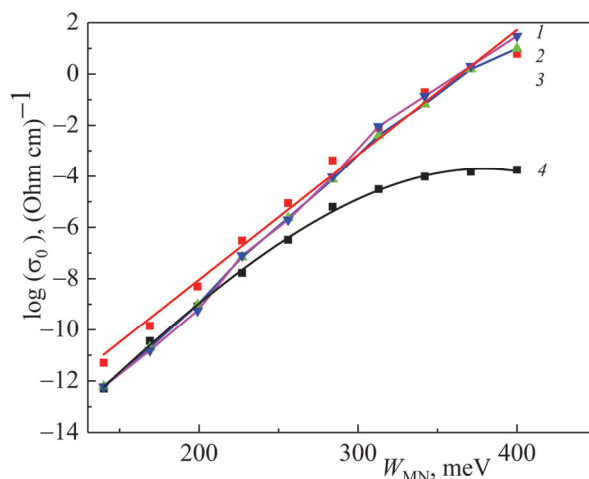


Рис.4. Зависимости предэкспоненциального множителя σ_0 от характеристической температуры W_{MN} в модели Мейера–Нельделя: 1 – ZnO; 2 – Li 0.5%; 3 – Li 0.6%; 4 – Li 0.8 ат%.

Нельделя. Анализ работы [22] показал, что аппроксимация экспериментальных результатов уравнением (5), то есть постоянной величиной σ_0 , невозможна. Поэтому аппроксимацию осуществляли согласно выражению (7), что предполагает переменную величину σ_0 . Величины изменения энергии активации демонстрируют, что аппроксимация компенсируется тем же изменением логарифма предэкспоненциального множителя из-за эффекта кинетической компенсации.

Согласно работам [23–25], происхождение правила Мейера–Нельделя в полукристаллических или аморфных полупроводниках обусловлено дальнедействующим электростатическим случайным потенциалом или экспоненциальным краем зонных состояний. Другая модель, предложенная в работе [25], предполагает, что электроны и поляроны туннелируют через межатомные барьеры и величина энергии туннелирования равна энергии активации. Здесь следует отметить, что основным недостатком вышеупомянутых моделей является то, что эти модели не могут дать универсального объяснения уравнения Мейера–Нельделя во всех полупроводниках. Таким образом, единое общее уравнение Мейера–Нельделя для всех материальных систем неприменимо. Уравнение Мейера–Нельделя описывает модель СВН, в которой перенос заряда в полупроводниках осуществляется за счет термически возбужденных электронов.

Выполнение правила Мейера–Нельделя для полученных экспериментальных данных по проводимости на переменном токе в легированных литием образцах можно объяснить экспоненциальным распределением энергетических уровней ловушек. Наличие дефектов, таких как вакансии кислорода и собственные дефекты с экспоненциальным распределением энергии, которые выступают в роли центров захвата носителей заряда, вероятно, является причиной наблюдаемой зависимости проводимости от частоты переменного тока в легированных образцах (рис.1).

Также известно, что распределение плотности состояний может быть несимметричным относительно центра зоны из-за размытия локализованных состояний на краях зоны и наличия дефектных состояний в щели. Поэтому основной вклад в экспериментально полученный предэкспоненциальный параметр вносят сдвиг уровня Ферми и температурно-зависимый сдвиг края зоны проводимости и валентной зоны [26]. Когда уровень Ферми E_F лежит ниже зоны проводимости ($\sim$ нескольких kT) или близко к минимуму эффективной плотности состояний, можно наблюдать линейное поведение предэкспоненциального параметра с изменением энергией активации. С другой стороны, если уровень Ферми лежит вблизи дна зоны проводимости или спектр плотности состояний находится вблизи дна зоны проводимости, т.е. большая часть доступных энергетических состояний для носителей заряда сосредоточена около дна зоны проводимости, линейная связь между предэкспоненциальным параметром и тепловой энергией активации уменьшается [27].

Согласно работе [28], другой причиной отклонения от линейности в зависимостях $\log(\sigma_0)$ от W_{MN} является уменьшение минимума плотности состояний. В легированных акцепторной примесью образцах возникновение потенциального барьера не происходит из-за большого количества дефектных состояний. В этом

случае уровень Ферми лежит в запрещенной зоне, где плотность состояний не сильно меняется, а перенос заряда регулируется транспортом на дне зоны проводимости. В легированных акцепторной примесью пленках (компенсированных полупроводниках) ожидаются низкие значения концентрации делокализованных электронов, из-за чего также ожидается улучшение микроструктуры пленки, что приводит к делокализации состояний на дне зоны проводимости и сдвигу уровня Ферми к краю зоны. Более низкая плотность доступных делокализованных носителей и низкое значение плотности дефектов могут вызвать значительное увеличение плотности оборванных атомных связей с дефектными центрами. В этом случае уровень Ферми лежит в области плато плотности состояний, т.е. плотность состояний электронов относительно постоянна, и это вызывает наблюдаемое отклонение от линейности в зависимостях $\log \sigma_0$ от W_{MN} .

4. Заключение

Механизм транспорта носителей заряда при протекании переменного тока в пленках ZnO, легированных акцепторной примесью Li, был изучен в температурном диапазоне от 300 до 450 К и на частотах от 80 до 14×10^6 Гц. Результаты исследования показывают, что перенос заряда в этих пленках осуществляется прыжковым механизмом за счет термически возбужденных электронов. Измеренные данные по проводимости на переменном токе были проанализированы с использованием моделей квантово-механического туннелирования (QMT) и коррелированных барьерных прыжков (СВН).

Экспериментально полученные температурные зависимости проводимости на переменном токе в легированных литием пленках ZnO продемонстрировали хорошее соответствие модели коррелированных барьерных прыжков (механизм СВН). Линейная зависимость между предэкспоненциальным множителем и термической активационной энергией в пленках с акцепторной примесью подтверждает применимость правила Мейера–Нельделя.

ЛИТЕРАТУРА

1. N.R. Aghamalyan, E.Kh. Goulanian, R.K. Hovsepyan, E.S. Vardanyan, A.F. Zerrouk. *Physica status solidi (a)*, **199**, 425 (2003).
2. N.R. Aghamalyan, H.L. Ayvazyan, T.A. Vartanyan, Y.A. Kafadaryan, H.G. Mnatsakanyan, R.K. Hovsepyan, A.R. Poghosyan. *J. Contemp. Phys.*, **58**, 274 (2023).
3. A.R. Poghosyan, R.K. Hovsepyan, N.R. Aghamalyan, Y.A. Kafadaryan, H.L. Ayvazyan, H.G. Mnatsakanyan, S.I. Petrosyan, *Proceedings SPIE*, **12229**, 122290A (2022).
4. A. Dalvi, N.P. Reddy, S.C. Agarwal. *Solid State Communications*, **152**, 612 (2012).
5. А.И. Якимов, А.В. Двуреченский, А.И. Никифоров, Г.Ю. Михалев. *Письма в ЖЭТФ*, **80**, 367 (2004).
6. R.K. Hovsepyan, N.R. Aghamalyan, S.I. Petrosyan. *J. Contemp. Phys.*, **44**, 29 (2009).
7. N.R. Aghamalyan, E.A. Kafadaryan, R.K. Hovsepyan. *Trends in Semiconductor Science*, Nova Science Publishers, New York, 81–109 (2005).
8. P. Surzhikov, A.V. Chernyavskii, S.A. Ghyngazov, T.S. Frangulyan. *Russian Physics*

- Journal, **45**, 1190 (2002).
9. **N.F. Mott, E.A. Davis.** Electronic Processes in Non-Crystalline Materials. Oxford, 1979.
 10. **A.K. Jonscher.** Thin Solid Films, **1**, 36, 1976.
 11. **R.A. Street, N.F. Mott,** Phys. Rev. Lett., **35**, 1293 (1975).
 12. **N.R. Aghamalyan, H.L. Ayvazyan, T.A. Vartanyan, Y.A. Kafadaryan, R.K. Hovsepyan, A.R. Poghosyan.** J. Contemp. Phys., **58**, 274 (2023).
 13. **S.R. Elliot.** Philos. Mag. B, **37**, 553 (1978).
 14. **P.W. Anderson.** Phys. Rev. Lett., **34**, 953 (1975).
 15. **M. Umlauff, J. Hoffmann, H. Kalt, W. Langbein.** Phys. Rev., **57**, 1391 (1998).
 16. **A.R. Sarkisian, N.R. Aghamalyan, M.N. Nersisyan, S.I. Petrosyan, A.R. Poghosyan, I.A. Ghambaryan, G.R. Badalyan, R.K. Hovsepyan, Y.A. Kafadaryan.** Applied Physics A, **130**, 207 (2024).
 17. **М.А. Ормонт, И.П. Звягин.** Физика и техника полупроводников, **49**, 449 (2015).
 18. **М.А. Ормонт.** Физика и техника полупроводников, **49**, 1314 (2015).
 19. **W. Meyer, H. Neldel.** Z. Techn. Phys B, **18**, 588 (1937).
 20. **W. Bogusz, D.E. Kony, F. Krok.** Materials Science and Engineering B, **15**, 169 (1992).
 21. **P.H. Fang.** Physics Letters A, **30**, 217 (1969).
 22. **N. Koga, J. Sestak.** Thermochimica Acta, **182**, 201 (1991).
 23. **G.G. Roberts.** J. Physics C: Solid State Physics, **4**, 167 (1971).
 24. **M.H. Cohen, E.N. Economou, C.M. Soukoulis.** J. Non-Crystalline Solids, **66**, 285 (1984).
 25. **G. Kemeny, G.B. Rosenberg.** J. Chemical Physics, **53**, 3549 (1970).
 26. **S.R. Elliott.** Physics of Amorphous Materials. London and New York, Longman Scientific & Technical, 1990.
 27. **J. Stuke.** J. Non-Crystalline Solids, **97–98**, 1 (1987).
 28. **M. Kikuchi.** J. Applied Physics, **64**, 4997 (1988).

TEMPERATURE DEPENDENCE OF AC CONDUCTIVITY IN LITHIUM-DOPED ZINC OXIDE FILMS

R.K. HOVSEPYAN, N.R. AGHAMALYAN, A.A. ARAKELYAN, T.A. VARTANYAN,
Y.A. KAFADARYAN, V.G. LAZARYAN, H.G. MNATSAKANYAN,
S.I. PETROSYAN, A.R. POGHOSYAN

The mechanisms of charge carrier transport for alternating current in zinc oxide (ZnO) films with Li impurity, which creates acceptor and donor centers, are determined. A comparative study of the applicability of two models, quantum mechanical tunneling (QMT) and correlated barrier hopping (CBH), for interpreting experimental data on alternating current electrical conductivity is carried out. Based on the analysis of the temperature dependence of conductivity at different frequencies, a choice was made in favor of the CBH model. The dependence of the thermal activation energy of conductivity on the concentration of the doping impurity Li in ZnO films is studied. It is established that the Meyer–Neldel rule, which relates the pre-exponential factor in the temperature dependence of alternating current conductivity to the activation energy, is fulfilled for compensated semiconductors in which donor and acceptor centers exist simultaneously.

ИССЛЕДОВАНИЯ СТРУКТУРЫ И МОРФОЛОГИИ ПЛЕНОК CsPbBr₃, ОСАЖДЕННЫХ МЕТОДОМ ВАКУУМНОГО ТЕРМИЧЕСКОГО ИСПАРЕНИЯ

Л.А. МАТЕВОСЯН¹, С.А. ПЕТРОСЯН², В.П. МКРТЧЯН²,
А.П. АЙВАЗЯН², В.С. АРУТЮНЯН^{2*}

¹Институт радиофизики и электроники НАН Армении, Аштарак, Армения

²Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: vharut@ysu.am

(Поступила в редакцию 16 апреля 2025 г.)

Проведены рентгенодифракционные и оптико-микроскопические исследования структурных и морфологических свойств поликристаллических перовскитных тонких пленок CsPbBr₃, осажденных методом вакуумного термического испарения. Изучено влияние режима термического отжига осажденных пленок на их фазовый состав, микроструктуру, морфологию и степень кристаллографической текстурированности. Проанализирован характер корреляции между средними размерами зерен и кристаллитов (субзерен) и степенью текстурированности кристаллитов в пленках при изменении режима отжига.

1. Введение

В последние годы растет интерес к синтезу и исследованию структурных, оптических и фотоэлектрических свойств полупроводниковых перовскитных пленок CsPbBr₃ для их применения в солнечных элементах [1], светодиодах [2], фотодетекторах [3] и некоторых других устройствах [4]. Теоретические [5] и некоторые предварительные экспериментальные результаты [6] предсказывают перспективность использования перовскита CsPbBr₃ для разработки высокоэффективных tandemных солнечных элементов CsPbBr₃/c-Si с эффективностью преобразования энергии $\approx 43\%$, которая намного превышает эффективность преобразования $\approx 28\%$ традиционных силиконовых кремниевых элементов [7].

В технологии изготовления солнечных элементов осажденные пленки CsPbBr₃ подвергаются процессу термического отжига, который является эффективным технологическим методом улучшения структурных характеристик: повышения степени кристалличности, укрупнения зерен и уменьшения плотности границ зерен и дефектов-ловушек в пленке [1, 8]. Как следствие, это приводит к улучшению фотоэлектрических свойств и эффективности преобразования энергии солнечных элементов [1, 8]. Структурные и морфологические свойства поликристаллических перовскитных тонких пленок CsPbBr₃, осажденных методом вакуумного термического испарения, и влияние термического отжига на эти свойства исследованы в ряде работ [1–6, 8–11]. Из анализа результатов этих работ следует, что повышение температуры и времени термического отжига тонких

пленок CsPbBr_3 (толщиной $\sim 300\text{--}600$ нм) соответственно в пределах $\sim 250\text{--}350^\circ\text{C}$ и $\sim 15\text{--}60$ мин приводит к повышению степени кристалличности, сильному увеличению среднего размера зерен и формированию кристаллографической текстуры в этих пленках. Однако, насколько известно авторам данной работы, в литературе (в том числе в публикациях [1–6, 8, 10, 11]) нет данных о характере возможной корреляции между вышеотмеченными структурными и морфологическими характеристиками (степенью кристалличности, средним размером зерен и формированием кристаллографической текстуры), которая возникает как результат процесса термического отжига. Анализ корреляции между структурными и морфологическими характеристиками пленок CsPbBr_3 , подвергнутых термическому отжигу, может способствовать более глубокому пониманию взаимосвязи между термически активированными физическими процессами (релаксация внутренних механических напряжений, аннигиляция и перераспределение точечных дефектов и дислокаций, рекристаллизация) и разработке более управляемых технологических подходов для синтеза пленок с высокой степенью кристалличности и желаемой морфологией.

Целью данной работы является изучение влияния режима термического отжига осажденных пленок CsPbBr_3 на их фазовый состав, микроструктуру, морфологию и степень текстурированности. Также проанализирован характер корреляции между средними размерами зерен и кристаллитов (субзерен) и степенью текстурированности кристаллитов в пленках при изменении режима отжига.

2. Эксперимент

2.1. Синтез и постсинтезный термический отжиг пленок CsPbBr_3

Пленки CsPbBr_3 осаждались на подложки из боросиликатного стекла путем термического совместного испарения порошковых прекурсоров CsBr (Sigma-Aldrich, $\geq 98\%$) и PbBr_2 (Sigma-Aldrich, 99,999%) в вакуумной камере под давлением 10^{-5} Торр. Перед процедурой осаждения пленок стеклянные подложки с площадью поверхности $8 \times 8 \text{ мм}^2$ и толщиной 1 мм подвергались очистке с использованием ацетона, изопропилового спирта и деионизированной воды. В процедуре термического совместного испарения вышеуказанных прекурсоров CsBr и PbBr_2 эквивалентные количества PbBr_2 и CsBr загружались в общий резистивно нагреваемый кварцевый тигель (подход испарения из одного источника). Пленки CsPbBr_3 осаждались при комнатной температуре со скоростью ≈ 2 нм/сек до толщины ≈ 600 нм, которая контролировалась временем осаждения. Толщины пленок измерялись из оптических спектров отражения с помощью подхода, примененного в нашей работе [12].

Три идентичных образца осажденных пленок CsPbBr_3 были подвергнуты термическому отжигу в воздушной атмосфере в муфельной печи при температуре 300°C в течение 15, 30 и 60 мин. Выбор температуры 300°C в режимах отжига обусловлен тем, что согласно результатам нашей предыдущей работы [9], в пленках CsPbBr_3 зерна достигают наибольших размеров в результате отжига при температурах $\sim 300^\circ\text{C}$.

2.2. Методы исследования образцов

Фазовый состав, структура и формирование текстуры в осажденных пленках исследованы методом рентгеновской дифракции. Рентгенодифракционные спектры зарегистрированы на дифрактометре МД-10 с источником рентгеновского излучения $\text{CuK}\alpha$ в диапазоне 2θ углов $15^\circ < 2\theta < 52^\circ$.

Морфологические характеристики осажденных пленок исследованы с помощью оптической микроскопии с использованием поляризационного микроскопа Meiji Techno MT9930L. Оптико-микроскопические изображения (микрофотографии) образцов зарегистрированы с увеличением $400\times$.

3. Результаты и обсуждение

3.1. Рентгенодифракционные измерения

На рис.1а представлены рентгенодифракционные спектры, полученные от неотожженной пленки и пленок, подвергнутых термическому отжигу при температуре 300°C в течение 15, 30 и 60 мин. Зарегистрированные рентгенодифракционные спектры показывают, что все эти пленки содержат только фазу CsPbBr_3 с орторомбической кристаллической решеткой согласно файлу PDF № 18–0364 в интернациональной базе данных JCPDS рентгеновских порошковых дифрактограмм. В этих спектрах наиболее интенсивные дифракционные пики, зарегистрированные примерно с угловыми позициями 21.7 , 30.6 , 34.2 , 37.6 , 43.9 и 49.3° , сформированы соответственно отражающими кристаллографическими атомными плоскостями (110), (200), (210), (211), (202) и (301). Согласно данным в вышеотмеченном файле PDF № 18–0364, самым интенсивным дифракционным пиком от не текстурированного порошка CsPbBr_3 является пик (110). Однако зарегистрированные спектры (рис.1а) показывают, что самым интенсивным дифракционным пиком во всех этих спектрах является пик (200). С учетом этого и из сравнительного анализа спектров (рис.1а) можно сделать следующие предварительные выводы. Как в процессе вакуумного термического осаждения, так и в результате последующего отжига в пленках CsPbBr_3 формируется аксиальная кристаллографическая текстура $\langle 100 \rangle$. Ось этой аксиальной текстуры перпендикулярна к кристаллографическим атомными плоскостям (200) кристаллитов в пленке, которые, в свою очередь, ориентированы параллельно поверхности пленки. Отсюда следует, что нормаль к поверхности пленки совпадает с осью этой аксиальной текстуры и является направлением преимущественной ориентации кристаллографических направлений $\langle 100 \rangle$ кристаллитов в пленке. С увеличением времени отжига от 15 до 60 мин в рентгенодифракционном спектре отоженной пленки интенсивность дифракционного пика (200) возрастает, а интенсивность остальных дифракционных пиков уменьшается. Это обусловлено возрастанием степени текстурированности кристаллитов в пленке с увеличением времени отжига. В пленке CsPbBr_3 , подвергнутой наиболее длительному отжигу (60 мин), текстурирована доминирующая часть кристаллитов, т.е. сформирована сильная аксиальная текстура $\langle 100 \rangle$ (рис.1а).

Для приближенной количественной оценки степени текстурированности

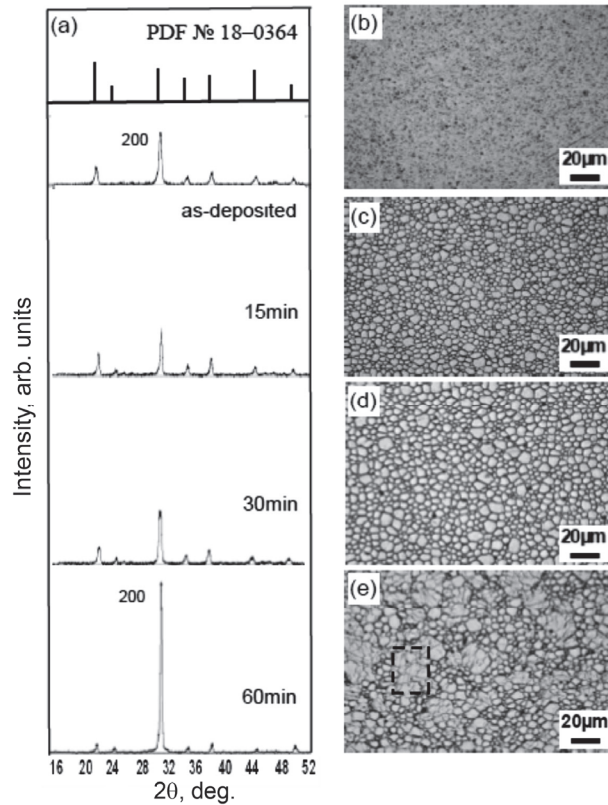


Рис.1. Рентгенодифракционные спектры неотожженной пленки и пленок, подвергнутых термическому отжигу при температуре 300°C в течение 15, 30 и 60 мин, и спектр согласно файлу PDF № 18–0364. Микрофотографии, полученные от (b) неотожженной пленки и пленок, отожженных при температуре 300°C в течение (c) 15, (d) 30 и (e) 60 мин.

кристаллитов в неотожженной и отожженных пленках CsPbBr₃ введем коэффициент текстуры кристаллитов

$$C_t = \frac{I_2}{\sum_1^n I_n}, \quad (1)$$

где I_2 – (в зарегистрированном рентгенодифракционном спектре) интегральная интенсивность дифракционного пика (200), выражающего текстурированность кристаллитов в данной пленке; I_n – интегральная интенсивность n -ого дифракционного пика; в знаменателе выражения (1) суммирование проводится по интегральным интенсивностям всех шести дифракционных пиков (110), (200), (210), (211), (202) и (301) в спектре данной пленки (рис.1a). Интегральная интенсивность n -ого дифракционного пика спектра в первом приближении пропорциональна числу кристаллитов в пленке, которые формируют этот пик [13]. С учетом этого, коэффициент текстуры кристаллитов C_t , заданный в (1), приближенно выражает долю кристаллитов в пленке, которые формируют текстуру. С использованием значений интегральных интенсивностей I_n дифракционных пиков в зарегистрированных спектрах (рис.1a) коэффициент C_t для пленок вычислен из выражения (1), и полученные результаты представлены в табл.1. Полученные данные показывают, что коэффициенты текстуры $C_t = 0.40$ и 0.47 пленок,

Табл.1. Средний размер зерен, средний размер кристаллитов L и коэффициент текстуры кристаллитов C_t в неотожженной и отожженных при температуре 300°C пленках CsPbBr₃

Пленка CsPbBr ₃	Средний размер зерен, мкм	Средний размер кристаллитов L , нм	Коэффициент текстуры кристаллитов C_t
Неотожженная	<0.2	18.2	0.55
Отожиг (15 мин)	5	24.1	0.40
Отожиг (30 мин)	7	22.9	0.47
Отожиг (60 мин)	15	44.6	0.76

отожженных соответственно в течение 15 и 30 мин, меньше, чем коэффициент текстуры $C_t = 0.55$ неотожженной пленки. Для отожженных пленок увеличение времени отжига от 15 до 60 мин приводит к монотонному возрастанию коэффициента C_t от 0.40 до 0.76.

В целях сравнительного анализа выражение (1) может быть также использовано для оценки доли кристаллитов, которые формируют дифракционный пик (200), в не текстурированной пленке или в не текстурированном порошке CsPbBr₃ (т.е. в структурах, у которых функция распределения кристаллографической ориентации кристаллитов изотропна). В этой оценке величина C_t в выражении (1) будет носить смысл коэффициента ориентации кристаллитов, формирующих дифракционный пик (200) в рентгенодифракционном спектре, зарегистрированном от пленки/порошка без текстуры. В качестве такого рентгенодифракционного спектра может быть использован спектр в вышеотмеченном файле PDF № 18–0364 для порошка CsPbBr₃ в интернациональной базе данных JCPDS рентгеновских порошковых дифрактограмм. С использованием значений интегральных интенсивностей I_h дифракционных пиков, приведенных в файле PDF № 18–0364, для не текстурированного порошка CsPbBr₃ из выражения (1) для коэффициента C_t получена оценка ≈ 0.12 . Как и следовало ожидать, значение $C_t \approx 0.12$ значительно меньше значений коэффициентов текстуры кристаллитов C_t , приведенных в табл.1 для текстурированных неотожженной и отожженных пленок CsPbBr₃.

Средний размер кристаллитов L в пленках может быть определен из формулы Шеррера [13]:

$$L = \frac{K \lambda}{B \cos \theta}, \quad (2)$$

где B – это угловая ширина дифракционного пика (в радианах) на полувысоте максимума интенсивности, λ – длина рентгеновского излучения, θ – соответствующий брэгговский угол дифракционного пика, а K – безразмерная константа, примерно равная единице. Для определения среднего размера кристаллитов L в пленках из выражения (2) мы использовали дифракционный пик (200), который во всех спектрах (рис.1а) наиболее интенсивный. В вычислениях по формуле Шеррера использованы следующие данные: $\lambda = 0.15$ нм (длина волны рентгеновского излучения CuK α), $\theta \approx 15.36^\circ$, $B = 0.49, 0.37, 0.39$ и 0.20° , соответственно, для неотожженной пленки и пленок, отожженных в течение 15, 30 и 60 мин, а $K = 1$. Вычисленные значения для среднего размера кристаллитов L приведены в

табл.1. Значения параметра L , приведенные в табл.1, показывают, что средний размер кристаллитов 18.2 нм неотожженной пленки возрастает в результате термического отжига и достигает максимального значения 44.6 нм для наибольшего времени отжига 60 мин. Из этих данных следует, что термический отжиг значительно повышает степень кристалличности пленок CsPbBr_3 . Необходимо отметить, что в использовании выражения (2) вклад микродеформаций в уширение дифракционного пика (200) предполагался пренебрежимо малым. Это предположение с хорошим приближением верно по крайней мере для отожженных образцов, так как процесс термического отжига, как правило, приводит к эффективной релаксации микродеформаций.

3.2. Оптические микрофотографии пленок

На рис.1b–e представлены микрофотографии, полученные от неотожженной (рис.1b) и отожженных (рис.1c–e) пленок CsPbBr_3 . Микрофотография, полученная от неотожженной пленки (рис.1b), не выявила ее зернистую (поликристаллическую) структуру. Это можно объяснить образованием зерен субмикронных размеров – меньших, чем пространственное разрешение оптической микроскопии ~ 0.2 мкм.

Микрофотография, полученная от пленки, отожженной в течение 15 мин (рис.1c), показывает формирование зернистой плотноупакованной структуры со средним размером зерен 5 мкм.

Микрофотография, полученная от пленки, отожженной в течение 30 мин (рис.1d), показывает, что эта пленка обладает зернистой структурой, схожей со структурой пленки, отожженной в течение 15 мин (рис.1c). Однако в пленке, отожженной в течение 30 мин, средний размер зерен больше и составляет 7 мкм.

Как видно из микрофотографии, полученной от пленки, отожженной в течение 60 мин (рис.1e), она обладает более сложной микроструктурой, чем пленки, отожженные в течение 15 и 30 мин (рис.1c и рис.1d). Основное видимое отличие в микроструктурах отожженных пленок заключается в следующем. Границы зерен в пленках, отожженных в течение 15 и 30 мин (рис.1c и рис.1d), видимы с одинаковым четким контрастом, в то время как в пленке, отожженной в течение 60 мин (рис.1e), можно различить границы зерен двух типов. Границы зерен первого типа видимы с четким контрастом, в то время как границы зерен второго типа имеют слабо выраженный контраст. В качестве примера, на микрофотографии (рис.1e) выделена прямоугольная область пленки, в которой границы зерен видимы со слабо выраженным контрастом. С более слабым контрастом на микрофотографии проявляются границы тех смежных зерен, которые были подвержены более сильному (т.е. более плотному) спеканию в результате коалесценции. Такое сильное спекание смежных зерен в пленке, отожженной в течение 60 мин, можно интерпретировать как процесс эффективного укрупнения зерен в результате их термически активированной коалесценции. Укрупнение зерен в термически отожженных тонких пленках CsPbBr_3 по механизму коалесценции зерен было выявлено, в частности, на электронно-микроскопических изображениях, полученных в работе [3]. Как и оптическая микрофотография на рис.1e, эти электронно-микроскопические изображения показывают формирование двух типов

границ зерен: высококонтрастных границ зерен между зернами, сформировавшимися в результате коалесценции малых зерен (субзерен), и слабоконтрастных границ зерен между субзернами.

На микрофотографиях неотожженной (рис.1b) и отожженных (рис.1с–е) пленок малые темные пятна с размерами в интервале $\sim 1\text{--}3\text{ мкм}$ – это сквозные поры. Образование таких сквозных пор наиболее вероятно в тонких пленках с толщинами порядка сотен нанометров, в которых зерна имеют столбчатую форму [1, 2]. В пленке с такой структурой размер зерен в направлении, перпендикулярном к поверхности пленки, совпадают с толщиной самой пленки. На рис.2 приведены микрофотографии пленки CsPbBr_3 (отжиг в течение 60 мин), которые получены от определенной области этой пленки по схемам отражения и прохождения падающего светового излучения. На рис.2а приведены микрофотографии пленки CsPbBr_3 (отжиг в течение 60 мин), которые получены от определенной области этой пленки по схемам отражения и прохождения падающего светового излучения. На микрофотографии, полученной от этой области пленки по схеме отражения падающего светового излучения (рис.2а), сквозные поры наблюдаются в виде малых темных пятен, некоторые из которых указаны стрелками. На рис.2b представлена микрофотография, полученная от той же области пленки по схеме прохождения светового излучения, которое падало на пленку CsPbBr_3 со стороны стеклянной подложки и сформировало оптическое изображение обратной поверхности пленки (т.е. поверхности пленки, смежной с поверхностью осаждения подложки). Микрофотография на рис.2b выявляет те же самые сквозные поры, которые наблюдаются на микрофотографии,

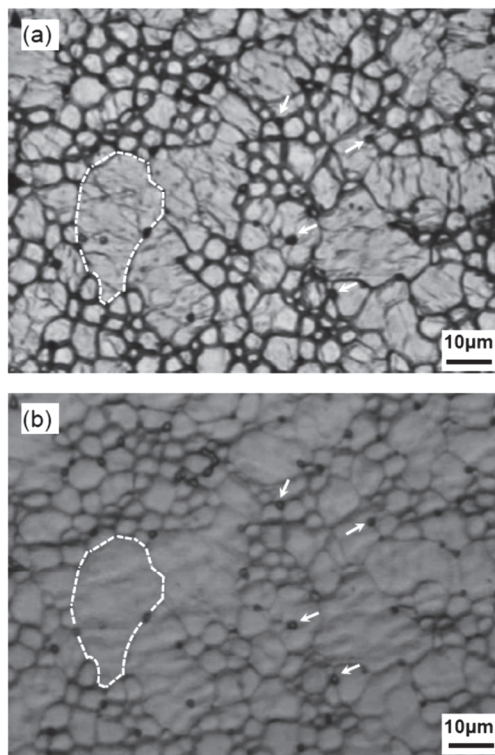


Рис.2. Оптические микрофотографии пленки CsPbBr_3 (отжиг 60 мин), полученные по схемам (а) отражения и (b) прохождения падающего светового излучения. Стрелки указывают на одни и те же сквозные поры, наблюдаемые на микрофотографиях по схемам (а) отражения и (b) прохождения.

полученной по схеме отражения падающего светового излучения (рис.2а). Однако по сравнению с темным контрастом изображений сквозных пор на микрофотографии по схеме отражения (рис.2а) на микрофотографии по схеме прохождения (рис.2б) эти поры наблюдаются в более светлом контрасте. Это обусловлено более слабым поглощением светового излучения, формирующего изображение сквозной поры по схеме прохождения. Сравнение микрофотографий на рис.2 также показывает, что конфигурация границ зерен на свободной поверхности пленки CsPbBr_3 (рис.2а) практически совпадает с конфигурацией границ зерен на обратной поверхности пленки (рис.2б). Причем в этих конфигурациях совпадают как границы зерен, видимые со слабым контрастом, так и границы зерен, видимые с более сильным контрастом. Из вышеприведенных результатов следует, что в этой пленке CsPbBr_3 сформирована столбчатая зернистая структура, в которой границы зерен ориентированы перпендикулярно к поверхности пленки. Поэтому внешние поверхности столбчатых зерен пленки имеют одинаковые конфигурации на обеих ее поверхностях. В качестве примера, на микрофотографиях (рис.2а,б) замкнутыми штриховыми кривыми выделены обе внешние поверхности одного и того же столбчатого зерна, сформировавшегося в результате коалесценции некоторых зерен.

Оптические микрофотографии, полученные от неотожженной и отожженных (отжиг в течение 15 и 30 мин) пленок CsPbBr_3 по схемам отражения и прохождения падающего светового излучения показывают, что эти пленки также обладают столбчатой зернистой структурой.

Измеренные из микрофотографий (рис.1б–е) средние размеры зерен пленок приведены в табл.1. Эти данные показывают значительное укрупнение размеров зерен, обусловленное термическим отжигом, и монотонное возрастание среднего размера зерен пленки с увеличением длительности процесса отжига.

3.3. Корреляция между средними размерами зерен и кристаллитов и степенью текстурированности кристаллитов в пленках

Из сравнения данных в табл.1, полученных для размеров зерен и кристаллитов в исследуемых пленках CsPbBr_3 , следует, что в контексте данного исследования понятия «кристаллит» и «зерно» пленки физически не идентичны из-за большой разницы размеров. Более того, полученные результаты указывают на то, что кристаллиты являются составными частями индивидуальных зерен пленки. Как правило, зерна синтезированных поликристаллических порошков состоят из кристаллитов, у которых произвольная ориентация. Однако при осаждении (на подложках) тонких поликристаллических пленок и, в частности, пленок CsPbBr_3 может наблюдаться формирование кристаллографической текстуры и при комнатной температуре (т.е. без применения термического отжига) [14, 15]. Формирование такой текстуры обуславливается процессами роста пленки и известно как ростовая текстура [16]. В этом контексте, формирование аксиальной текстуры $\langle 100 \rangle$ в неотожженной пленке (табл.1) может быть либо предопределено ориентационным ростом кристаллических зародышей CsPbBr_3 на поверхности подложки (в начальной стадии вакуумного термического осаждения), либо обусловлено ориентационным ростом кристаллитов в зернах пленки (в последующей стадии осаждения) [17]. Оба вышеотмеченных механизма формирования

текстуры обусловлены анизотропией в поверхностной энергии кристаллографических поверхностей кристаллитов CsPbBr_3 [18–20]. Движущей силой формирования текстуры в пленках CsPbBr_3 (так и в тонких пленках других материалов с анизотропией кристаллографических поверхностей кристаллитов) является минимизация поверхностной энергии пленки и энергии границы раздела пленка–подложка в процессе роста пленки [17]. Поэтому формирование аксиальной текстуры $\langle 100 \rangle$ в неотожженной и отожженных пленках CsPbBr_3 (табл.1) обусловлено наименьшей поверхностной энергией кристаллографических поверхностей (100) (по сравнению с поверхностной энергией других возможных кристаллографических поверхностей) кристаллитов CsPbBr_3 [18–20]. Одним из важных факторов, которыми обусловлено сильное изменение структурных и морфологических параметров в пленках CsPbBr_3 в результате термического отжига (табл.1), является большое различие коэффициентов термического расширения CsPbBr_3 и боросиликатной стеклянной подложки, равных соответственно 1.2×10^{-4} [21] и $3.3 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ [22]. Такое существенное различие коэффициентов термического расширения пленки CsPbBr_3 и боросиликатной стеклянной подложки при достаточно высоких температурах отжига приводит к возникновению на границе раздела пленка–подложка и, как следствие, в объеме самой пленки больших термических деформаций [17]. В процессе рекристаллизации пленок эти термические деформации вносят существенный вклад в значительное возрастание средних размеров зерен и кристаллитов и степени текстурированности кристаллитов в отожженных пленках CsPbBr_3 , по сравнению с величинами этих параметров в неотожженной пленке (табл.1).

Данные, приведенные в табл.1, показывают определенную корреляцию между структурными и морфологическими характеристиками пленок CsPbBr_3 при изменении режима отжига. С возрастанием времени отжига пленок от 15 до 60 мин средний размер зерен и кристаллитов (субзерен) увеличивается и достигает максимальных величин, равных соответственно 15 мкм и 44.6 нм. Изменение степени текстурированности кристаллитов в пленках (C_t) в зависимости от времени отжига проявляет более сложный характер. Для времени отжига 15 мин коэффициент текстуры $C_t = 0.4$ несколько уменьшается по сравнению с величиной этого параметра для неотожженной пленки $C_t = 0.55$. С возрастанием времени отжига от 15 до 60 мин коэффициент текстуры монотонно возрастает и достигает максимального значения $C_t = 0.76$ для наибольшего времени отжига пленки 60 мин. Таким образом, данные табл.1 показывают, что для всех трех исследованных параметров (средний размер зерен, средний размер кристаллитов и коэффициент текстуры кристаллитов) в целом прослеживается тенденция возрастания при увеличении длительности отжига пленки.

Для пленки CsPbBr_3 , отожженной в течении 60 мин, вышеотмеченные морфологические и структурные параметры достигли наибольших величин (табл.1), благодаря чему степень кристалличности в этой пленке наибольшая, а плотность границ зерен наименьшая. Это может обеспечить существенное улучшение оптических и фотоэлектрических свойств отожженной в течении 60 мин пленки CsPbBr_3 , по сравнению с неотожженной пленкой [1, 8].

4. Заключение

Неотожженная пленка и пленки, подвергнутые термическому отжигу при температуре 300°C в течение 15, 30 и 60 мин, содержат только фазу CsPbBr₃ с орторомбической кристаллической решеткой. Все исследованные пленки обладают столбчатой зернистой структурой.

При использованных режимах термического отжига пленок CsPbBr₃ имело место сильное укрупнение размера зерен и кристаллитов (субзерен), а также резкое уменьшение плотности сквозных пор. Это обуславливает значительное повышение степени кристалличности пленок, благодаря процессу термического отжига.

Как в неотожженной пленке, так и в пленках, подвергнутых термическому отжигу, формируется кристаллографическая аксиальная текстура <100> кристаллитов (субзерен), ось которой перпендикулярна к поверхности пленки. Формирование текстуры <100> в пленках CsPbBr₃ обусловлено наименьшей поверхностной энергией кристаллографических поверхностей (100) (по сравнению с поверхностной энергией других возможных кристаллографических поверхностей) кристаллитов CsPbBr₃.

Для всех исследованных морфологических и структурных параметров пленок CsPbBr₃ (средний размер зерен, средний размер кристаллитов и коэффициент текстуры кристаллитов) в целом прослеживается тенденция возрастания при увеличении длительности отжига пленки.

При отжиге пленки CsPbBr₃ в течении 60 мин исследованные морфологические и структурные параметры достигают наибольших величин (табл.1). Благодаря этому, степень кристалличности в этой пленке наибольшая, а плотность границ зерен наименьшая, по сравнению с соответствующими характеристиками остальных исследованных пленок CsPbBr₃.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. Lei, F. Gao, H. Wang, J. Li, J. Jiang, X. Wu, R. Gao, Z. Yang, S. Liu. Sol. Energy Mater. Sol. Cells, **187**, 1 (2018).
2. T. Bai, S. Wang, L. Bai, K. Zhang, C. Chu, L. Yi. Nanoscale Res. Lett., **17**, 69 (2022).
3. P. Cheng, Z. Liu, R. Kang, J. Zhou, X. Wang, J. Zhao, Z. Zuo. ACS Omega, **8**, 26351 (2023).
4. J.H. Park, Y.S. Yoon, J.Y. Kim. EcoMat., **5**, 12407 (2023).
5. P. Yang, P. Liu, S. Ullah, J. Wang, L. Liu, S.E. Yang, H. Guo, L. Wang, Y. Chen. Solar Energy, **216**, 145 (2021).
6. W. Yan, L. Mao, P. Zhao, A. Mertens, S. Dottermusch, H. Hu, Z. Jin, B.S. Richards. Optics Express, **28**, 15706 (2020).
7. J. Pastuszak, P. Wegierek. Materials, **15**, 5542 (2022).
8. T. Xiang, Y. Zhang, H. Wu, J. Li, L. Yang, K. Wang, J. Xia, Z. Deng, J. Xiao, W. Li, Z. Ku, F. Huang, J. Zhong, Y. Peng, Y.B. Cheng. Sol. Ener. Mater. Sol. Cells, **206**, 110317 (2020).
9. V. Harutyunyan, L. Matevosyan, V. Mkrtchyan, G. Pluzyan, S. Petrosyan, A.Tokmajyan. Conf. Microwave & THz Technol., Wireless Communic. Optoelectr., September 20–21, 2024, Yerevan, IRPhE2024EL6.

10. **Y. Duan, G. Zhao, X. Liu, J. Ma, S. Chen, Y. Song, X. Pi, X. Yu, D. Yang, Y. Zhang, F. Guo.** Appl. Surf. Sci., **562**, 150153 (2021).
11. **Y. Zhang, F. Sheng, H. Zhang, X. Ding, L. Zhi, Y. Li, X. Cao, X. Cui, J. Wei.** ACS Appl. Energy Mater., **6**, 12190 (2023).
12. **Z. Gevorkian, L. Matevosyan, K. Avjyan, V. Harutyunyan, E. Aleksanyan, Kh. Manukyan.** Mater. Res. Express, **7**, 016408 (2020).
13. **B.E. Warren.** X-Ray Diffraction. Dover Publication, New York, 1990.
14. **K.C. Yeh, C.H. Chan.** Sci. Reports, **14**, 3351 (2024).
15. **G. Tong, T. Chen, H. Li, L. Qiu, Z. Liu, Y. Dang, W. Song, L.K. Ono, Y. Jiang, Y. Qi.** Nano Energy, **65**, 104015 (2019).
16. **V. Yu. Novikov.** Acta Mater., **47**, 1935 (1999).
17. **C.V. Thompson, R. Carel.** Mater. Sci. Engin. B, **32**, 211 (1995).
18. **J. Liu, K. Song, Y. Shin, X. Liu, J. Chen, K.X. Yao, J. Pan, C. Yang, J. Yin, L.J. Xu, H. Yang, A.M. El-Zohry, B. Xin, S. Mitra, M.N. Hedhili, I.S. Roqan, O.F. Mohammed, Y. Han, O.M. Bakr.** Chem. Mater., **31**, 6642 (2019).
19. **Y. Yang, C. Hou, T.X. Liang.** Phys. Chem. Chem. Phys., **23**, 7145 (2021).
20. **Z.X. Lin, F. Gao, H. Chen, J.Y. Lei, Z. Yang, J.W. Cai, P.J. Wang, M.O. Wang.** RSC Adv., **10**, 4211 (2020).
21. **C.C. Stoumpos, C.D. Malliakas, J.A. Peters, Z. Liu, M. Sebastian, J. Im, T.C. Chasapis, A.C. Wibowo, D.Y. Chung, A.J. Freeman, B.W. Wessels, M.G. Kanatzidis.** Cryst. Growth Des., **13**, 2722 (2013).
22. **M.M.R.A. Lima, R.C.C. Monteiro, M.P.F. Graca, M.G. Ferreira da Silva.** J. Alloys Comp., **538**, 66 (2012).

X-RAY DIFFRACTION AND OPTICAL MICROSCOPY INVESTIGATIONS OF THE STRUCTURE AND MORPHOLOGY OF CsPbBr₃ FILMS DEPOSITED BY VACUUM THERMAL EVAPORATION

L.A. MATEVOSYAN, S.A. PETROSYAN, V.P. MKRTCHYAN,
A.P. AYVAZIAN, V.S. HARUTYUNYAN

In this work, X-ray diffraction and optical microscopy investigations of the structural and morphological properties of polycrystalline perovskite CsPbBr₃ thin films, deposited by the vacuum thermal evaporation method, were carried out. The influence of the thermal annealing regime of deposited films on their phase composition, microstructure, morphology, and degree of crystallographic texturing was studied. The character of the correlation between the average sizes of grains and crystallites (subgrains) and the degree of texturing of crystallites in films with variation of the annealing regime was analyzed.

ТОНКИЕ ПЛЕНКИ CdS, СФОРМИРОВАННЫЕ НА ПОЛИИМИДНОЙ ПОДЛОЖКЕ МЕТОДОМ ХИМИЧЕСКОГО ОСАЖДЕНИЯ

С.Г. ПЕТРОСЯН¹, А.С. МУСАЕЛЯН^{1*}, А.С. ТОКМАДЖЯН¹,
В.Ф. ГРЕМЕНОК², А.В. СТАНЧИК², К.П. БУСКИС², О.В. КОРОЛИК³

¹Институт радиофизики и электроники НАН Армении, Аштарак, Армения

²Государственное научно-производственное объединение «Научно-практический
центр НАН Беларуси по материаловедению», Минск, Беларусь

³Белорусский государственный университет, Минск, Беларусь

*e-mail: ashmusa@mail.ru

(Поступила в редакцию 16 апреля 2025 г.)

Тонкие пленки поликристаллического сульфида кадмия (CdS) были нанесены на полиимидные подложки методом осаждения из химической ванны при фиксированной температуре раствора (62 ± 1)°C. Подробно исследовано влияние длительности процесса осаждения на структурные и оптические свойства полученных тонких пленок. Рентгеновская дифракция (XRD) показала, что пленки преимущественно состоят из гексагональной фазы CdS, а размер кристаллитов составляет около 10 нм и немного уменьшается с увеличением времени осаждения. Шероховатость поверхности пленок была измерена с помощью атомно-силового микроскопа. Сканирующая электронная микроскопия показала однородную, компактную и гладкую поверхность пленок. Рамановские измерения выявили три основных пика, соответствующих модам 1LO, 2LO и 3LO в CdS. Оптические измерения показали высокий коэффициент пропускания (~85%) и низкий коэффициент отражения (4–7)% в спектральном диапазоне 520–1000 нм. Из-за изменения стехиометрии пленок CdS, оптическая ширина запрещенной зоны варьировалась в пределах 2.30–2.37 эВ с увеличением времени осаждения. Спектры фотолюминесценции пленок при комнатной температуре показывают два пика излучения, расположенных при 500 нм (2.49 эВ) и 708 нм (1.75 эВ), которые могут быть отнесены соответственно к рекомбинации свободных носителей, а также к экситонным или излучательным переходам с участием уровней донорного и акцепторного типов. Полученные результаты демонстрируют, что, регулируя только время осаждения, можно осаждать тонкие пленки CdS на полимерные подложки при относительно низкой температуре химической ванны. Эти пленки, без какой-либо послеростовой обработки, обладают достаточно хорошими физическими свойствами, что делает их подходящими для применения в различных гибких оптоэлектронных устройствах.

1. Введение

В последнее время тонкие пленки сульфида кадмия (CdS) привлекают внимание исследователей из-за их достаточно хороших оптических и электронных свойств, а также высокой химической стабильности [1]. В большинстве случаев CdS является полупроводником *n*-типа проводимости, обусловленной наличием

собственных донорных дефектов, таких как вакансии серы (S) и междоузельные атомы кадмия (Cd). CdS характеризуется широкой прямой запрещённой зоной ~2.4 эВ при комнатной температуре. Это соединение является одним из наиболее перспективных материалов для тонкопленочных солнечных элементов в качестве широкозонного окна в сочетании с такими поглощающими слоями, как теллурид кадмия (CdTe), сульфид (или селенид) меди, индия и галлия (CIGS(Se)), кестериты (CZTS) или перовскиты [2].

Для получения тонких плёнок CdS могут использоваться различные физические и химические методы осаждения, включая электроосаждение [3], химическое осаждение в ванне (CBD) [4–6], термическое испарение [7], химическое осаждение из паровой фазы (CVD) [8], импульсное лазерное осаждение [9], ВЧ-магнетронное распыление [10], сублимация в малом объёме [11], осаждение из паровой фазы металлоорганических соединений (MOCVD) [12], химический пиролиз [13] и другие. Среди этих технологий метод CBD имеет ряд преимуществ для выращивания тонких плёнок CdS, включая низкую стоимость, экологичность, высокую чистоту, стабильность состава пленки и простоту метода. Кроме того, этот метод позволяет осуществлять рост при относительно низкой температуре, что делает возможным использование недорогих полимерных подложек.

В настоящее время осаждение плёнок CdS на полимерные подложки такие, как полиимидные (ПИМ), вызывает большой интерес [14–17] благодаря их гибкости, легкости, низкой стоимости, высокой прозрачности в видимом диапазоне света, высокой термостойкости (до 400°C), низкому коэффициенту теплового расширения и превосходным электрическим свойствам.

В данной работе тонкие плёнки CdS были нанесены на ПИМ подложку методом осаждения из химической ванны при фиксированной температуре раствора (62±1)°C [18], но с различной продолжительностью процесса. Основной целью была оптимизация технологических режимов получения плёнок CdS с улучшенными физическими характеристиками, позволяющими их использовать в качестве буферного слоя в тонкопленочных солнечных элементах, а также в качестве активного слоя в легких и гибких оптоэлектронных устройствах. В работе подробно обсуждается влияние времени осаждения на структурные, морфологические и оптические свойства плёнок CdS, полученных на ПИМ подложках.

2. Методика и детали эксперимента

2.1. Процесс осаждения

Тонкие плёнки CdS были осаждены на ПИМ подложки методом CBD в диапазоне толщин от 40 до 85 нм. Образцы формировались в растворе, содержащем 90 мл деионизированной воды, 30 мл 25% водного раствора аммиака, 40 мл сульфата кадмия (0.0096M CdSO₄) в качестве источника кадмия и 40 мл тиомочевины (0.8M CS(NH₂)₂) в качестве источника серы. Значение *pH* полученного раствора составляло 10.7. Слой CdS выращивался на ПИМ подложках, вертикально погруженных в полученный раствор, при экспериментально установленной оптимальной температуре для стабильного осаждения слоя CdS (62±1)°C. В течение всего процесса осаждения раствор перемешивался с помощью магнитной мешалки.

Подложки предварительно очищались ультразвуком в ацетоне и этаноле, затем промывались деионизированной водой и высушивались струей азота. После осаждения плёнки CdS промывались в ультразвуковой ванне в течение 10 мин

для удаления прилипших частиц CdS и высушивались струей азота. Были получены три серии пленок CdS: CS5, CS10 и CS15, соответствующие времени осаждения 5, 10 и 15 мин.

2.2. Методы исследования тонких пленок

Из-за гибкости ПМ подложки измерение толщины тонких пленок с помощью оптических методов или зондового профилометра сопряжено с некоторыми трудностями и неопределенностями. В связи с этим, толщина пленок CdS была оценена на основе SEM изображения поперечного сечения тонких пленок, осажденных на подложки. Полученные значения для образцов CS5, CS10 и CS15 составили 46.2, 62.8 и 82.7 нм, соответственно.

Различные методы анализа были использованы для характеристики осаждённых плёнок CdS. Кристаллическая структура исследовалась с помощью рентгеновского дифрактометра Ultima IV (Rigaku) с источником излучения CuK α ($\lambda = 1.5406 \text{ \AA}$) в геометрии рентгеновской дифракции при скользящем падении (GIXD) при угле скольжения 1° в диапазоне 2θ от 20 до 80° .

Элементный состав синтезированных пленок исследовали методом рентгеновского энергодисперсионного микроанализа с помощью приставки INCA Energy (Oxford Instruments) с разрешением 1.0 мкм и чувствительностью $0.1 \text{ ат\%}$. Анализ топографии поверхности и поперечного сечения проводили с помощью сканирующего электронного микроскопа (SEM) H-800 813 (Hitachi, Япония) с разрешением не хуже 0.2 нм . Исследование топографических свойств пленок проводилось методом атомно-силовой микроскопии (AFM) на приборе Solver Nano, NT-MDT на резонансной частоте 227 кГц в полуконтактном режиме с радиусом острия сканирующего зонда 10 нм . Для каждой поверхности образца выбирали не менее пяти участков с площадью сканирования $5 \times 5 \text{ мкм}^2$. Для каждой выбранной области определяли значения среднеарифметической и среднеквадратичной шероховатостей, максимальную высоту шероховатости профиля поверхности; полученные результаты усреднялись для каждого образца.

Спектры рамановского рассеяния света (PPC) и фотолюминесценции (ФЛ) тонких пленок CdS регистрировались при комнатной температуре с помощью конфокального спектрометра Nanofinder HE (LOTIS ТП, Беларусь–Япония). Измерения проводились в геометрии обратного рассеяния без учета поляризации рассеянного излучения. В качестве источника возбуждения использовался твердотельный лазер, работающий в непрерывном режиме, с длиной волны 473 нм . Объектив $100\times$ ($NA = 0.95$) обеспечивал размер пятна возбуждения около 0.7 мкм . Обратно рассеянный свет диспергировался на дифракционных решетках с 1800 штр/мм (для PPC) и 600 штр/мм (для ФЛ) со спектральным разрешением не хуже 1 см^{-1} и 3 см^{-1} , соответственно. Регистрация сигнала осуществлялась с помощью термостатированной ПЗС-матрицы при времени накопления 30 с . Для предотвращения термического повреждения образцов мощность падающего лазерного излучения составляла 64 и 24 мВт при измерениях PPC и ФЛ, соответственно. Спектры пропускания и зеркального отражения пленок при угле падения–отражения 8° измеряли с помощью спектрофотометра Photon RT (Essent Optics) при спектральном разрешении не хуже 4 нм , используя неполяризованный свет в диапазоне длин волн $400\text{--}1000 \text{ нм}$.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Пленки CdS, нанесенные на ПМ, были прозрачными с легким светло-желтым оттенком и имели однородную поверхность без видимых проколов, а тест с помощью липкой ленты показал хорошую адгезию слоёв к поверхности подложки.

3.1. Анализ элементного состава пленок

Анализ состава пленок CdS после нанесения проводился методом энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (EDS). Типичный EDS спектр, характерный для всех пленок CdS, полученных при различных временах осаждения, представлен на рис.1.

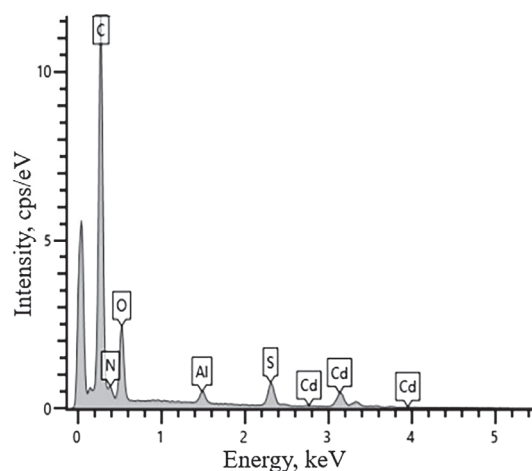


Рис.1. Спектр EDS тонкой пленки CS10, нанесенной на ПМ подложку.

Спектр показывает пики, соответствующие кадмию (Cd), сере (S), углероду (C), азоту (N), кислороду (O) и алюминию (Al). Присутствие элементов C, O и N связано с полиимидной подложкой. Пик, соответствующий Al, обусловлен держателем образца. Атомные концентрации элементов в осажденных пленках и изменение соотношения Cd/S в зависимости от времени осаждения приведены в табл.1.

Было обнаружено, что состав пленок отклоняется от стехиометрического соотношения, причем все пленки являются обогащёнными серой. С увеличением времени осаждения (от 5 до 15 мин) концентрация атомов Cd в пленках CdS значительно увеличивается, а содержание серы соответственно уменьшается. Это означает, что в пленке существуют либо междоузельные атомы, либо вакансии

Табл.1. Элементный состав тонких пленок CdS, полученных при различной длительности осаждения

Образец	Cd, ат%	S, ат%	Cd/S	Соединение
CS5	28.26	71.74	0.39	$\text{Cd}_{0.56}\text{S}_{1.44}$
CS10	43.87	56.13	0.78	$\text{Cd}_{0.88}\text{S}_{1.12}$
CS15	41.29	58.71	0.70	$\text{Cd}_{0.83}\text{S}_{1.17}$

Cd, действующие как акцепторы и приводящие к снижению концентрации свободных носителей из-за высокой степени компенсации.

3.2. Анализ результатов SEM

Для исследования влияния времени осаждения на морфологические характеристики тонких пленок CdS был проведен анализ SEM изображений. Установлено, что продолжительность процесса осаждения (5, 10 и 15 мин) не играет существенной роли в морфологии тонких пленок. В качестве примера на рис.2 представлены SEM изображения поверхности и вид поперечного сечения пленок CdS, осажденных в течение 10 и 15 мин, соответственно. Микрофотографии демонстрируют плотную структуру пленок с гладкой, относительно свободной от пустот поверхностью без отверстий и трещин. Во всех образцах наблюдаются хорошо выраженные сферические зерна, приблизительно однородные по размеру, что обусловлено относительно низкой скоростью осаждения и ионно-ионным механизмом формирования пленки.

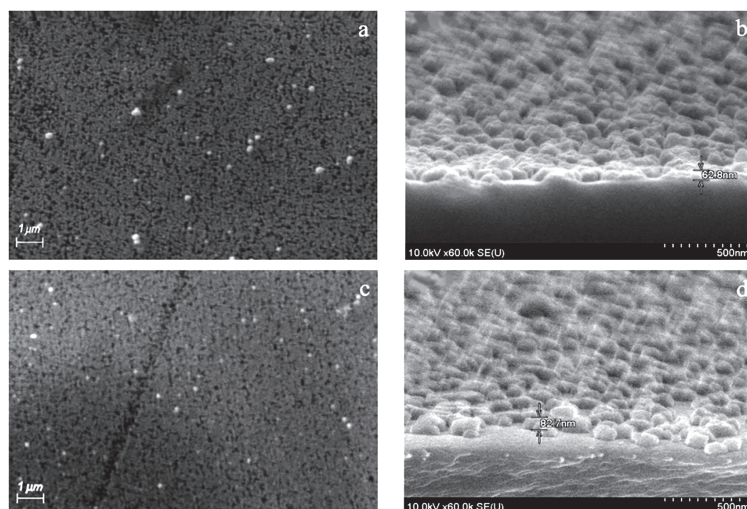


Рис.2. Микрофотографии SEM и поперечные сечения тонких пленок CdS, полученных за времена осаждения (a, b) 10 мин и (c, d) 15 мин.

Появление сферических гранул на SEM изображении может быть обусловлено сфероидальной структурой ионов серы. Между тем, присутствующие на изображении SEM несколько белых, агломерированных частиц с четко определенными границами на поверхности пленок, указывают на присутствие серы [19, 20].

Следует отметить, что увеличение времени осаждения не оказывает существенного влияния на размеры зерен. Во всех образцах однородно распределенные нанометровые зерна равномерно покрывают поверхность подложки. SEM-изображения показывают, что зерна имеют четкие очертания и распределены по размерам в пределах 124–132 нм.

3.3. Анализ AFM-изображений

AFM является одним из самых эффективных методов анализа наноструктурированных тонких пленок. Этот метод позволяет получать значения различных параметров, характеризующих поверхность пленок, таких как размеры зерна,

среднеквадратичная (R_{rms}) и среднеарифметическая (R_a) шероховатости, асимметрия (R_{sk}) и эксцесс (R_{ku}) профиля поверхности [21]. Двумерные и трехмерные AFM-изображения пленок CdS на ПМ подложках представлены на рис.3.

На рис.3а,с,е 2D-изображение, отсканированное на площади $5 \times 5 \text{ мкм}^2$, показывает наличие сферических частиц для всех пленок. Зерна росли с различной ориентацией, что указывает на поликристаллическую природу пленок. Из рисунка видно, что частицы равномерно распределены по поверхности пленок, при этом поверхности состоят из наноразмерных зерен. Как видно, время осаждения значительно влияет на шероховатость поверхности. Различные топографические параметры поверхности, рассчитанные на основе данных AFM, приведены в табл.2. Полученные значения как среднеарифметической, так и среднеквадратичной шероховатостей указывают на то, что пленки характеризуются нанотопографической текстурой поверхности.

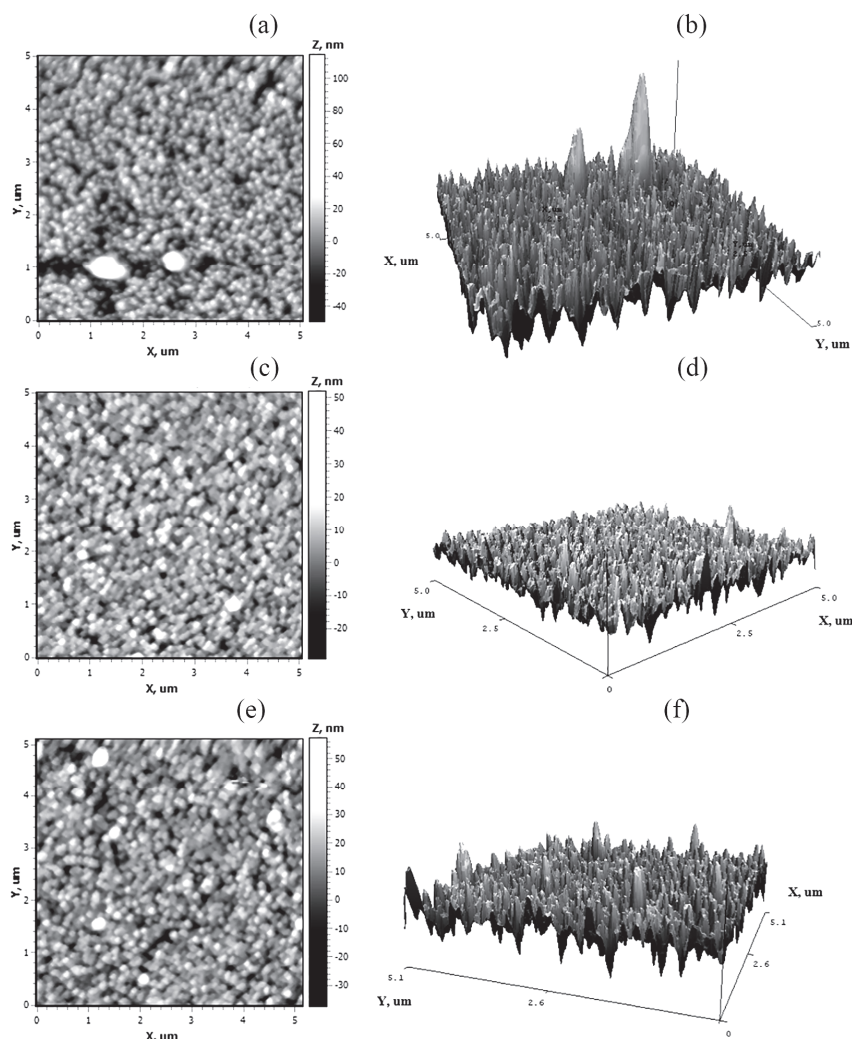


Рис.3. 2D и 3D AFM-изображения пленок CdS, полученных при разной продолжительности процесса осаждения: (а, б) 5 минут, (с, д) 10 минут и (е, ф) 15 минут.

Табл.2. Топографические параметры поверхности тонких пленок CdS, полученных при различных временах осаждения

Параметры	$t = 5$ мин	$t = 10$ мин	$t = 15$ мин
R_a , нм	9.2	5.2	6.9
R_{rms} , нм	12.8	6.8	9.1
R_{sk}	1.16	0.52	0.71
R_{ku}	6.36	3.84	5.18

Пленки CdS, выращенные при длительности осаждения 5 мин, показали более высокое значение R_a , чем пленки, осажденные за более длительные времена. Вероятно, это обусловлено недостаточной тепловой энергией, доступной адсорбированным атомам для поверхностной диффузии и образования большего количества центров зародышеобразования. В результате этого атомы, непрерывно поступающие из раствора, прикрепляются к существующим центрам, что приводит к образованию более холмообразных структур за меньшее время осаждения, а пленки соответственно демонстрируют более высокую шероховатость поверхности. С увеличением времени осаждения шероховатость поверхности уменьшается. Это может быть связано с образованием большего числа центров зародышеобразования за более длительный период, что способствует формированию более однородной плёнки на поверхности подложки. Известно, что параметр шероховатости поверхности, называемый асимметрией (R_{sk}) характеризует симметрию функции распределения амплитуды профиля вокруг средней линии, а эксцесс (R_{ku}) характеризует резкость плотности вероятности амплитуды профиля [21].

Значение R_{sk} осаждённых плёнок CdS оказалось положительным (табл.2), что указывает на преобладание впадин над выступами на поверхности плёнки, а также на лёгкую асимметрию распределения пиков по её профилю. При этом значение асимметрии профиля уменьшается с увеличением времени осаждения, что свидетельствует об изменении распределения амплитуды высоты профиля от слегка асимметричного к более симметричному. Что касается эксцесса, то при его значении меньше $R_{ku} < 3$ считается, что на поверхности присутствует относительно немного высоких пиков и глубоких впадин, и поверхность почти плоская (платокуртическая) [21]. Если же $R_{ku} = 3$, то профиль поверхности характеризуется гауссовым распределением амплитуд (мезокуртический). В нашем случае оказалось, что для всех пленок CdS, осажденных на ПМ подложках, $R_{ku} > 3$ (табл.2), что указывает на наличие относительно многих высоких пиков и неглубоких впадин в профиле поверхности (лептокуртический).

Следует отметить, что при увеличении времени осаждения до 15 мин заметного изменения среднего размера кристаллов не наблюдается. АФМ-изображения показывают, что поверхность пленки имеет мозаичную структуру с крупными поверхностными структурными элементами со средним размером около 100 нм. Эта величина превышает средний размер зерна, рассчитанный по данным рентгеновской дифракции (XRD) (см. ниже).

Хорошо известно, что АФМ-изображение не позволяет определить средний

размер кристаллитов, получаемый из XRD-анализа, поскольку в последнем случае размер кристаллитов определяется по наименьшим кристаллитам, распределенным по всей толщине пленки (см. ниже).

3.4. Анализ результатов XRD

На рис.4 приведены дифрактограммы осажденных тонких пленок CdS. Видно, что рентгеноструктурный анализ различных образцов пленок CdS, осажденных за разное время, дает схожие по виду дифрактограммы.

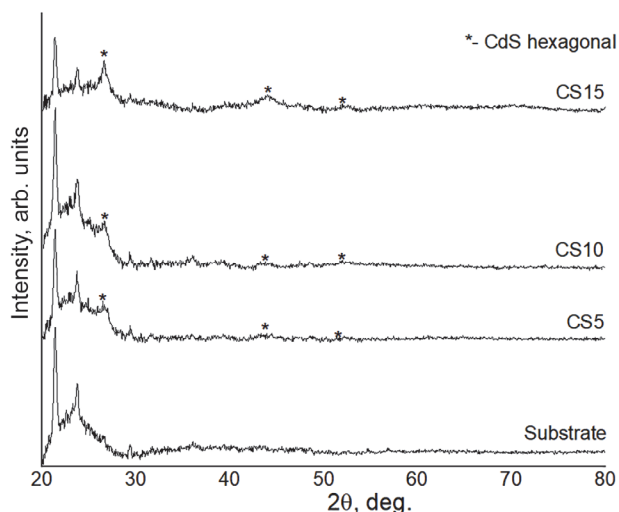


Рис.4. Дифрактограммы пленок CdS, в зависимости от времени осаждения: (CS5) – 5 мин; (CS10) – 10 мин; (CS15) – 15 мин.

Все дифрактограммы свидетельствуют о поликристаллической природе пленок с преобладающими дифракционными пиками при углах $\sim 26.6^\circ$, $\sim 44.4^\circ$ и $\sim 52.2^\circ$. Преобладание пика (002) показывает, что *c*-осевая текстура пленки вюрцита преимущественно ориентирована перпендикулярно поверхности подложки. Полученные результаты хорошо согласуются с ранее опубликованными литературными данными [22, 23].

Наличие дополнительных дифракционных пиков и достаточно большая полуширина (FWHM) основного пика (002), составляющая около 1.2° , свидетельствуют о поликристаллической природе с возможным присутствием аморфных областей. Результаты также подтверждают, что пленкам CdS, осажденным методом CBD, не нужна кристаллическая основа для формирования сильно упорядоченной текстуры. Этот вывод особенно примечателен, так как ПМ подложки при осаждении находились при сравнительно низкой температуре.

Средний размер кристаллитов (*L*) рассчитывали с использованием уравнения Шеррера [19, 24]:

$$L = (0.9 \lambda) / \beta \cos \theta, \quad (1)$$

где λ – длина волны падающего рентгеновского излучения ($\lambda = 1.5406 \text{ \AA}$), β – FWHM пика в радианах, θ – угол дифракции Брэгга.

Межплоскостное расстояние (*d*), параметры решетки (*a* и *c*), величина микронапряжений решетки (ϵ) и плотность дислокаций (δ) для доминирующего пика

(002) рассчитывались по уравнениям [19, 25, 26]:

$$2d\sin\theta=n\lambda, \quad (2)$$

$$\frac{1}{d^2} = \frac{4}{3} \left(\frac{h^2 + hk + k^2}{a^2} \right) + \frac{l^2}{c^2}, \quad (3)$$

$$\varepsilon = (\beta \cos\theta)/4, \quad (4)$$

$$\delta = \frac{1}{L^2}. \quad (5)$$

Здесь h, k, l – индексы Миллера.

Хорошо известно, что CdS имеет две кристаллические структуры: метастабильную кубическую фазу (цинковая обманка) и высокостабильную гексагональную фазу (вюрцит), которые в зависимости от условий роста могут образовываться в процессе CBD. Мы обнаружили, что для всех образцов CS5, CS10 и CS15 интенсивный дифракционный пик наблюдается при угле Брэгга (2θ) около 26.5° , что соответствует плоскости (002) гексагональной фазы CdS (H) или плоскости (111) кубической фазы (C). Однако появление пиков, соответствующих плоскостям (110)H около 44.4° и плоскости (112)H около 52.2° , указывает на то, что кристаллическая структура пленок относится к гексагональной фазе либо представляет собой смесь гексагональной и кубической фаз. Отсутствие других фаз свидетельствует о высоком качестве синтезированных тонких пленок. Из дифрактограмм также видно, что интенсивность и высота преобладающего пика (002)H при 26.5° , а также пиков (110)H и (112)H около 44.4 и 52.2° , соответственно, увеличиваются с ростом времени осаждения. Это связано с увеличением количества осажденного материала, что, в свою очередь, приводит к возрастанию толщины плёнки CdS.

Положение пика (002)H при $2\theta = 26.42^\circ$ для пленок, осажденных в течение 5 мин, смещается в сторону больших углов и достигает 26.64° при увеличении времени осаждения до 15 мин. Это свидетельствует о стабильном формировании кристаллической структуры плёнок CdS даже при сравнительно коротком времени осаждения (5 мин).

В табл.3 приведены результаты расчетов структурных параметров на основе данных для пика (002)H, выполненные с использованием программы FullProf. Гексагональная кристаллическая решетка синтезированных пленок CdS была удостоверена согласно данным JCPDS №80-0006 с заданными постоянными решетки: $a = 4.1002 \text{ \AA}$, $c = 6.6568 \text{ \AA}$ и $c/a = 1.62$, которые хорошо совпадают с рассчитанными значениями, приведенными в табл.3.

Табл.3. Рассчитанные структурные параметры тонких пленок CdS на основе данных для пика (002)H

Об- ра- зец	(002) пози- ция пика, 2θ ($^\circ$)	FWHM β ($^\circ$)	Размер крист., L (нм)	Плотность дисл. $\delta \times 10^{-3} \text{ м}^{-2}$	Микрона- пряжение ϵ $\epsilon \times 10^{-3}$	Параметры ре- шетки		
						$a, \text{ \AA}$	$c, \text{ \AA}$	c/a
CS5	26.42	1.062838	10.29	9.401	4.73	3.981	6.533	1.64
CS10	26.64	1.061967	10.31	9.401	4.59	4.051	6.610	1.63
CS15	26.60	1.083616	10.11	9.791	4.91	4.121	6.610	1.62

Как уже было отмечено выше, существует некоторое расхождение между результатами по оценке среднего размера структурных элементов, полученными по SEM, AFM и по формуле Шеррера на основе данных XRD, причем в последнем случае размеры, как правило, получаются во много раз меньше. Причина такого, на первый взгляд, несоответствия обусловлена тем, что SEM и AFM не позволяют выявить субструктуры поликристаллической пленки и они дают средний размер зерен (кластеров), которые, в свою очередь, состоят из более мелких, распределенных по всему объему пленки, кристаллитов, наименьший размер которых и проявляется при исследовании XRD [27, 28].

3.5. Рамановская спектроскопия

На рис.5а приведены спектры PPC для тонких пленок CdS, нанесенных на ПМ подложки. В табл.4 приведены значения частот и ширины на полувысоте (FWHM) наблюдаемых пиков рассеяния, полученные при измерениях на двух различных участках образцов. Каждый спектр имеет три пика: интенсивный пик при $\sim 302 \text{ см}^{-1}$ соответствует продольной оптической моде первого порядка (1LO), сопровождаемой обертонами второго (2LO) и третьего (3LO) порядков при ~ 604 и $\sim 912 \text{ см}^{-1}$, соответственно.

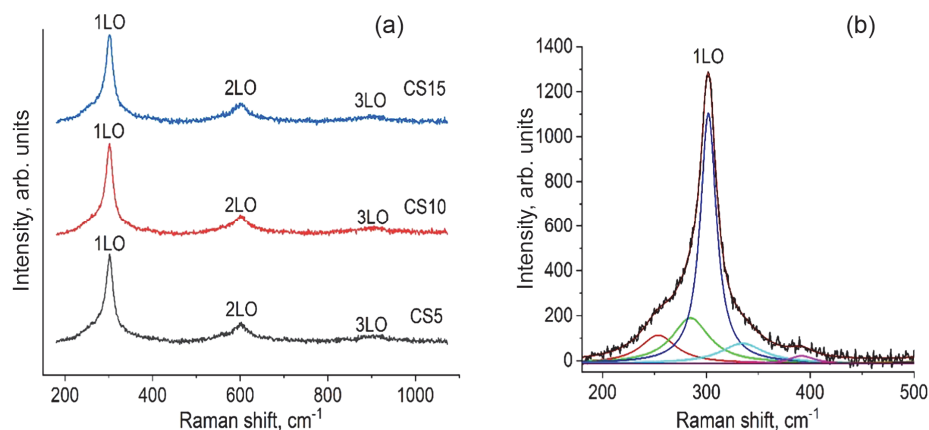


Рис.5. Спектры (а) PPC тонких пленок CdS, полученных при разных длительностях осаждения, и (b) разложение пика 1LO образца CS10.

Заметим, что в спектрах PPC объемных образцов CdS со структурой вюрцита также часто наблюдаются доминирующий пик фонона 1LO при 305 см^{-1} и его первое повторение при 611 см^{-1} [6, 29].

В результате разложения спектра PPC пленки CS10 с использованием гауссовских функций (рис.5b) установлено, что асимметричный пик 1LO в области $\sim 302 \text{ см}^{-1}$ состоит из нескольких компонент с максимумами при 254, 289, 302, 335 и 392 см^{-1} . Компоненты спектра рассеяния, наблюдаемые в области ниже 302 см^{-1} , различными авторами интерпретируются присутствием поверхностных фононов (SP) и/или поперечных оптических фононов (TO) [30–33].

Известно, что в пленках толще 100 мкм в геометрии обратного рассеяния, где ось z направлена перпендикулярно поверхности образца (001), согласно правилам отбора в спектрах PPC могут наблюдаться только продольные оптические

Табл.4. Частота и полуширина рамановских мод тонких пленок CdS

Образец	1LO		2LO		3LO	
	Частота пика, см^{-1}	FWHM, см^{-1}	Частота пика, см^{-1}	FWHM, см^{-1}	Частота пика, см^{-1}	FWHM, см^{-1}
CS5	302	20.9	604	25.5	912	—
	302	20.3	603	27.9	912	—
CS10	302	21.5	603	28.1	912	—
	303	21.6	604	30.9	913	—
CS15	302	20.1	604	23.6	917	—
	302	20.6	605	28.8	916	—

фононы, тогда как поперечные оптические и поверхностные фононные моды из-за ограничений симметрии и малой интенсивности обычно не проявляются [30]. Соответственно, если в спектрах РРС тонких пленок CdS наблюдаются дополнительные компоненты, можно предположить, что речь идет о наноструктурированных пленках, в которых могут проявляться поверхностные и ограниченные фононные моды, LO и TO фононные моды кубической модификации CdS и т.д. [34, 35].

Небольшое ($\sim 2\text{--}3 \text{ см}^{-1}$) смещение мод в сторону меньших частот относительно 1LO моды объемного образца CdS, вероятно, обусловлено эффектами деформации или пространственного ограничения фононов. Также известно, что причиной наблюдаемого смещения пиков могут быть механические напряжения, возникающие на границе пленка–подложка [33]. Однако, поскольку все процессы осаждения проводились при одинаковой температуре и на подложках одного типа, этим эффектом можно пренебречь.

3.6. Оптические свойства

На рис.6 представлены спектры пропускания (T) и отражения (R) тонких пленок CdS в диапазоне длин волн от 420 до 1020 нм. Синтезированные образцы демонстрируют высокий коэффициент пропускания (до 80–95%) и низкий коэффициент отражения (менее 9%) в видимой и ближней инфракрасной областях

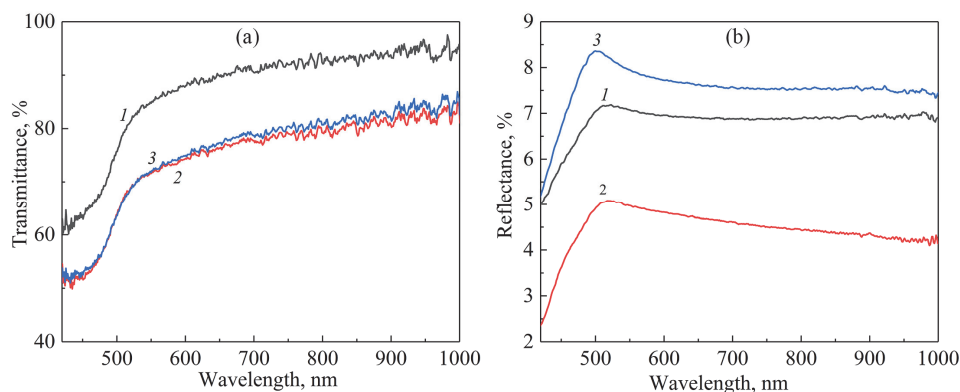


Рис.6. Спектры (a) пропускания и (b) отражения пленок CdS при различном времени осаждения: 1 – CS5, 2 – CS10, 3 – CS15.

спектра, а также характеризуются резким оптическим краем в области ~520 нм. Высокая прозрачность и отсутствие интерференционных полос во всех пленках CdS указывают на значительное рассеяние света при взаимодействии с пленкой, обусловленное шероховатостью и неоднородностью её поверхности.

На основе спектров пропускания и отражения был рассчитан коэффициент поглощения (α) с учетом многократных внутренних отражений в плоскопараллельном образце на границах раздела, согласно выражению [18]:

$$\alpha = -\frac{1}{d} \ln \left(\frac{\sqrt{(1-R)^4 + 4T^2 R^2} - (1-R)^2}{2TR^2} \right), \quad (6)$$

где d – толщина пленки, T и R – коэффициенты пропускания и отражения света, соответственно.

Оптическую ширину запрещенной зоны (E_g) пленок CdS можно оценить, предполагая наличие прямых разрешенных переходов между валентной зоной и зоной проводимости, и используя зависимость $(\alpha h\nu)^2 = A(h\nu - E_g)$ для коэффициента собственного поглощения света от энергии фотонов, где A – константа, $h\nu$ – энергия фотона. Путем экстраполяции линейного участка графика зависимости $(\alpha h\nu)^2 = f(h\nu)$ к оси энергии фотонов, согласно методу Тауца, была определена ширина запрещенной зоны, которая составила 2.37, 2.30 и 2.32 эВ для пленок CS5, CS10 и CS15, соответственно (рис.7). Такая немонотонная вариация ширины запрещенной зоны может быть обусловлена многими факторами [4, 14], но в нашем случае, по-видимому, она обусловлена изменением стехиометрии синтезированных пленок, когда с увеличением времени осаждения от 5 до 15 мин соотношение Cd/S сначала возрастает от 0.39 до 0.78, далее падает до значения 0.7 (см. табл.1).

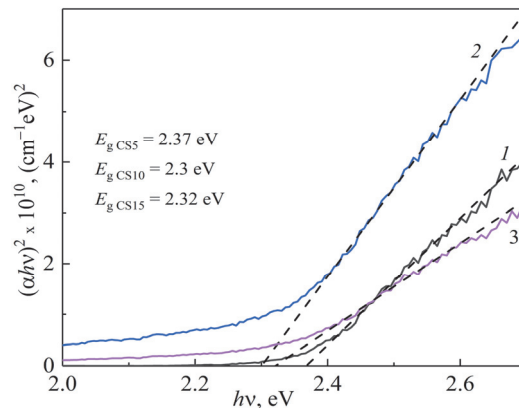


Рис.7. Оптическая ширина запрещенной зоны пленок CdS, рассчитанная по методу Тауца для: 1 – CS5, 2 – CS10, 3 – CS15.

Качество поликристаллических тонких пленок CdS с точки зрения их фотоэлектрических свойств в значительной степени определяется наличием центров рекомбинации, связанных с примесями, дефектами решетки, межграницными и поверхностными состояниями, и может быть оценено с помощью исследования их фотолюминесценции (ФЛ). Кроме того, такие исследования позволяют получить информацию о локализованных энергетических состояниях, обусловленных отклонением от стехиометрии и приводящих к образованию вакансий или междоузельных атомов кадмия и/или серы, которые, в основном, ответственны за

излучательную рекомбинацию неравновесных носителей заряда. Существует много работ по изучению ФЛ кристаллов и пленок CdS [36,37]. Известно, что полосы излучения ФЛ, наблюдаемые в диапазоне энергии фотонов 2.18–2.54 эВ (что близко к ширине запрещенной зоны CdS), называются «зелеными» полосами. Полосы излучения в интервале 2.07–2.18 эВ обычно называют «желтыми», «оранжевая» полоса располагается в области 2.00–2.07 эВ, а ФЛ, наблюдаемая в диапазоне 1.54–2.00 эВ, называется «инфракрасной/красной».

На рис.8 показаны спектры ФЛ тонких пленок CdS, осажденных при постоянной температуре (62°C) в течение различного времени – от 5 до 15 мин.

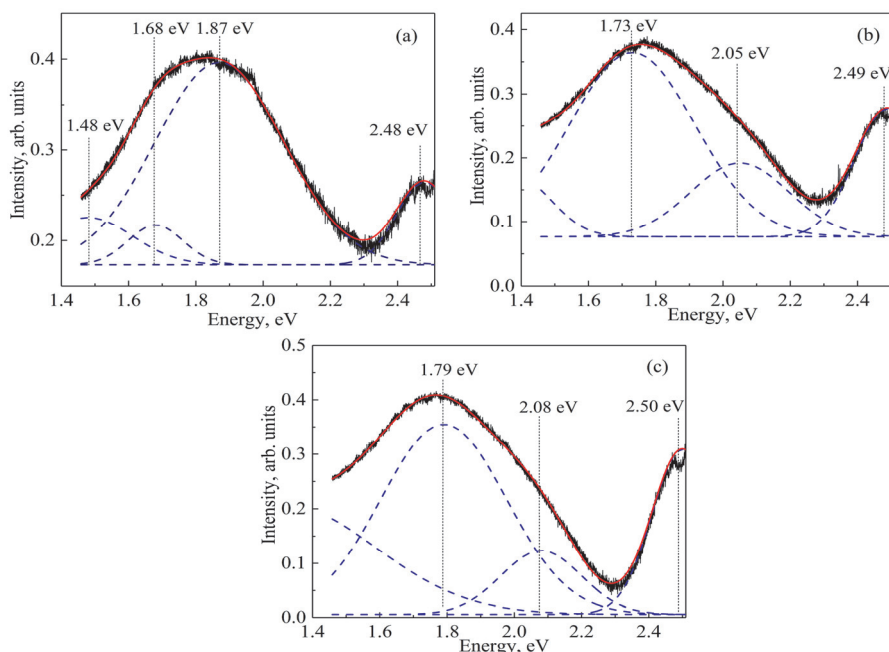


Рис.8. Спектры ФЛ пленок CdS после вычитания фонового излучения ПМ подложки и их пиковые разложения: (a) CS5; (b) CS10; (c) CS15.

Зарегистрированные спектры ФЛ для всех осажденных пленок CdS (после вычитания фонового излучения от ПМ подложки) демонстрируют два основных пика: «зеленый» пик, при энергии фотонов в области 2.49 эВ и широкий «красный» пик с максимумом вблизи 1.75 эВ. Отметим, что аналогичные спектры ФЛ были получены и во многих других работах для поликристаллических слоев CdS, выращенных методом CBD на различных подложках [36, 37].

При интерпретации полученных спектров следует учитывать, что пленки CdS не были легированы и весьма вероятно, что пленки содержат собственные дефекты, обусловленные отклонениями от идеальной стехиометрии. Результаты EDS указывают на обогащение образцов серой, что может свидетельствовать о наличии доминирующих акцепторных уровней, обусловленных междоузельными атомами серы или вакансиями атомов кадмия.

Красная полоса ФЛ отчетливо проявляет субструктуру. Проведенное разложение пиков и их аппроксимация с помощью суммы индивидуальных полос гауссовой формы [38] позволяет выявить несколько субполос излучения, сосредоточенных в энергетических областях, указанных на рис.8.

Происхождение инфракрасного пика ФЛ при 1.48 эВ, как предполагается в работе [37], может быть связано с изолированными вакансиями Cd. Красная субполоса излучения, расположенная в диапазоне 1.68–1.79 эВ, обусловлена переходами электронов из зоны проводимости на акцепторные уровни междоузельной серы [4, 36, 37]. Желтая субполоса в диапазоне 1.87–2.08 эВ, вероятно, обусловлена излучательными переходами электронов с донорных уровней на акцепторные уровни, что указывает на механизм донорно-акцепторной рекомбинации. Заметим, что положение пика зеленого излучения вблизи 2.48–2.50 эВ в пределах средней тепловой энергии совпадает со значением оптической ширины запрещенной зоны поликристаллического CdS. Эта полоса может быть обусловлена излучательными переходами свободных электронов из зоны проводимости в валентную зону или переходами с мелких донорных уровней в валентную зону. Наличие интенсивной зеленой полосы излучения в спектрах ФЛ указывает на лучшую кристалличность материала, синтезированного в течение более длительного времени и характеризуемого меньшим количеством границ зерен и минимальной плотностью собственных дефектов.

4. Заключение

Тонкие пленки CdS с хорошими структурными и морфологическими качествами были успешно синтезированы на ПМ подложках методом CBD при разном времени осаждения и без какой-либо обработки после роста. Полученные поликристаллические пленки характеризуются дефицитом кадмия, гексагональной структурой с предпочтительной ориентацией вдоль направления (002), а размер кристаллитов варьируется от 10.1 до 10.3 нм.

SEM изображения показывают плотную структуру, относительно гладкую и свободную от пустот поверхность без отверстий и трещин; размер зерен составляет 124–132 нм. Среднеквадратичная шероховатость пленок CdS, определенная методом AFM, находится в пределах 9–13 нм, что указывает на компактность и однородность распределения зерен.

Спектры РРС выявили три пика, соответствующих оптической моде 1LO решеточных колебаний CdS и ее обертонам 2LO и 3LO. Оптическая ширина запрещенной зоны пленок находилась в диапазоне 2.30–2.37 эВ, а их пропускание в видимом диапазоне составляло от 80 до 95%. Спектры ФЛ всех тонких пленок CdS, нанесенных на ПМ подложки, показали относительно узкий пик при 2.49 эВ (зеленая полоса излучения) и широкую полосу дефектной эмиссии с максимумом при 1.75 эВ (красная полоса). С удлинением времени осаждения увеличивается соотношение интенсивностей зеленого и красного пиков, что подтверждает улучшение кристалличности материала.

Основной вывод данной работы заключается в том, что метод CBD при относительно низкой температуре (62°C) позволяет выращивать на подложках из ПМ тонкие пленки CdS высокого кристаллического качества. Мы полагаем, что эта недорогая технология открывает перспективы для нанесения тонких слоев на различные пластичные подложки, пригодные для использования в гибких солнечных элементах и оптоэлектронных приборах.

Работа поддержана Комитетом науки МОНКС Республики Армения (грант № 21 SC-BRFFR-1C003) и Белорусским Фондом Фундаментальных Исследований (грант № T21APM-003).

ЛИТЕРАТУРА

1. L. Jie, X. Gao, X. Cao, Sh. Wu, X. Long, Q. Ma, J. Su. *Mater. Sci. Semicond. Process.*, **176**, 108288 (2024).
2. O. Vigil-Galán, F.A. Pulgarín, F. Cruz-Gandarilla, M. Courel, G. Villarreal-Ruiz, Y. Sanchez, D. Jimenez-Olarte, E. Saucedo. *Materials and Design*, **99**, 254 (2016).
3. J. Maricheva, S. Bereznev, R. Naidu, N. Maticiu, V. Mikli, J. Kois. *Mater. Sci. Semicond. Process.*, **54**, 14 (2016).
4. S. Hariech, J. Bougrida, M. Belmahi, G. Medjahdi, M.S. Aida, A.Zertal. *Bull. Mater. Sci.*, **45**, 78 (2022).
5. K. Abbas, A. Muhammad, R.F. Mehmood, M. Sher, J. Akhtar. *Mater. Today*, **53**, 339 (2022).
6. I.O. Oladeji, L. Chow, J.R. Liu, W.K. Chu, A.N.P. Bustamante, C. Fredricksen, A.F. Schult. *Thin. Sol. Films*, **359**, 154 (2000).
7. A.A.I. Lakmal, R.K.K.G.R.G. Kumarasinghe, V.A. Seneviratne, J-Y. Chen, J-M. Song, B.S. Dassanayake. *Mater. Sci. Engin.: B*, **273**, 115406 (2021).
8. S. Jassim, A.M. Abbas, M. Al-Shakban, L.M. Ahmed. *Egypt. J. Chem.*, **64**, 2533 (2021).
9. V.H. Martínez-Landeros, N. Hernandez-Como, G. Gutierrez-Heredia, M.A. Quevedo-Lopez, F.S. Aguirre-Tostado. *Thin Solid Films*, **682**, 24 (2019).
10. N.K. Das, J. Chakrabartty, S.F.U. Fahrads, A.K. Sen Gupta, E.M.K. Ikbali Ahamed, K.S. Rahman, A. Wafi, A.A. Alkahtani, M.A. Matin, N. Amin. *Results in Physics*, **17**, 103132 (2020).
11. N.R. Paudel, Ch. Xiao, Y. Yan. *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.*, **25**, 1991 (2014).
12. M. Tsuji, T. Aramoto, H. Ohyama, T. Hibino, K. Omura. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **39**, 3902 (2000).
13. M.G. Faraj, M.H. Eisa, M.Z. Pakhruddin. *Int. J. Electrochem. Sci.*, **14**, 10633 (2019).
14. K. Rodríguez-Rosales, J.G. Quiñones-Galván, A. Guillén-Cervantes, E. Campos-González, J. Santos-Cruz, S.A. Mayén-Hernández, J.S. Arias-Ceron, M. de la L Olvera, O. Zelaya-Angel, L.A. Hernández-Hernández, G. Contreras-Puente, F. de Moure-Flores. *Mater. Res. Express*, **4**, 075904 (2017).
15. M. Ouafi, B. Jaber, L. Laanab. *Superlattices and Microstructures*, **129**, 212 (2019).
16. Y. Park, E.K. Kim, S. Lee, J. Lee. *J. Nanosc. Nanotechn.*, **14**, 3880 (2014).
17. X. Li, P. Li, Zh. Wu, D. Luo, H-Y. Yu, Zh-H. Lu. *Mater. Rep. Lett.*, **1**, 100001 (2021).
18. V.F. Gremenok, E.P. Zaretskaya, A.V. Stanchik, K.P. Buskis, S.T. Pashayan, A.S. Tokmajyan, A.M. Musayelyan, S.G. Petrosyan. *Optics and Spectroscopy*, **132**, 145 (2024).
19. A. Ashok, G. Regmi, A. Romero-Núñez, M. Solis-López, S. Velumani, H. Castaneda. *J. Mater. Sci.: Mater. Electron.*, **31**, 74996 (2020).
20. F. Rahman, J. Hossain, A.B. Md. Ismail. *SN Appl. Sci.*, **2**, 1956 (2020).
21. E.S. Gadelmawla, M.M. Koura, T.M.A. Maksoud, L.M. Elewa, H.H. Soliman. *J. Mater. Proces. Techn.*, **123**, 133 (2002).
22. F. Lisco, P.M. Kaminski, A. Abbas, K. Bass, J.W. Bowers, G. Claudio, M. Losurdo, J.M. Walls. *Thin Solid Films*, **582**, 323 (2015).
23. D.M.C.U.Ch. Dissanayake, P. Samarasekara. *J. Sci. Univ. Kelaniya*, **10**, 13 (2015).
24. B.E. Warren. *X-ray Diffraction*, New York: Dover Publications, 1990.

25. **G.K. Williamson, R.E. Smallman.** Phil. Mag., **1**, 34 (1956).
26. **S. Rasool, K. Saritha, K.T.R. Reddy, M.S. Tivanov, V.F. Gremenok, S.P. Zimin, A.S. Pipkova, L.A. Mazaletskiy, I.I. Amirov.** Mater. Res. Express, **7**, 016431 (2020).
27. **R.I. Chowdhury, M.A. Hossen, G. Mustafa, S.Hussain, S.N. Rahman, S.F.U. Farhad, K. Murata, T.Tambo, A.B.M.O. Islam.** Intern. J. Modern Phys., **24**, 5901 (2010).
28. **K.P. Acharya, J.R. Skuza, R.A. Lukaszew, C. Liyanage, B. Ullrich.** J. Phys.: Condens. Matter, **19**, 196221 (2007).
29. **J. Trajić, M. Gilić, N. Romčević, M. Romčević, G. Stanišić, B. Hadžić, M.Petrovic, Y.S. Yahia.** Sci. Sinter., **47**, 145 (2015).
30. **M.F. Saleem, H. Zhang, Y. Deng, D. Wang.** J. Raman Spectrosc., **48**, 224 (2016).
31. **M.V.V. Prasad, K.Thyagarajan, B.R. Kumar.** IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering, **149**, 012051 (2016).
32. **T.T.K. Chi, G. Gouadec, Ph. Colomban, G. Wang, L. Mazerolles, N.Q. Liem.** J. Raman Spectrosc., **42**, 1007 (2011).
33. **R. Keshav, A. Rao, M.G. Mahesha.** Opt. Quant. Electron., **50**, 186 (2018).
34. **A.K. Arora, M. Rajalakshmi, T.R. Ravindran, V. Sivasubramanian.** J. Raman Spectrosc., **38**, 604 (2007).
35. **Е.П. Зарецкая, В.Ф. Гременок, К.П. Бускис, О.В. Королик, С.Т. Пашаян, А.С. Токмаджян, А.С. Мусаелян, С.Г. Петросян.** Журнал приклад. спектроск., **91**, 32 (2024).
36. **J. Aguilar-Hernandez, J. Sastre-Hernandes, N. Ximello-Quiebras, R. Mendoza-Perez, O. Vigil-Galan, G. Contreras-Puente, M. Cardenas-Garcia.** Thin Sol. Films, **511-512**, 143 (2006).
37. **A.E. Abken, D.P. Halliday, K. Durose.** J. Appl. Phys., **105**, 064515 (2009).
38. **A.V. Kovalenko, S.M. Vovk, Ye.G. Plakhtii.** J. Appl. Spectrosc., **88**, 357 (2021).

**ՔԻՄԻԱԿԱՆ ՎԱՆՆԱՅԻՑ ՊՈԼԻՄԵՐԴԱՅԻՆ ՏԱԿԴԻՐԻ ՎՐԱ
ՁԵՎԱՎՈՐՎԱԾ CdS ԲԱՐԱԿԹԱՂԱՆԹՆԵՐ**

**Ս.Գ. ՊԵՏՐՈՍՅԱՆ, Ա.Ս. ՄՈՒՍԱՅԵԼՅԱՆ, Ա.Ս. ԹՈՔՄԱՋՅԱՆ,
Վ.Ֆ. ԳՐԵՄԵՆՈԿ, Օ.Վ. ԿՈՐՈԼԻԿ, Ա.Վ. ՍՏԱՆԶԻԿ, Կ.Բ. ԲՈՒՍԿԻՍ**

Կադմիումի սուլֆիդի (CdS) բազմաբյուրեղական բարակ թաղանթները ձևավորվել են պոլիիմիդային (PI) պլաստիկ տակդիրների վրա քիմիական վաննայից նստեցման եղանակով՝ լուծույթի ֆիքսված ջերմաստիճանում (62 ± 1)°C: Ներկայացվում են արդյունքներ, որոնք վերաբերում են նստեցման ժամանակի ազդեցությանը ստացված բարակ թաղանթների կառուցվածքային և օպտիկական հատկությունների վրա: Ռենտգենյան դիֆրակցիայի արդյունքները ցույց են տվել, որ թաղանթները հիմնականում բաղկացած են հեքսագոնային CdS ֆազայից, իսկ բյուրեղիկների չափը մոտ 10 նմ է, ինչը փոքր-ինչ նվազել է նստեցման ժամանակի հետ: Թաղանթների միջին քառակուսային անհարթությունները չափվել են ատոմային ուժային մանրադիտակի օգնությամբ: Տեսաձրող էլեկտրոնային միկրոգրաֆները ցույց են տալիս թաղանթների միատարր, կոմպակտ և հարթ մակերեսների առկայությունը: Ռամանյան ցրման չափումները բացահայտել են երեք հիմնական պիկերի առկայությունը, որոնք համապատասխանում են CdS-ի բյուրեղական ցանցի 1LO, 2LO և 3LO տատանողական մոդերին:

Ուլտրամանուշակագույն-տեսանելի տիրույթներում չափումները ցույց են տալիս, որ թաղանթներն օժտված են լույսի բարձր թափանցելիությամբ ($\sim 85\%$) և ոչ մեծ անդրադարձումով ($4-7\%$) ($520-1000$) նմ սպեկտրային տիրույթում: Բաղադրության փոփոխության պատճառով CdS թաղանթների օպտիկական արգելցած գոտու լայնությունը փոփոխվում է նստեցման ժամանակի մեծացման հետ, և այն գտնվում է $2.30-2.37$ eV միջակայքում: Սենյակային ջերմաստիճանում չափված թաղանթների ֆոտոլյումինեսցենսային սպեկտրները բացահայտում են լույսի ճառագայթման երկու հիմնական տիրույթներ, որոնց մաքսիմումները տեղակայված են 500 նմ (2.49 էՎ) և 708 նմ (1.75 էՎ) վրա, և որոնք, համապատասխանաբար, կարող են վերագրվել ազատ լիցքակիրների և/կամ էքսիտոնների վերամիավորմանը, կամ էլեկտրոնների այլ ճառագայթային անցումներին, որոնք իրենց մեջ ներառում են դոնորային և ակցեպտորային տիպի մակարդակները: Արդյունքները ցույց են տալիս, որ քիմիական վանայից PI տակդիրների վրա համեմատաբար ցածր ջերմաստիճանում CdS-ի բարակ թաղանթների նստեցումը՝ առանց հետաձային որևէ մշակման անհրաժեշտության, կարող է հանգեցնել թաղանթների ֆիզիկական հատկու-թյունների բարելավմանը և ճանապարհ հարթել նման CdS-ի բարակ թաղանթները ձկուն օպտոէլեկտրոնային սարքերում ինտեգրելու համար:

THIN FILMS OF CdS FORMED ON A POLYIMIDE SUBSTRATE BY CHEMICAL BATH DEPOSITION METHOD

S.G. PETROSYAN, A.S. MUSAYELIAN, A.S. TOKMAJYAN,
V.F. GREMENOK, O.V. KOROLIK, A.V. STANCHIK, K.P. BUSKIS

Polycrystalline cadmium sulfide (CdS) thin films were deposited onto polyimide (PI) plastic substrates using the chemical bath deposition technique at a fixed solution temperature of $(62 \pm 1)^\circ\text{C}$. The study of the effect of deposition time on the structural and optical properties of as deposited thin films was carried out. X-ray diffraction (XRD) analysis revealed that the films primarily consist of the hexagonal CdS phase, and the crystallite size was about 10nm and slightly decreased with deposition time. The root mean square roughness of the films was measured by atomic force microscopy. Scanning electron micrographs show homogeneous, compact and smooth surface of films. The Raman measurements revealed three main peaks corresponding to the 1LO, 2LO, and 3LO modes of CdS. The optical analyses based on the UV–Visible measurements reveal the highest transmittance ($\sim 85\%$) and low reflectance ($4-7\%$) in the spectral range of ($520-1000$) nm. Due to the change in the stoichiometry of the CdS films, the optical band gap varied within the range of $2.30-2.37$ eV with increasing deposition time. The room temperature photoluminescence spectrum of films shows two emission peaks located at 500 nm (2.49 eV) and 708 nm (1.75 eV), which may be attributed, respectively, to the free carrier recombination, excitonic or radiative transitions involving donor and acceptor type levels. The results demonstrate that the deposition of CdS from chemical bath on PI substrates at the low temperature without need any post-deposition treatment can result in improved physical properties of the films and paves the way to integrate CdS thin films in flexible optoelectronic devices.

СПЕКТРАЛЬНЫЕ СВОЙСТВА КРИСТАЛЛОВ GSAG:Ce

Т.И. БУТАЕВА*, А.В. ЕГАНЫН

Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

*e-mail: tbutaeva@gmail.com

(Поступила в редакцию 20 января 2025 г.)

В настоящей работе рассмотрены оптические свойства многоцентровых кристаллов гадолиний скандий алюминиевого граната $Gd_3Sc_2Al_3O_{12}:Ce$ (GSAG:Ce), выращенных методом вертикальной направленной кристаллизации, а также поликристаллических образцов, полученных твердофазным методом. Показано, что полосы поглощения и люминесценции ионов Ce^{3+} в кристалле GSAG:Ce образуются семью различными центрами активатора. Менее половины ионов активатора занимают додекаэдрические узлы в окружении шести октаэдров, занятыми ионами Sc^{3+} . Другая часть ионов Ce^{3+} находится в окружении октаэдров, занятых ионами Sc^{3+} и Al^{3+} в различных сочетаниях. Форма полосы люминесценции на 18700 см^{-1} ионов Ce^{3+} кристаллов GSAG:Ce при изменении концентрации активатора от 0.5 до 2.5 ат% сохраняется стабильной, а интенсивность излучения увеличивается с увеличением концентрации Ce^{3+} .

1. Введение

Кристаллы гадолиний скандий алюминиевого граната $Gd_3Sc_2Al_3O_{12}:Ce$ (GSAG:Ce) содержат трёхвалентные элементы Gd^{3+} , Sc^{3+} , Al^{3+} и Ce^{3+} , которые проявляют наиболее характерную степень окисления (+3), вследствие почти одинакового строения наружных электронных уровней [1]. Природный гадолиний имеет сложный изотопный состав (^{152}Gd , ^{154}Gd – ^{158}Gd и ^{160}Gd) [2, 3] и находится в самом центре лантаноидного ряда [4, 5]; как следует из квантовомеханических расчетов [6], наполовину заполненный $4f$ уровень ($4f^7$) иона Gd^{3+} должен быть очень устойчив. Атом скандия относится к элементам IV периода, имеет единственный стабильный изотоп ^{45}Sc (электронная конфигурация $[Ar]3d^14s$), у которого достраивается не внешний уровень, а предшествующий внутренний. Скандий имеет характерную валентность $3+$ но может быть и в других валентных состояниях. Ионы Sc^{1+} имеют многочисленные полосы поглощения в области $16023\text{--}51101\text{ см}^{-1}$ (область прозрачности кристалла GSAG), а также в зоне проводимости кристалла вплоть до 64658 см^{-1} . Ионы Sc^{2+} имеют полосы в области от 2240.95 до 39345.52 см^{-1} , а также в области $4802\text{--}4987.8\text{ см}^{-1}$. Ионы Sc^{3+} имеют лишь полосу на 25589 см^{-1} , а Sc^{4+} не имеет полос в области прозрачности кристалла. Отмеченные спектральные области были определены из данных работы [7], где представлены известные на момент публикации энергетические уровни ионов скандия различной валентности. Алюминий в трехвалентном состоянии

(конфигурация $1s^2 2s^2 2p^6$) имеет полностью заполненный 8-мью электронами внешний уровень ($s^2 + p^6$), который энергетически выгоднее незавершенного [8]. Известно, что в процессе выращивания кристаллов могут быть потери Al_2O_3 на испарение; в [9] над поверхностью расплава наблюдались пары субоксидов AlO , Al_2O , AlO_2 и Al_2O_2 . Церий — второй элемент ряда лантанидов (конфигурация $[Xe]4f^1 5d^1 6s^2$) и валентными являются четыре внешних электрона. У большинства лантаноидов валентными являются только три электрона, так как остальные $4f$ -электроны слишком сильно связаны. Церий является исключением из-за стабильности пустой f -оболочки иона Ce^{4+} и того факта, что он находится в начале лантаноидного ряда, где заряд ядра все еще достаточно низок, чтобы можно было удалить четвертый валентный электрон химическим путем [10].

На основе GSAG с различными активаторными ионами (GSAG:Nd, GSAG:Nd,Cr, GSAG:Er, GSAG:Er,Pr, созданы лазерные кристаллы, которые характеризуются высокой радиационной стойкостью (см., например работу [11] и ссылки в ней). Оптические и сцинтилляционные свойства кристаллов GSAG, легированных церием, впервые были изучены в работе [12], в которой исследованы сцинтилляционные отклики при облучении кристаллов γ -лучами и нейтронами. Константы затухания оказались равны 114 ± 1 и 122 ± 1 нс при возбуждении α -частицами и γ -лучами, соответственно. В работе [13] улучшение эффективности генерации белого света в светодиодных устройствах достигнуто увеличением яркости люминофора за счет использования вместо YAG поликристаллов GSAG:Ce, полученных твердофазным синтезом. Повышение прозрачности в области излучения и радиационной стойкости кристаллов GSAG:Ce достигнуто введением дополнительных примесей (Li, Mg) [14].

Кристаллы GSAG имеют разупорядоченную структуру с широкой областью гомогенности. Ионы Sc могут заполнять все октаэдрические узлы решетки, а ионы Al не более 20% октаэдрических узлов; концентрация ионов Gd в додекаэдрических узлах может меняться в пределах 2.85–2.93 формульных единиц. Поэтому реальный состав кристаллов может быть описан в виде $\{Gd_{3-x}Sc_x\}[Sc_{2-y}Al_y](Al_3)O_{12}$ [15].

Целью настоящей работы являлось исследование абсорбционно-люминесцентного поведения ионов Ce^{3+} в кристаллах и поликристаллах GSAG:Ce. Идентифицированы центры ионов Ce^{3+} в ближайшем окружении которых находятся октаэдры с различным сочетанием ионов Sc^{3+} и Al^{3+} , а также октаэдрические центры ионов Ce^{3+} .

2. Используемые материалы и методы исследования

Монокристаллы были выращены из расплавов с формульным составом $\{Gd_{3-x}Ce_x\}[Sc_2](Al_3)O_{12}$ методом направленной вертикальной кристаллизации (метод Бриджмена) в молибденовых контейнерах диаметром 14 мм в инертно-восстановительной среде (Ar/H_2). В качестве исходных компонент использовались высокочистые (99.99%) оксиды Gd_2O_3 , Sc_2O_3 , Al_2O_3 и CeO_2 , которые предварительно обжигались на воздухе при температуре $1200^\circ C$ в течение 6 часов. Температура плавления GSAG:Ce $\sim 1820^\circ C$. Концентрация ионов Ce в расплаве составляла от 0.2 до 2.5 ат%. Керамические образцы готовились твердофазным синтезом из порошков оксидов Gd_2O_3 , Sc_2O_3 , Al_2O_3 и Ce_2O_3 с концентрацией

ионов Ce^{3+} , равной 1 ат%. Тщательно перемешанная смесь прессовалась в таблетки диаметром 20 мм, которые подвергались термообработке на воздухе в течение 12 часов при 1200°C .

Абсорбционно-люминесцентные исследования проводились с использованием спектрофотометров SPECORD M40 ($54000\text{--}11000\text{ см}^{-1}$), SPECORD M80 ($2000\text{--}400\text{ см}^{-1}$) и спектрометра ДФС-24 ($360\text{--}800\text{ нм}$). Люминесценция возбуждалась галогенными лампами (“PHILIPS”, 100 Вт) с использованием оптических фильтров. Возбуждающее излучение фокусировалось собирающей линзой на плоской поверхности образца, перпендикулярной направлению регистрации полученного излучения, которое посредством кварцевого светодиода подавалось на входную щель спектрометра.

3. Результаты и обсуждение

3.1. Внутриконфигурационные переходы ($4f \rightarrow 4f$)

Спектр кристалла GSAG:Ce (рис.1а) перехода $^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$ полос поглощения ионов Ce^{3+} , занимающих додекаэдрические узлы, начинается с наиболее интенсивной полосы на 2.63 мкм и заканчивается непосредственно на краю валентной зоны. Схожесть нормированных спектров поглощения на переходе $^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$ кристаллов GSAG:Ce и YAG:Ce [16] хорошо видна на рис.1; при этом поглощение основания спектра додекаэдрических центров активатора несколько выше у кристаллов GSAG:Ce. Для определения штарковского расщепления мультиплетов $^2F_{5/2}$ и $^2F_{7/2}$ ионов Ce^{3+} переходов $4f \rightarrow 4f$ рассмотрим одновременно спектральное поведение кристалла YAG:Ce [16].

На рис.2 представлены спектры нормированных полос поглощения ионов Ce^{3+} на переходе $^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$ в кристалле GSAG:Ce и в кристалле YAG:Ce (из [16]). По сравнению с кристаллом YAG:Ce, весь спектр додекаэдрических центров Ce^{3+} в GSAG:Ce смещен в сторону низких энергий. Непосредственно перед

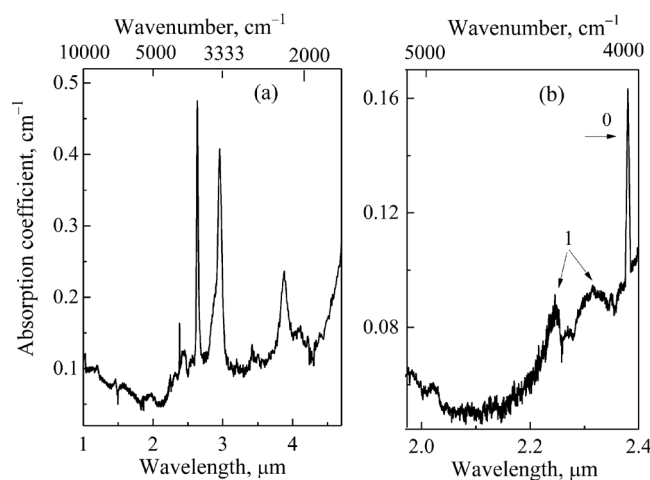


Рис.1. (а) Спектр поглощения кристалла GSAG:Ce в области 1–4.7 мкм. (б) Спектр поглощения октаэдрических центров ионов Ce^{3+} (0) и (1) (отмечены стрелками); наиболее интенсивная полоса центра (0) наблюдалась и в кристалле YAG:Ce [16].

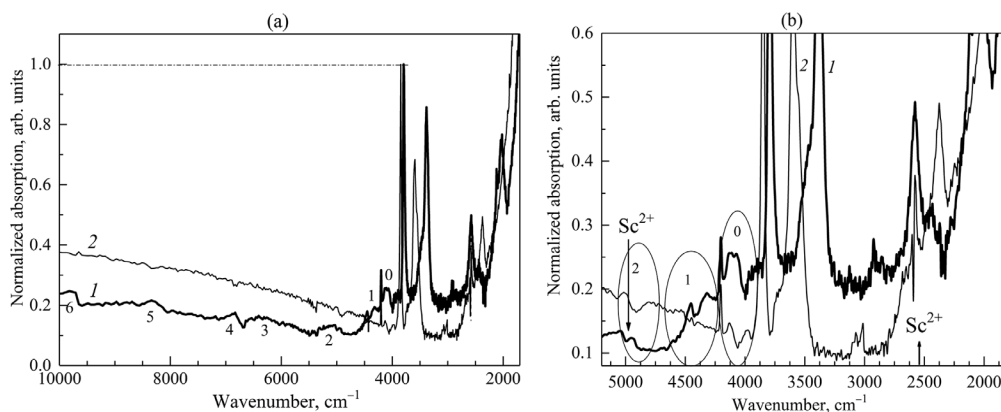


Рис.2. (а) Спектры нормированного $4f \rightarrow 4f$ поглощения кристаллов GSAG:Ce 2.5 ат% (1) и YAG:Ce 0.66 ат% (2) в области переходов $^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$ ионов Ce^{3+} . (б) Фрагмент спектров, где отмечены области полос поглощения ионов Ce^{3+} , занимающих октаэдрические позиции (центры 0, 1, 2) в GSAG:Ce (1), а также центр 0 в кристалле YAG:Ce (2).

спектром додекаэдрических центров ионов Ce^{3+} в GSAG:Ce наблюдается коротковолновая группа полос, которая, согласно данным [16], соответствует центрам ионов Ce^{3+} , занимающих октаэдрические узлы (рис.1 и 2).

В кристалле GSAG:Ce полосы поглощения октаэдрического центра (0) перекрываются с наиболее интенсивной полосой поглощения додекаэдрических центров ионов Ce^{3+} . Следующий октаэдрический Ce^{3+} -центр (1) (рис.2б), содержит, по-видимому, в своем окружении как минимум один ион Sc^{3+} ($r_{\text{ScVI}} = 0.745 \text{ \AA}$), ионный радиус которого почти в полтора раза превышает радиус иона Al^{3+} ($r_{\text{AlVI}} = 0.535 \text{ \AA}$) [17]. Увеличение объема октаэдра приводит к небольшому сжатию, как соседних октаэдров, так и додекаэдрического узла. Соответственно, происходит изменение силы кристаллического поля. Увеличение числа ионов Sc^{3+} в ближайшем окружении октаэдрических центров Ce^{3+} последовательно повышает энергию этих ионов. В результате, в области $4590\text{--}10000 \text{ см}^{-1}$ поглощение матрицы GSAG:Ce значительно меньше (примерно на 25% в области 10000 см^{-1}), чем в кристалле YAG:Ce (рис.2а). Ширина максимально интенсивной полосы поглощения на 3815 см^{-1} равна 43 см^{-1} в кристалле GSAG:Ce, в то время как в YAG:Ce она почти в полтора раза уже (29 см^{-1}).

На рис.3 более подробно показаны причины появления дополнительного поглощения полос активатора в кристалле GSAG:Ce по сравнению с YAG:Ce. Начальная полоса поглощения ионов Ce^{3+} в YAG:Ce (рис.3а) со стороны высокоэнергетического крыла асимметрична из-за полосы октаэдрического узла активатора (рис.2б). Та же полоса в кристалле GSAG:Ce в 1.48 раза шире, чем в YAG:Ce (рис.3а), заметно ассиметрична и легко раскладывается на две гауссовские компоненты, (1) и (2) с максимумами на 3795 и 3781 см^{-1} , соответственно (рис.3б). Максимальная интенсивность полос отличается вдвое, а площади под ними почти совпадают. Из полученных результатов можно заключить, что симметричная форма полосы (1) в кристалле GSAG:Ce образуется ионами Ce^{3+} , находящимися вблизи октаэдров, содержащих только ионы Sc^{3+} . Полоса (2) на 3781 см^{-1} (рис.3) в

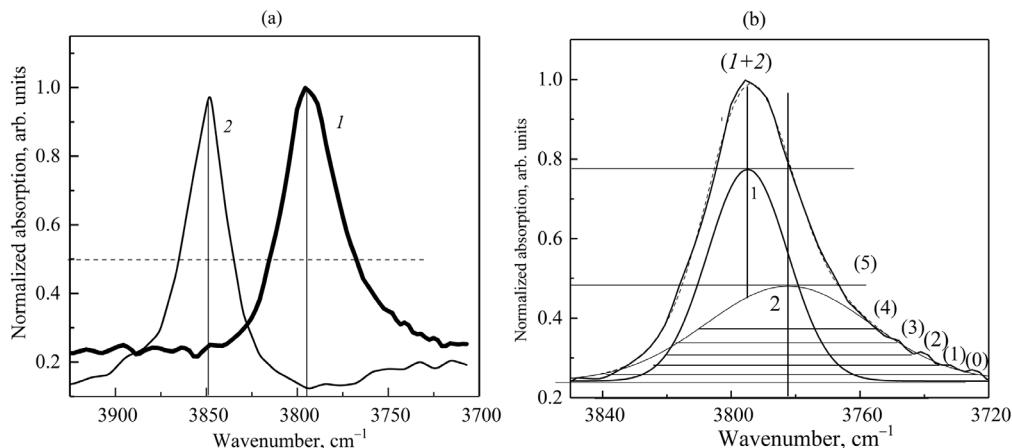


Рис.3. (а) Полосы поглощения ионов Ce^{3+} в кристаллах GSAG:Ce (1) и YAG:Ce (2). (б) Полоса поглощения ионов Ce^{3+} в кристалле GSAG:Ce и ее разложение в две гауссовские компоненты: компонента (1) – полоса иона Ce^{3+} в додекаэдре, образованном октаэдрами только с ионами Sc^{3+} , и компонента (2) – полоса иона Ce^{3+} в додекаэдрах, образованных октаэдрами с ионами: (0) – Al^{3+} , (1) – 5 Al^{3+} и 1 Sc^{3+} , (2) – 4 Al^{3+} и 2 Sc^{3+} , (3) – 3 Al^{3+} и 3 Sc^{3+} , (4) 2 Al^{3+} и 4 Sc^{3+} , (5) – 1 Al^{3+} и 5 Sc^{3+} . Горизонтальными линиями отмечены возможные интенсивности рассматриваемых полос.

кристалле представляет собой сумму шести полос активаторов (от 0 до 5), находящихся вблизи различных октаэдров. Состав октаэдров и спектральное положение ионов Ce^{3+} можно оценить по интенсивностям каждой из составляющих на коротковолновом крыле этой полосы. Полоса (0) представляет собой сумму полос активатора, находящихся вблизи различных октаэдров (0), не содержащих ионы Sc^{3+} и образованных только ионами Al^{3+} (~8% Ce^{3+}). Максимум отмеченной полосы находится на 3832 см^{-1} (рис.3б). Последующие полосы ионов Ce^{3+} образуются наличием одного иона Sc^{3+} (~9.5%), затем двух (2) (~16% Ce^{3+}), трех (3) (~21.5% Ce^{3+}), четырех (4) (~21.5% Ce^{3+}) и пяти (5) (~50% Ce^{3+}) ионов Sc^{3+} . Наложение полос ионов Ce^{3+} , занимающих октаэдры с изменяющимся содержанием ионов Sc^{3+} , приводит к уширению и смещению пика полосы (2) иона Ce^{3+} (рис.3б).

Табл.1. Энергетическая структура уровней $4f^1$ конфигурации додекаэдрических ионов Ce^{3+} в кристалле GSAG:Ce (2.5 ат%) при 300 К

Основное состояние $^2F_{5/2}$	№ уровня	Энергия уровня, см^{-1}	Переходы ионов Ce^{3+} в кристалле GSAG:Ce					
	1	0	Додекаэдрический узел иона Ce^{3+}					
	2	411	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}
	3	471						
Состояние $^2F_{7/2}$	4	2270	1 → 4	2270	2 → 4	1859	3 → 4	1799
	5	2432	1 → 5	2432	2 → 5	2021	3 → 5	1961
	6	2577	1 → 6	2577	2 → 6	2166	3 → 6	2106
	7	3795	1 → 7	3795	2 → 7	3384	3 → 7	3324

Табл.2. Энергетическая структура уровней $4f^1$ конфигурации октаэдрических ионов Ce^{3+} в кристалле GSAG:Ce (2.5 ат%)

Основное состояние $^2F_{5/2}$	Номер уровня	Энергия уровня, см^{-1}	Переходы ионов Ce^{3+} в кристалле GSAG:Ce					
	1	0	Октаэдрический узел иона Ce^{3+} (№ 0)					
	2	75	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}
	3	93						
Состояние $^2F_{7/2}$	4	4021	$1 \rightarrow 4$	4021	$2 \rightarrow 4$	3946	$3 \rightarrow 4$	3928
	5	4047	$1 \rightarrow 5$	4047	$2 \rightarrow 5$	3971	$3 \rightarrow 5$	3954
	6	4075	$1 \rightarrow 6$	4075	$2 \rightarrow 6$	4000	$3 \rightarrow 6$	3902
	7	4202	$1 \rightarrow 7$	4202	$2 \rightarrow 7$	4127	$3 \rightarrow 7$	4109
Основное состояние $^2F_{5/2}$	Номер уровня	Энергия уровня, см^{-1}	Переходы ионов Ce^{3+} в кристалле GSAG:Ce					
	1	0	Октаэдрический узел иона Ce^{3+} (№ 1)					
	2	52	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}
	3	71						
Состояние $^2F_{7/2}$	4	4319	$1 \rightarrow 4$	4319	$2 \rightarrow 4$	4262	$3 \rightarrow 4$	4258
	5	4346	$1 \rightarrow 5$	4346	$2 \rightarrow 5$	4289	$3 \rightarrow 5$	4275
	6	4368	$1 \rightarrow 6$	4368	$2 \rightarrow 6$	4311	$3 \rightarrow 6$	4297
	7	4450	$1 \rightarrow 7$	4450	$2 \rightarrow 7$	4393	$3 \rightarrow 7$	4380

в низкоэнергетическую область спектра. Октаэдрические (0)-узлы активатора находятся непосредственно перед основным спектром (рис.2а). Можно предположить, что перед ним находится октаэдр (1), где один ион Al^{3+} замещен ионом Sc^{3+} и т. д., до их полного замещения ионами Ce^{3+} . Таким образом несмотря на то, что кристаллы выращены из расплавов, соответствующих формуле $\{\text{Gd}_{3-x}\text{Ce}_x\}[\text{Sc}_2](\text{Al}_3)\text{O}_{12}$, где предполагается замещение в додекаэдрических узлах части ионов Gd^{3+} ионами Ce^{3+} и нахождение ионов Sc^{3+} и Al^{3+} соответственно в октаэдрических и тетраэдрических узлах, спектральные исследования показали нарушение в распределении активаторных ионов, а также катионов основы по узлам кристаллической решетки. Последнее находится в согласии с данными работы [15].

Количество октаэдрических центров ионов Ce^{3+} зависит от концентрации, например, в кристалле YAG:Ce (0.12 ат%) 26% ионов Ce^{3+} находится в октаэдрах, а в кристалле YAG:Ce (0.22 ат%) их количество уменьшается до 3–6% [16]. Наличие качественно различных додекаэдрических узлов активатора может ускорить достижение зоны проводимости кристалла GSAG:Ce. Таким образом, из спектров поглощения додекаэдрических центров ионов Ce^{3+} в кристалле GSAG:Ce, идентифицированы переходы $^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$ и определены энергии уровней основного $F_{5/2}$ и возбужденного $F_{7/2}$ состояний (табл.1). Также получены аналогичные данные для двух октаэдров кристалла GSAG:Ce (2.5 ат%) (табл.2). Учитывая, что каждая полоса поглощения ионов Ce^{3+} содержит семь несколько смещенных по-

лос, уровни энергии определялись по максимуму поглощения либо по центру полосы.

3.2. Межконфигурационные переходы ионов Ce^{3+} ($4f^1 5d^0 \rightarrow 4f^0 5d^1$)

Переходы между уровнями основного состояния $^2F_{5/2}$ ($4f$) и уровнями $^2D_{3/2}$, $^2D_{5/2}$ ($5d$) ионов Ce^{3+} относятся к межконфигурационным переходам $4f^1 5d^0 \leftrightarrow 4f^0 5d^1$ активатора и обеспечивают взаимосвязь активатора с зоной проводимости кристалла. В кристалле GSAG:Ce (0.2 ат%) энергетическое положение штарковских уровней $^2D_{3/2}$ и $^2D_{5/2}$ оболочки $5d$ определяется разрешенными полосами поглощения на 22234 и 29275 cm^{-1} перехода $^2F_{5/2} \rightarrow ^2D_{3/2}$. Спектр поглощения представлен на рис.4.

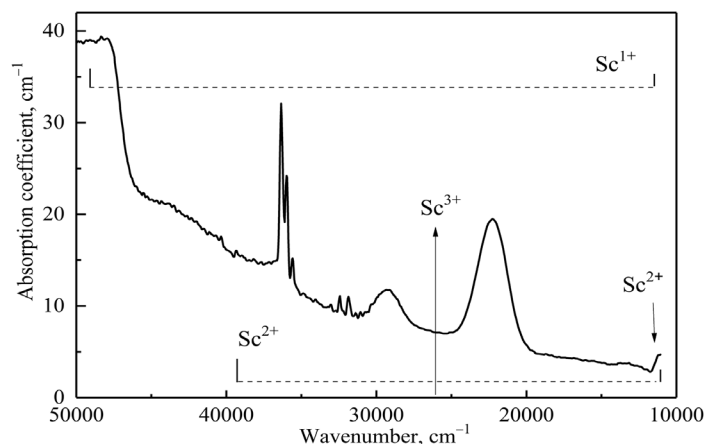


Рис.4. Спектр поглощения кристалла GSAG:Ce (0.2 ат%). На спектре отмечены области поглощения ионов Sc^{1+} , Sc^{2+} и Sc^{3+} .

Как следует из рисунка, непосредственно перед полосой 29275 cm^{-1} иона Ce^{3+} наблюдаются сравнительно слабые полосы поглощения ионов Gd^{3+} на 31869 и 32453 cm^{-1} , обусловленные переходами с основного состояния $^8S_{7/2}$ на уровни мультиплета 6P_J . Наиболее интенсивные полосы поглощения ионов Gd^{3+} в области 35900–36000 cm^{-1} связаны с переходами $^8S_{7/2} \rightarrow ^6I_J$. Следующая видимая на спектре известная группа уровней находится в области 40000–41000 cm^{-1} и соответствует переходу $^8S_{7/2} \rightarrow ^6D_J$. Наличие тех либо иных дефектов может спровоцировать присутствие ионов Sc с различной валентностью. Таким образом, почти вся область полос поглощения ионов Ce^{3+} на переходе $^2F_{5/2} \rightarrow ^2D_{5/2}$, оказывается перекрытой полосами поглощения ионов Gd^{3+} и Sc. Можно предположить, что две полосы этого перехода ионов Ce^{3+} находятся на 40570 и 43949 cm^{-1} , а третья – в пределах поглощения переходов $^8S_{7/2} \rightarrow ^6G_J$ ионов Gd^{3+} и в области поглощения ионов Sc (рис.4). По аналогии с кристаллами YAG:Ce [16], в кристалле GSAG:Ce в области 33333–39300 cm^{-1} находятся полосы октаэдрических центров ионов Ce^{3+} . Поглощение в области 50000–47152 cm^{-1} обусловлено высокой интенсивностью полос перехода $^8S_{7/2} \rightarrow ^6G_{7/2}$ и с перекрытием наиболее интенсивных семи полос различных изотопов ионов Gd^{3+} (рис.3b).

Из начального спектра на рис.5а видно, что максимум наиболее интенсивной полосы поглощения ионов Ce^{3+} в кристалле GSAG:Ce находится на 22280 cm^{-1} . Непосредственно после облучения кристалла УФ-излучением ртутной лампы

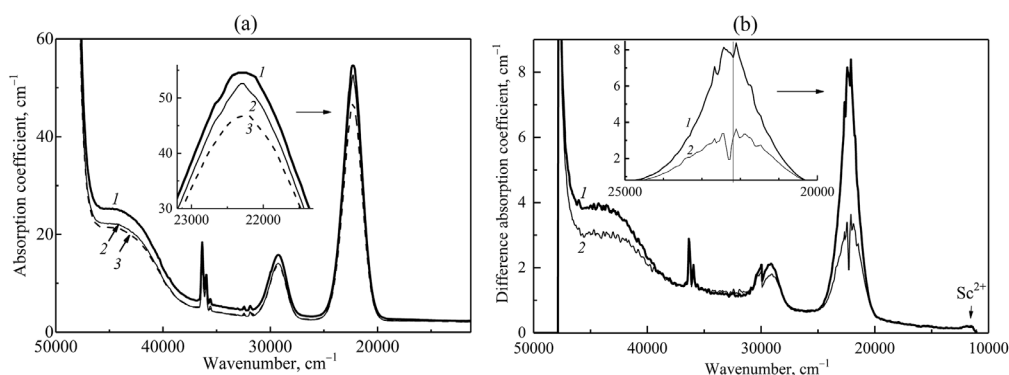


Рис.5. (а) Влияние УФ излучения ртутной лампы на поглощение кристалла GSAG:Ce – начальный спектр (1), спектр после облучения (2) и спектр через день после облучения (3). Вставка – изменение формы полосы на 22234 cm^{-1} . (б) Разностные спектры облученных кристаллов и через день после облучения. Вставка – внутренний состав полосы на 22234 cm^{-1} .

полоса поглощения проявляется на 22293 cm^{-1} , а интенсивность всего спектра уменьшается. Долю уменьшения поглощения во всей области полос ионов Ce^{3+} демонстрируют разностные спектры на рис.5б. Так, например, коэффициент поглощения полосы на 22234 cm^{-1} уменьшается на 8.4 cm^{-1} . Однако уже через день после облучения начальный спектр частично восстанавливается, а внутри полосы обнаруживается ряд полос с отрицательной амплитудой. При облучении УФ излучением ртутной лампы возможно изменение валентности части ионов Ce^{3+} на Ce^{4+} , а также валентности иона Sc^{3+} на Sc^{2+} , полоса которого находится на 11700 cm^{-1} (рис.4 и рис.5б); в области полосы поглощения иона Ce^{3+} на 22234 cm^{-1} полосы ионов Sc^{2+} отсутствуют. И наоборот, вторая по интенсивности полоса поглощения ионов Ce^{3+} на 29275 cm^{-1} перекрыта полосами ионов Sc^{2+} , что отчетливо видно на рис.6, особенно, в области 30876 cm^{-1} . Полученные данные о спектральном положении составляющих рассмотренных полос, приведены в

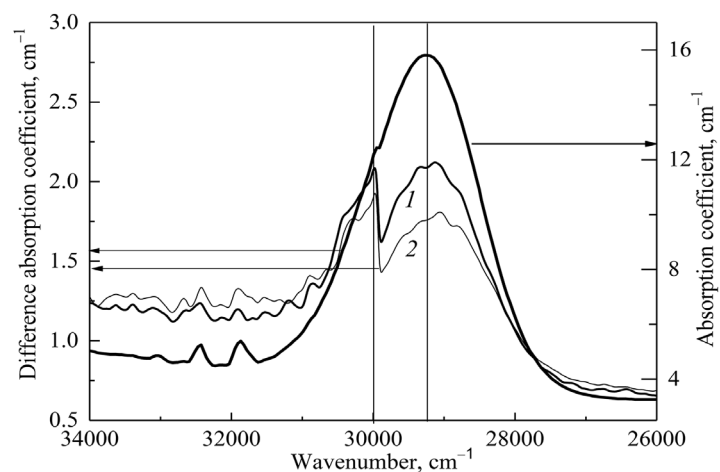


Рис.6. Область поглощения полосы на $\sim 29228 \text{ cm}^{-1}$ в кристалле GSAG:Ce (правая ось ординат). Разностные спектры облученных кристаллов (1) и через день после облучения (2) (левая ось ординат).

табл.3. Оставшиеся три $4f^1 5d^0 \rightarrow 4f^0 5d^1$ перехода (${}^2F_{5/2} \rightarrow {}^2D_{7/2}$) иона Ce^{3+} находятся в области $\square 46942\text{--}40442 \text{ см}^{-1}$, предположительно на 40728, 42222 и 44042 см^{-1} (рис.4).

Табл.3. Энергетическая структура уровней $4f^1$ конфигурации октаэдрических ионов Ce^{3+} в кристалле GSAG:Ce (2.5 ат%)

Sc	Состав полосы 29275 см^{-1}	Состав полосы 22234 см^{-1}	Расстояние между полосами см^{-1}
0	30168	23573	6595
1	29896	23258	6638
2	29784	22981	6803
3	29475	22570	6905
4	29246	22295	6951
5	29065	21769	7296
6	28783	21611	7172

3.3. Люминесценция ионов Ce^{3+} в GSAG:Ce

Структура полос люминесценции ионов Ce^{3+} в кристаллах GSAG:Ce зависит от размера исследуемого образца. На рис.7 приведены спектр поглощения в области 32000–16000 см^{-1} (левая ось ординат) и спектры люминесценции (правая ось ординат) кристаллов различной толщины. Кроме того на рис.7 приведен спектр поликристаллического образца, который позволяет определить частичный спектр люминесценции полосы поглощения на 29228 см^{-1} и полный спектр люминесценции полосы на 22280 см^{-1} . Отсутствие полосы люминесценции на 29228 и, частичное на 22280 см^{-1} , в кристаллических образцах происходит из-за их полного или частичного поглощения. Однако в спектрах люминесценции полосы 22280 см^{-1} в поликристаллическом образце отчетливо наблюдаются две группы полос люминесценции. Расшифровка полос люминесценции проводилась с учётом структуры уровней состояния ${}^2F_{7/2}$ (табл.1 и 2). При возбуждении на 29228 см^{-1} (переход ${}^2D_{3/2} \rightarrow {}^2F_{7/2}$) наблюдается люминесценция в области 27898–24402 см^{-1} , которая перекрывается с излучением на 22280 см^{-1} на переходе ${}^2D_{3/2} \rightarrow {}^2F_{5/2}$ (рис.7). Люминесценция перехода ${}^2D_{3/2} \rightarrow {}^2F_{7/2}$ также образуется суммой семи полос люминесценции (от 0 до 6) (табл.4). Положение уровня состояния ${}^2F_{7/2}$ определяется в соответствии с данными рис.3b; 3795 см^{-1} для ионов Ce^{3+} , находящихся в окружении только скандиевых октаэдров, и 3781 см^{-1} для остальных узлов.

В отличие от поликристаллического образца полосы люминесценции ионов Ce^{3+} получены только на переходе ${}^2D_{3/2} \rightarrow {}^2F_{7/2}$, а также наблюдается люминесценция октаэдрических центров ионов Ce^{3+} (рис.8). При одинаковых размерах образцов и условиях возбуждения люминесценции, для кристаллов с большей концентрацией активатора наблюдается увеличение интенсивности излучения ионов Ce^{3+} (рис.8а) и смещение максимума полосы. Полосы люминесценции кристаллов с низкой концентрацией активатора (0.2 ат%) и кристаллов с содержанием Ce^{3+} более 0.5 ат% отличаются как по форме, так и по интенсивности. На

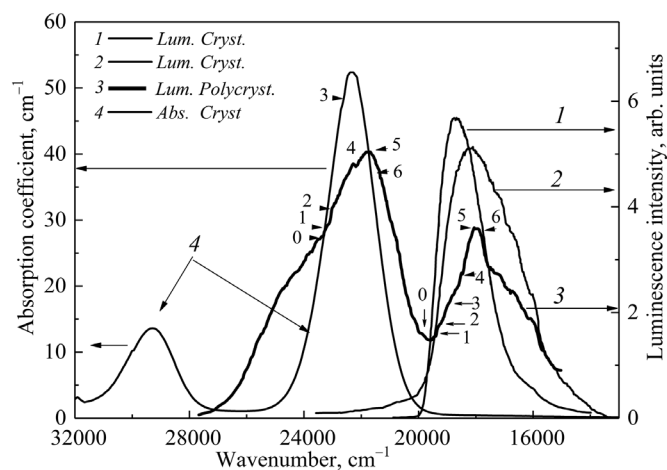


Рис.7. Спектры поглощения и люминесценции ионов Ce^{3+} в кристалле GSAG:Ce (0.2%). Правая ось ординат – интенсивность люминесценции ионов Ce^{3+} в кристаллах GSAG:Ce (1 – $d = 3$ и 2 – $d = 6$ мм) и 3 – в поликристаллическом образце. Цифрами от 0 до 6 отмечены полосы люминесценции на переходе $4f5d \rightarrow {}^2F_{5/2}$ и на переходе $4f5d \rightarrow {}^2F_{7/2}$.

рис.8b видно, что при минимальной концентрации активатора, значительную долю полосы люминесценции составляет излучение октаэдрических центров ионов Ce^{3+} . В кристаллах, содержащих 0.5 и 2.5 ат% Ce^{3+} , влияние октаэдрических центров ионов Ce^{3+} ощущается слабо (рис.8b).

Табл.4. Полосы люминесценции додекаэдрических ионов Ce^{3+} на переходах ${}^2D_{3/2} \rightarrow {}^2F_{5/2}$, ${}^2F_{7/2}$ и полосы люминесценции октаэдрических узлов ионов Ce^{3+}

Sc	${}^2D_{3/2} \rightarrow {}^2F_{5/2}$ см ⁻¹	${}^2F_{7/2}$ см ⁻¹	${}^2D_{3/2} \rightarrow {}^2F_{7/2}$ см ⁻¹	Люминесценция октаэдрических ионов Ce^{3+} , см ⁻¹
0	23573	3781	19778	17411
1	23258	3781	19477	17319
2	22981	3781	19200	17220
3	22570	3781	18789	16950
4	22295	3781	18514	16692
5	21769	3781	17988	16319
6	21611	3795	17830	16065

Полуширина полосы люминесценции кристалла с содержанием 0.2 ат% ионов Ce^{3+} в 1.7 раза больше полуширины полос кристаллов, содержащих 0.5 и 2.5 ат% Ce^{3+} (рис.8b). Уширение отмеченной полосы люминесценции с высокоэнергетической стороны обусловлено низкой интенсивностью полосы поглощения на $\sim 22234 \text{ см}^{-1}$, что уменьшает их перекрытие. А уширение со стороны низкоэнергетического крыла обусловлено значительным излучением октаэдрических ионов Ce^{3+} . Увеличение концентрации активатора повышает интенсивности полос излучения в 2.3 и 1.7 раза. Как следует из рис.8b, полуширина полос

люминесценции не изменяется с увеличением содержания ионов Се от 0.5 до 2.5 ат%, в то время как в кристалле с концентрацией 0.2 ат%, полуширина полосы люминесценции больше в 1.7 раз.

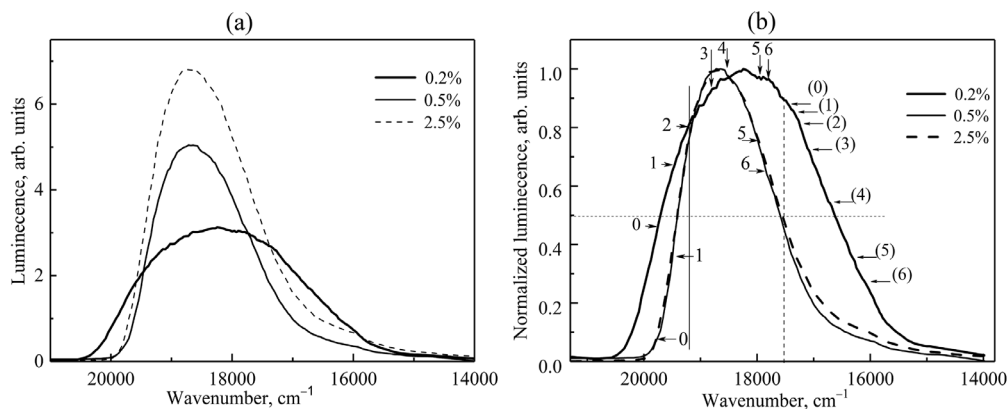


Рис.8. (а) Спектры люминесценции кристаллов GSAG:Ce (0.2, 0.5 и 2.5 ат%) ($d = 0.3$ см); (b) – нормированные спектры отмеченных кристаллов, где указаны положения додекаэдрических и в скобках октаэдрических полос люминесценции.

4. Заключение

Исследовались монокристаллы GSAG:Ce, выращенные методом вертикальной направленной кристаллизации (метод Бриджмена) из расплавов, соответствующих формуле $\{Gd_{3-x}Ce_x\}[Sc_2](Al_3O_{12})$. Спектральные исследования кристаллов показали возможность перераспределения по узлам кристаллической решетки не только для активаторного иона, но и ионов, входящих в состав кристаллической основы. Примерно половина ионов Ce^{3+} находится в додекаэдрическом окружении скандиевых октаэдров, а другая часть занимает додекаэдрические позиции кристалла в окружении октаэдров образованных различным сочетанием ионов Sc^{3+} и Al^{3+} , а также в окружении только алюминиевых октаэдров. Предложено, что ионы Ce^{3+} в кристалле GSAG:Ce находятся в семи различных додекаэдрических центрах, что подтверждается наличием семи различных спектров поглощения Ce^{3+} в области $4000-10000\text{ см}^{-1}$.

При низких концентрациях ионов Ce^{3+} (0.2 ат%) активаторные ионы, наряду с ионами Gd^{3+} и Sc^{3+} изменяя свою валентность на Ce^{4+} , Gd^{2+} и Sc^{2+} частично компенсируют как зарядовые, так и структурные нарушения кристалла. Более того, почти треть ионов Ce^{3+} находится в октаэдрических позициях кристалла. Повышение концентрации ионов Ce^{3+} до 0.5 до 2.5 ат% стабилизирует форму полосы излучения и увеличивает интенсивность излучения в 1.35 раз.

Работа выполнена при поддержке Государственного Комитета по науке Республики Армения (проект 21AG-1C030).

ЛИТЕРАТУРА

1. Б.И. Коган. Природа, **12**, 26 (1961).
2. J. Meija, T.B. Coplen, M. Berglund, W.A. Brand, P. De Bièvre, M. Gröning et al. Pure and Applied Chemistry, **88**, 293 (2016).

3. **Э.П Лисаченко.** Радиационная гигиена, **6**, 44 (2013).
4. **R.C. Vickery.** Chemistry of Lantanous. London, 1953.
5. **Д.Н.Трифонов.** Редкоземельные элементы и их место в периодической системе. Недра, 1966.
6. **С.С. Коровин, П.И. Федоров, И.В. Шахно, З.Н. Шевцова.** Химия и технология редких и рассеянных элементов. Часть 2. Высшая школа, 1976.
7. **J. Sugar, C. Corliss.** J. Physical and Chemical Reference Data, **9**, 473 (1980).
8. **А. В. Мануйлов, В. И. Родионов.** Основы химии. Интернет-учебник, Новосибирск, НГУ, 1998. <http://www.hemi.nsu.ru/index.htm>.
9. **M. Farber, D. Srivastava, O. M. Uy,** J. Chem. Soc. Faraday Transaction 1, Physical Chemistry in Condensed Phases, **68**, 249 (1972).
10. **C.K. Jørgensen.** Angewandte Chemie International Edition in English, **12**, 12–19 (1973). doi:10.1002/anie.197300121.
11. **S. Ding, H. Wang, W. Liu, J. Luo, Y. Ma, Q. Zhang,** J. Lumin. **213**, 249 (2019).
12. **A. Kling, D. Kollwe, D. Mateika.** Nucl. Instr. and Meth. in Phys Research, A, **346**, 205 (1994).
13. **L. Devys, G. Dantelle, G. Laurita, E. Homeyerd, I. Gautier-Luneau, Ch. Dujardin, R. Seshadri, Th. Gacoin.** J, Lumin, **190**, 62 (2017).
14. **K.L. Hovhannesian, M.V. Derdzian, I.A. Ghambaryan, T. I. Butaeva, C. Dujardin, A.G. Petrosyan,** Phys. Status Solidi A, **220**, 2300386 (2023).
15. **E.V. Zharikov, D.A. Lis, K.A. Subbotin, V Dudnikova, O. Zaitseva.** Acta Physica Polonica, **124**, 274 (2013).
16. **Т.И Бутаева, К.Л. Ованесян, А.В. Еганян.** Изв. НАН Армении. Физика, **58**, 576 (2023).
17. **R.D. Shannon.** Acta Cryst., A, **32**, 751 (1976).

SPECTRAL PROPERTIES OF GSAG:Ce CRYSTALS

T.I. BUTAEVA, A.V. YEGANYAN

This paper discusses the optical properties of multicenter GSAG:Ce crystals grown by vertically directed crystallization and polycrystalline samples prepared by solid state reactions. The absorption and luminescence bands of Ce^{3+} ions in the GSAG:Ce crystal are formed by seven different activator centers. Almost half of the activator ions occupy dodecahedral sites surrounded by six octahedra occupied by Sc^{3+} ions. The second part of Ce^{3+} ions is surrounded by octahedra with various combinations of Sc^{3+} ions and Al^{3+} ions, as well as only Al^{3+} ions. The shape of the luminescence band ($\sim 18700 \text{ cm}^{-1}$) of Ce^{3+} ions of GSAG:Ce crystals containing from 0.5 to 2.5 at% of the activator is stably preserved, and the emission intensity increases with increasing concentration of Ce^{3+} .

**К ВОПРОСУ О ПРИМЕНИМОСТИ АЛГОРИТМОВ
РЕКОНСТРУКЦИИ КОМПЬЮТЕРНОЙ ТОМОГРАФИИ (КТ)
К ЧИСЛЕННО СИНТЕЗИРОВАННЫМ ОБЪЕКТАМ ДЛЯ
АНАЛИЗА ОБРАЗЦОВ, ИЗГОТОВЛЕННЫХ
МЕТОДОМ 3D-ПЕЧАТИ**

А.В. ШАХВЕРДЯН¹, В.В. МАРГАРЯН^{1*}, Ю.М. ЧЕРЕПЕННИКОВ^{1,2},
К.Г. ТРУНИ¹, С.Н. НОРЕЯН¹, А.М. МАМЯН¹, Р.К. МИРЗОЯН¹,
А.А. САМСОНИАН¹, В.Р. КОЧАРЯН¹

¹Институт прикладных проблем физики НАН Армении, Ереван, Армения

²Томский Политехнический Университет, Томск, Россия

*e-mail: mar.vardan84@gmail.com

(Поступила в редакцию 14 мая 2025 г.)

В работе демонстрируется алгоритм для моделирования КТ-изображений различных объектов, изготовленных с помощью 3D-печати, позволяющий сравнивать результаты, полученные с помощью численного моделирования и физического КТ экспериментов. Применение численного моделирования позволяет проводить анализ процесса КТ-визуализации и помогает в разработке и валидации алгоритмов реконструкции. Показано, что такой алгоритм потенциально может быть полезен для анализа дефектов образцов, изготовленных с применением 3D-печати, при исследовании с использованием КТ и позволяет отличить дефекты печати от заданного шаблона заполнения образцов.

1. Введение

Компьютерное моделирование стало бесценным инструментом в области компьютерной томографии (КТ) для прогнозирования и анализа результатов эксперимента. КТ является продвинутым методом неразрушающего контроля, который позволяет понять внутреннюю структуру различных образцов, не повреждая их [1, 2]. В ходе КТ эксперимента рентгеновские лучи проходят через образец, и их интенсивность после взаимодействия с образцом регистрируется матричным детектором. Полученные таким образом двумерные проекции трехмерного образца обрабатываются с использованием математических преобразований, таких как обратное преобразование Радона, с целью реконструкции линейной функции поглощения $\mu(x,y)$, соответствующей образцу [3, 4]. Для трехмерной реконструкции исходной функции $\mu(x,y)$ могут использоваться различные алгоритмы. Проверки эффективности таких алгоритмов могут проводиться с использованием образцов сложной формы, что имеет решающее значение, как в экспериментальных исследованиях, так и в исследованиях с применением компьютерного

моделирования. С момента первоначального развития рентгеновской томографии одной из постоянных проблем было достижение достаточного контраста в проекциях, полученных от образцов, особенно состоящих из легких элементов [5]. Эта проблема в первую очередь возникает из-за двух факторов: полихроматической природы рентгеновских трубок, обычно используемых в лабораторных и промышленных сканерах, и ограниченного динамического диапазона стандартных плоскопанельных детекторов. Традиционно эта проблема частично решалась путем ужесточения рентгеновского спектра с помощью плоских фильтров из таких материалов, как алюминий или медь, которые служат для удаления более мягкой, низкоэнергетической части спектра. В некоторых случаях улучшение контраста достигается за счет использования полосовых фильтров для жесткого рентгеновского излучения, например, на основе кварцевых монокристаллов при наличии внешних воздействий [6]. Другой метод предполагает использование компенсирующих фильтров специальной формы, изготовленных из материалов с плотностью, сопоставимой с плотностью образца [7]. Такие фильтры значительно улучшают качество изображения; в частности, применение компенсирующего фильтра может увеличить отношение сигнал/шум реконструированных томограмм в сравнении с обычными плоскими алюминиевыми фильтрами.

Развитие технологий быстрого прототипирования в настоящее время позволяет просто и быстро создавать образцы сложной формы с заданными параметрами, которые могут быть использованы для прикладных задач визуализации. В частности, ранее была показана возможность применения 3D-печати для создания фантомов для определения качества в системах получения проекционных рентгеновских изображений [8]. В настоящее время все больше внимания привлекает разработка и тестовое применение типовых зооморфических фантомов для тестирования и калибровки систем визуализации мелких животных. Подобные фантомы точно имитируют форму органов и тканей животных, а также их взаимодействие с рентгеновским излучением, что позволяет применять их и для задач клинической дозиметрии [9, 10]. В некоторых работах была продемонстрирована возможность изготовления подобных фантомов с применением 3D-печати [11, 12]. Широко применяющиеся для этого метода пластиковые материалы могут быть использованы для имитации различных биологических тканей [13, 14]. Таким образом, использование методов 3D-печати имеет широкий потенциал для решения прикладных задач визуализации. Однако в процессе 3D-печати могут возникать различные дефекты, и, как следствие, внутренняя структура напечатанного образца может отличаться от заданных форм. В данной работе мы обсуждаем возможный подход к анализу таких дефектов с использованием компьютерного моделирования КТ изображений напечатанных объектов.

2. Создание модели образца, изготовленного методом 3D-печати

Кубический образец с длинной ребра 2 см, напечатанный на 3D-принтере, был использован в эксперименте и в качестве исходного образца для компьютерной модели. При моделировании рассматривали изображение одного среза объекта, соответствующего срезу реконструированного КТ-изображения реального

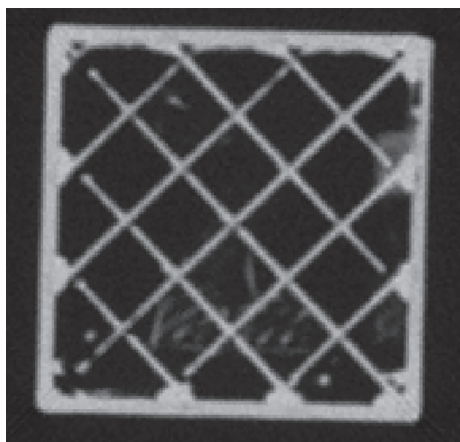


Рис.1. Изображение среза образца, полученное с использованием КТ.

образца. Образец был напечатан с обычным заполнением типа «сетка» с помощью 3D-принтера Original Prusa i3 MK3S+. На рис.1 показан КТ-срез, полученный с помощью микротомографа Института прикладных проблем физики НАН РА, позволяющего получать изображения с разрешением ~ 60 мкм. Срез был получен для плоскости, параллельной верхнему слою образца.

В данной работе для компьютерного моделирования мы использовали две модели среза, приведенные на рис.2. Одна из них (рис.2b) соответствовала идеальной модели (сетка заполнения), используемой для печати образца, которая содержит только сплошные линии (более толстые для границ и более тонкие для внутренней структуры). Другая модель (рис.2a) была разработана для имитации возможных дефектов при печати образца. Для этой цели мы использовали случайные шумы, которые могли заполнять пиксели вблизи линий первой модели. В обеих этих моделях мы использовали только максимальную (белая) и минимальную (черная) яркость пикселей без промежуточных (серых) значений. На рис.2с показано разностное изображение двух моделей, которое представляло собой попиксельное вычитание изображений этих двух моделей и также использовалось для компьютерной обработки. Фактически, это дифференциальное

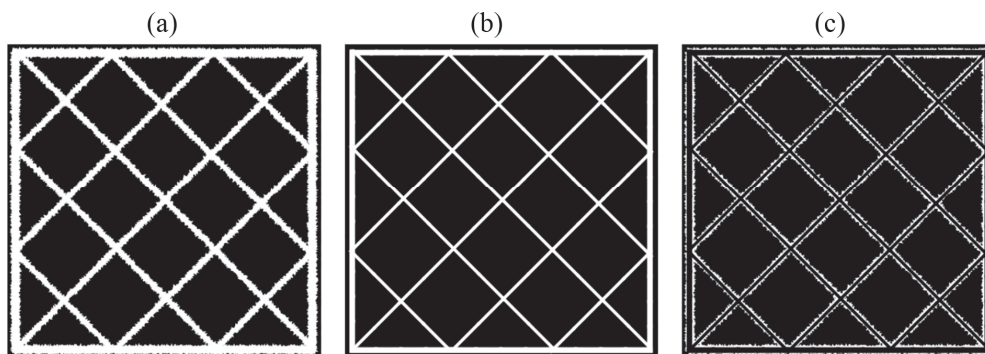


Рис.2. Модели, симулирующие срез напечатанного образца: (a) заполнение с добавленными «дефектами» (шумами); (b) идеальное заполнение «сеткой»; (c) разностное изображение двух моделей, полученное путем попиксельного вычитания изображений (a) и (b).

изображение было изображением случайных шумов, использованных для создания второй модели. Для моделирования и обработки изображений использовалось программное обеспечение Wolfram Mathematica.

3. Компьютерное моделирование

В нашем компьютерном моделировании мы использовали стандартные функции Wolfram Mathematica, работающие с прямым и обратным преобразованием Радона. На первом этапе мы использовали встроенную функцию «Radon [image]», которая применяет преобразование Радона к выбранному изображению и строит синограмму, соответствующую этому изображению. На рис.3 показаны синограммы, полученные с помощью этой функции для обеих наших моделей, а также разностное изображение этих двух синограмм.

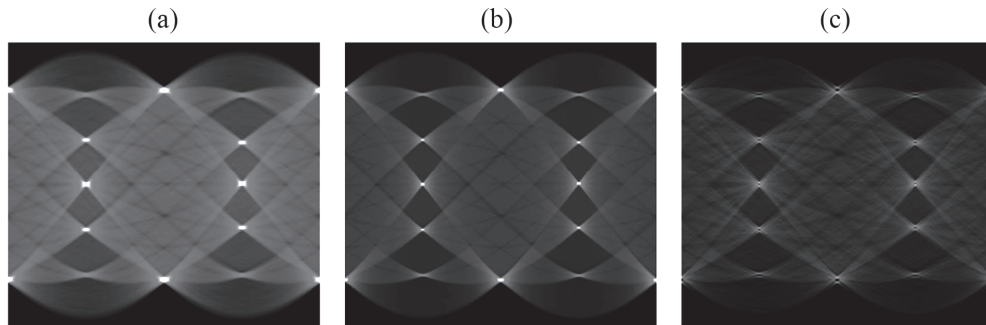


Рис.3. Синограммы, полученные для срезов моделей напечатанного образца: (a) заполнение с добавленными «дефектами»; (b) идеальное заполнение «сеткой»; (c) разностное изображение двух синограмм, полученное путем поэлементного вычитания синограмм (a) и (b).

После этого мы использовали функцию «InverseRadon [image]», которая позволяет восстановить изображение среза из соответствующей синограммы. Реконструированные изображения показаны на рис.4. Как видно из рисунка, шум на изображении «напечатанного» объекта все еще виден. Однако он выглядит значительно сглаженным по сравнению с исходным изображением.

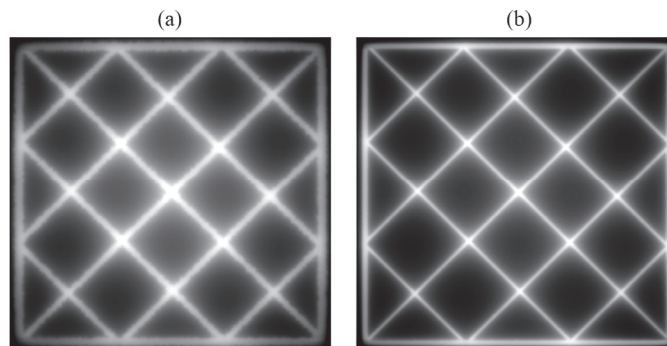


Рис.4. Реконструированные изображения срезов: (a) заполнение с добавленными «дефектами», (b) идеальное заполнение «сеткой».

На рис. 5 показано разностное изображение двух реконструированных изображений срезов. На этом изображении можно различить темные линии, соответствующие сетке идеального заполнения. Однако граница между ними не такая резкая по сравнению с разностным изображением исходных моделей, что обусловлено особенностями подхода к реконструкции томографических изображений, который в любом случае ведет к потере части информации. Поэтому реконструированные изображения могут не полностью совпадать с исходным образцом, для которого проводится КТ-исследование, хотя основные особенности внутренней структуры отчетливо видны. Более того, на рис.4 и рис.5 отчетливо виден неоднородный серый фон, появление которого также обусловлено особенностями реконструкции изображений. Поэтому при анализе результатов реального эксперимента важно использовать в качестве опорного изображения не простую математическую модель заполнения объекта (в нашем случае рис.2b), а изображение, полученное после обработки этой модели прямым и обратным преобразованиями Радона (рис.4b) с параметрами, соответствующими эксперименту. Такой подход может позволить разделить детали, обусловленные обработкой изображений («артефакты» реконструкции) и дефектами печати.

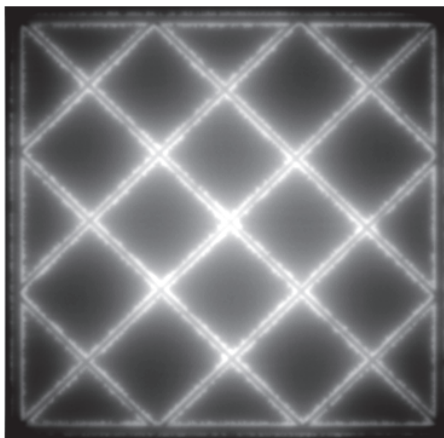


Рис.5. Разностное изображение (попиксельное вычитание) реконструированных изображений слоев (рис.4a,b).

На заключительном этапе мы реконструировали изображения из синограмм, показанных на рис.2a,b, с помощью обратного преобразования Радона и с применением стандартного фильтра «Hann», который широко применяется для улучшения качества КТ изображений [15], и проанализировали их разностное изображение. В КТ реконструкции фильтры представляют собой математические алгоритмы, применяемые к необработанным данным для улучшения четкости изображения, повышения разрешения и точности трехмерной реконструкции. Используемые фильтры могут быть разными для достижения различных целей, таких как уменьшение артефактов изображения, удаление шума или улучшение сигнала и т. д. Фильтр «Hann» (также известный как фильтр «Hanning» или «Hanning Window») – это одна из оконных функций, применяемых в обработке сигналов и изображений, и в частности, при обратном преобразовании Радона для улучшения качества реконструированного изображения. Этот фильтр помо-

гает уменьшить артефакты и шум, возникающие в процессе реконструкции, которые могут ухудшить качество реконструированного изображения [16, 17]:

$$H(n) = 0.5 \left(1 - \cos \left(\frac{2\pi n}{N} \right) \right), \quad 0 \leq n \leq N,$$

где n – индекс точки, изменяющийся от 0 до $N-1$, N – длина окна. На рис.6 приведены полученные изображения.

Разностное изображение на рис.6с демонстрирует, что после реконструкции данных с использованием фильтра “Hann” мы не можем исключить прямоугольную заливку из дифференциального изображения. Однако применение данного фильтра приводит к устранению неоднородного серого фона по сравнению с результатами, приведенными на рис.4 и рис.5, что позволяет более четко отличать изображение восстановленной структуры. Последнее может быть полезно при дальнейшей обработке, например при бинаризации изображения для выделения дефектов 3D-печати образца. Следует отметить, что большинство фильтров, используемых в задачах визуализации, разрабатываются для улучшения качества изображения (устранения «артефактов» восстановления, сглаживание шумов, улучшение контраста и т. д.) исследуемого объекта, в то время как для наших задач нужен фильтр, который позволит лучше различать различия между экспериментальными и модельными изображениями. Выбор или проектирование математического фильтра, который может позволить решить эту задачу, является отдельным вопросом и будет рассмотрен в будущих работах. Однако важно отметить, что стандартные фильтры могут одновременно улучшить визуальное восприятие конкретного реконструированного изображения, но одновременно привести к потере деталей для сравнения реконструированного изображения с модельным.

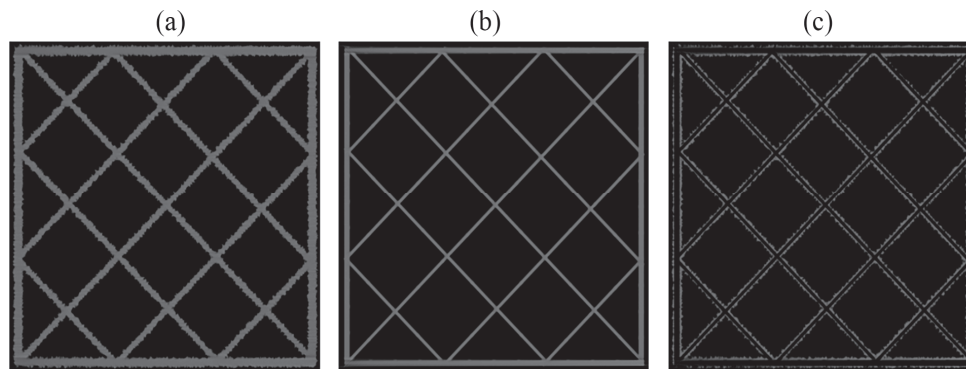


Рис.6. Реконструированные изображения среза модели печатного объекта с использованием фильтра “Hann”: (a) сетка с добавлением «шума», (b) идеальная «сетка» заполнения, (c) разностное изображение.

4. Заключение

Получены КТ-изображения для численных моделей образца, имитирующих объект, изготовленный методом 3D-печати, с учетом и без учета случайных шумов, имитирующих дефекты, возникающие в процессе печати. Показано, что такие дефекты можно различить после реконструкции КТ-среза в разностных

изображениях, представляющих собой попиксельную разницу двух реконструированных срезов. Данный подход потенциально может быть использован для анализа дефектов реальных напечатанных образцов путем сравнения экспериментальных результатов КТ с изображением модели заполнения такого образца, обработанном с помощью прямого и обратного преобразований Радона.

Также было показано, что фильтры, используемые для улучшения визуального восприятия КТ-изображений, могут негативно влиять на разностные изображения, полученные с помощью данного подхода.

В работе представлены результаты предварительного исследования, направленного на разработку алгоритма для различения дефектов внутренней структуры образцов, изготовленных методом 3D-печати. Такой алгоритм может быть полезен для анализа КТ-изображений напечатанных образцов. Автоматический алгоритм для различения этих дефектов потенциально может быть использован для обучения нейронных сетей, направленных на анализ изображений образцов, изготовленных методом 3D-печати.

Исследование выполнено при поддержке гранта Международного инновационного центра нанотехнологий СНГ (номер гранта №25-116).

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

ЛИТЕРАТУРА

1. **M. Thorsten.** Computed Tomography, Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2008.
2. **S. Carmignato, W. Dewulf, R. Leach.** Industrial X-Ray Computed Tomography, Cham: Springer International Publishing AG, 2018.
3. **H. Murrell.** The Mathematica Journal, **6**, 60 (1996).
4. **H.H. Barrett, W. Swindell.** Radiological imaging: The theory of image formation, detection, and processing. San Diego: Academic Press, 1981.
5. **M. Honarpour, V. Cromwell, D. Hatton, R. Satchwell.** Society of Petroleum Engineers **14272** (1985).
6. **V.R. Kocharyan.** J. Contemp. Phys., **52**, 392 (2017).
7. **S.G. Chistiakov, N.A. Filatov, V.R. Kocharyan, A.S. Gogolev, V. . Rukavishnikov.** J. Contemp. Phys., **54**, 381 (2019).
8. **J.B. Noonoo, E. Sosu, F. Hasford.** S. Afr. J. Sci., **119**, 14269 (2023).
9. **M. Wegner, T. Frenzel, D. Krause, E. Gargioni.** Phys. Med. Biol., **68**, 085009 (2023).
10. **N. Esplen, F. Therriault-Proulx, L. Beaulieu, M. Bazalova-Carter.** Med. Phys., **46**, 5294 (2019).
11. **G. Price, E.R. Biglin, S. Collins, A. Aitkinhead, A. Subiel, A.L. Chadwick, D.M. Cullen, K. J Kirkby, G. Schettino, J. Tipping, A. Robinson.** Phys. Med. Biol., **65**, 10NT02 (2020).
12. **A.A. Grigorieva, A.A. Bulavskaya, E.A. Bushmina, V.A. Kuyvalaynen, I.A. Miloichikova, S.G. Stuchebrov.** Phys. At. Nucl., **87**, 1934 (2024).
13. **A. Bulavskaya, Y. Cherepennikov, B. Gavrikov, A. Grigorieva, E. Grigoriev, I. Miloichikova, S. Stuchebrov.** 3D Print. Addit. Manuf., **9**, 399 (2022).
14. **C. Cavaliere, D. Baldi, V. Brancato, M. Aiello, M. Salvatore.** Front. oncol., **13**, 1123796 (2023).
15. **M.W. Groch, W.D. Erwin.** J. Nucl. Med. Technol., **28**, 233 (2000).

16. **A.V. Oppenheim, E.W. Schaffer, J.R. Buck.** Discrete-Time Signal Processing, New Jersey, Upper Saddle River: Prentice-Hall, 1999.
17. **Y.M. Salihin, A. Zakaria.** Iran. J. Radiat. Res., **6**, 173 (2009).

ԵՌԱԶԱԾ ՏՊԱԳՐՈՒԹՅԱՄԲ ՊԱՏՐԱՍՏՎԱԾ ՆՄՈՒՇՆԵՐԻ
ՎԵՐԼՈՒԾՈՒԹՅԱՆ ՀԱՄԱՐ ՀԱՄԱԿԱՐԳԶԱՅԻՆ ՏՈՄՈԳՐԱՖԻԱՅԻ
ՎԵՐԱԿԱՆԳՆՄԱՆ ԱԼԳՈՐԻԹՄՆԵՐԻ ԿԻՐԱՌՈՒՄԸ
ԹՎԱՅԻՆ ՄԻՆԹԵԶՎԱԾ ՕԲՅԵԿՏՆԵՐԻ ՀԱՄԱՐ

Ա.Վ. ՇԱՀՎԵՐԴՅԱՆ, Վ.Վ. ՄԱՐԳԱՐՅԱՆ, ՅՈՒ.Մ. ՉԵՐԵՊԵՆՆԻԿՈՎ,
Կ.Գ. ԹՐՈՒՆԻ, Ս.Ն. ՆՈՐԵՅԱՆ, Ա.Մ. ՄԱՄՅԱՆ, Ռ.Կ. ՄԻՐԶՈՅԱՆ,
Հ.Հ. ՍԱՄՍՈՆՅԱՆ, Վ.Ռ. ՔՈՉԱՐՅԱՆ¹

Այս աշխատանքում ներկայացվում է համակարգչային տոմոգրաֆիայի պատկերների մոդելավորման ալգորիթմ տարբեր եռաչափ տպագրված նմուշների համար, որը հնարավորություն է տալիս համեմատել մոդելավորված և իրական տոմոգրաֆիական փորձերի արդյունքները: Տոմոգրաֆիական պատկերագրման մեջ համակարգչային մոդելավորման կիրառումը թույլ է տալիս լավարկել վերակառուցման ալգորիթմների մշակումն ու փորձարկումը: Ցույց է տրված, որ նման ալգորիթմների կիրառումը կարող է օգտակար լինել եռաչափ տպագրված նմուշների անճշտությունների վերլուծության համար երբ դրանք ուսումնասիրվում են համակարգչային տոմոգրաֆիայի միջոցով, ինչպես նաև թույլ է տալիս տարբերակել այդ թերությունները տվյալ լցվածության մոդելով նմուշներից:

AN APPROACH TO APPLYING CT RECONSTRUCTION ALGORITHMS TO NUMERICALLY SYNTHESIZED OBJECTS FOR THE ANALYSIS OF 3D-PRINTED SAMPLES

A.V. Shahverdyan, V.V. Margaryan, Yu.M. Cherepennikov, K.G. Trouni, S.N. Noreyan,
A.M. Mamyran, R.K. Mirzoyan, H.H. Samsonyan, V.R. Kocharyan

In this study, we present an algorithm for simulating CT images of diverse 3D-printed samples, allowing for a comparison between simulated and real CT experiment results. The use of computer simulation enhances the understanding of the CT imaging process and aids in the development and validation of reconstruction algorithms. It is demonstrated that such an algorithm potentially may be useful for analysis of inaccuracies of real 3D printed samples under CT investigation and can distinguish these details from filling pattern of these samples.

РЕНТГЕНОИНТЕРФЕРЕНЦИОННОЕ ОТОБРАЖЕНИЕ ДИСЛОКАЦИЙ, ГЕНЕРИРУЕМЫХ В ЖЕСТКОМ ЛЛЛ ИНТЕРФЕРОМЕТРЕ

Т.О. ЭЙРАМДЖЯН*, Т.С. МНАЦАКАНЯН, Л.А. АРУТЮНЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: tigeuro@ysu.am

(Поступила в редакцию 9 апреля 2025 г.)

Исследован жесткий LLL интерферометр из бездислокационного монокристалла кремния, существенно отличающийся от ранее известных типов рентгеновских интерферометров. Такой интерферометр проявляет большую чувствительность как к изначально присутствующим, так и привнесенным дефектам в кристалле. В измененной части зеркального блока интерферометра генерировалось небольшое количество дислокаций, наличие которых подтверждается рентгеновскими топограммами. Получены интерферометрические изображения дислокаций, генерируемых в зеркальном блоке. Проведено численное моделирование отображения единичной краевой дислокации по рассмотренной схеме.

1. Введение

Реализация голографии в коротковолновом диапазоне рентгеновского излучения важна при изучении внутренних структурных дефектов непрозрачных для видимого света материалов, имеющих кристаллическую структуру. Совместное применение рентгеновской голографии, электронной микроскопии и оптической голографии особенно важно для обнаружения и изучения дислокаций в монокристаллах. Рентгено-голографические исследования открывают новые перспективы в различных областях микроэлектроники, медицинской диагностике и технике.

Для получения рентгеновских голограмм исследован модифицированный жесткий ЛЛЛ интерферометр, отличающийся от обычного LLL интерферометра [1–3]. Исследования проводились с использованием ранее испытанного [4–6] и модифицированного позднее жесткого трехблочного интерферометра для излучения $\text{MoK}\alpha$ ($\lambda = 0.71 \text{ \AA}$). Обязательными при изготовлении интерферометров являются условия идеальной геометрии и аномального прохождения лучей в интерферометре $\mu t \gg 1$ (μ – коэффициент линейного поглощения кристалла для данного излучения, t – толщины отдельных блоков интерферометра). Объектами исследования являются дислокации, возникающие в части зеркального блока интерферометра, интерференционные изображения которых были получены экспериментально.

В работах [7, 8] на основе численного интегрирования уравнений Такаги [9],

описывающих динамическую дифракцию рентгеновских лучей в деформированных кристаллах, смоделировано формирование изображения краевой дислокации в секционных и проекционных топограммах.

2. Описание эксперимента

Интерферометр изготовлен из бездислокационного монокристалла кремния, имеющего форму параллелепипеда, с отражающими плоскостями ($2\bar{2}0$), нормали которых совпадают с направлением роста монокристалла $[111]$, обеспечивая совпадение заранее выбранных кристаллографических плоскостей с соответствующими геометрическими плоскостями образца. Для изготовления интерферометров типа Лауэ [1] исходные размеры монокристалла (рис. 1а) должны удовлетворять условию $BB_1 = (BC - 3t) \tan \theta + c$, где θ – угол брэгговского отражения c – ширина коллимированного рентгеновского пучка ($c = 0.3$ мм). Для каждого из трех отражающих блоков интерферометра $\mu t \approx 7$ ($\mu = 15.6 \text{ см}^{-1}$). В отличие от обычных LLL интерферометров данный интерферометр имеет две разделяющие полости между основанием и потолком (рис. 1б).

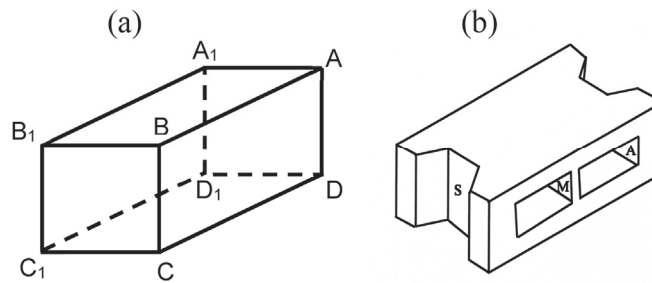


Рис.1. (а) Схема определения начальных размеров кубообразного монокристалла: $B_1B = 15$ мм, $BC = 30$ мм, (б) схема жесткого интерферометра (S – расщепитель, M – зеркало, A – анализатор).

Полости формируются с помощью абразивных порошков и металлических трубок, вращающихся с большой угловой скоростью, после чего им придают прямоугольную форму с помощью специально подготовленных сверхточных металлических пластин и абразивного порошка. На рис.2а показан процесс изготовления интерферометра. Далее, первая половина зеркального блока готового интерферометра (рис.1б) была разделена на две равные части без нарушения целостности интерферометра (рис.2б). Первая часть сохраняет связь с основанием и потолком, верхняя часть второй половины отделена от потолка, а нижняя часть сохраняет связь с основанием, образуя единое целое. Это соединение с основой является продолжением кристалла через шейку.

После завершения модификаций интерферометр подвергается химической обработке, которая сопровождается резким повышением температур раствора и интерферометра и способствует образованию дислокаций в модифицированной части зеркального блока.

Изготовление интерферометра сопровождается измерениями расстояний между блоками и их толщин. Допускаемые погрешности отклонений не должны превышать 8 мкм. Измерения производились в течение всего процесса с помощью высокоточных механооптических приборов. После изготовления интерфе-

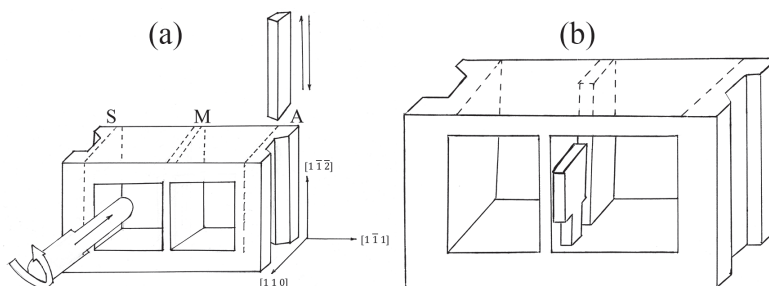


Рис.2. (а) Схема изготовления жесткого интерферометра, (б) схематическое изображение модифицированного интерферометра.

рометра был сделан ряд рентгенотопографических съемок как из его отдельных участков, так и из целых блоков (рис.3а,б). В топограммах отчетливо видны дислокации, образовавшиеся в одной части зеркального блока.

В другой части зеркального блока дислокации отсутствуют, что также видно из одновременно полученных топограмм от двух половин зеркального блока (рис.3с).

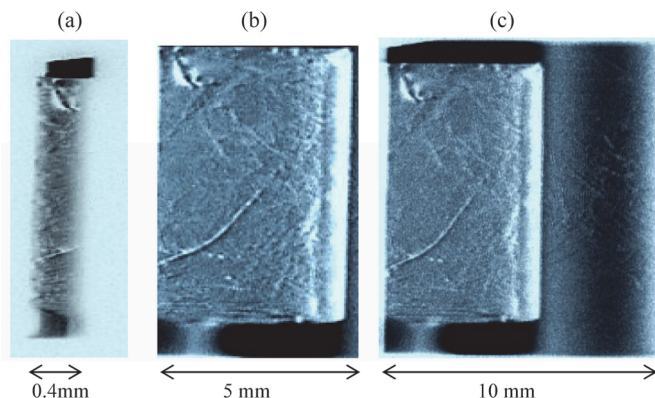


Рис.3. (а) Рентгеновская топограмма ограниченной области зеркального блока, (б) топограмма измененной области зеркального блока, где четко видны дислокации, (с) топограмма двух половин зеркального блока (в правой части зеркального блока дислокации отсутствуют).

На снимках за анализатором были получены голографические изображения дислокаций, возникших в одной части зеркального блока. Голографические изображения, полученные из разных частей зеркального блока интерферометра, представлены на рис.4. При этом на голографических рентгенограммах отсутствует прямое топографическое изображение каких-либо дислокаций или муаров. На основе полученных в ходе экспериментов снимков можно заключить, что они являются голографическим представлением дислокаций, присутствующих в модифицированном среднем блоке.

Эксперименты проводились с модифицированной рентгеновской дифракционной камерой Ригаку. Коллимированный пучок падает на первую пластину интерферометра, с помощью которой производится окончательная юстировка интерферометра и его приведение в рабочее состояние. Длина рентгеновского коллиматора составляет 400 мм, ширина падающего на интерферометр пучка –

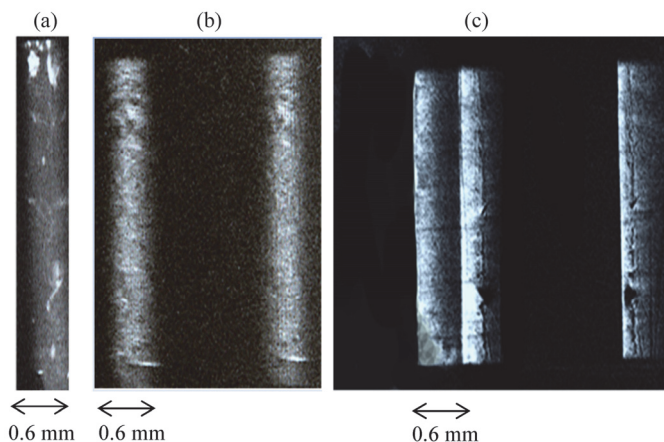


Рис.4. Интерферометрические изображения, полученные из разных частей зеркального блока интерферометра. Рентгенограммы сделаны (а) с левого края, (b) с правого края и (с) от центральной части зеркального блока.

0.3 мм, высота – 10 мм. Следует отметить, что жесткий интерферометр устанавливался на угломерную головку без использования клеев и каких-либо приспособлений, что исключает возникновение неконтролируемого муара. Это важное условие, поскольку «жесткий» интерферометр очень чувствителен даже к ничтожным механическим воздействиям, вызванным физическим воздействием клея или фиксирующего устройства.

Учитывая высокую чувствительность жесткого интерферометра к дефектам в монокристалле и обобщая полученные экспериментальные результаты, можно утверждать, что получены голографические изображения дислокаций. Съемки проведены от разных частей зеркального блока интерферометра. Поскольку распределение дислокаций в модифицированном зеркальном блоке интерферометра неоднородно по объему, полученные голографические изображения отличаются друг от друга (рис.4а,б,с).

3. Численное моделирование

Методом численного моделирования представлено отображение прямолинейной краевой дислокации, находящейся во втором блоке интерферометра, поперек волнового пакета, отраженного от первого кристаллического блока (см.рис.5). Предполагается, что линия дислокации перпендикулярна входной поверхности кристаллической пластины: вектор Бюргерса $\mathbf{b}$ антипараллелен вектору обратной решетки $\mathbf{h}$ рассматриваемого отражения. Рассматривается симметричная геометрия дифракции Лауэ, так что вектор $\mathbf{b}$ параллелен входной поверхности пластины. Для x -проекции поля смещения кристаллической решетки, вызванной наличием дислокации, взято выражение из работы [10]:

$$u_x(x, y) = \frac{b}{2\pi} \left[\arctan \frac{y}{x} + \frac{xy}{2(1-\nu)(x^2 + y^2)} \right],$$

где ν – коэффициент Пуассона (в расчетах принято значение $\nu = 0.28$), (x, y, z) – декартова система координат с осями x и z в плоскости рассеяния (x параллельна,

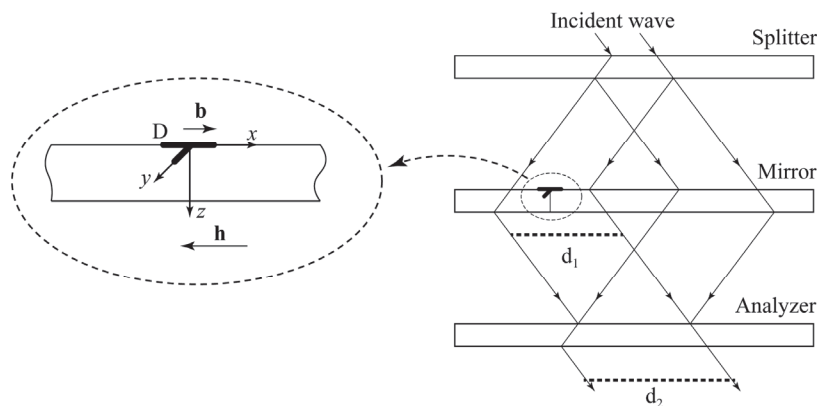


Рис.5. Схематическая картина хода лучей в интерферометре, а также расположение дислокации и детекторов при численном моделировании.

а z перпендикулярна входной поверхности пластины) и осью y – перпендикулярной плоскости рассеяния. Линия дислокации проходит через точку $x = y = 0$ входной поверхности пластины. Остальные параметры численного интегрирования (источник излучения, кристалл, отражающие плоскости, общая геометрия интерферометра и т.д.) совпадают с выше представленными данными физического эксперимента. Интегрирование уравнений Такаги проведено по алгоритму, представленному в работах [11–13]. На рис.6 представлены смоделированные топограммы рентгеновских пучков – (а) дифрагированной от левой половины зеркального блока и (б) отраженной от анализатора интерферометра, что приводит к резкому повышению чувствительности отображения.

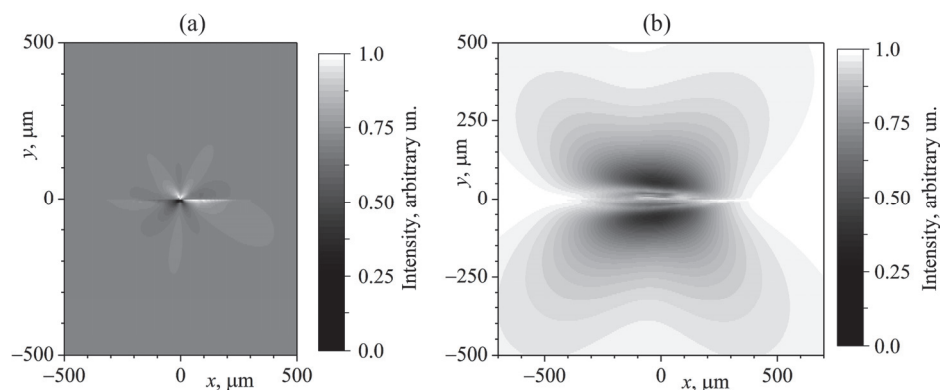


Рис.6. Численно моделированные отображения дислокации: (а) топограмма левой половины зеркального блока, (б) интерферометрическое отображение дислокации в дифрагированном от третьего блока пучке (детекторы d_1 и d_2 , соответственно, представленные на рис.5).

4. Заключение

Экспериментально исследован модифицированный жесткий интерферометр LLL типа. В отличие от обычного LLL интерферометра, жесткий LLL интерферометр имеет не только основание, но и «потолок». Вследствие этой особенности жесткий интерферометр не приводит к образованию неконтролируемых

муаровых полос. Он весьма чувствителен к механическим напряжениям, а также к дефектам, присутствующим в кристаллической решетке, в частности к дислокациям.

В части зеркального блока интерферометра было введено небольшое количество дислокаций, наличие которых четко видно в ряде топограмм. Экспериментально получены интерферометрические отображения введенных в зеркальный блок дислокаций для различных частей зеркального блока.

Проведенное численное моделирование отображения прямолинейной краевой дислокации показывает высокую чувствительность рассмотренного интерференционного метода отображения искажений.

ЛИТЕРАТУРА

1. **U. Bonse, M. Hart.** Appl. Phys. Lett., **6**(8), 155 (1965).
2. **U. Bonse, M. Hart.** Z. Phys., **188**, 154 (1965).
3. **Т. Еурамжян, Т. Мнатсакянан.** J. Contemp. Phys., **59**, 342 (2024).
4. **А. Ростомян, М. Месропян, С. Нариманян, А. Григорян.** Патент СССР 1458781 А1.
5. **Т. Еурамжян, Т. Мнатсакянан, М. Бальян.** Acta Cryst. A, **74**, 595 (2018).
6. **Т. Еурамжян, М. Месропян, Т. Мнатсакянан, М. Бальян.** Acta Cryst. A, **76**, 390 (2020).
7. **И. Смирнова, Э. Суворов, Е. Шулаков.** ФТТ, **49**, 1050 (2007).
8. **I. Smirnova, E. Shulakov, E. Suvorov.** Phys. Solid State, **61**, 1444 (2019).
9. **S. Takagi.** J. Phys. Soc. Japan, **26**, 1239 (1969).
10. **Д. Хирт, И. Лоте.** Теория дислокаций, Москва: Атомиздат, 1972.
11. **A. Authier, C. Malgrange, and M. Tournarie.** Acta Cryst. A, **24**, 126 (1968).
12. **Y. Epelboin.** Acta Cryst. A, **33**, 758 (1977).
13. **Y. Epelboin.** Materials Science and Engineering, **73**, 1 (1985).

X-RAY INTERFEROMETRIC IMAGING OF DISLOCATIONS GENERATED IN HARD LLL INTERFEROMETER

T.H. EYRAMJYAN, T.S. MNATSAKANYAN, L.A. HAROUTUNYAN

A hard LLL interferometer made of dislocation-free silicon single crystal has been investigated that differs significantly from previously known types of X-ray interferometers. Such an interferometer is highly sensitive to both initially present and introduced defects in the crystal. Several dislocations were generated in the modified part of the mirror block of the interferometer, which is confirmed by X-ray topograms. Interferometric images of dislocations generated in the mirror block were obtained. The numerical simulation of the imaging of a single edge dislocation is carried out according to the considered scheme.