

ЖУРНАЛ БЕЛОРУССКОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО УНИВЕРСИТЕТА



JOURNAL OF THE BELARUSIAN STATE UNIVERSITY

PHYSICS

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

Выходит три раза в год





МИНСК БГУ

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

Главный редакто	р АНИЩИК В. М. – доктор физико-математических наук, профессор; про- фессор кафедры физики твердого тела физического факультета Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь. E-mail: anishchik@bsu.by	
Заместитель главного редакто	 воропай Е. С. – доктор физико-математических наук, профессор; про- фессор кафедры лазерной физики и спектроскопии физического факультета Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь. E-mail: voropay@bsu.by 	
Ответственный секретарь	КАБАНОВА О.С. – кандидат физико-математических наук; научный сотруд- ник лаборатории нелинейной оптики и спектроскопии кафедры лазерной фи- зики и спектроскопии физического факультета Белорусского государствен- ного университета, Минск, Беларусь. E-mail: kabanovaos@bsu.by	
Бондаренко Г. Г.	Московский институт электроники и математики Национального исследовательского универси- тета «Высшая школа экономики», Москва, Россия.	
Воеводин В. Н.	Институт физики твердого тела, материаловедения и технологий Национальной академии наук Украины, Харьков, Украина.	
Жуковский П. В.	Люблинский технический университет, Люблин, Польша.	
Кислицин С. Б.	Институт ядерной физики Министерства энергетики Республики Казахстан, Алма-Ата, Казахстан.	
Козлов С. А.	Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, Санкт-Петербург, Россия.	
Кучинский П. В.	НИУ «Институт прикладных физических проблем им. А. Н. Севченко» Белорусского государ- ственного университета, Минск, Беларусь.	
Максименко С. А.	НИУ «Институт ядерных проблем» Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь.	
Малый С. В.	Белорусский государственный университет, Минск, Беларусь.	
Маскевич С. А.	<i>кологический институт им. А. Д. Сахарова Белорусского сударственный экологический институт им. А. Д. Сахарова Белорусского сударственного университета, Минск, Беларусь.</i>	
Машлан М.	Оломоуцкий университет им. Палацкого, Оломоуц, Чехия.	
Патрин А. А.	Кошалинский технический университет, Кошалин, Польша.	
Погребняк А. Д.	Сумский государственный университет, Сумы, Украина.	
Рамакришна Редди К. Т.	Университет Шри Венкатесвара, Тирупати, Индия.	
Ремнев Г. Е.	Томский политехнический университет, Томск, Россия.	
Тиванов М. С.	Белорусский государственный университет, Минск, Беларусь.	
Толстик А. Л.	Белорусский государственный университет, Минск, Беларусь.	
Туроверов К. К.	Институт цитологии Российской академии наук, Санкт-Петербург, Россия.	
Чалов В. Н.	Имперский колледж Лондона, Лондон, Великобритания.	
Шандаров С. М.	Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, Томск, Россия.	
Хайнтцманн Р.	Институт физической химии Иенского университета, Иена, Германия.	

РЕДАКЦИОННЫЙ СОВЕТ

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

EDITORIAL BOARD

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

EDITORIAL COUNCIL

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

Оптика и спектроскопия

OPTICS AND SPECTROSCOPY

УДК 535.343.2,535.35

РОСТ КРИСТАЛЛА И АНАЛИЗ ИНТЕНСИВНОСТЕЙ f – f-ПЕРЕХОДОВ ИОНОВ ПРАЗЕОДИМА В ИТТРИЙ-АЛЮМИНИЕВОМ ОРТОБОРАТЕ

*М. П. ДЕМЕШ*¹⁾, *К. Н. ГОРБАЧЕНЯ*¹⁾, *В. Э. КИСЕЛЬ*¹⁾, *Е. А. ВОЛКОВА*²⁾, *В. В. МАЛЬЦЕВ*²⁾, *Е. В. КОПОРУЛИНА*²⁾, *А. А. КОРНИЕНКО*³⁾, *Е. Б. ДУНИНА*³⁾, *Н. В. КУЛЕШОВ*¹⁾

 ¹⁾Белорусский национальный технический университет, пр. Независимости, 65, 220013, г. Минск, Беларусь
 ²⁾Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, Ленинские горы, 1, 119991, г. Москва, Россия
 ³⁾Витебский государственный технологический университет, пр. Московский, 72, 210038, г. Витебск, Беларусь

Кристалл иттрий-алюминиевого бората YAl₃(BO₃)₄, активированный ионами Pr³⁺, выращен методом кристаллизации из раствора в расплаве. Размер полученного образца составил $20 \times 10 \times 10$ мм. Коэффициент распределения иона-активатора изменяется от 0,6 до 0,8, что приводит к средней концентрации ионов Pr³⁺ 1,1 · 10²⁰ см⁻³. Спектры поглощения из основного состояния ³H₄ зарегистрированы в поляризованном свете. Кристалл обладает выраженной анизотропией поглощения. С использованием модифицированной теории Джадда – Офельта определены интенсивности переходов с поглощением и испусканием, а также коэффициенты ветвления люминесценции и время жизни метастабильных уровней ³P₀ и ¹D₂.

Ключевые слова: кристаллизация из раствора в расплаве; редкоземельные алюминиевые бораты; празеодим; поглощение; интенсивности переходов.

Благодарность. Исследования проведены при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 18-29-12091 мк).

Образец цитирования:

Демеш МП, Горбаченя КН, Кисель ВЭ, Волкова ЕА, Мальцев ВВ, Копорулина ЕВ, Корниенко АА, Дунина ЕБ, Кулешов НВ. Рост кристалла и анализ интенсивностей f – f-переходов ионов празеодима в иттрий-алюминиевом ортоборате. *Журнал Белорусского государственного университета.* Физика. 2022;1:4–13. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-4-13

Сведения об авторах см. на с. 12-13.

For citation:

Demesh MP, Gorbachenya KN, Kisel VE, Volkova EA, Maltsev VV, Koporulina EV, Kornienko AA, Dunina EB, Kuleshov NV. Crystal growth and f - f transition intensities analysis of praseodymium ions in yttrium-aluminum orthoborates. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2022;1:4–13. Russian. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-4-13

Information about the authors see p. 12–13.

CRYSTAL GROWTH AND f – f TRANSITION INTENSITIES ANALYSIS OF PRASEODYMIUM IONS IN YTTRIUM-ALUMINUM ORTHOBORATES

M. P. DEMESH^a, K. N. GORBACHENYA^a, V. E. KISEL^a, E. A. VOLKOVA^b, V. V. MALTSEV^b, E. V. KOPORULINA^b, A. A. KORNIENKO^c, E. B. DUNINA^c, N. V. KULESHOV^a

^aBelarusian National Technical University, 65 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220013, Belarus
 ^bLomonosov Moscow State University, 1 Leninskie Gory, Moscow 119991, Russia
 ^cVitebsk State University of Technology, 72 Maskoŭski Avenue, Vitebsk 210038, Belarus
 Corresponding author: M. P. Demesh (maxim.demesh@bntu.by)

A Pr^{3^+} : YAl₃(BO₃)₄ crystal with sizes of 20 × 10 × 10 mm was grown from high-temperature solution and its structural and spectroscopic properties were investigated. The distribution coefficient of praseodymium ranged from 0.6 to 0.8, that yield to the Pr^{3^+} ion concentration of $1.1 \cdot 10^{20}$ cm⁻³. Visible and infrared groundstate absorption (${}^{3}H_{4}$) was measurement in dependence on the polarisation. The absorption spectra of the Pr^{3^+} : YAl₃(BO₃)₄ exhibit pronounced polarisation anisotropy. The modified Judd – Offelt theory was applied to evaluate the transitions intensities in absorption and emission, branching ratios and radiative lifetimes of the metastable levels ${}^{3}P_{0}$ and ${}^{1}D_{2}$.

Keywords: flux growth; rare-earth aluminum borates; praseodymium; absorption; transition intensities.

Acknowledgements. This research was supported by Russian Foundation for Basic Research (project No. 18-29-12091 mk).

Введение

Для твердотельных лазеров видимой области спектра используют кристаллы, активированные ионами редкоземельных элементов (Pr^{3+} , Tb^{3+} , Dy^{3+} , Sm^{3+} , Eu^{3+}), которые позволяют получать видимую генерацию при непосредственной накачке лазерными диодами видимого спектрального диапазона [1]. На данный момент можно утверждать, что ион празеодима (Pr^{3+}) является наиболее перспективным, поскольку на празеодимсодержащих кристаллах получена эффективная генерация на многих переходах этого иона в видимом спектральном диапазоне и достигнуты высокие мощности лазерного излучения [2–6]. Фторсодержащие кристаллы, обладающие малой энергией фононов, меньшим воздействием кристаллического поля на ион-активатор и большей шириной запрещенной зоны по сравнению с оксидными кристаллами, наилучшим образом подходят для активации их ионами празеодима. Тем не менее была получена генерация и в оксидных матрицах Pr^{3+} : YAlO₃ [5], Pr^{3+} : SrAl₁₂O₁₉ [6]. Работа исследователей по поиску празеодимсодержащих сред активно продолжается в наши дни, что подкрепляется доступностью лазерных диодов на основе InGaN, излучающих в сине-фиолетовой области спектра.

Среди оксидных кристаллов особый интерес представляют кристаллы алюминиевых ортоборатов, которые обладают относительно низкой силой кристаллического поля (18 000 ± 1000 см⁻¹ [7]), которая сравнима с таковой фторидных кристаллов. К настоящему времени имеется ряд работ, посвященных люминесцентным свойствам празеодимсодержащих кристаллов ортоборатов [8; 9], а также анализу кристаллического поля [10]. При этом размеры исследуемых в них образцов не превышали $3 \times 3 \times 5$ мм. В данной работе были рассмотрены рост и оптические свойства кристалла Pr^{3+} : YAl₃(BO₃)₄ (далее – Pr : YAB) для оценки перспективности его использования в качестве активной среды твердотельных лазеров видимой области спектра.

Материалы и методы исследования

Кристалл Pr : YAB выращивался на затравку из раствора-расплава в интервале температур 1000–1050 °С. В качестве растворителя использовался хорошо зарекомендовавший себя расплав на основе тримолибдата калия K₂Mo₃O₁₀. Соотношение кристаллообразующих оксидов $R_2O_3 - Al_2O_3 - B_2O_3$ (R = Y, Pr) и растворителя (2 мас. % Y₂O₃, 90 мас. % K₂Mo₃O₁₀, 8 мас. % B₂O₃) в системе составляло 17 и 83 мас. % соответственно. При этом отношение кристаллообразующих компонентов соответствовало стехиометрическому соотношению в формуле, т. е. $R_2O_3 : Al_2O_3 : B_2O_3 = 1 : 3 : 4$ (в мольных долях), а концентрация празеодима в шихте – 2,5 мол. % от позиции иттрия в кристалле. Исходные реагенты $Pr_2O_3, Y_2O_3, Al_2O_3, B_2O_3, K_2MoO_4$ и H_2MoO_3 тщательно измельчались, смешивались и в платиновом тигле емкостью 250 мл помещались в ростовую установку. Борный ангидрид наплавлялся непосредственно в тигель в процессе подготовки опыта во избежание поглощения им паров воды из воздуха. К₂Мо₃O₁₀ представлял собой стехиометрическую смесь MoO₃ и K₂MoO₄. При выращивании кристалла Pr : YAB использовались оксиды празеодима и иттрия чистотой 99,996 %, все остальные реактивы соответствовали стандарту ОСЧ. Предварительно по изменению веса и характера поверхности пробной затравки определялась температура насыщения ($T_{\rm H}$) раствора-расплава. Затем кристаллодержатель с закрепленным на нем кристаллом-затравкой погружался в раствор-расплав при температуре, на 2 °C превышающей $T_{\rm H}$, и температура в кристаллизационной камере в процессе роста понижалась с переменной скоростью 0,04–0,06 °C/ч. Затравки были предварительно получены методом спонтанной кристаллизации из аналогичного по составу раствора-расплава.

Состав выращенного монокристалла Pr : YAB был изучен на аналитическом сканирующем электронном микроскопе LEO 1420VP (Zeiss, Германия) с микроанализатором INCA 350 (Oxford Instruments, Великобритания). Анализ проводился без предварительной подготовки образцов на хорошо развитых естественных ростовых поверхностях граней ромбоэдра. Коэффициент распределения катионов Pr³⁺

рассчитывался по формуле $K_{\text{pacnp}} = \frac{C_{\text{кр}}}{C_{\text{pacns}-\text{pacnn}}}$, где $C_{\text{кр}}$ – измеренное содержание празеодима в кристалле;

С_{раств.-распл} – исходное содержание празеодима в шихте.

Рентгенографические исследования Pr : YAB выполнены при комнатной температуре на порошковом дифрактометре АДП-2 (Co K_{α} -излучение ($\lambda = 1,7903$ Å), непрерывный режим съемки, интервал углов 20 – от 6 до 110°). Для идентификации использовались программный пакет *Match* и база данных PCPDFWIN PDF-2 (*International Centre for Diffraction Data*, ICDD). Параметры элементарной ячейки рассчитывались с помощью программы *DICVOL06* для 29 дифракционных рефлексов [11].

Спектры поглощения исследуемого кристалла, соответствующие переходам из основного состояния ³H₄ на вышележащие, регистрировались в поляризованном свете с помощью двухлучевого спектрофотометра Cary 5000 (*VARIAN*, США). Спектральная ширина щели составляла 1,0 и 0,09 нм для инфракрасного и видимого спектральных диапазонов соответственно.

При регистрации кинетик затухания люминесценции в качестве источника возбуждающего излучения использовался параметрический генератор света LT-2214 (*LOTIS TII*, Беларусь – Япония), накачиваемый третьей гармоникой Nd : YAG-лазера LS-2137 (*LOTIS TII*). Излучение люминесценции фокусировалось на входной щели монохроматора МДР-12 и регистрировалось быстродействующим фотоприемником G5460 (*Hamamatsu Photonics*, Япония), соединенным с осциллографом TDS3052B (*Tektronix*, США).

Результаты и их обсуждение

Структурные свойства кристалла Pr : YAB. Прозрачный, достаточно однородный монокристалл Pr : YAB (рис. 1) выращен на затравку из раствора-расплава следующего состава: 17 мас. % Pr : YAB, 83 мас. % растворителя (2 мас. % Y_2O_3 , 90 мас. % $K_2Mo_3O_{10}$, 8 мас. % B_2O_3). Полученный образец размером $20 \times 10 \times 10$ мм не содержит видимых включений и имеет типичную для боратов со структурой хантита огранку, представляющую собой комбинацию двух тригональных призм и ромбоэдра (см. рис. 1).

Состав кристалла Pr : YAB приведен в табл. 1. Как следует из представленных данных, коэффициент распределения иона празеодима меньше единицы и изменяется в пределах от 0,6 до 0,8. Очевидно, это связано с отличием ионных радиусов катионов Pr^{3+} и Y³⁺ (0,99 и 0,90 Å соответственно [12]). Таким образом, средняя по объему концентрация ионов празеодима N_0 может быть принята равной $1,1 \cdot 10^{20}$ см⁻³, что соответствует содержанию 1,67 ат. %.



Puc. 1. Монокристалл Pr : YAB *Fig. 1.* Pr : YAB monocrystal

Таблица 1

Состав кристалла ($\Pr_x Y_{1-x}$)Al₃(BO₃)₄ (x = 0,025 в исходной шихте)

Table 1

Chemical composition of $(\Pr_x Y_{1-x})Al_3(BO_3)_4$ crystal (x = 0.025 in the melt)

Точка анализа	Состав кристалла	K _{распр}
1	(Pr _{0,015} Y _{0,985})Al ₃ (BO ₃) ₄	0,60
2	(Pr _{0,02} Y _{0,98})Al ₃ (BO ₃) ₄	0,80
3	(Pr _{0,016} Y _{0,984})Al ₃ (BO ₃) ₄	0,64
4	(Pr _{0,015} Y _{0,985})Al ₃ (BO ₃) ₄	0,60
5	(Pr _{0,018} Y _{0,982})Al ₃ (BO ₃) ₄	0,72

Полученный рентгенодифракционный спектр (рис. 2) хорошо согласуется с данными ICDD по иттрий-алюминиевому борату YAl₃(BO₃)₄ (ICDD # 72-1978). По результатам индицирования дифрактограммы с помощью программы *DICVOL06* по 29 разрешенным пикам для гексагональной сингонии установлено, что выращенное соединение демонстрирует следующие параметры элементарной ячейки: a = b = 9,3002(7) Å, c = 7,2434(4) Å, V = 542,57 Å³.



Рис. 2. Сопоставление экспериментальной дифрактограммы Pr : YAB (*a*) и теоретического спектра YAl₃(BO₃)₄ (ICDD # 72-1978) (*б*) *Fig.* 2. XRPD patterns of Pr : YAB crystal (*a*) and calculated from YAl₃(BO₃)₄ CIF-file (ICDD # 72-1978) (*b*)

Оптические свойства кристалла Pr : YAB. На рис. 3 представлен спектр поглощения кристалла Pr : YAB в неполяризованном свете в области прозрачности матрицы 170–2200 нм. В исследуемом спектральном диапазоне наблюдаются несколько полос поглощения. Широкая интенсивная полоса с пиком, приходящимся на длину волны около 233 нм, может быть отнесена к межконфигурационному переходу $4f^2 \rightarrow 4f5d$. При этом наблюдаемое положение данной полосы хорошо согласуется с энергией возбужденной конфигурации $\Delta_d = 43\ 321\pm750\ {\rm cm}^{-1}$, полученной на основе подхода, описанного в [7]. Ряд узких интенсивных линий относятся к переходам иона празеодима между основным состоянием ${}^{3}{\rm H}_{4}$ и возбужденными состояниями ${}^{3}{\rm F}_{2}$, ${}^{3}{\rm F}_{3}$, ${}^{3}{\rm F}_{4}$, ${}^{1}{\rm O}_{2}$, ${}^{3}{\rm P}_{0}$, ${}^{3}{\rm P}_{1}$, ${}^{3}{\rm P}_{2}$ и ${}^{1}{\rm I}_{6}$. При этом высокоэнергетический уровень ${}^{1}{\rm S}_{0}$ электронной конфигурации $4f^{2}$ расположен внутри возбужденной электронной конфигурации $4f^{2}$ расположен внутри возбужденной электронной конфигурации $4f^{2}$ полоченов в области длин волн 420 и 650 нм относятся к поглощению примесного иона ${\rm Cr}^{3+}$.



Puc. 3. Спектр поглощения кристалла Pr : YAB в неполяризованном свете *Fig. 3.* Unpolarised absorption spectrum of Pr : YAB crystal

Спектры сечения поглощения $\sigma_{\text{погл}}$ иона празеодима в кристалле Pr : YAB показаны на рис. 4. В кристалле наблюдается анизотропия поглощения с преобладанием σ -состояния поляризации. В видимом спектральном диапазоне пиковое значение сечения поглощения $4,9 \cdot 10^{-20}$ см² приходится на длину волны 472,3 нм с шириной полосы 0,66 нм. Однако для накачки существующими лазерными диодами на основе InGaN целесообразно использовать полосу ${}^{3}\text{H}_{4} \rightarrow {}^{3}\text{P}_{2}$, обладающую значениями сечений поглощения около $3 \cdot 10^{-20}$ см², но большей шириной (около 1,6 нм) для двух состояний поляризации.



Рис. 4. Спектры сечения поглощения кристалла Pr : YAB
 в поляризованном свете в видимой (a) и инфракрасной (б) областях спектра
 Fig. 4. Polarised ground state absorption cross sections
 of Pr : YAB in the visible (a) and infrared (b) spectral regions

Для определения излучательных свойств кристалла Pr : YAB была использована модифицированная теория Джадда – Офельта (мД-О) [13], которая, по сравнению с классическим подходом (Д-О), учитывает низкоэнергетическое положение возбужденной f – d-конфигурации, влияющей на интенсивность внутриконфигурационных f – f-переходов. Сила осциллятора электродипольного перехода f_{ED} определяется выражением

$$f_{ED}(JJ') = \frac{8\pi^2 mc}{3h\bar{\lambda}(2J+1)} \left[\frac{\left(n^2+2\right)^2}{9n} \right]_{t=2,4,6} \Omega_t \left[1+2\alpha \left(E_J+E_{J'}+2E_f^0\right) \right] \left| \left\langle 4f^n [SL]J \right\| U^{(t)} \right\| 4f^n [S'L']J' \right\rangle \right|^2,$$

где Ω_t – параметры интенсивности; α – параметр, обусловленный конфигурационным взаимодействием; E_J и $E_{J'}$ – энергии начального и конечного мультиплетов; E_f^0 – среднее значение (центр тяжести) энергии

Таблица 2

4f-конфигурации. Значения матричных элементов $\|U^{(t)}\|$ (табл. 2) определены в приближении промежуточной связи для свободного иона \Pr^{3+} на основе данных работы [10].

Квадраты приведенных матричных элементов $\left\| U^{(t)} \right\|$

для переходов $J \rightarrow J'$ иона \Pr^{3+}					
Table 2					
Squared matrix-elements $\left\ U^{(t)}\right\ $ for the $J \rightarrow J'$ transitions of \Pr^{3+} ion					
SLJ	S'L'J'	$U^{(2)}$	$U^{(4)}$	$U^{(6)}$	
	³ H ₅	0,1094	0,2034	0,6095	
	³ H ₆	0,0002	0,0322	0,1408	
	³ F ₂	0,5084	0,403 7	0,1188	
	³ F ₃	0,0658	0,3483	0,6994	
3 ₁₁	${}^{3}F_{3}$	0,0658	0,3483	0,6994	
п ₄	${}^{1}G_{4}$	0,0014	0,0063	0,0221	
	${}^{1}D_{2}$	0,0020	0,0177	0,0527	
	$^{3}P_{0}$	0,0000	0,1719	0,0000	
	${}^{3}P_{1}$	0,0000	0,1721	0,0000	
	${}^{1}I_{6}$	0,0084	0,0468	0,0214	
	$^{3}H_{6}$	0,0020	0,0177	0,0527	
	${}^{3}\text{H}_{5}$	0,0000	0,0023	0,0003	
	³ H ₆	0,0000	0,0701	0,0068	
$^{1}D_{2}$	${}^{3}F_{2}$	0,0140	0,0874	0,0000	
	${}^{3}F_{3}$	0,0327	0,0186	0,0000	
	${}^{3}F_{4}$	0,5845	0,0001	0,0186	
	${}^{1}G_{4}$	0,3173	0,0513	0,0784	
	$^{3}H_{6}$	0,0000	0,1719	0,0000	
-	${}^{3}\text{H}_{5}$	0,0000	0,0000	0,0000	
	$^{3}H_{6}$	0,0000	0,0000	0,0726	
${}^{3}P_{0}$	$^{3}F_{2}$	0,2953	0,0000	0,0000	
	³ F ₃	0,0000	0,0000	0,0000	
	$^{3}F_{4}$	0,0000	0,1136	0,0000	
	$^{1}D_{2}$	0,0158	0,0000	0,0000	

Экспериментальные значения сил осцилляторов $f_{\exp}(JJ')$ вычислялись на основе зарегистрированных спектров поглощения по формуле

$$f_{\exp}(JJ') = \frac{mc^2}{\pi e^2 N_0 \overline{\lambda}^2} \int \frac{k_{JJ'}^{\pi}(\lambda) + 2k_{JJ'}^{\sigma}(\lambda)}{3} d\lambda,$$

где $k_{JJ'}^{\pi}$ и $k_{JJ'}^{\sigma}$ – коэффициент поглощения для π - и σ -состояний поляризации. Параметры Ω_t и α определялись на основе экспериментальных (f_{exp}) и теоретических (f_{ED} и f_{MD}) значений сил осцилляторов (табл. 3) по методу наименьших квадратов. Вклад магнитодипольного (MD) механизма в общую вероятность переходов был учтен при определении сил осцилляторов в поглощении и испускании. Искомые величины имеют следующие значения: $\Omega_2 = 11,42 \cdot 10^{-20} \text{ см}^2$, $\Omega_4 = 1,93 \cdot 10^{-20} \text{ см}^2$, $\Omega_6 = 8,96 \cdot 10^{-20} \text{ см}^2$ и $\alpha = 0,233 \text{ см}^{-1}$. Среднеквадратичное отклонение составило 0,19 $\cdot 10^{-6}$.

Полученные значения Ω_t и α позволили определить значения вероятностей спонтанных переходов A, коэффициентов ветвления люминесценции β (табл. 4) и излучательного времени жизни $\tau_{_{изл}}$ уровней ${}^{^3}P_0$ и ${}^{^1}D_2$.

Таблица 3

Теоретические (f_{exp}) и экспериментальные (f_{ED} и f_{MD}) значения сил осцилляторов для кристалла Pr : YAB

Table 3

Experimental (f_{exp}) and calculated $(f_{ED} \text{ and } f_{MD})$ oscillator strength in Pr : YAB crystal

SLJ	S'L'J'	$E, \operatorname{cm}^{-1}$	$f_{\rm exp}$	f_{ED}	f_{MD}
	${}^{3}\text{H}_{6} + {}^{3}\text{F}_{2}$	5000	3,643	3,639	—
	${}^{3}F_{3} + {}^{3}F_{4}$	6677	7,517	7,530	0,0008
	${}^{1}G_{4}$	9869	0,352	0,274	0,0005
$^{3}H_{4}$	$^{1}D_{2}$	16 742	1,958	1,651	—
	${}^{3}P_{0}$	20 432	1,557	1,497	—
	${}^{3}P_{1} + {}^{1}I_{6}$	21 321	3,468	3,516	—
	${}^{3}P_{2}$	22 219	6,713	6,761	—

Таблица 4

Вероятности переходов (*A*) и коэффициенты ветвления люминесценции (β) в кристалле Pr : YAB

Table 4

SLJ	S'L'J'	λ, нм	β	A, c^{-1}
	${}^{1}D_{2}$	2710,0	0,001	55,79
	${}^{1}G_{4}$	946,7	0,007	623,88
	${}^{3}F_{4}$	746,2	0,032	2681,29
³ D	${}^{3}F_{3}$	708,8	0,000	0,00
P ₀	${}^{3}F_{2}$	652,9	0,679	57 350,12
	$^{3}H_{6}$	632,6	0,145	12 242,13
	${}^{3}H_{5}$	555,9	0,000	0,00
	$^{3}H_{4}$	489,4	0,136	11 456,35
¹ D ₂	${}^{1}G_{4}$	1455,0	0,142	1382,38
	${}^{3}F_{4}$	1029,6	0,570	5557,99
	${}^{3}F_{3}$	959,9	0,042	$401,14^{ED} + 4,66^{MD}$
	${}^{3}F_{2}$	860,1	0,043	$419,60^{ED} + 3,37^{MD}$
	³ H ₆	825,2	0,029	286,31
	³ H ₅	699,3	0,002	16,34
	$^{3}H_{4}$	597,3	0,172	1681,26

The calculated radiative probabilities (*A*) and fluorescence branching ratios (β) in Pr : YAB crystal

Приведенный расчет показывает, что основная доля испускаемой с уровня ${}^{3}P_{0}$ энергии (около 68 %) приходится на переход ${}^{3}P_{0} \rightarrow {}^{3}F_{2}$ в красной области спектра. Излучательное время жизни возбужденного состояния ${}^{3}P_{0}$, равное 12 мкс, превосходит таковое у большинства празеодимсодержащих оксидных кристаллов [1]. Однако высокое значение энергии фонона (~1400 см⁻¹) в кристалле YAl₃(BO₃)₄ [10] и малый энергетический зазор между уровнями ${}^{3}P_{0}$ и ${}^{1}D_{2}$ (3463 см⁻¹ [14]) приводят к сильному тушению люминесценции с данного уровня. Оценочное значение скорости безызлучательной релаксации составляет около 1 \cdot 10⁷ с⁻¹ [15]. Кроме того, опустошение верхнего лазерного уровня ускоряется процессами кросс-релаксации ${}^{3}P_{0} \rightarrow {}^{1}D_{2}$: ${}^{3}H_{4} \rightarrow {}^{3}H_{6}$ и ${}^{3}P_{0} \rightarrow {}^{1}G_{4}$: ${}^{3}H_{4} \rightarrow {}^{1}G_{4}$ [14]. Зарегистрировать кинетику затухания люминесценции с уровня ${}^{3}P_{0}$ не удалось.

Излучательное время жизни уровня ${}^{1}D_{2}$, определенное по теории мД-О, составило 102 мкс. Больше половины испускаемой с уровня энергии (около 57 %) приходится на спектральную область около 1 мкм (переход ${}^{1}D_{2} \rightarrow {}^{3}F_{4}$). Высокоэнергетический фононный спектр кристалла YAl₃(BO₃)₄ не приводит к многофононной релаксации с уровня ${}^{1}D_{2}$ ввиду относительно большого энергетического зазора (~6500 см⁻¹) между мультиплетами ${}^{1}D_{2}$ и ${}^{3}F_{4}$. Однако резонансный процесс кросс-релаксации ${}^{1}D_{2} \rightarrow {}^{1}G_{4}$: ${}^{3}H_{4} \rightarrow {}^{3}F_{3}$ [16] приводит к безызлучательной релаксации возбуждения с уровня ${}^{1}D_{2}$. Неэкспоненциальный характер затухания люминесценции свидетельствует о наличии кросс-релаксационного тушения люминесценции. Для наглядности на рис. 5 показана кинетика затухания люминесценции с данного уровня. Измеренное время жизни уровня составляет 14 мкс, что приводит к квантовому выходу люминесценции около 14 %.



of the ${}^{1}D_{2}$ level of Pr : YAB crystal

Переходы с уровня ${}^{1}G_{4}$ в кристаллах празеодимсодержащих ортоборатов не представляют интереса ввиду еще меньшего, по сравнению с уровнями ${}^{3}P_{0}$ и ${}^{1}D_{2}$, энергетического зазора (около 2700 см⁻¹) между мультиплетами ${}^{1}G_{4}$ и ${}^{3}F_{4}$, что в совокупности приводит к эффективному тушению люминесценции с данного уровня.

Заключение

В данной работе представлены результаты роста и исследований оптических свойств кристалла $YAl_3(BO_3)_4$, активированного ионами Pr^{3+} . Образец размером $20 \times 10 \times 10$ мм без видимых включений и трещин был выращен методом раствор-расплавной кристаллизации. Усредненное по объему содержание ионов празеодима составило 1,67 ат. %, учитывая среднее значение коэффициента распределения иона-активатора, равное 0,67. На основе поляризованных спектров поглощения определены спектры сечений поглощения в видимой и инфракрасной областях спектра. Набор приведенных матричных элементов был вычислен в L – S-приближении. Модифицированным методом Джадда – Офельта определены параметры интенсивности иона празеодима в кристалле Pr : YAB. На их основе рассчитаны вероятности переходов, коэффициенты ветвления люминесценции, а также излучательное время жизни уровней ${}^{3}P_{0}$ и ${}^{1}D_{2}$, равное 12 и 102 мкс соответственно. Многофононная релаксация в кристалле $YAl_3(BO_3)_4$ приводит к эффективному опустошению уровня ${}^{3}P_{0}$. В свою очередь, уровень ${}^{1}D_{2}$ с временем жизни люминесценции 14 мкс характеризуется квантовым выходом люминесценции около 14 % и кросс-релаксационным механизмом тушения люминесценции.

Библиографические ссылки/References

1. Kränkel C, Marzahl D-T, Moglia F, Huber G, Metz PW. Out of the blue: semiconductor laser pumped visible rare-earth doped lasers. *Laser & Photonics Reviews*. 2016;10(4):548–568. DOI: 10.1002/lpor.201500290.

^{2.} Metz PW, Reichert F, Moglia F, Müller S, Marzahl D-T, Kränkel C, et al. High-power red, orange, and green Pr^{3+} : LiYF₄ lasers. *Optics Letters*. 2014;39(11):3193–3196. DOI: 10.1364/OL.39.003193.

3. Tanaka H, Fujita S, Kannari F. High-power visibly emitting Pr³⁺ : YLF laser end pumped by single-emitter or fiber-coupled GaN blue laser diodes. Applied Optics. 2018;57(21):5923-5928. DOI: 10.1364/AO.57.005923.

4. Saiyu Luo, Xigun Yan, Qin Cui, Bin Xu, Huiying Xu, Zhiping Cai. Power scaling of blue-diode-pumped Pr : YLF lasers at 523.0, 604.1, 606.9, 639.4, 697.8 and 720.9 nm. Optics Communications. 2016;380:357–360. DOI: 10.1016/j.optcom.2016.06.026.

5. Fibrich M, Jelínková H, Šulc J, Nejezchleb K, Škoda V. Visible cw laser emission of GaN-diode pumped Pr : YAlO3 crystal. Applied Physics B: Lasers and Optics. 2009;97(2):363. DOI: 10.1007/s00340-009-3679-5.

6. Reichert F, Marzahl D-T, Metz P, Fechner M, Hansen N-O, Huber G. Efficient laser operation of Pr³⁺, Mg²⁺ : SrAl₁₂O₁₀. Optics Letters. 2012;37(23):4889-4891. DOI: 10.1364/OL.37.004889.

7. Dorenbos P. The 5d level positions of the trivalent lanthanides in inorganic compounds. Journal of Luminescence. 2000;91(3/4): 155-176. DOI: 10.1016/S0022-2313(00)00229-5.

8. Malyukin YuV, Zhmurin PN, Borysov RS, Roth M, Leonyuk NI. Spectroscopic and luminescent characteristics of PrAl₃(BO₃)₄ crystals. Optics Communications. 2002;201(4/6):355-361. DOI: 10.1016/S0030-4018(01)01681-9.

9. Cavalli E, Leonyuk NI. Comparative investigation on the emission properties of $RAl_3(BO_3)_4$ (R = Pr, Eu, Tb, Dy, Tm, Yb) crystals with the huntite structure. Crystals. 2019;9(1):44. DOI: 10.3390/cryst9010044.

10. Bartl MH, Gatterer K, Cavalli E, Speghini A, Bettinelli M. Growth, optical spectroscopy and crystal field investigation of YAl₃(BO₃)₄ single crystals doped with tripositive praseodymium. Spectrochimica Acta A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy. 2001;57(10):1981-1990. DOI: 10.1016/S1386-1425(01)00484-X.

11. Boultif A, Louër D. Powder pattern indexing with the dichotomy method. Journal of Applied Crystallography. 2004;37(part 5): 724-731. DOI: 10.1107/S0021889804014876.

12. Shannon RD, Prewitt CT. Effective ionic radii in oxides and fluorides. Acta Crystallographica Section B: Structural Science, Crystal Engineering and Materials. 1969;B25(part 5):925–946. DOI: 10.1107/S0567740869003220.

13. Kornienko AA, Kaminskii AA, Dunina EB. Dependence of the line strength of f - f transitions on the manifold energy. II. Analysis of Pr³⁺ in KPrP₄O₁₂. *Physica, Status, Solidi B: Basic Solid State Physics*. 1990;157(1):267–273. DOI: 10.1002/pssb.2221570127.

14. Jaque D, Ramirez MO, Bausá LE, García Solé J, Cavalli E, Speghini A, et al. $Nd^{3+} \rightarrow Yb^{3+}$ energy transfer in the $YAl_3(BO_3)_4$ nonlinear laser crystal. *Physical Review B: Covering Condensed Matter and Materials Physics*. 2003;68(24):035118. DOI: 10.1103/ PhysRevB.68.035118.

15. van Dijk JMF, Schuurmans MFH. On the nonradiative and radiative decay rates and a modified exponential energy gap law for 4f – 4f transitions in rare-earth ions. *The Journal of Chemical Physics*. 1983;78(9):5317. DOI: 10.1063/1.445485. 16. de Mello Donega C, Meijernik A, Blasse G. Non-radiative relaxation processes of the Pr³⁺ ion. *Journal of Applied Spectroscopy*.

1995;62(4):664-670. DOI: 10.1007/BF02606515.

Получена 15.12.2021 / исправлена 14.01.2022 / принята 16.01.2022. Received 15.12.2021 / revised 14.01.2022 / accepted 16.01.2022.

Авторы:

Максим Петрович Демеш – кандидат физико-математических наук; старший научный сотрудник научно-исследовательского центра оптических материалов и технологий приборостроительного факультета.

Константин Николаевич Горбаченя – кандидат физикоматематических наук, доцент; старший научный сотрудник научно-исследовательского центра оптических материалов и технологий приборостроительного факультета.

Виктор Эдвардович Кисель - кандидат физико-математических наук, доцент; заведующий научно-исследовательским центром оптических материалов и технологий приборостроительного факультета.

Елена Александровна Волкова – кандидат химических наук, доцент; доцент кафедры кристаллографии и кристаллохимии геологического факультета.

Виктор Викторович Мальцев – доктор химических наук; старший научный сотрудник кафедры кристаллографии и кристаллохимии геологического факультета.

Елизавета Владимировна Копорулина – кандидат геологоминералогических наук, доцент; доцент кафедры кристаллографии и кристаллохимии геологического факультета.

Authors:

Maxim P. Demesh, PhD (physics and mathematics); senior researcher at the center for optical materials and technologies, faculty of instrumentation engineering.

maxim.demesh@bntu.by

Konstantin N. Gorbachenya, PhD (physics and mathematics), docent; senior researcher at the center for optical materials and technologies, faculty of instrumentation engineering.

gorby.konstantin@gmail.com

Viktor E. Kisel, PhD (physics and mathematics), docent; head of the center for optical materials and technologies, faculty of instrumentation engineering.

vekisel@bntu.by

Elena A. Volkova, PhD (chemistry), docent; associate professor at the department of crystallography and crystal chemistry, faculty of geology.

volkova@geol.msu.ru

Viktor V. Maltsev, doctor of science (chemistry); senior researcher at the department of crystallography and crystal chemistry, faculty of geology.

maltsev@geol.msu.ru

Elizaveta V. Koporulina, PhD (geology and mineralogy), docent; associate professor at the department of crystallography and crystal chemistry, faculty of geology. e koporulina@mail.ru

Алексей Александрович Корниенко – доктор физико-математических наук, профессор; профессор кафедры информационных систем и автоматизации производства факультета информационных технологий и робототехники.

Елена Брониславовна Дунина – кандидат физико-математических наук, доцент; доцент кафедры информационных систем и автоматизации производства факультета информационных технологий и робототехники.

Николай Васильевич Кулешов – доктор физико-математических наук, профессор; заведующий кафедрой лазерной техники и технологии приборостроительного факультета. *Alexey A. Kornienko*, doctor of science (physics and mathematics), full professor; professor at the department of information systems and production automation, faculty of information technology and robotics.

a_a_kornienko@mail.ru

Elena B. Dunina, PhD (physics and mathematics), docent; associate professor at the department of information systems and production automation, faculty of information technology and robotics. *l.dun@mail.ru*

Nikolay V. Kuleshov, doctor of science (physics and mathematics), full professor; head of the department of laser devices and technology, faculty of instrumentation engineering. *nkuleshov@bntu.by* УДК 778.38.01:535;535.3

ЗАПИСЬ ДИНАМИЧЕСКИХ ПОЛЯРИЗАЦИОННЫХ РЕШЕТОК В ЧИСТОМ НЕМАТИЧЕСКОМ ЖИДКОМ КРИСТАЛЛЕ

С. С. СЛЮСАРЕНКО¹⁾, Е. А. МЕЛЬНИКОВА¹⁾, А. Л. ТОЛСТИК¹⁾

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

Посвящена экспериментальной реализации записи поляризационных динамических решеток в чистом нематическом жидком кристалле. Механизм регистрации основан на фоторефрактивном эффекте в ячейке, заполненной чистым кристаллом нематика, под действием приложенного постоянного электрического поля. Это явление не требует наличия фотовозбужденных носителей заряда в жидком кристалле и объясняется экстремально высокой анизотропией жидкого кристалла. Приведена элементарная теоретическая модель данного процесса. Исследованы зависимости процесса записи решетки от пространственной частоты интерференционного поля и интенсивности записывающих пучков. Обнаружено, что пространственно решетка не совпадает с интерференционным полем, т. е. отклик среды нелокальный. Однако мы не связываем подобное свойство с аналогичным в фоторефрактивных кристаллах. В нашем случае более вероятен механизм чисто геометрического рассогласования в силу особенности механизма записи. Одним из фундаментальных свойств описываемых процессов является их независимость от длины волны записывающего излучения, что подтверждает выбранную нами модель механизма записи.

Ключевые слова: жидкие кристаллы; фоторефрактивный эффект; голография.

RECORDING THE DYNAMIC POLARISATION GRATINGS IN PURE NEMATIC LIQUID CRYSTAL

S. S. SLUSSARENKO^a, E. A. MELNIKOVA^a, A. L. TOLSTIK^a

^aBelarusian State University, 4 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220030, Belarus Corresponding author: S. S. Slussarenko (slussarenko@yahoo.com)

We report on experimental realisation of polarisation dynamic gratings recording in pure nematic liquid crystal. This work is devoted to the experimental implementation of writing polarisation dynamic gratings in a pure nematic liquid crystal. The registration mechanism is based on the photorefractive effect in a cell filled with a pure nematic crystal under the action of an applied constant electric field. This phenomenon does not require the presence of photoexcited charge

Образец цитирования:

Слюсаренко СС, Мельникова ЕА, Толстик АЛ. Запись динамических поляризационных решеток в чистом нематическом жидком кристалле. *Журнал Белорусского государственного университета.* Физика. 2022;1:14–19 (на англ.). https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-14-19

For citation: Slussarenko SS, M

Slussarenko SS, Melnikova EA, Tolstik AL. Recording the dynamic polarisation gratings in pure nematic liquid crystal. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2022;1:14–19. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-14-19

Авторы:

Сергей Сергеевич Слюсаренко – кандидат физико-математических наук; доцент кафедры ядерной физики физического факультета.

Елена Александровна Мельникова – кандидат физико-математических наук; доцент кафедры лазерной физики и спектроскопии физического факультета.

Алексей Леонидович Толстик – доктор физико-математических наук, профессор; заведующий кафедрой лазерной физики и спектроскопии физического факультета.

Authors:

Sergei S. Slussarenko, PhD (physics and mathematics); associate professor at the department of nuclear physics, faculty of physics.

slussarenko@yahoo.com

https://orcid.org/0000-0002-0583-4632

Elena A. Melnikova, PhD (physics and mathematics); associate professor at the department of laser physics and spectroscopy, faculty of physics.

melnikova@bsu.by

https://orcid.org/0000-0001-5097-5832

Alexei L. Tolstik, doctor of science (physics and mathematics), full professor; head of the department of laser physics and spectroscopy, faculty of physics. *tolstik@bsu.by https://orcid.org/0000-0003-4953-4890* carriers in the liquid crystal and is explained by the extremely high anisotropy of the liquid crystal. The article provides an elementary theoretical model of this process. The dependences of the grating writing process on the spatial frequency of the interference field and the intensity of the recording beams are investigated. It was found that the spatial grating does not coincide with the interference field – the response of the medium is non-local. However, we do not associate this property with that in photorefractive crystals. In our case, a mechanism of purely geometric mismatch is more likely due to the peculiarity of the recording mechanism. One of the fundamental properties of the described processes is their independence from the wavelength of the recording radiation, which confirms the model of the recording mechanism we have chosen.

Keywords: liquid crystals; photorefractivety; holography.

Introduction

Liquid crystals (LC) with their unique ability to be reoriented by small electrical fields are promising photorefractive media. It should be noted that the formation of permanent diffraction structures in the LC layer can be realised by different methods [1; 2].

First experimental observations of molecules orientation changes in a spatially inhomogeneous electrical field under applied light wave were reported in works [3; 4]. These experiments were performed using dye-doped LCs. In [3] it was observed, that in LC doped with laser dyes the joint influence of photoexcited charge carriers and direct current (DC) electric field applied parallel to the director resulted in a reorientation of LC. I. Khoo and S. Slussarenko have found that a similar phenomenon is possible in LC doped with azo-dye without the applied external DC field (diffusion spatial charge formation mechanism [5]). In this case, the field of spatial charge created due to diffusion of photoexcited charge carriers in the inhomogeneous light field was enough for effective reorientation of LC. In work [6], a dynamic grating was recorded for the first time in a cell with a pure nematic when a constant electric field was applied. It should be noted that in the case of applying a constant field, all processes develop in the region of the formation of a double charge layer.

Model

It was shown in [5] that he mechanism of space charge field formation could be due to the Helfrich – Carr effect. Let us imagine that in a nematic LC the orientation was locally changed under the influence of DC electric field (fig. 1).



Fig. 1. Transversal field formation

Inhomogeneous light field, for example, could cause this change in the case of sinusoidal grating writing. The orientation disruption results in the local change of the conductivity of LC and the formation of a transversal field component. The magnitude of this component can be defined as

$$E_{x,\sigma} = -\frac{\left(\sigma_{\parallel} - \sigma_{\perp}\right)\cos\Theta\sin}{\sigma_{\parallel}\cos^{2}\Theta + \sigma_{\perp}\sin^{2}\Theta}E_{z}.$$
(1)

The local change in the dielectric permittivity results in similar input

$$E_{x,\varepsilon} = -\frac{\left(\varepsilon_{\parallel} - \sigma\varepsilon_{\perp}\right)\cos\Theta\sin}{\varepsilon_{\parallel}\cos^{2}\Theta + \varepsilon_{\perp}\sin^{2}\Theta}E_{z},$$
(2)

where σ is the conductivity and ε is the permittivity (along and perpendicular to the long molecular axis); E_z is the external DC field; $E_{x,\sigma}$, $E_{x,\varepsilon}$ are the transversal components of the electric field formed due to change of conductivity and permittivity, respectively; Θ is the director reorientation angle.

The transverse field formation, in turn, results in further LC molecules deflection and, as a result, leads to its further increase.

In [6] similar mechanism was demonstrated experimentally and high-efficiency dynamic holography gratings recording were realised. Here we propose to use the orientational non-linearity as a starting reorientation mechanism [7]. The initial director orientation, caused by this non-linearity can be described as

$$\Theta \approx \frac{\varepsilon_a |E|^2 L \sin(2\alpha)}{32\pi K},\tag{3}$$

where Θ is the director reorientation angle; *E* is the light field intensity; α is the angle between light polarisation and director; ε is the dielectric permittivity; *K* is the Frank constant.

We can see from (3) that in case if the light field is a result of interference of two coherent beams then the director reorientation is modulated a similar way. However, such modulation can also be realised in case not only with light intensity change but also its polarisation. Such modulation is a result of an interference of two beams with perpendicular polarisations.

This work describes the experimental realisation of such grating recording using the described above mechanism. It should be mentioned here that for this polarisation recording the intensity of the light field remains homogeneous and all other possible mechanisms of grating recording are not considered.

Experiment

The cell used consisted of two glass surfaces covered by conductive ITO layers and nematic LC 5CB (*Merck*, Great Britain), oriented homeotropically. Homeotropic orientation was induced by applying a layer of chlorosilane on a surface of ITO and the consequent heating up to 160 °C. The cell thickness was determined by a 20 μ m polymer spacer.

Additionally, the cell was placed into the interference field of two wave YAG : Nd laser beams ($\lambda = 0.53 \mu m$, intensity of beam about 10 mW), laser beams and director of LC were in the beam incidence plane (fig. 2). The second beam was polarised perpendicular to the first one.

The DC electric field in a range from 0 to 6 V has been applied to the cell. The conductance of LC was about 10^{-12} cm/Ohm and has not been changing under the light applied.

Despite the absence of photoexcited charge carriers, light intensity modulation, and absorption at the wavelength of 0.53 μ m, we were able to register the self-diffraction, which appeared only under application of the external field of a certain value. These conditions were similar to the ones described in [4]. It is also important to mention that only one writing beam was taking part in process of self-diffraction as for *o*-wave there is no





modulation of $\hat{\epsilon}$. It could be noted, $\hat{\epsilon}$ is modulated only for *e*-wave and thus the diffraction is observed only for *e*-wave. The polarisation corresponds to the extraordinary wave in the geometry of the experiment (fig. 3), i. e. has an asymmetrical form.

To analyse the conditions of self-diffraction appearance the intensity of the first non-Bragg order was registered. The self-diffraction was appearing at voltages >2.2 V. This complies well with the results of [5]. The diffraction efficiency (maximum is about 1.5 %) showed a linear dependence on writing beams intensity (fig. 4).

The dependence of diffraction efficiency on spatial frequencies is shown in fig. 5. The maximum diffraction efficiency corresponds to a cell with a period of about 20 μ m. The decrease of the diffraction efficiency at high frequencies is due, as in most cases of grating formation in LC cells, to elastic forces of LC that counterforce the grating formation. The decrease at low frequencies is possibly explained by the limited size of the writing beams, on the one hand, and by a reduction of the voltage of the induced space pseudo-charge field, on the other hand.

The fact that orientation non-linearity is not connected to absorption in LC leads to the fact that the described phenomena can be observed not only for the light of He – Cd laser but also for almost any wavelength. We also have observed it using He – Ne laser (0.632 8 μ m) and all generation lines of Ar⁺ laser.

It is worth mentioning that for long (about 1-2 h) exposure under conditions of self-diffraction, the phenomena of permanent grating formation were observed: if applied electrical field remained the same it was possible to observe diffraction of the probe beam of He – Ne laser in the absence of writing beams. When the applied voltage was switched off the diffraction disappeared, but with repeated application of the voltage to the cell, the diffraction appeared again. It is possible, that long exposition under applied voltage leads to structural changes in the polymer at the cell surfaces. These changes have the character of the modulation, reflecting the interference field. This modulation itself is too weak to cause substantial diffraction, but due to the processes described above the grating amplification under the applied field appears.



Fig. 3. Configuration of the experiment

Fig. 4. Linear dependence of diffraction efficiency on the intensity of writing beams



Fig. 5. Dependence of diffraction efficiency on spatial frequencies

Non-locality of the effect

The usual way to check for the signature of photorefractivity, i. e. to find the non-locality of the medium response, is by performing a two-beam coupling experiment. However, in the case of Raman – Nath grating, the presence of higher diffraction orders may confuse and even hide the expected results. Thus, we decided to perform the non-locality check with the method of moving grating.

As it was shown in reference [8], the position of a stationary grating with respect to the interference pattern of the writing beams can be found through a relative displacement analysis. The displacement should be induced by any method along the grating vector and measured in a short time scale with respect to the grating formation time.

We induced a grating displacement corresponding to two spatial periods by phase modulation of one writing beam using a Pockel's cell. We then recorded the light intensity of the zero-order diffracted beams. This intensity behaviour versus time is dependent on the relative initial position of the grating and the writing interference pattern, thus allowing the required test of non-locality. The theoretical details of the method are beyond the scope this article and can be found elsewhere [8; 9].

The schematic of the experiment is shown in fig. 6.



Fig. 6. Experimental set-up for moving grating measurement



Fig. 7. Temporal behaviour of the writing beam in the moving grating experiment

Our results are shown in fig. 7 and demonstrate that in a steady state the phase shift between the grating and writing interference pattern is exactly $\frac{\pi}{2}$ (see fig. 7). Moreover, the sign of the phase shift depends on the voltage polarity.

The figure shows the intensities of the zero-order diffraction. Oscillograms (see fig. 7) correspond to different polarities of the voltage applied to the bounding surfaces of the cell. It can be seen that, in one case, the intensity increases to a certain value (the initial shift of the grating relative to the interference field $\left(-\frac{\pi}{2}\right)$) and, with an increase in the shift, again returns to the original intensity. When changing the polarity, we have the opposite picture – a drop in intensity (the initial shift of the grating relative to the field $\left(+\frac{\pi}{2}\right)$).

Conclusions

The experiments described above suggest that the main mechanism responsible for the effects is the amplification of the light-induced distortion of the LC anisotropy. The diffraction efficiency (DE) dependence on the spatial period, shows a non-monotonic behaviour. The maximum DE is correlated with the cell thickness. The DE decrease at smaller periods is due, as in most cases of grating formation in LC cells, to the action of elastic forces that counteract the grating formation. The DE decrease at higher periods can be explained, on one hand, by the limited number of fringes in the illuminated spot and, on the other hand, by the reduction of the induced electric field. This is because a larger grating pitch induces a smaller local distortion, hence a smaller local anisotropy change, which in turn produces a lower transverse electric field.

The non-locality of the effect needs to be discussed, too. Equations (1), (2) give no evidence of this attribute. The well-studied orientation non-linearity is local, too. It can be assumed that the non-locality in our case is associated with a misadjustment of the interference field (tilted by 45 degrees) and formed perpendicular to the cell surface grating. This mismatch is the result of the fact that the grating is formed near the bounding surface, where, due to the formation of a double charge layer, the applied field is localised. Finally, we notice that the light field in all experiments presented here has only the role to induce an initial director distortion that gives rise to the photorefractive effect. Furthermore, in one case, where a memory effect maintains the previously generated pre-distortion, there is no need for an inducing light field.

References

1. Kazak AA, Melnikova EA, Tolstik AL, Mahilny UV, Stankevich AI. Controlled diffraction liquid-crystal structures with a photoalignment polymer. *Technical Physics Letters*. 2008;34(10):861–863. DOI: 10.1134/S1063785008100155.

2. Trofimova A, Mahilny U. Anisotropic gratings based on patterned photoalignment of reactive mesogen. *Journal of the Optical Society of America B*. 2014;31(5):948–952. DOI: 10.1364/JOSAB.31.000948.

3. Rudenko EV, Sukhov AV. Optically induced spatial charge separation in a nematic and the resultant orientational nonlinearity. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*. 1994;78(6):875–882.

4. Khoo IC, Slussarenko SS, Guenther BD, Shih Min-Yi, Chen P, Wood WV. Optically induced space-charge field, DC voltage and extraordinarily large nonlinearity in dye-doped nemetic liquid crystals. *Optics Letters*. 1998;23(4):253–255. DOI: 10.1364/OL.23.000253.

5. Helfrich W. Conduction-induced alignment of nematic liquid crystals: basic model and stability considerations. *Journal of Chemical Physics*. 1969;51(9):4092–4105. DOI: 10.1063/1.1672632.

6. Slussarenko SS. Photorefractive effect in pure nematic liquid crystal. *Europhysics Letters*. 2001;56(5):672–675. DOI: 10.1209/epl/i2001-00113-x.

7. Zel'dovich BYa, Tabiryan NV. Orientational optical nonlinearity of liquid crystals. *Soviet Physics Uspekhi*. 1985;28(12):1059–1083. DOI: 10.1070/PU1985v028n12ABEH003985.

8. Kondilenko V, Markov V, Odulov S, Soskin M. Diffraction of coupled waves and determination of phase mismatch between holographic grating and fringe pattern. *Optica Acta: International Journal of Optics*. 1979;26(2):239–251. DOI: 10.1080/713819957.

Grunnet-Jepsen A, Thompson CL, Moerner WWE. Systematics of two-wave mixing in a photorefractive polymer. *Journal of the Optical Society of America B*. 1998;15(2):905–913. DOI: 10.1364/JOSAB.15.000905.

Received 25.10.2021 / revised 07.12.2021 / accepted 07.12.2021.

УДК 535.2:621.373.826

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПАРАМЕТРА КОНУСНОСТИ БЕССЕЛЕВА СВЕТОВОГО ПУЧКА ПОСРЕДСТВОМ ФУРЬЕ-АНАЛИЗА ДИАМЕТРАЛЬНОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ИНТЕНСИВНОСТИ

А. А. РЫЖЕВИЧ^{1), 2)}, *И. В. БАЛЫКИН*¹⁾

¹⁾Институт физики НАН Беларуси, пр. Независимости, 68-2, 220072, г. Минск, Беларусь ²⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

Получены выражения, описывающие спектральную плотность мощности (СПМ) распределения интенсивности идеального бесселева светового пучка (БСП). Показано, что СПМ распределения интенсивности идеального БСП ограничена сверху и верхняя граница СПМ равна удвоенному параметру конусности (произведению волнового числа на синус половинного угла раствора конуса волновых векторов), а число нулей в СПМ идеального БСП, расположенных на интервале от нулевой частоты до верхней границы спектра, равно порядку пучка. Предложена методика оценки параметра конусности БСП посредством анализа оценок СПМ диаметральных распределений – одномерных распределений интенсивности, полученных в поперечной плоскости пучка вдоль линии, проходящей через ось пучка, из двумерных поперечных распределений интенсивности БСП, зафиксированных в виде цифровых компьютерных изображений. Исследовано влияние обрезки (окончания распределения на границе чувствительного сенсора), гауссовой и косинусной модуляций диаметрального распределения на форму спектра, а в случае обрезки и на ошибку оценки параметра конусности с использованием предложенной методики. Описанная методика протестирована на примере анализа экспериментальных БСП различных порядков (БСП_m, <math>m = 0, 1, 2). Она может приме-</sub> няться для оценки параметров качества БСП. Результаты анализа влияния косинусной модуляции на форму СПМ могут быть использованы для оценки величины скругления верхушки аксикона, формирующего БСП, в целях контроля качества изготовления аксикона.

Ключевые слова: бесселев световой пучок; угол конусности; параметр конусности; спектральная плотность мощности.

Благодарность. Работа выполнена в рамках задания 1.1.01 «Разработка физических основ распространения и преобразования квазибездифракционных вихревых световых пучков нового типа в анизотропных, неоднородных и рассеивающих средах и создание на этой основе инновационных диагностических оптико-электронных устройств» (№ гос. регистрации 20160091) государственной программы научных исследований «Фотоника, оптои микроэлектроника» на 2016–2020 гг. и задания 1.1 «Разработка методов и устройств диагностики материалов, процессов и изделий в оптическом и терагерцевом диапазонах спектра и их применение для оптической связи, микроскопии и определения характеристик различных объектов» (№ гос. регистрации 20210300 от 23.03.2021 г.) государственной программы научных исследований «Фотоника и электроника для инноваций» на 2021–2025 гг.

Образец цитирования:

Рыжевич АА, Балыкин ИВ. Определение параметра конусности бесселева светового пучка посредством фурье-анализа диаметрального распределения интенсивности. Журнал Белорусского государственного университета. Физика. 2022; 1:20-34.

https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-20-34

Авторы:

Анатолий Анатольевич Рыжевич – кандидат физикоматематических наук; ведущий научный сотрудник центра «Диагностические системы»¹⁾, доцент кафедры квантовой радиофизики и оптоэлектроники факультета радиофизики и компьютерных технологий²⁾.

Игорь Валерьевич Балыкин – младший научный сотрудник центра «Диагностические системы».

For citation:

Ryzhevich AA, Balykin IV. Determination of the Bessel light beam cone parameter by Fourier analysis of the diametral distribution of the intensity. Journal of the Belarusian State University. Physics. 2022;1:20-34. Russian. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-20-34

Authors:

Anatol A. Ryzhevich, PhD (physics and mathematics); leading researcher at the center «Diagnostic systems»^a and associate professor at the department of quantum radiophysics and optoelectronics, faculty of radiophysics and computer technologies^b. tol@dragon.bas-net.by

https://orcid.org/0000-0002-5463-0054

Igor V. Balykin, junior researcher at the center «Diagnostic systems».

b97@dragon.bas-net.by

https://orcid.org/0000-0002-6763-1136



DETERMINATION OF THE BESSEL LIGHT BEAM CONE PARAMETER BY FOURIER ANALYSIS OF THE DIAMETRAL DISTRIBUTION OF THE INTENSITY

A. A. RYZHEVICH^{a, b}, I. V. BALYKIN^a

^aInstitute of Physics, National Academy of Sciences of Belarus, 68-2 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220072, Belarus ^bBelarusian State University, 4 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220030, Belarus Corresponding author: I. V. Balykin (b97@dragon.bas-net.by)

Power spectral density (PSD) of the intensity distribution of an ideal Bessel light beam (BLB) expressions are obtained. It is shown that the PSD of the intensity distribution of an ideal BLB is limited and the upper boundary of the PSD is equal to the doubled cone parameter (the product of the wave number and the sine of the half angle of the cone of wave vectors), and the number of zeros in the PSD of an ideal BLB located in the interval from zero frequency to the upper boundary of the spectrum, is equal to the order of the beam. A technique is proposed for estimating the cone parameter of BLBs by analysing the PSD estimates of diametral distributions – one-dimensional intensity distributions obtained in the transverse plane of the beam along a line passing through the beam axis from transverse two-dimensional BLB intensity distributions recorded in the form of digital computer images. The influence of clipping (the end of the distribution at the boundary of the sensitive sensor), Gaussian and cosine modulations of the diametral distribution on the shape of the spectrum and, in case of clipping, the error in the cone parameter estimation using the proposed method is investigated. The technique is tested on the example of the analysis of experimental BLBs of different orders (BLB_m, m = 0, 1, 2). The proposed technique can be used to assess the quality parameters of the BLB. The results of the analysis of the analysis of the axicon forming the BLB for control the quality of the axicon manufacturing.

Keywords: Bessel light beam; cone angle; cone parameter; power spectral density.

Acknowledgements. The work was performed within the framework of task 1.1.01 «Development of the physical foundations of the propagation and transformation of quasi-diffraction-free vortex light beams of a new type in anisotropic, inhomogeneous and scattering media and the creation on this basis of innovative diagnostic optoelectronic devices» (state reg. No. 20160091) of state program of scientific research «Photonics, opto- and microelectronics» for 2016–2020 and task 1.1 «Development of methods and devices for diagnostics of materials, processes and products in the optical and terahertz ranges and their application for optical communication, microscopy and determination of the characteristics of various objects» (state reg. No. 20210300 dated 23.03.2021) of state program of scientific research «Photonics and electronics for innovations» for 2021–2025.

Введение

Как известно, бесселевы световые пучки (БСП) представляют собой аксиально-симметричные световые поля, описываемые функциями Бесселя [1]. Наиболее простым примером этого класса пучков является скалярный БСП с поперечной компонентой поля

$$U_m(\rho, \phi, z) = A J_m(k \sin(\gamma) \rho) \exp(i(k_z z + m\phi)),$$

где ρ , ϕ и *z* – радиальная, азимутальная и осевая координаты соответственно; *A* – скалярная амплитуда; J_m – функция Бесселя 1-го рода *m*-го порядка; $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ (λ – длина волны светового излучения); γ – угол конусности БСП; $k_z = k \cos \gamma$. Далее в работе предполагается использование монохроматического лазерного источника излучения для формирования БСП.

На практике измеряемой величиной обычно выступает интенсивность светового пучка, пропорциональная квадрату амплитуды напряженности поля. Таким образом, вид поперечного распределения интенсивности БСП *m*-го порядка описывается функцией

$$I(\rho) = A^2 J_m^2 (k \sin(\gamma) \rho).$$

Переходя к относительным единицам (нормируя максимум интенсивности на единицу и вводя обозначение для параметра конусности БСП $q_0 = k \sin(\gamma) \approx k \gamma$ при $\gamma < 10^\circ$, что часто встречается на практике), получаем

$$I(x) = J_m^2(q_0 x), \tag{1}$$

где *x* – диаметральная координата, обозначающая положение вдоль линии, проходящей через ось пучка в поперечной плоскости пучка (при этом *x* = 0 соответствует положению на оси пучка).

Формула (1) задает идеальный вид диаметрального распределения интенсивности БСП, в то время как ПЗС-матрицей, линейкой либо другим прибором может быть зарегистрировано внешне подобное, но неидеальное экспериментальное распределение интенсивности БСП. Оценка параметра конусности БСП q₀ бывает необходима в качестве начального приближения при аппроксимации экспериментальных поперечных распределений точными математическими выражениями, а также для определения угла конусности БСП на основе зарегистрированного экспериментального распределения интенсивности в по-

перечном сечении БСП. В таком случае угол конусности БСП определяется как $\gamma = \frac{q_0}{k}$. Параметр q_0 при анализе поперечных распределений интенсивности имеет размерность, обратную используемой размерности поперечной координаты. Для корректного выражения угла конусности параметр q_0 следует рассчитывать в физических единицах длины, зная длину волны излучения λ используемого источника, точные размеры пикселов и коэффициент увеличения прибора, с помощью которого регистрируются экспериментальные распределения интенсивности. Для лаконичности повествования и упрощения формы математических выражений далее рассматривается только параметр q_0 .

Материалы и методы исследования

В работе изучены идеальные (теоретические) диаметральные распределения интенсивности БСП различных порядков в чистом виде и при наличии косинусной модуляции с использованием непрерывного преобразования Фурье и других методов математического анализа. Экспериментальные (в виде цифровых сигналов) диаметральные распределения интенсивности БСП, полученные авторами ранее, исследованы с применением дискретного преобразования Фурье. Влияние обрезки, а также косинусной и гауссовой модуляций на форму спектра рассмотрено с помощью средств численного моделирования. Качество предложенных алгоритмов оценки параметра конусности также исследовано в численном эксперименте.

Результаты и их обсуждение

Для рассмотрения спектра диаметрального распределения интенсивности БСП было использовано общее выражение для преобразования Фурье произвольной функции:

$$F(\omega) = \mathcal{F}\left\{f(t)\right\} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} f(t)e^{j\omega t} dt,$$

где $\mathcal{F}\{\$ обозначает оператор преобразования Фурье; *t* есть временная или пространственная координата; *j* – комплексная единица; **ω** – циклическая частота.

В качестве исследуемой функции выступает (1). Рассмотрим преобразование Фурье квадрата функции Бесселя $J_m^2(q_0 t)$ целого порядка ($m \in \mathbb{Z}$), переходя от координатного пространства x в пространство поперечных волновых чисел q:

$$F(q) = \mathcal{F}\left\{J_m^2(q_0 x)\right\} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} J_m^2(q_0 x) e^{jqx} dx = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} J_m^2(q_0 x) (\cos qx + j\sin qx) dx = \\ \begin{bmatrix} m \in \mathbb{Z} \to J_m(-x) = (-1)^m J_m(x), \\ J_m^2(-q_0 x) \sin(-qx) = (-1)^{2m} J_m^2(q_0 x) (-\sin qx) = -J_m^2(q_0 x) \sin qx \to \int_{-\infty}^{+\infty} J_m^2(q_0 x) \sin qx dx = 0, \\ J_m^2(-q_0 x) \cos(-qx) = (-1)^{2m} J_m^2(q_0 x) \cos qx = J_m^2(q_0 x) \cos qx \to \int_{-\infty}^{+\infty} J_m^2(q_0 x) \cos qx dt = 2 \int_0^{+\infty} J_m^2(q_0 x) \cos qx dx \end{bmatrix} = \\ = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \int_0^{+\infty} J_m^2(q_0 x) \cos qx dx = \left[m \in \mathbb{Z} \to J_{-m}(q_0 x) = (-1)^m J_m(q_0 x) \right] = (-1)^m \sqrt{\frac{2}{\pi}} \int_0^{+\infty} J_{-m}(q_0 x) J_m(q_0 x) \cos qx dx. \end{bmatrix}$$

В [2, с. 200] приводится следующее тождество для интеграла, входящего в полученное выражение:

$$\int_{0}^{+\infty} \cos ax J_{-\nu}(cx) J_{\nu}(cx) dx = \delta \frac{1}{2c} P_{\nu-1/2} \left(\frac{a^2}{2c^2} - 1 \right)$$

где $\delta = 1$ при 0 < a < 2c и $\delta = 0$ при 0 < 2c < a; $P_{\nu - 1/2}$ – функция Лежандра ($\nu - 1/2$)-го порядка [2].

В силу того, что $\cos((-a)x) = \cos(ax)$, весь интеграл должен быть четной функцией по *a*, таким образом, δ можно заменить на функцию Хевисайда вида $\theta((2c)^2 - a^2)$.

Подставляя вместо б функцию Хевисайда и введенные ранее обозначения, получаем

$$F(q) = \mathcal{F}\left\{J_m^2(q_0 x)\right\} = (-1)^m \frac{1}{q_0 \sqrt{2\pi}} P_{m-1/2}\left(\frac{q^2}{2q_0^2} - 1\right) \theta\left(\left(2q_0\right)^2 - q^2\right).$$
(2)

В соответствии с [3, р. 3] функцию Лежандра можно представить в виде обобщенного гипергеометрического ряда следующим образом:

$$P_n(x) = {}_2F_1\left(-n, n+1; 1; \frac{1-x}{2}\right),$$

тогда в нашем случае

$$P_{m-1/2}\left(\frac{q^2}{2q_0^2}-1\right) = {}_2F_1\left(\frac{1}{2}-m,\frac{1}{2}+m;1;1-\frac{q^2}{4q_0^2}\right)$$

Таким образом, для выражения (2) также допустима следующая форма:

$$F(q) = \mathcal{F}\left\{J_m^2(q_0 x)\right\} = (-1)^m \frac{1}{q_0 \sqrt{2\pi}} {}_2F_1\left(\frac{1}{2} - m, \frac{1}{2} + m; 1; 1 - \frac{q^2}{4q_0^2}\right) \Theta\left(\left(2q_0\right)^2 - q^2\right),\tag{3}$$

где q – волновое число; ${}_{2}F_{1}(a, b; c; z)$ – гипергеометрический ряд с коэффициентами 2 и 1.

Квадрат модуля выражений (2) и (3) описывает спектральную плотность мощности (СПМ) P(q) диаметрального распределения идеального БСП и приводится в виде формул

$$P(q) = \left|F(q)\right|^{2} = \left|\mathcal{F}\left\{J_{m}^{2}(q_{0}x)\right\}\right|^{2} = \frac{1}{2\pi q_{0}^{2}}P_{m-1/2}^{2}\left(\frac{q^{2}}{2q_{0}^{2}}-1\right)\Theta\left(\left(2q_{0}\right)^{2}-q^{2}\right),\tag{4}$$

$$P(q) = \frac{1}{2\pi q_0^2} {}_2F_1^2 \left(\frac{1}{2} - m, \frac{1}{2} + m; 1; 1 - \frac{q^2}{4q_0^2}\right) \Theta\left(\left(2q_0\right)^2 - q^2\right).$$
(5)

Важно отметить, что в формулу (4) входит функция Хевисайда вида $\theta((2q_0)^2 - q^2)$, которая равна единице, когда $q \in (-2q_0, 2q_0)$, и нулю в остальных случаях. Таким образом, величина $2q_0$ является верхней границей интервала значений q, на котором СПМ (4) отлична от нуля, что можно видеть на спектрах идеальных диаметральных распределений интенсивности БСП различных порядков, приведенных далее (см. табл. 2). С другой стороны, имея спектр диаметрального распределения интенсивности БСП и определив в нем максимальное волновое число q_{max} , для которого спектр отличен от нуля, можно легко получить параметр конусности пучка как $q_0 = \frac{q_{\text{max}}}{2}$.

Из представленных ниже спектров диаметральных распределений (см. табл. 2) видно, что число нулей в СПМ на интервале от нулевой частоты до верхней границы спектра равно порядку пучка. Это можно объяснить следующим образом. Известно, что функции Лежандра $P_{\lambda}(x)$ представляют собой случай присоединенных функций Лежандра $P_{\lambda}^{\mu}(x)$ при $\mu = 0$. В [4, теорема V] показано, что функция Лежандра $P_{\lambda}^{\mu}(x)$ для действительных μ , λ на интервале $x \in (-1, 1)$ имеет $E(\lambda - |\mu| + 1) - E(-\lambda - |\mu|)$ корней, если $\mu \leq 0$ или если μ – положительное целое число, где E – операция округления к ближайшему меньшему целому числу для x > 1 либо к нулю для $x \leq 1$. Таким образом, сомножитель $P_{m-1/2}(x)$, входя-

щий в (4), для целого
$$m \ge 0$$
 на отрезке $x \in (-1, 1)$ будет иметь $E\left(m + \frac{1}{2}\right) - E\left(-m + \frac{1}{2}\right) = E\left(m + \frac{1}{2}\right) = m$ нулей. С другой стороны, спектр, описываемый формулой (4), будет отличен от нуля только на интервале

 $(-2q_0, 2q_0)$ за счет сомножителя в виде функции Хевисайда, при этом функция в аргументе $x = \frac{q^2}{2q_0^2} - 1$

взаимно однозначно отображает интервал $q \in (0, 2q_0)$ на интервал $x \in (-1, 1)$. Следовательно, спектр идеального диаметрального распределения интенсивности БСП_{*m*} будет иметь *m* нулей на интервале от нулевой частоты до верхней границы спектра.

Полученные спектры представляют собой действительнозначные функции. Это обусловлено четностью функций Бесселя. При анализе реальных сигналов (распределений интенсивности) выборки не обладают таким свойством, поэтому соответствующие им спектры (преобразования Фурье) будут содержать комплексную часть. Также следует отметить, что реальные сигналы являются дискретными, это не позволяет применить рассмотренное непрерывное преобразование Фурье, ввиду чего в расчетах необходимо использовать другую характеристику реальных сигналов в спектральной области – оценку СПМ. Периодограммную оценку СПМ для дискретного сигнала можно ввести следующим образом:

$$S(k) = \left| \frac{\Delta x}{N} \sum_{n=1}^{N-1} I(n) e^{-\frac{2\pi}{\Delta x} jkn} \right|^2,$$

где Δx – интервал дискретизации; N – объем выборки; I(n) – интенсивность в n-м пикселе.

Поскольку преобразование дискретное, S(k) – периодическая функция с периодом N, где N – объем исходной выборки. Интервал между отсчетами СПМ в таком случае составляет величину $\Delta q = \frac{2\pi}{N}$ рад на пиксел (далее – рад/пк). Можно также отметить, что число отсчетов спектра l, лежащих в области $q < 2q_0$, будет зависеть от соотношения длины сигнала, т. е. физического размера матрицы светочувствительного элемента и параметра конусности q_0 :

$$l = \frac{2q_0}{\Delta q} = \frac{2q_0\Delta xN}{2\pi} = \frac{1}{\pi}q_0d,$$

где *d* – физическая длина сенсора.

Произведение $q_0 d$ пропорционально числу видимых на светочувствительном сенсоре колец. Таким образом, чем больше колец попадает на сенсор, тем больше число отсчетов спектра l и тем более детальным является спектр в области $q < 2q_0$. Такой вывод верен лишь в случае, если верхняя частота спектра не превышает половины частоты дискретизации для предотвращения эффекта алиасинга (или наложения) [5]. Иначе говоря, должно выполняться условие $2q_0 < \frac{\pi}{\Delta x}$. С учетом того что в сигнале могут присутствовать высокочастотные шумы, это условие можно усилить: $2q_0 \ll \frac{\pi}{\Delta x}$.

Существует способ повысить число отсчетов СПМ в области $q < 2q_0$ для того, чтобы рассмотреть спектр более детально с помощью дополнения исходного распределения интенсивности нулями. Такая методика может быть полезна для более точного определения границы спектра. Тем не менее важно отметить, что при ее использовании в спектре возникают осцилляции, которые можно объяснить как

результат интерполяции исходного спектра с помощью ядра вида $\frac{\sin q}{q}$, являющегося фурье-образом

прямоугольного окна, имитирующего дополнение нулями. Экспериментально установлено, что дополнение выборки нулями до объема $K \approx 10N$ позволяет получить удовлетворительные результаты при определении верхней границы СПМ.

В табл. 1 приводятся смоделированные диаметральные распределения БСП различных порядков и оценки СПМ для d = 10 мм, $\Delta x = 0,01$ мм, что соответствует сенсору с поперечным размером 10 мм и расстоянием между пикселами 10 мкм. Точками обозначены отсчеты СПМ, полученные на основе исходной выборки, линиями – СПМ для выборки, дополненной нулями до K = 10N, вертикальными прямыми – граница спектра идеального БСП.

По диаметральным распределениям интенсивности, приведенным в табл. 1, можно понять влияние параметра q_0 на вид поперечного распределения интенсивности. Так, при увеличении q_0 и фиксированном d число видимых максимумов интенсивности (или колец в случае двумерного распределения) увеличивается, а ширина максимумов (колец) уменьшается.

Ограниченность спектра квадрата функции Бесселя, вытекающая из наличия в выражении для спектра сомножителя в виде функции Хевисайда $\theta((2q_0)^2 - q^2)$, позволяет построить метод быстрого определения параметра q_0 на основе оценок СПМ экспериментальных распределений интенсивности БСП. Идея метода состоит в следующем: по экспериментальному диаметральному распределению интенсивности

БСП строится оценка СПМ с применением дискретного преобразования Фурье, затем СПМ нормируется на максимальное значение и производится оценка верхней частоты спектра $q_{\rm max}$ с использованием

порогового критерия $q_{\max} = \max \left\{ q_i : P(q_i) > \theta \max_{q_i} P(q) \right\}$, т. е. это максимальное значение частоты отсчета СПМ q_i , для которого значение СПМ в данном отсчете $P(q_i)$ больше максимального значения

СПМ max P(q), умноженного на порог $\theta < 1$.

Помимо применения порогового критерия непосредственно к СПМ, можно использовать критерий на основе анализа производной СПМ по волновому числу (частоте), согласно которому граница спектра определяется как место перехода графика на близкое к нулю горизонтальное плато. Для получения координаты этого места следует проанализировать производную сглаженной СПМ: волновое число, для которого производная стабильно станет равной нулю, можно считать началом плато, обозначив его как $q_{\rm max}$. Таким образом, алгоритм определения $q_{\rm max}$ имеет следующий вид:

1) получение оценки СПМ на основе дискретного преобразования Фурье диаметрального распределения интенсивности;

2) сглаживание оценки СПМ с помощью фильтра (например, фильтра Савицкого – Голея или фильтра Гаусса);

3) применение разностного оператора для получения оценки производной СПМ, в простейшем случае

$$\frac{dP}{dq}(q_i) = \frac{P(q_{i+1}) - P(q_i)}{q_{i+1} - q_i}$$

4) поиск значения q_{max} , для которого все дальнейшие значения производной $\frac{dP}{dq}$ будут меньше заданного малого числа к.

На основании найденного значения $q_{\rm max}$ легко получить оценку параметра q_0 , исходя из уравнения

$$(2\hat{q}_0)^2 - q_{\max}^2 = 0,$$

 $\hat{q}_0 = \frac{q_{\max}}{2},$ (6)

где \hat{q}_0 – оценка параметра q_0 .

Применение описанного метода позволяет достаточно быстро получить оценку параметра q_0 , поскольку наиболее трудоемкая процедура – вычисление оценки СПМ – может быть реализована с использованием алгоритмов быстрого преобразования Фурье, обладающих высокой вычислительной эффективностью. Тем не менее смещение, мощность и состоятельность такой оценки требуют уточнения для неидеальных пучков.

Полученное выражение (4) для СПМ диаметрального распределения интенсивности справедливо лишь для идеального БСП, поскольку пределы интегрирования бесконечны, а само диаметральное распределение интенсивности описывается квадратом функции Бесселя, которая не является квадратично интегрируемой в бесконечных пределах, что приводит к стремлению СПМ к бесконечности при $q \rightarrow 0$.

Очевидно, что регистрируемое чувствительным сенсором распределение интенсивности будет иметь конечную длину и в соответствии с теорией преобразования Фурье бесконечный спектр.

Примечательно, что у пучков высших порядков на границе спектра наблюдается максимум, который также возможно использовать для оценки параметра конусности q_0 . Такая оценка может оказаться более точной, однако она имеет два потенциальных недостатка. Во-первых, подобная оценка неуместна для БСП₀, поскольку в нем максимум на границе отсутствует. Во-вторых, поиск максимума требует более сложной статистической процедуры, чем просто отсечение границы спектра по заданному уровню, что может сказаться на скорости получения оценки при анализе световых пучков в режиме реального времени.

Примеры экспериментальных поперечных и диаметральных распределений интенсивности БСП различных порядков, экспериментальные оценки СПМ приведенных диаметральных распределений, полученные на основе дискретного преобразования Фурье, а также теоретические СПМ, задаваемые выражениями (4) и (5), представлены в табл. 2. Для того чтобы пронормировать волновое число q в столбце с экспериментальными СПМ, экспериментальное диаметральное распределение интенсивности было аппроксимировано функцией вида $I(r) = aJ_0^2((x-c)b) + d$ (график аппроксимации приведен в табл. 2 вместе с экспериментальными диаметральными распределениями). В результате получена оценка параметра b, имеющего смысл q_0 . На значение b нормирована частотная шкала экспериментального СПМ.

Таблица 1

Диаметральные распределения интенсивности и оценки СПМ идеальных БСП $_m$ для различных значений параметра $q_0 d$

Table 1

Diametral intensity distributions and power spectral density estimates for ideal BLB_m with different values of $q_0 d$ parameter



Таблица 2

Примеры экспериментальных двумерных поперечных и диаметральных распределений интенсивности БСП различных порядков и спектров идеальных и экспериментальных диаметральных распределений

Table 2

Examples of experimental two-dimensional transversal and diametral intensity distributions of BLBs of different orders and ideal and experimental spectrums of diametral intensity distributions

		Å	
Оценка СПМ экспериментального диаметрального распределения интенсивности	$\frac{1}{\left[F_{0}\left(0,0\right)^{2}\right]^{2}} - \frac{q_{max}}{q_{max}} - \frac{q_{max}}{2.027q_{0}} - \frac{1}{q_{0}} - \frac{1}$	$\frac{1}{[1, -1]{2}} - \frac{1}{2} - \frac{1}{$	$\frac{1}{[r]} \begin{pmatrix} q_{1}q_{0} \\ 0, 0 \end{pmatrix}^{2} \\ 0, 0 \\ 0, 0 \\ -3 \\ -2 \\ -1 \\ 0 \\ -2 \\ -1 \\ -2 \\ -1 \\ 0 \\ -3 \\ -2 \\ -1 \\ 0 \\ -1 \\ -2 \\ -3 \\ -3 \\ -3 \\ -3 \\ -3 \\ -3 \\ -3$
СПМ идеального диаметрального распределения интенсивности	$(b_{1}, b_{2})^{2}$	$\begin{bmatrix} F(q) ^2 \\ 0,0 \\ -2 \\ -2 \\ -2 \\ -2 \\ -2 \\ -2 \\ -2 \\ -$	$[F(q)_{0,0}]^{2} \xrightarrow{(p,q_{0})^{2}} (p$
Диаметральное распределение интенсивности	Китенсивность, отн. ед. 600 400 100 0 100 0 100 100 200 400 0 100 200 400 0 100 200 400 0 100 200 400 0 100 100 100 100 100 100	1000 100 100 100 100 100 100 100 100 10	лтанинаразис вишинаязоquink ооо 100 с 003 005 004 005 004 005 004 005 001 0 301, станицооз квылыстратеми.
Двумерное поперечное распределение интенсивности			
ш	0	-	2

Оценки q_{max} , полученные на основе порогового критерия с $\theta = 0,01$, обозначены вертикальными линиями на графиках СПМ экспериментального диаметрального распределения в табл. 2. Видно, что они лежат в окрестности значений по оси абсцисс $\frac{q}{q_0} = 2$. Это соответствует выражению (6), указывающему, что граница спектра задается как $q_{\text{max}} = 2q_0$. По графикам в табл. 2 также видно, что экспериментальные СПМ по структуре похожи на теоретические, но обладают осцилляциями, предполагаемой причиной возникновения которых являются отклонение формы экспериментального диаметрального распределения от формы идеального и его ограниченность в пространстве.

Анализ влияния гауссовой модуляции пучка на форму СПМ

Для рассмотрения влияния гауссовой модуляции поперечного распределения интенсивности пучка, обусловленной ограниченностью его мощности, были построены оценки СПМ для случаев модуляции диаметрального распределения интенсивности функцией Гаусса, или так называемого бессель-гауссова пучка [6].

В табл. 3 приведены примеры выборок, взвешенных функцией Гаусса
$$I = \exp\left[\frac{(x-x_0)^2}{2\sigma^2}\right]$$
с различ-

ными значениями среднеквадратичного отклонения σ, а также соответствующие им оценки СПМ. Искажения подобного рода часто встречаются на практике.

Видно, что модуляция диаметрального распределения интенсивности гауссовым окном при разумной длине окна не оказывает существенного влияния на ограниченность спектра, а следовательно, не создает препятствий для применения предложенной методики, это свидетельствует об уместности ее использования для бессель-гауссовых пучков. Форма спектра при уменьшении параметра σ сглаживается, но число локальных минимумов при $\sigma > 0.5$ мм сохраняется, что позволяет оценить порядок пучка по СПМ.

Анализ влияния косинусной модуляции пучка на форму СПМ

В [7; 8] было показано, что при формировании БСП неидеальным аксиконом, имеющим скругленную верхушку, в формируемом БСП присутствует периодическая модуляция как осевого, так и поперечного распределения интенсивности. Таким образом, интерес представляет вопрос влияния обозначенной модуляции на форму спектра диаметрального распределения интенсивности в БСП.

Предположим, что на распределение поля в идеальном БСП наложена косинусная модуляция, определяемая выражением

$$g(x) = B\cos(q_M x),$$

где B – амплитуда модуляции; q_M – пространственная частота модуляции.

Поле идеального БСП вдоль заданной диаметральной линии обозначим как U(x). Тогда модулированное поле

 $U_M(x) = g(x)U(x).$

Для интенсивности получаем выражение

$$I_M(x) = g^2(x)U^2(x) = g^2(x)I(x).$$

Преобразование Фурье имеет вид

$$F_M(q) = \mathcal{F}\left\{g^2(x)I(x)\right\} = [\text{теорема свертки}] = \mathcal{F}\left\{g^2(x)\right\} * \mathcal{F}\left\{I(x)\right\} = \mathcal{F}\left\{g^2(x)\right\} * F(q),$$

где знак * обозначает свертку.

Таким образом, спектр Фурье для модулированного распределения интенсивности будет равен свертке спектра распределения интенсивности без модуляции и спектра самой модуляции.

Выражение для спектра без модуляции получено выше. Рассмотрим спектр самой модуляции.

$$\mathcal{F}\left\{g^{2}(x)\right\} = \mathcal{F}\left\{B^{2}\cos^{2}(q_{m}x)\right\} = \mathcal{F}\left\{\frac{1}{2}B^{2}(1+\cos(2q_{m}x))\right\} = \frac{B^{2}}{2}\left(\mathcal{F}\left\{1\right\} + \mathcal{F}\left\{\cos(2q_{m}x)\right\}\right) = \frac{B^{2}}{2}\left(\delta(q) + \frac{1}{2}\left[\delta(q-2q_{M}) + \delta(q+2q_{M})\right]\right),$$

где $\delta(q)$ обозначает дельта-функцию. Используя известное тождество

$$\delta(x-x_0)*f(x)=f(x-x_0),$$

получаем спектр модулированного поперечного распределения интенсивности

$$F_{M}(q) = \frac{B^{2}}{2} \bigg(\delta(q) + \frac{1}{2} \bigg[\delta(q - 2q_{M}) + \delta(q + 2q_{M}) \bigg] \bigg) * F(q) =$$
$$= \frac{B^{2}}{2} \bigg(F(q) + \frac{1}{2} \bigg[F(q - 2q_{M}) + F(q + 2q_{M}) \bigg] \bigg).$$

Как видно, спектр модулированного диаметрального распределения интенсивности с точностью до множителя будет представлять собой сумму исходного спектра F(q) с полусуммой исходного спектра, сдвинутого вправо и влево на $2q_M$.

Поскольку при q = 0 исходный спектр F(q) имеет максимум, спектр модулированного распределения интенсивности $F_M(q)$ будет иметь пик при q = 0, а также пики при $q = \pm 2q_M$, соответствующие сдвинутым компонентам, но меньшей амплитуды, поскольку сдвинутые части спектров входят в $F_M(q)$ с множителем $\frac{1}{2}$. Следует отметить, что и верхняя граница спектра при этом должна увеличиться на $2q_M$.

Можно выделить несколько характерных ситуаций в зависимости от соотношения q_M и q_0 , приведенных в табл. 4. При разумных значениях частоты модуляции, когда $q_M \ll q_0$, сдвиг верхней частоты спектра, учитывая множитель $\frac{1}{2}$, можно нивелировать за счет правильно подобранного значения порога, по которому определяется q_{max} . При $q_M \approx q_0$ ситуация ухудшается, поскольку существенным становится влияние дополнительного максимума на частоте $2q_M$, а также следующего за ним опадающего «хвоста» спектра, в таком случае точное определение верхней границы спектра, соответствующей немодулированному пучку, является затруднительным. Кроме того, будут возникать дополнительные осцилляции в спектре в окрестности q = 0 за счет обрыва сдвинутых спектров в точках $\pm (q_M - q_0)$. Случай $q_M \gg q_0$ соответствует ситуации, когда распределение интенсивности описывается быстро осциллирующим косинусом, модулированным медленно меняющейся функцией Бесселя, и не представляет интерсеа.

Поскольку модуляция диаметрального распределения интенсивности связана с округлостью верхушки аксикона, анализ структуры спектра диаметрального распределения интенсивности потенциально может использоваться для оценки степени округлости верхушки аксикона.

Определение качества оценки параметра конусности БСП и быстродействия алгоритма ее вычисления

Для исследования качества введенной оценки рассмотрена зависимость времени выполнения и относительной ошибки ε оценки параметра q_0 от параметра $q_0 d$, характеризующего видимое число колец, для алгоритмов с рабочими названиями «спектр», «комбинированный», «аппроксимация».

1. Алгоритм «спектр» – определение параметра q_0 по спектру (с порогом 0,1 и 10-кратным дополнением выборки нулями).

2. Алгоритм «комбинированный» – выполнение алгоритма «спектр», использование его результатов в качестве начального приближения в аппроксимации методом наименьших квадратов (МНК).

3. Алгоритм «аппроксимация» – МНК в чистом виде (начальное приближение для центра распределения определяется методом моментов, для высоты распределения – по максимальному значению интенсивности, начальное приближение параметра q_0 фиксировано, предполагается, что оно может быть известно на основе иных эвристик).

В качестве исходных данных для тестирования алгоритмов использовались идеальные сгенерированные численно распределения интенсивности в БСП₀, имитирующие измерение сенсором с длиной d = 10 мм и расстоянием между пикселами $\Delta x = 0,01$ мм. Таким образом, объем выборки составлял

 $\frac{d}{\Delta x}$ = 1000 пк. Параметр конусности q_0 варьировался в пределах от 1 до 30 рад/мм с шагом 0,1 рад/мм.

Выборки формировались симметричным образом так, чтобы центр распределения совпадал с нулем аргумента функции Бесселя.

Таблица 3

Взвешенные функцией Гаусса (бессель-гауссовы) диаметральные распределения интенсивности и соответствующие им оценки СПМ

Table 3

Weighted with Gauss function (Bessel-Gauss) diametral intensity distributions and corresponding PSD estimates



Таблица 4

Спектры идеальных модулированных диаметральных распределений БСП₀ при различных значениях периода косинусной модуляции Table 4



На рисунке *а* приведена зависимость относительной ошибки є оценки параметра q_0 от величины $q_0 d$, характеризующей число видимых на диаметральном распределении интенсивности колец, для алгоритма «спектр». Как видно, ошибка оценки при малом числе колец может превышать 5 %, однако с увеличением числа видимых колец стремится к нулю, достигая величин <1,5 % при $q_0 d > 50$ (вид диаметрального распределения при $q_0 d = 50$ показан в табл. 1). Разброс относительной ошибки обусловлен дискретностью оценки СПМ, поскольку q_{max} определяется конкретным отсчетом СПМ, поэтому при непрерывном изменении априорного q_0 оценка \hat{q}_0 будет пробегать набор дискретных значений с шагом $\Delta q = \frac{2\pi}{N}$, при этом близким значениям q_0 могут соответствовать строго одинаковые значения оценки \hat{q}_0 , а это приводит к тому, что график абсолютной ошибки имеет пилообразный вид, поскольку разность $q_0 - \hat{q}_0$ будет линейно зависеть от q_0 , пока \hat{q}_0 с увеличением \hat{q}_0 на Δq . Этот пилообразный график имеет очень малый период, равный Δq , поэтому на графике относительной ошибки он представляется

равномерным нагромождением точек. Этого можно избежать, уменьшив ∆*q* через увеличение *N* путем дополнения выборки нулями. При этом следует учитывать, что увеличение *N* приводит к увеличению времени выполнения алгоритма и не всегда уместно на практике. *a/a б/b*



Зависимости, характеризующие качество предложенных алгоритмов: a – зависимость величины относительной ошибки ε оценки параметра q_0 от произведения $q_0 d$ при анализе идеального диаметрального распределения алгоритмом «спектр» (d = 10 мм, $\Delta x = 0,01$ мм); δ – зависимость времени выполнения алгоритмов оценки параметра q_0 от объема выборки в логарифмическом масштабе

Dependencies, characterising quality of proposed algorithms: a – dependency of relative error ε of q_0 parameter estimate on $q_0 d$ product in case of analysis of ideal diametral distribution with «spectrum» algorithm (d = 10 mm, $\Delta x = 0.01$ mm);

b – dependency of execution time of algorithms of q_0 parameter estimation

on volume of sample in logarithmic scale

Для алгоритмов «комбинированный» и «аппроксимация» относительная ошибка была близка к нулю (<10⁻⁷%) при любом значении q_0d , что соответствует ожиданиям, поскольку исходные распределения интенсивности сгенерированы искусственно и точно соответствуют аппроксимирующей функции.

Для практического применения алгоритма большое значение имеет время его выполнения. Очевидно, что в нашем случае время выполнения будет зависеть от объема выборки диаметрального распределения интенсивности (и начального приближения в случае алгоритма «аппроксимация»). Зависимость времени выполнения от объема выборки приведена на рисунке δ . Параметры распределения: $q_0 = 0,1$ рад/пк, $\Delta x = 1$ пк, d варьировалось в пределах от 201 до 4095 пк с шагом 50 пк. Начальное приближение для параметра q_0 в алгоритме «аппроксимация» было установлено равным 0,15 рад/пк. Вычисления производились на ПЭВМ с четырехъядерным процессором Intel® CoreTM i5-4460 с тактовой частотой 3,2 ГГц и оперативной памятью 16 Гб под управлением 64-разрядной операционной системы Windows 7 в среде MATLAB R2016а.

Как видно из рисунка б, даже небольшое отклонение начального приближения от истинного значения параметра приводит к близкой к линейной зависимости времени выполнения от объема выборки в алгоритме «аппроксимация». Время выполнения алгоритмов «спектр» и «комбинированный» мало зависит от объема выборки при N < 4000 пк. Наиболее быстрым является алгоритм «спектр», требующий для выполнения как минимум в 10 раз меньше времени, чем алгоритмы «аппроксимация» и «комбинированный».

Из рисунка *a* следует, что алгоритм «спектр» при малом $q_0 d$ не позволяет достаточно качественно оценить параметр q_0 . Таким образом, компромиссным вариантом, обеспечивающим как высокую скорость получения, так и удовлетворительное качество оценки, является алгоритм «комбинированный».

Заключение

Рассмотрены диаметральные распределения интенсивности идеального БСП. Показано, что спектр Фурье идеального распределения интенсивности ограничен сверху и его граница равна удвоенному параметру конусности $q_0 = k \sin(\gamma)$, а число нулей в спектре на интервале $(0, 2q_0)$ равно порядку пучка. Продемонстрировано, что на основе анализа оценки СПМ, полученной с использованием дискретного преобразования Фурье экспериментального распределения интенсивности, можно оценить параметр конусности БСП. Также показано, что такая оценка устойчива к модуляции пучка прямоугольным и гауссовым окном, а обеспечивающие ее вычислительные процедуры позволяют достичь реального масштаба времени (не более 10⁻³ с на кадр при распределении длиной до 2000 пк) при анализе световых пучков, например, при оценке их качества [9; 10]. Рассмотрено влияние косинусной модуляции на СПМ диаметрального распределения интенсивности, отмечено, что граница спектра при косинусной модуляции повышается на величину, равную удвоенной частоте модуляции амплитуды 2q_м. Учитывая, что косинусная модуляция может быть обусловлена скруглением верхушки аксикона, формирующего БСП, анализ СПМ диаметрального распределения интенсивности БСП может использоваться для оценки качества изготовления аксиконов. Предложен алгоритм оценки параметров диаметральных распределений интенсивности БСП, применяющий описанный метод. Показано, что использование оценки параметра q_0 , полученного из СПМ, в качестве начального приближения позволяет ускорить процедуру аппроксимации диаметрального распределения интенсивности без потери точности.

Библиографические ссылки

1. Durnin J. Exact solution for nondiffracting beams. I. The scalar theory. *Journal of the Optical Society of America A*. 1987;4(4): 651–654. DOI: 10.1364/JOSAA.4.000651.

2. Прудников АП, Брычков ЮА, Маричев ОИ. Интегралы и ряды. Том 2. Специальные функции. 2-е издание. Москва: Физматлит; 2003. 664 с.

3. Koepf W. *Hypergeometric summation. An algorithmic approach to summation and special function identities.* Vieweg: Wiesbaden; 1998. 230 p. (Universitext). Co-published by the Teubner Verlag. DOI: 10.1007/978-1-4471-6464-7.

4. Gormley PG. The zeros of Legendre functions. *Proceedings of the Royal Irish Academy. Section A: Mathematical and Physical Sciences.* 1937;44:29–43.

Лайонс Р. Цифровая обработка сигналов. 2-е издание. Бритова АА, редактор. Москва: Бином-Пресс; 2006. 656 с.
 Gori F, Guattari G, Padovani C. Bessel-Gauss beams. Optics Communications. 1987;64(6):491–494. DOI: 10.1016/0030-4018(87) 90276-8.

7. Akturk S, Zhou B, Pasquiou B, Franco M, Mysyrowicz A. Intensity distribution around the focal regions of real axicons. *Optics Communications*. 2008;281(17):4240–4244. DOI: 10.1016/j.optcom.2008.05.027.

8. Brzobohatý O, Cižmár T, Zemánek P. High quality quasi-Bessel beam generated by round-tip axicon. *Optics Express*. 2008; 16(17):12688–12700. DOI: 10.1364/OE.16.012688.

9. Рыжевич АА, Балыкин ИВ, Железнякова ТА. Параметры качества бесселевых световых пучков нулевого порядка. *Жур*нал прикладной спектроскопии. 2018;85(1):144–153.

10. Рыжевич АА, Балыкин ИВ. Программное средство для определения параметров качества бесселевых световых пучков нулевого порядка. В: Килин СЯ, Курочкин ЮА, Анищик ВМ, Ануфрик СС, Апанасевич ПА, Гапоненко СВ и др., редакторы. *VI Конгресс физиков Беларуси, посвященный Году науки в Республике Беларусь. Сборник научных трудов; 20–23 ноября 2017 г.; Минск, Беларусь.* Минск: Институт физики имени Б. И. Степанова НАН Беларуси; 2017. с. 371–372.

References

1. Durnin J. Exact solution for nondiffracting beams. I. The scalar theory. *Journal of the Optical Society of America A*. 1987;4(4): 651–654. DOI: 10.1364/JOSAA.4.000651.

2. Prudnikov AP, Brychkov YuA, Marichev OI. *Integraly i ryady. Tom 2. Spetsial'nye funktsii* [Integrals and series. Volume 2. Special functions]. 2nd edition. Moscow: Fizmatlit; 2003. 664 p. Russian.

3. Koepf W. *Hypergeometric summation*. An algorithmic approach to summation and special function identities. Vieweg: Wiesbaden; 1998. 230 p. (Universitext). Co-published by the Teubner Verlag. DOI: 10.1007/978-1-4471-6464-7.

4. Gormley PG. The zeros of Legendre functions. *Proceedings of the Royal Irish Academy. Section A: Mathematical and Physical Sciences.* 1937;44:29–43.

5. Lyons RG. *Understanding digital signal processing*. 2nd edition. Upper Saddle River: Prentice Hall; 2004. 689 p. Russian edition: Lyons R. *Tsifrovaya obrabotka signalov*. 2nd edition. Britova AA, editor. Moscow: Binom-Press; 2006. 656 p.

6. Gori F, Guattari G, Padovani C. Bessel-Gauss beams. *Optics Communications*. 1987;64(6):491–494. DOI: 10.1016/0030-4018(87) 90276-8.

7. Akturk S, Zhou B, Pasquiou B, Franco M, Mysyrowicz A. Intensity distribution around the focal regions of real axicons. *Optics Communications*. 2008;281(17):4240–4244. DOI: 10.1016/j.optcom.2008.05.027.

8. Brzobohatý O, Cižmár T, Zemánek P. High quality quasi-Bessel beam generated by round-tip axicon. *Optics Express*. 2008; 16(17):12688–12700. DOI: 10.1364/OE.16.012688.

9. Ryzhevich AA, Balykin IV, Zheleznyakova TA. Quality parameters of zero order Bessel light beams. *Journal of Applied Spectroscopy*. 2018;85(1):144–153. Russian.

10. Ryzhevich AA, Balykin IV. [A software tool for determining the quality parameters of zero-order Bessel light beams]. In: Kilin SYa, Kurochkin YuA, Anishchik VM, Anufrik SS, Apanasevich PA, Gaponenko SV, et al., editors. *VI Kongress fizikov Belarusi, posvyashchennyi Godu nauki v Respublike Belarus'. Sbornik nauchnykh trudov; 20–23 noyabrya 2017 g.; Minsk, Belarus'* [VI Congress of physicists of Belarus, dedicated to the Year of science in the Republic of Belarus. Collection of scientific papers; 2017 November 20–23; Minsk, Belarus]. Minsk: B. I. Stepanov Institute of Physics of the National Academy of Sciences of Belarus; 2017. p. 371–372. Russian.

> Получена 14.09.2021 / исправлена 01.11.2021 / принята 14.11.2021. Received 14.09.2021 / revised 01.11.2021 / accepted 14.11.2021.

Јазерная физика

LASER PHYSICS

УДК 539.3:621.373.8

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПАРАМЕТРОВ ДВУХЛУЧЕВОГО ЛАЗЕРНОГО РАСКАЛЫВАНИЯ СИЛИКАТНЫХ СТЕКОЛ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ РЕГРЕССИОННЫХ И НЕЙРОСЕТЕВЫХ МОДЕЛЕЙ

*Ю. В. НИКИТЮК*¹⁾, *А. Н. СЕРДЮКОВ*¹⁾, *И. Ю. АУШЕВ*²⁾

¹⁾Гомельский государственный университет им. Ф. Скорины, ул. Советская, 104, 246019, г. Гомель, Беларусь ²⁾Университет гражданской защиты Министерства по чрезвычайным ситуациям Республики Беларусь, ул. Машиностроителей, 25, 220118, г. Минск, Беларусь

Для создания нейросетевых и регрессионных моделей двухлучевого лазерного раскалывания силикатных стекол были использованы результаты численного эксперимента, реализованного в программе конечно-элементного анализа *Ansys*. В модуле *DesignXplorer* программы *Ansys Workbench* с применением гранецентрированного варианта центрального композиционного плана эксперимента были получены регрессионные модели двухлучевой лазерной резки стекла. В качестве варьируемых факторов использованы скорость обработки, параметры лазерных пучков, толщина стеклянной пластины и расстояние между зонами воздействия лазерного излучения и хладагента, а в качестве откликов – максимальные температуры и термоупругие напряжения растяжения в зоне лазерной обработки. С применением пакета *TensorFlow* реализованы построение и обучение искусственных нейронных сетей. Выполнено сравнение результатов определения максимальных температур и термоупругих напряжений в зоне лазерной обработки с использованием нейросетевых и регрессионных моделей.

Ключевые слова: лазерное раскалывание; стеклянная пластина; нейронная сеть; Ansys.

Образец цитирования:

Никитюк ЮВ, Сердюков АН, Аушев ИЮ. Определение параметров двухлучевого лазерного раскалывания силикатных стекол с использованием регрессионных и нейросетевых моделей. Журнал Белорусского государственного университета. Физика. 2022;1:35–43 (на англ.). https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-35-43

Авторы:

Юрий Валерьевич Никитюк – кандидат физико-математических наук, доцент; доцент кафедры радиофизики и электроники факультета физики и информационных технологий. Анатолий Николаевич Сердюков – доктор физико-математических наук, профессор; профессор кафедры оптики факультета физики и информационных технологий.

Игорь Юрьевич Аушев – кандидат технических наук, доцент; начальник факультета подготовки научных кадров.

For citation:

Nikitjuk YV, Serdyukov AN, Aushev IY. Determination of the parameters of two-beam laser splitting of silicate glasses using regression and neural network models. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2022;1:35–43. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-35-43

Authors:

Yuri V. Nikitjuk, PhD (physics and mathematics), docent; associate professor at the department of radiophysics and electronics, faculty of physics and information technology. *nikitjuk@gsu.by*

Anatoly N. Serdyukov, doctor of science (physics and mathematics), full professor; professor at the department of optics, faculty of physics and information technology.

serdyukov@gsu.by

Igor Y. Aushev, PhD (engineering), docent; head of the faculty of researchers training. *ai@ucp.by*



DETERMINATION OF THE PARAMETERS OF TWO-BEAM LASER SPLITTING OF SILICATE GLASSES USING REGRESSION AND NEURAL NETWORK MODELS

Y. V. NIKITJUK^a, A. N. SERDYUKOV^a, I. Y. AUSHEV^b

^aFrancisk Skorina Gomel State University, 104 Saveckaja Street, Homiel 246019, Belarus ^bUniversity of Civil Protection, Ministry for Emergency Situations of the Republic of Belarus, 25 Mašynabudaŭnikoŭ Street, Minsk 220118, Belarus Corresponding author: Y. V. Nikitjuk (nikitjuk@gsu.by)

The current work takes the results of the numerical experiment implemented in the *Ansys* finite element analysis program to create the neural network and regression models of two-beam laser splitting of silicate glasses. The regression models of two-beam laser glass cutting have been obtained in the *DesignXplorer* module of *Ansys Workbench* using a face-centered version of the central composite design. The processing speed, the parameters of laser beams, the glass plate thickness, and the distance between the laser radiation and the refrigerant affected zones were used as variable factors. The maximum temperatures and thermoelastic tensile stresses in the laser processing area were used as responses. The artificial neural networks have been constructed and trained using the *TensorFlow* package. The results of determining the maximum temperatures and thermoelastic stresses in the laser treatment area using the neural network and regression models have been compared.

Keywords: laser splitting; glass plate; neural network; Ansys.

Introduction

Laser splitting is one of the methods for cutting silicate glasses, which is carried out as a result of the laser-induced crack formation during consecutive laser heating and action of the refrigerant on the treated surface [1-5]. At the same time, the use of two-beam schemes provides an increase in the efficiency of this technology [6-8].

Artificial neural networks (ANN) provide good results when modelling complex connections between inputs and outputs of the system. The wide application of neural networks is due to their capabilities in finding non-linear dependencies in multidimensional data sets [9–11]. Currently, ANN are successfully used in various fields [9–13]. The combination of ANN and the finite element method turns out to be effective in modelling laser treatment processes [14; 15], including modelling of laser glass splitting [16; 17]. Regression models of laser processing of materials [18; 19] are also successfully used, and a comparison of neural network and regression models of laser cutting of materials was carried out in [20].

This research uses the results of the numerical experiment implemented in the *Ansys* finite element analysis program to create neural network and regression models for two-beam laser splitting of silicate glasses with subsequent comparison of their efficiency.

Finite element analysis

To determine temperatures and thermoelastic stresses in silicate glass during two-beam laser splitting (fig. 1), a calculation program was prepared in the APDL programming language (*Ansys* parametric design language).

Calculations were performed for the plate with geometric dimensions of $30 \times 10 \times 4$ mm. The resulting model consisted of 44 160 solid 70 elements for thermal analysis and solid 185 elements for strength analysis. The processing speed for the calculations was V = 0.02 m/s. The following values of the parameters of laser beams were used: semi-major axis A = 0.003 m, semi-minor axis B = 0.001 m for an elliptical beam with a radiation wavelength $\lambda = 10.6 \mu m$ and a radiation power P = 10 W; the radius of the beam radiation spot is R = 0.001 m for a beam with a radiation wavelength $\lambda = 1.06 \mu m$ and a radiation power $P_0 = 50$ W. The distance between the action zones on the glass plate of the YAG laser and the refrigerant is h = 0.002 m. The refrigerant effect was believed to provide cooling of the glass surface with a heat transfer coefficient equal to 8000 W/(m² · K). The following properties of silicate glasses were used for the calculations: density 2450 kg/m³, thermal conductivity 0.88 W/(m · K), specific heat capacity 860 J/(kg · K), Poisson's ratio 0.22, Young's modulus 70 GPa, linear thermal expansion coefficient 89 · 10⁻⁷ °C⁻¹ [2].

Figures 2 and 3 show the distribution of temperature fields and fields of thermoelastic stresses, characteristic of a two-beam laser splitting schemes of glass plates.


 Fig. 1. Schematic of the mutual arrangement of the laser beams and refrigerant affected zones:
 position 1 corresponds to an elliptical laser beam with a wavelength of 10.6 μm, position 2 – to a round laser beam with a wavelength of 1.06 μm,
 position 3 – to the refrigerant, position 4 – to the laser beam section with a wavelength of 10.6 μm, position 5 – to the laser beam section with a wavelength of 1.06 μm,



Fig. 2. Temperature distribution in the volume of the processed plate, K



Fig. 3. Distribution of stresses σ_{vv} in the volume of the processed plate, MPa

For the selected calculation parameters, the values of the maximum tensile stresses in the treatment zone σ_{yy} and the maximum design temperatures *T* are 79 MPa and 689 K, respectively, with acceptable temperature values not exceeding the glass transition temperature equal to 789 K [2].

Regression model

In the *DesignXplorer* module of the *Ansys Workbench* software, a face-centered version of the central composite plan of the experiment was generated for eight factors (P1–P8) [21; 22]: P1 is the processing speed V, P2 is the glass plate thickness H, P3 and P4 are the semi-major axis A and semi-minor axis B of an elliptical beam with the radiation wavelength $\lambda = 10.6 \mu m$, P5 is the radiato of the radiation spot R of the beam with the radiation wavelength $\lambda = 1.06 \mu m$, P6 is the power P of the laser with the radiation wavelength $\lambda = 10.6 \mu m$, P7 is the power P₀ of the laser with radiation wavelength $\lambda = 1.06 \,\mu\text{m}$, P8 is the distance *h* between the action zones of the laser with the radiation wavelength $\lambda = 1.06 \,\mu\text{m}$ and the refrigerant. According to the experimental plan, the calculations were performed for 81 combinations of input parameters (see version 1 in table 1), while the following output parameters were determined: the maximum temperature in the laser treatment zone *T* and the maximum tensile stresses σ_{yy} in the treatment zone.

Table 1

Danamatana	Values			
Parameters	Version 1 (81 combinations)	Version 2 (72 combinations)		
P1 (V, m/s)	0.01; 0.025; 0.04	0.025; 0.035; 0.04		
P2 (<i>H</i> , m)	0.003; 0.004; 0.005	0.003; 0.035		
P3 (A, m)	0.002; 0.003; 0.004; 0.005	0.0025; 0.0035; 0.005		
P4 (<i>B</i> , m)	0.0005; 0.001; 0.0015	0.001; 0.001 5		
P5 (<i>R</i> , m)	0.0005; 0.001; 0.0015	0.001; 0.0015		
P6 (<i>P</i> , W)	5; 10; 15	7; 9; 15		
$P7 (P_0, W)$	40; 50; 60	45; 55; 60		
P8 (<i>h</i> , m)	0.001; 0.002; 0.003	0.001; 0.002		

Parameters	of	two-b	eam	laser	σlass	snl	ittino
1 al ameters	UI.	1110-01	cam .	lasu	21433	spi	nung

The regression equations obtained using the *DesignXplorer* module connecting the output parameters (T, σ_{yy}) with the factors $(V, H, A, B, R, P, P_0, h)$ have the following form:

$$\begin{split} Y_1 &= 7.3 - 2.7 \cdot 10^2 \cdot A - 7.6 \cdot 10^2 \cdot B + \\ &+ 1.6 \cdot 10^{-1} \cdot P + 2.8 \cdot 10^2 \cdot V \cdot V + 1.7 \cdot 10^5 \cdot B \cdot B - 1.9 \cdot 10^{-3} \cdot P \cdot P + \\ &+ 2.3 \cdot 10^3 \cdot V \cdot A - 6.0 \cdot 10^{-1} \cdot V \cdot P + 7.2 \cdot 10^4 \cdot A \cdot B - 5.2 \cdot A \cdot P - \\ &- 2.4 \cdot 10 \cdot B \cdot P - 4.6 \cdot 10^3 \cdot R \cdot h, \\ T &= \left(0.02 \cdot Y_1 + 1\right)^{50} - 1; \\ Y_2 &= 2.3 \cdot 10^2 - 4.2 \cdot 10^3 \cdot V + 8.6 \cdot 10^4 \cdot B + 8.8 \cdot 10^4 \cdot R + \\ &+ 5.6 \cdot P + 4.1 \cdot 10^4 \cdot V \cdot V - 3.7 \cdot 10^7 \cdot B \cdot B - 3.7 \cdot 10^7 \cdot R \cdot R - \\ &- 5.7 \cdot 10^5 \cdot V \cdot B - 2.5 \cdot 10 \cdot V \cdot P + 7.8 \cdot V \cdot P_0 + 9.7 \cdot 10^4 \cdot V \cdot h - \\ &- 8.4 \cdot 10 \cdot H \cdot P + 3.6 \cdot 10^5 \cdot A \cdot B + 3.9 \cdot 10^6 \cdot B \cdot R - 7.7 \cdot 10^2 \cdot B \cdot P - \\ &- 8.3 \cdot 10^4 \cdot B \cdot h - 4.6 \cdot 10^2 \cdot R \cdot P - 4.0 \cdot 10^6 \cdot R \cdot h + 2.2 \cdot 10^{-2} \cdot P \cdot P_0, \\ &\sigma_{yy} &= \left(0.236 \cdot Y_2 + 1\right)^{1/0.236 \cdot 6} - 1. \end{split}$$

Neural network application

Figure 4 shows a block diagram of the ANN simulation procedure. The training and test sets were generated when solving the corresponding problems by the finite element method in the *Ansys* program. Here, 81 combinations of the central composite design were supplemented with another 72 combinations of calculations (see version 2 in table 1). Thus, neural networks training was carried out using two data sets consisting of 81 combinations of the central composite design (version A) and 135 combinations (version B) of the values of the two-beam laser splitting parameters formed by supplementing 81 combinations of version A with another 54 combinations (see 2 versions of table 1). At the same time, a test set of 18 combinations of parameters was used to test neural network and regression models (see table 2).

Table 2

No.	P1 (V, m/s)	P2 (<i>H</i> , m)	P3 (<i>A</i> , m)	P4 (<i>B</i> , m)	P5 (<i>R</i> , m)	P6 (P, W)	P7 (P ₀ , W)	P8 (<i>h</i> , m)	<i>Т</i> , К	σ _{yy} , MPa
1	0.035	0.003 5	0.0025	0.001	0.001	9	55	0.002	577	47.5
2	0.035	0.003	0.0025	0.0015	0.0015	9	55	0.001	486	35.3
3	0.025	0.003	0.003 5	0.0015	0.0015	7	45	0.001	454	40.0

Test set of parameters

									Endia	ng table 2
No.	P1 (V, m/s)	P2 (<i>H</i> , m)	P3 (<i>A</i> , m)	P4 (<i>B</i> , m)	P5 (<i>R</i> , m)	P6 (P, W)	P7 (P ₀ , W)	P8 (<i>h</i> , m)	<i>Т</i> , К	σ _{yy} , MPa
4	0.035	0.003	0.0025	0.001	0.001	7	45	0.002	514	37.9
5	0.035	0.003 5	0.0025	0.001	0.001	7	55	0.002	514	41.5
6	0.025	0.003	0.003 5	0.001	0.001	7	55	0.002	526	57.1
7	0.035	0.003	0.0025	0.001	0.001	9	55	0.002	577	47.8
8	0.035	0.003	0.0025	0.001	0.001	9	45	0.001	577	44.0
9	0.035	0.003	0.0025	0.0015	0.0015	9	45	0.001	486	32.6
10	0.025	0.003 5	0.0025	0.001	0.001	7	55	0.002	560	56.2
11	0.035	0.003 5	0.0025	0.001	0.001	9	60	0.002	577	49.3
12	0.035	0.003	0.0025	0.0015	0.0015	15	55	0.001	615	48.9
13	0.04	0.003	0.003 5	0.0015	0.0015	7	45	0.001	417	25.2
14	0.035	0.003 5	0.005	0.001	0.001	7	55	0.002	460	42.4
15	0.04	0.003	0.003 5	0.001	0.001	7	60	0.002	476	39.3
16	0.035	0.003	0.005	0.001	0.001	9	45	0.001	508	45.8
17	0.035	0.003	0.0025	0.0015	0.0015	9	60	0.001	486	36.7
18	0.04	0.003 5	0.0025	0.001	0.001	7	55	0.002	497	36.7



Fig. 4. Block diagram of the simulation procedure using the neural network

Fully connected neural networks with architecture [8-50-30-10-2] were used to determine the values of temperatures and thermoelastic stresses during two-beam laser splitting. The networks were formed using the *TensorFlow* machine learning library [10]. The networks used the ReLU (rectified linear unit) activation function, the Adam optimiser, which is a version of the stochastic gradient descent algorithm, and the MSE (mean squared error) loss function, which calculates the square of the difference between the predicted and target values. The number of epochs during network training was 500.

Results and discussion

The following criteria were used to evaluate the resulting regression and neural network models: determination coefficient

$$R^{2} = 1 - \frac{\sum_{i=1}^{n} (d_{i} - y_{i})^{2}}{\sum_{i=1}^{n} (d_{i} - \overline{d})^{2}},$$

mean absolute error

$$MAE = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} \left| d_i - y_i \right|,$$

root mean square error

RMSE =
$$\sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} (d_i - y_i)^2}$$
,

mean absolute percentage error

$$\text{MAPE} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} \left| \frac{d_i - y_i}{d_i} \right| \cdot 100,$$

where d_i is the finite element values; y_i is the values determined using regression and neural network models.

The criteria values used to assess regression and neural network models are presented in tables 3–5. Accordingly, the obtained data lead to a conclusion that the regression and neural network models have the necessary consistency with the results of finite-element analysis.

Table 3

Results of evaluating regression models

Criterion	Te	est set	Central composite plan dataset (81 combinations)		
	Т	σ_{yy}	Т	σ_{yy}	
RMSE	8	$1.71 \cdot 10^6$	13	$4.55 \cdot 10^6$	
MAE	7	$1.20 \cdot 10^6$	9	$3.31 \cdot 10^6$	
MAPE	1.3	2.7	1.3	5.3	
R^2	0.9768	0.9649	0.9983	0.9849	

Table 4

Results of evaluating the neural network model (version A)

Criterion	Te	est set	Training set (81 combinations)		
	Т	σ_{yy}	Т	σ_{yy}	
RMSE	14	$2.82 \cdot 10^6$	5	$0.72 \cdot 10^6$	
MAE	11	$2.36 \cdot 10^6$	4	$0.50 \cdot 10^6$	
MAPE	2.1	5.4	0.6	0.9	
R^2	0.9284	0.903 9	0.9997	0.9996	

Table 5

Results of evaluating the neural network model (version B)

Criterion	Те	est set	Training set (135 combinations)		
	Т	σ_{yy}	Т	σ_{yy}	
RMSE	8	$1.15 \cdot 10^6$	5	$0.76 \cdot 10^6$	
MAE	6	$0.84 \cdot 10^6$	3	$0.49 \cdot 10^6$	

Criterion	Te	est set	Training set (135 combinations)		
	Т	σ_{yy}	Т	σ_{yy}	
MAPE	1.2	2.0	0.4	0.8	
R^2	0.9777	0.9839	0.9996	0.9994	

Ending table 5

At the same time, for the datasets used to create regression models and train neural network models, the values of the average absolute percentage errors of MAPE when determining the maximum temperatures and tensile stresses in the laser processing zone turned out to be the highest for regression models. They amounted to 1.3 % for temperatures and 5.3 % for tensile stresses. Furthermore, for this dataset, the RMSE, MAE and R^2 values of the regression models exceeded the values of the corresponding criteria of neural network models. The results of the neural network trained on a set of parameters of the central composite plan turned out to be worse than the results of the regression models. In this case, for the test dataset, the results of the neural network models. In this case, for the two-beam laser splitting (version B) proved to be the best.

The suggested architecture of the neural network model, trained with a small dataset, proved to be better at predicting the parameters of two-beam laser splitting compared to the suggested regression models. Thus, as in [20], it follows that the use of neural network models is preferable for predicting laser cutting parameters, including two-beam laser splitting.

Conclusions

The research performed by us shows the possibility of determining the modes of two-beam laser splitting of silicate glasses based on a combination of the finite element method, regression and neural network models. The numerical experiment brought about identifying the architecture of neural networks, which gives an acceptable result when determining the values of thermoelastic stresses and temperatures in the laser processing zone. A higher efficiency of neural network models in predicting the parameters of two-beam laser glass splitting compared to regression models has been shown.

Библиографические ссылки

1. Lumley RM. Controlled separation of brittle materials using a laser. *Journal of the American Ceramic Society*. 1969;48(9): 850–854.

2. Мачулка ГА. Лазерная обработка стекла. Москва: Советское радио; 1979. 135 с. (Массовая библиотека инженера «Электроника»).

3. Бокуть БВ, Кондратенко ВС, Мышкоеоц ВН, Сердюков АН, Шалупаев СВ. *Термоупругие поля в твердых телах при их* обработке лазерными пучками специальной геометрии. Минск: Институт физики АН БССР; 1987. 58 с. (Препринт. Институт физики АН БССР; № 487).

4. Kondratenko VS, inventor; PTG Precision Technology Center LLC, assignee. Method of splitting non-metallic materials. United States Patent US5609284A. 1997 March 11.

5. Nisar S, Li L, Sheikh M. Laser glass cutting techniques – a review. *Journal of Laser Applications*. 2013;25(4):042010-1. DOI: 10.2351/1.4807895.

6. Shalupaev SV, Shershnev EB, Nikityuk YuV, Sereda AA. Two-beam laser thermal cleavage of brittle nonmetallic materials. *Journal of Optical Technology*. 2006;73(5):356–359. DOI: 10.1364/JOT.73.000356.

7. Сысоев ВК, Вятлев ПА, Чирков АВ, Грозин ВА, Конященко ДА. Концепция двухлазерного термораскалывания стеклянных элементов для космических аппаратов. Вестник НПО имени С. А. Лавочкина. 2011;1:38–44.

8. Junke Jiao, Xinbing Wang. Cutting glass substrates with dual-laser beams. *Optics and Lasers in Engineering*. 2009;47(7–8): 860–864. DOI: 10.1016/j.optlaseng.2008.12.009.

9. Головко ВА, Краснопрошин ВВ. *Нейросетевые технологии обработки данных*. Минск: БГУ; 2017. 263 с. (Классическое университетское издание).

10. Chollet F. Deep learning with Python. Shelter Island: Manning Publications Co.; 2018. 384 p.

11. Bakhtiyari AN, Zhiwen Wang, Liyong Wang, Hongyu Zheng. A review on applications of artificial intelligence in modeling and optimization of laser beam machining. *Optics & Laser Technology*. 2021;135:1–18. DOI: 10.1016/j.optlastec.2020.106721.

12. Бессмельцев ВП, Булушев ЕД. Оптимизация режимов лазерной микрообработки (обзор). Автометрия. 2014;50(6):3–21.

13. Rusia S, Pathak KK. Application of artificial neural network for analysis of triangular plate with hole considering different geometrical and loading parameters. *Open Journal of Civil Engineering*. 2016;6(1):31–41. DOI: 10.4236/ojce.2016.61004.

14. Kant R, Joshi SN, Dixit US. An integrated FEM-ANN model for laser bending process with inverse estimation of absorptivity. *Mechanics of Advanced Materials and Modern Processes*. 2015;1:6. DOI: 10.1186/s40759-015-0006-1.

15. Kadri MB, Nisar S, Khan SZ, Khan WA. Comparison of ANN and finite element model for the prediction of thermal stresses in diode laser cutting of float glass. *Optik – International Journal for Light and Electron Optics*. 2015;126(19):1959–1964. DOI: 10.1016/j.ijleo.2015.05.033.

16. Никитюк ЮВ, Сердюков АН, Прохоренко ВА, Аушев ИЮ. Применение искусственных нейронных сетей и метода конечных элементов для определения параметров обработки кварцевых золь-гель стекол эллиптическими лазерными пучками. *Проблемы физики, математики и техники.* 2021;3:30–36. DOI: 10.54341/20778708 2021 3 48 30.

17. Krasnoshchekov AA, Sobol' BV, Solovjev AN, Cherpakov AV. Identification of crack-like defects in elastic structural elements on the basis of evolution algorithms. *Russian Journal of Nondestructive Testing*. 2011;47(6):412–419. DOI: 10.1134/S10618309 11060088.

18. Хтет Аунг Лин, Таксанц МВ, Мисюров АИ. Математическая модель эффективности использования лазерного излучения при гибридной обработке. Вестник МГТУ имени Н. Э. Баумана. Серия: Машиностроение. 2015;3:71–79. DOI: 10.18698/ 0236-3941-2015-3-71-79.

19. Gvozdev AE, Golyshev IV, Minaev IV, Sergeev NN, Tikhonova IV, Khonelidze DM, et al. Multiparametric optimization of laser cutting of steel sheets. *Inorganic Materials: Applied Research*. 2015;6(4):305–310. DOI: 10.1134/S2075113315040115.

20. Madić M, Radovanović M. Comparative modeling of CO_2 laser cutting using multiple regression analysis and artificial neural network. *International Journal of Physical Sciences*. 2012;7(16):2422–2430. DOI: 10.5897/IJPS12.109.

21. Жогаль СП, Жогаль СИ, Максимей ВИ. Основы регрессионного анализа и планирования эксперимента. Гомель: Гомельский государственный университет имени Франциска Скорины; 1997. 94 с.

22. Моргунов АП, Ревина ИВ. Планирование и анализ результатов эксперимента. Омск: Издательство ОмГТУ; 2014. 344 с.

References

1. Lumley RM. Controlled separation of brittle materials using a laser. *Journal of the American Ceramic Society*. 1969;48(9): 850–854.

2. Machulka GA. *Lazernaya obrabotka stekla* [Laser processing of glass]. Moscow: Sovetskoe radio; 1979. 135 p. (Massovaya biblioteka inzhenera «Elektronika»). Russian.

3. Bokut' BV, Kondratenko VS, Myshkoeots VN, Serdyukov AN, Shalupaev SV. *Termouprugie polya v tverdykh telakh pri ikh obrabotke lazernymi puchkami spetsial'noi geometrii* [Thermoelastic fields in solids when they are being processed by special-geometry laser beams]. Minsk: Institut fiziki AN BSSR; 1987. 58 p. (Preprint. Institut fiziki AN BSSR; № 487). Russian.

4. Kondratenko VS, inventor; PTG Precision Technology Center LLC, assignee. Method of splitting non-metallic materials. United States Patent US5609284A. 1997 March 11.

5. Nisar S, Li L, Sheikh M. Laser glass cutting techniques – a review. *Journal of Laser Applications*. 2013;25(4):042010-1. DOI: 10.2351/1.4807895.

6. Shalupaev SV, Shershnev EB, Nikityuk YuV, Sereda AA. Two-beam laser thermal cleavage of brittle nonmetallic materials. *Journal of Optical Technology*. 2006;73(5):356–359. DOI: 10.1364/JOT.73.000356.

7. Sysoev VK, Vyatlev PA, Chirkov AV, Grozin VA, Konyashchenko DA. Two laser thermo splitting of glass elements for spacecraft conception. *Vestnik NPO imeni S. A. Lavochkina*. 2011;1:38–44. Russian.

8. Junke Jiao, Xinbing Wang. Cutting glass substrates with dual-laser beams. *Optics and Lasers in Engineering*. 2009;47(7–8): 860–864. DOI: 10.1016/j.optlaseng.2008.12.009.

9. Golovko VA, Krasnoproshin VV. *Neirosetevye tekhnologii obrabotki dannykh* [Neural network technologies for data processing]. Minsk: Belarusian State University; 2017. 263 p. (Klassicheskoe universitetskoe izdanie). Russian.

10. Chollet F. Deep learning with Python. Shelter Island: Manning Publications Co.; 2018. 384 p.

11. Bakhtiyari AN, Zhiwen Wang, Liyong Wang, Hongyu Zheng. A review on applications of artificial intelligence in modeling and optimization of laser beam machining. *Optics & Laser Technology*. 2021;135:1–18. DOI: 10.1016/j.optlastec.2020.106721.

12. Bessmel'tsev VP, Bulushev ED. [Optimisation of laser microprocessing modes]. Avtometriya. 2014;50(6):3–21. Russian.

13. Rusia S, Pathak KK. Application of artificial neural network for analysis of triangular plate with hole considering different geometrical and loading parameters. *Open Journal of Civil Engineering*. 2016;6(1):31–41. DOI: 10.4236/ojce.2016.61004.

14. Kant R, Joshi SN, Dixit US. An integrated FEM-ANN model for laser bending process with inverse estimation of absorptivity. *Mechanics of Advanced Materials and Modern Processes*. 2015;1:6. DOI: 10.1186/s40759-015-0006-1.

15. Kadri MB, Nisar S, Khan SZ, Khan WA. Comparison of ANN and finite element model for the prediction of thermal stresses in diode laser cutting of float glass. *Optik – International Journal for Light and Electron Optics*. 2015;126(19):1959–1964. DOI: 10.1016/j.ijleo.2015.05.033.

16. Nikitjuk YV, Serdyukov AN, Prohorenko VA, Aushev IY. Application of artificial neural networks and finite element method for determining the parameters of elliptic laser beam treatment of quartz sol-gel glasses. *Problems of Physics, Mathematics and Technology*. 2021;3:30–36. Russian. DOI: 10.54341/20778708_2021_3_48_30.

17. Krasnoshchekov AA, Sobol' BV, Solovjev AN, Cherpakov AV. Identification of crack-like defects in elastic structural elements on the basis of evolution algorithms. *Russian Journal of Nondestructive Testing*. 2011;47(6):412–419. DOI: 10.1134/S10618309 11060088.

18. Htet Aung Lin, Taksants MV, Misurov AI. Mathematical model of the efficiency of using laser radiation in hybrid processing. *Herald of the Bauman Moscow State Technical University. Series: Mechanical Engineering*. 2015;3:71–79. Russian. DOI: 10.18698/0236-3941-2015-3-71-79.

19. Gvozdev AE, Golyshev IV, Minaev IV, Sergeev NN, Tikhonova IV, Khonelidze DM, et al. Multiparametric optimization of laser cutting of steel sheets. *Inorganic Materials: Applied Research*. 2015;6(4):305–310. DOI: 10.1134/S2075113315040115.

20. Madić M, Radovanović M. Comparative modeling of CO₂ laser cutting using multiple regression analysis and artificial neural network. *International Journal of Physical Sciences*. 2012;7(16):2422–2430. DOI: 10.5897/IJPS12.109.

21. Zhogal' SP, Zhogal' SI, Maksimei VI. Osnovy regressionnogo analiza i planirovaniya eksperimenta [Fundamentals of regression analysis and experiment design]. Gomel: Francisk Skorina Gomel State University; 1997. 94 p. Russian.

22. Morgunov AP, Revina IV. *Planirovanie i analiz rezultatov eksperimenta* [Planning and analysis of the results of the experiment]. Omsk: Izdatel'stvo OmGTU; 2014. 344 p. Russian.

Received 25.11.2021 / revised 04.01.2022 / accepted 04.01.2022.

Теоретическая физика

Theoretical physics

УДК 530.145.1,535.14

АНАЛИТИЧЕСКАЯ ДИАГОНАЛИЗАЦИЯ ГАМИЛЬТОНИАНА КВАНТОВОЙ МОДЕЛИ РАБИ В КУЛОНОВСКОЙ КАЛИБРОВКЕ

А. В. ЛЕОНОВ¹⁾, И. Д. ФЕРАНЧУК¹⁾

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

Рассматривается вопрос о приближенной аналитической диагонализации оператора Гамильтона квантовой модели Раби, полученного в кулоновской калибровке при учете калибровочной инвариантности модели. Показано, что гамильтониан модели с высокой точностью диагонализуется с помощью унитарного оператора калибровочного преобразования при использовании простого базисного набора векторов состояния. Существенно, что полученная аппроксимация не зависит от вариационных параметров и применима во всем диапазоне изменения параметров гамильтониана и квантовых чисел системы. Построены нулевое и равномерно пригодное приближения операторного метода для собственных состояний системы, а также проведено их сравнение с результатами численного расчета. Получено выражение для поправки второго порядка к нулевому приближению в рамках операторного метода и оценен ее вклад в итоговое значение энергии системы. Приведенные результаты могут представлять интерес при описании эволюции квантовой модели Раби, а также при исследовании состояний систем двухуровневых атомов в резонансном квантовом поле.

Ключевые слова: квантовая модель Раби; операторный метод; двухуровневая система; квантовое поле; резонанс; калибровочная инвариантность.

Образец цитирования:

Леонов АВ, Феранчук ИД. Аналитическая диагонализация гамильтониана квантовой модели Раби в кулоновской калибровке. *Журнал Белорусского государственного университета.* Физика. 2022;1:44–51. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-44-51

Авторы:

Александр Владимирович Леонов – кандидат физико-математических наук, доцент; доцент кафедры теоретической физики и астрофизики физического факультета.

Илья Давыдович Феранчук – доктор физико-математических наук, профессор; профессор кафедры теоретической физики и астрофизики физического факультета.

For citation:

Leonau AU, Feranchuk ID. Analytical diagonalisation of the Hamiltonian of the quantum Rabi model in the Coulomb gauge. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2022;1:44–51. Russian.

https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-44-51

Authors:

Aliaksandr U. Leonau, PhD (physics and mathematics), docent; associate professor at the department of theoretical physics and astrophysics, faculty of physics. *leonov.bsu@gmail.com https://orcid.org/0000-0002-4830-6856* Ilya D. Feranchuk, doctor of science (physics and mathematics), full professor; professor at the department of theoretical physics and astrophysics, faculty of physics. *feranchuk@bsu.by https://orcid.org/0000-0003-0476-8634*

ANALYTICAL DIAGONALISATION OF THE HAMILTONIAN OF THE QUANTUM RABI MODEL IN THE COULOMB GAUGE

A. U. LEONAU^a, I. D. FERANCHUK^a

^aBelarusian State University, 4 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220030, Belarus Corresponding author: A. U. Leonau (leonov.bsu@gmail.com)

In the present paper we investigate the approximate analytical diagonalisation of the Hamiltonian of the quantum Rabi model written in the Coulomb gauge and taking into account the gauge invariance of the system. It is shown that the Hamiltonian of the model can be diagonalised with high accuracy on the basis of a unitary operator of the gauge transformation utilising a simple basis set of state vectors. It is essential that the obtained approximate expressions do not depend on the variational parameters and are valid within the whole range of the parameter values. The zeroth-order approximation and uniformly available approximation are derived for the eigenstates of the system, and their comparison with the results of the numerical simulation is elaborated. The second-order correction to the zeroth-order approximation is deduced and its contribution to the energy of the system is estimated. The obtained results could be useful for description of the evolution of the quantum Rabi model as well as for investigation of systems of two-level atoms in the resonant quantum field.

Keywords: quantum Rabi model; operator method; two-level system; quantum field; resonance; gauge invariance.

Введение

Квантовая модель Раби (КМР) описывает взаимодействие двухуровневой системы (ДУС) с одномодовым квантовым полем в резонаторе [1; 2]. Она является одной из базовых моделей, которые используются для описания взаимодействия излучения с веществом, и имеет фундаментальное значение для многих задач квантовой оптики [3], квантовой информации [4] и физики конденсированных сред [5]. Различные приложения данной модели и ее обобщений и в настоящее время остаются весьма актуальными (см. [6–10] и цитированную в них литературу).

Для эффективного использования КМР при исследовании указанных проблем возникает необходимость вычисления собственных функций и собственных значений гамильтониана КМР. Недавно было показано [11], что КМР является точно интегрируемой системой, и задача о спектре ее стационарных состояний выражается через решения многочленных рекуррентных соотношений. Этот результат имеет принципиальное значение, однако собственные функции и собственные значения не представляются в замкнутой аналитической форме, что крайне затрудняет их использование для конкретных приложений при описании задач эволюции КМР, которые связаны с суммированием по всему спектру стационарных состояний системы. Разработке различных методов приближенного аналитического представления данных состояний в широком диапазоне изменения параметров системы посвящено большое количество работ (см. [12–15] и цитированную в них литературу). Существенным недостатком известных в настоящее время методов является то, что получаемый на их основе базисный набор функций имеет достаточно сложную форму, и это не позволяет аналитически оценить точность построенных приближений. Как правило, эффективность полученного приближения оценивается путем его визуального сравнения с результатами прямого численного решения задачи.

Еще одна проблема использования КМР в режиме сильной связи атомной системы с квантовым полем заключается в корректном обобщении этой модели при учете в гамильтониане нелинейных по полю операторов. Необходимым условием для такого обобщения является калибровочная инвариантность полученного гамильтониана. В ряде работ несоблюдение этого условия приводило к противоречивым предсказаниям и парадоксам. Данная проблема решена в недавней работе [16], где найден унитарный оператор, который осуществляет преобразование гамильтониана КМР из стандартной дипольной калибровки к кулоновской калибровке при корректном учете квадратичного по полю оператора.

Гамильтониан КМР в кулоновской калибровке имеет достаточно сложную форму, и численный расчет спектра его собственных состояний требует использования матриц большой размерности [16]. На первый взгляд кажется, что это затрудняет построение аналитического приближения. Однако в настоящей работе показано, что можно найти весьма простой набор базисных векторов состояний, в котором гамильтониан КМР в кулоновской калибровке с высокой точностью диагонализуется. Это дает аналитическую аппроксимацию для энергетических уровней системы и простые выражения для собственных функций во всем диапазоне изменения ее параметров. Предлагаемый подход к решению задачи основан на использовании операторного метода (ОМ) решения уравнения Шрёдингера [17], что позволяет не только найти нулевое приближение для энергетических уровней, но и оценить точность полученных результатов.

КМР в кулоновской калибровке

Хорошо известно, что взаимодействие одномодового квантового поля с атомной системой имеет резонансный характер, когда частота поля близка к одной из частот перехода между атомными уровнями. Выделение этой пары состояний и лежит в основе КМР, в которой также используется дипольное приближение, когда взаимодействие атома с полем определяется оператором $(\vec{d} \cdot \vec{E})$, где \vec{d} – дипольный момент перехода, а \vec{E} – вектор напряженности электрического поля. Эти предположения приводят к так называемой дипольной калибровке КМР, которой соответствует следующий оператор Гамильтона в натуральной системе единиц ($\hbar = c = 1$):

$$\hat{H} = \hat{a}^{\dagger}\hat{a} + \frac{\Delta}{2}\hat{\sigma}_z + f\left(\hat{a} + \hat{a}^{\dagger}\right)\hat{\sigma}_x,\tag{1}$$

где \hat{a}^+ и \hat{a} – операторы рождения и уничтожения квантов поля с частотой ω , которая выбрана в качестве единицы измерения энергии, т. е. $\omega = 1$; Δ – частота резонансного перехода атома; $f \sim |\vec{d}|$ – безразмерная константа связи атома с полем; $\hat{\sigma}_x$, $\hat{\sigma}_z$ – матрицы Паули. Отметим, что оператор (1) отличается от определения, использованного в работе [16], каноническим преобразованием $\hat{a} \leftrightarrows -i\hat{a}, \hat{a}^+ \leftrightarrows i\hat{a}^+$.

Кулоновская калибровка КМР возникает при замене в операторе кинетической энергии атома оператора импульса $\vec{p} \rightarrow (\vec{p} - e\vec{A})$, где e – заряд электрона, а \vec{A} – векторный потенциал поля, при этом оператор потенциальной энергии $V(\vec{r})$ остается неизменным. При такой замене взаимодействие атома с полем пропорционально величине $(\vec{p} \cdot \vec{A})$, и в гамильтониане возникает так называемый диамагнитный член A^2 , что приводит к модификации оператора КМР. Однако поскольку электромагнитное взаимодействие инвариантно относительно калибровочного преобразования, то оба гамильтониана должны быть эквивалентны. В рамках теории возмущений по полю это показано в книге [18], но строгое доказательство эквивалентности обоих представлений получено в работе [16]. Основная идея этого доказательства связана с тем, что выделение в системе только двух состояний приводит к нелокальности потенциала $V(\vec{r})$, в результате чего он не коммутирует с оператором калибровочного преобразования, который в рамках дипольного приближения определяется следующим унитарным оператором:

$$\hat{U} = e^{f\hat{\sigma}_x\left(\hat{a}^+ - \hat{a}\right)}$$

Применяя данное преобразование к оператору (1), можно получить выражение для гамильтониана КМР в кулоновской калибровке:

$$\hat{H}_{C} = \hat{a}^{\dagger}\hat{a} + \frac{\Delta}{2} \Big\{ \hat{\sigma}_{z} \cosh\left[2f\left(\hat{a} - \hat{a}^{\dagger}\right)\right] - i\,\hat{\sigma}_{y}\,\sinh\left[2f\left(\hat{a} - \hat{a}^{\dagger}\right)\right] \Big\},\tag{2}$$

где по аналогии с работой [16] опущено слагаемое f^2 , которое возникает в результате проецирования оператора \hat{x}^2 на двумерное гильбертово пространство.

Как и гамильтониан (1), гамильтониан (2) коммутирует с оператором комбинированной четности

$$\hat{P} = \hat{\sigma}_z e^{i\pi\,\hat{a}^+\hat{a}},\tag{3}$$

что должно учитываться при построении различных приближений.

Нулевое приближение ОМ для собственных состояний оператора \hat{H}_C

Как уже отмечалось выше, во многих работах (см., например, [12–15] и цитированную в них литературу) были предложены методы приближенного аналитического решения уравнения Шрёдингера с гамильтонианом (1) в широком диапазоне изменения константы связи. В большинстве случаев это сопряжено с использованием довольно сложных векторов состояния и преобразований. Достаточно привести в качестве примера недавнюю работу [15], в которой описание метода получения приближенного решения занимает 10 страниц журнала. Существенно, что сложная форма базисного набора собственных векторов состояния в нулевом приближении не позволяет вычислять поправки к данным решениям.

На этом фоне представляется удивительным то обстоятельство, что более сложный по форме, но эквивалентный гамильтониану (1) гамильтониан (2) с высокой степенью точности диагонализуется с помощью простейшего базисного набора состояний

$$\Psi_{ns} \rangle = |n\rangle \chi_s, \ n = 0, 1, \dots, s = \uparrow, \downarrow, \tag{4}$$

где $|n\rangle$ – фоковские состояния поля; χ_s – собственные векторы оператора $\hat{\sigma}_z$, при этом спиновые и полевые переменные разделяются. Кроме того, состояния (4) являются собственными и для оператора четности (3).

Простой базисный набор (4) позволяет использовать для решения уравнения Шрёдингера ОМ, описанный в книге [17]. В рамках данного подхода решение уравнения

$$\hat{H}_{C} | \Psi_{\nu} \rangle = E_{\nu} | \Psi_{\nu} \rangle, \tag{5}$$

где индекс v = (n, s) означает совокупность квантовых чисел состояния, вычисляется с помощью итерационной схемы, которая обеспечивает сходимость последовательных приближений.

Приведем формулу нулевого приближения для энергетических уровней, получаемую в рамках этого подхода при разложении собственного вектора по базисным функциям $|\psi_v\rangle$ полного набора, в качестве которых используются функции (4):

$$E_{n,s}^{(0)} = \langle \Psi_{ns} | \hat{H}_{C} | \Psi_{ns} \rangle = n + s \frac{\Delta}{2} S_{nn}(f),$$

$$S_{kn}(f) = (-1)^{n} \sqrt{\frac{n!}{k!}} (2f)^{k-n} L_{n}^{k-n} (4f^{2}) e^{-2f^{2}}, k \ge n, S_{kn} = S_{nk},$$
(6)

где $L_n^k(x)$ есть обобщенные полиномы Лагерра, а спиновым индексам \uparrow, \downarrow сопоставлены численные значения +1 и -1 соответственно.

На рис. 1 приведены результаты вычислений по формуле (6) при различных значениях параметров системы. Сравнение нулевого приближения с результатами численных расчетов показывает, что простая формула (6) обеспечивает точность не хуже 5 % во всем диапазоне изменения параметров. Также отметим, что расстояние между уровнями уменьшается при увеличении константы связи (дипольного момента) за счет возрастания энергии связи двухуровневого атома с полем.





Fig. 1. Energy levels of QRM for n = 10, $s = \pm 1$ depending on the coupling constant: $a - \Delta = 1.0$; $b - \Delta = 0.5$. The solid line corresponds to the solution by formula (6), the dotted line shows the results of numerical calculation

Равномерно пригодное приближение ОМ

Несмотря на то что простейший базис (4) обеспечивает достаточно высокую точность вычисления энергетических уровней системы, имеет место заметное отклонение от точного решения в области малой константы связи при резонансе ($\Delta = 1,0$). Однако можно улучшить нулевое приближение с помощью незначительного усложнения базисного набора. Для этого следует учесть, что в области слабой связи, как и в приближении вращающейся волны [19; 20], имеет место вырождение уровней одинаковой четности. Как известно, в данном случае необходимо использовать правильную линейную комбинацию вырожденных состояний, которая в схеме ОМ называется равномерно пригодным приближением (РПП).

A,

В рассматриваемой задаче такие модифицированные волновые функции строятся из двух состояний (4) с одинаковой четностью и имеют следующий вид:

$$|\psi_n\rangle = A|n\rangle\chi_{\uparrow} + B|n+1\rangle\chi_{\downarrow}.$$
(7)

Коэффициенты *A* и *B*, а также энергии уровней определяются из системы линейных алгебраических уравнений, получающихся при подстановке разложения (7) в уравнение (5) и его последующем проецировании на векторы состояния $|n\rangle\chi_{\uparrow}$ и $|n+1\rangle\chi_{\downarrow}$ соответственно и использовании условия нормировки для вектора (7). Приведем их итоговые выражения:

$$E_{n,\pm} = n + \frac{1}{2} + \frac{\Delta}{4} (-1)^n \left(S_{nn} + S_{n+1,n+1} \right) \pm \frac{M}{2},$$

$$M = \left\{ \left[1 - \frac{\Delta}{2} (-1)^n \left(S_{nn} - S_{n+1,n+1} \right) \right]^2 + \Delta^2 S_{n,n+1}^2 \right\}^{1/2},$$

$$m_{n,\pm} = -\frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}}, \quad B_{n,\pm} = \frac{1}{\sqrt{1+\gamma^2}}, \quad \gamma = \frac{\frac{\Delta}{2} (-1)^n S_{n,n+1}}{n + \frac{\Delta}{2} (-1)^n S_{n,n} - E_{n,\pm}}.$$
(8)

На рис. 2 представлены результаты сравнения энергии, вычисленной в рамках РПП, с численным решением, которые демонстрируют высокую точность этого приближения во всем диапазоне изменения параметров КМР.



Рис. 2. Энергетические уровни КМР при n = 10, $s = \pm 1$ в зависимости от константы связи: $a - \Delta = 1,0$; $\delta - \Delta = 0,5$. Сплошной линии соответствует решение по формуле (8), точками обозначены результаты численного расчета

Fig. 2. Energy levels of QRM for n = 10, $s = \pm 1$ depending on the coupling constant: $a - \Delta = 1.0$; $b - \Delta = 0.5$. The solid line corresponds to the solution by formula (8), the dotted line shows the results of numerical calculation

Вычисление поправки второго порядка ОМ

Простая форма базисного набора (4) позволяет выполнить суммирование по промежуточным состояниям при вычислении поправки второго порядка к энергетическим уровням, чтобы оценить точность OM (поправка первого порядка в рамках данного метода тождественно равна нулю). В силу изменения функций нулевого приближения при учете вырождения в области малой константы связи при резонансе выражение для этой поправки принимает вид

$$E_{nr}^{(2)} = \frac{\left|F_{nr}\right|^2}{E_{nr} - E_{n, -r}} + \sum_{ks \neq v_1, v_2} \frac{\left|\tilde{H}_{kn}^{sr}\right|^2}{E_{nr} - H_{kk}^{ss}},$$

где $v_1 = (n, \uparrow)$, $v_2 = (n + 1, \downarrow)$ и матричные элементы вычисляются в соответствии со следующими выражениями:

$$H_{kn}^{ss'} = \langle k, \chi_{s} | \hat{H}_{C} | n, \chi_{s'} \rangle = n \delta_{kn} \delta_{ss'} + \frac{\Delta}{2} S_{kn} \left[\frac{(-1)^{n} + (-1)^{k}}{2} s \delta_{ss'} - \frac{(-1)^{n} - (-1)^{k}}{2} s \delta_{s, -s'} \right],$$

$$F_{nr} = \langle \Psi_{n, -r} | \hat{H}_{C} | \Psi_{nr} \rangle = A_{n, -r} A_{nr} H_{nn}^{\uparrow\uparrow} + A_{n, -r} B_{nr} H_{n, n+1}^{\uparrow\downarrow} + B_{n, -r} A_{nr} H_{n+1, n}^{\downarrow\uparrow} + B_{n, -r} B_{nr} H_{n+1, n+1}^{\downarrow\downarrow},$$

$$\tilde{H}_{kn}^{sr} = \langle k, \chi_{s} | \hat{H}_{C} | \Psi_{nr} \rangle = A_{nr} H_{kn}^{s\uparrow} + B_{nr} H_{k, n+1}^{s\downarrow}.$$
(9)

Результаты вычисления данной поправки показаны на рис. 3. Как видим, ее величина не превышает 4 %, что демонстрирует быструю сходимость рассматриваемого метода. Отметим, что, в отличие от стандартной теории возмущений, матричные элементы в (9) вычисляются с полным гамильтонианом системы, а не только с оператором возмущения.



Рис. 3. Величина поправки второго порядка в зависимости от константы связи. Штриховой линии соответствует поправка к уровню *n* = 10, *s* = +1, сплошной линии – поправка к уровню *n* = 10, *s* = -1

Fig. 3. Second order correction value depending on the coupling constant. The dashed line shows the correction for the level n = 10, s = +1, the solid line – the correction for the level n = 10, s = -1

Заключение

Таким образом, в настоящей работе построено приближение для собственных функций и собственных значений гамильтониана КМР в кулоновской калибровке. Отметим, что аналогичные результаты были получены ранее для случая дипольной калибровки [12; 13; 21]. Однако в указанных работах использованы достаточно сложные вариационные волновые функции нулевого приближения, зависящие от вариационного параметра, выбор которого неоднозначен. Нами показано, что гамильтониан КМР диагонализуется с высокой точностью с помощью унитарного оператора калибровочного преобразования при использовании простого базисного набора векторов состояния, которые позволяют находить поправки к нулевому приближению и могут использоваться для описания эволюции системы. Представленный в работе подход можно обобщить для исследования состояний системы двухуровневых атомов в квантовом поле (модель Дике).

Библиографические ссылки

1. Rabi II. On the process of space quantization. *Physical Review*. 1936;49(4):324–328. DOI: 10.1103/PhysRev.49.324.

Rabi II. Space quantization in a gyrating magnetic field. *Physical Review*. 1937;51(8):652–654. DOI: 10.1103/PhysRev.51.652.
 Walther H, Varcoe BTH, Englert B-G, Becker T. Cavity quantum electrodynamics. *Reports on Progress in Physics*. 2006;69(5):

1325–1382. DOI: 10.1088/0034-4885/69/5/R02.
4. Raimond JM, Brune M, Haroche S. Manipulating quantum entanglement with atoms and photons in a cavity. *Reviews of Mo-*

5. Holstein T. Studies of polaron motion: part I. The molecular-crystal model. Annals of Physics. 1959;8(3):325–342. DOI: 10.1016/0003-4916(59)90002-8.

6. Feranchuk ID, Leonov AV, Skoromnik OD. Physical background for parameters of the quantum Rabi model. *Journal of Physics A: Mathematical and Theoretical.* 2016;49(45):454001. DOI: 10.1088/1751-8113/49/45/454001.

dern Physics. 2001;73(3):565–582. DOI: 10.1103/RevModPhys.73.565.

7. Kockum AF, Miranowicz A, Macri V, Savasta S, Nori F. Deterministic quantum nonlinear optics with single atoms and virtual photons. *Physical Review A: Covering Atomic, Molecular, and Optical Physics and Quantum Information.* 2017;95(6):063849. DOI: 10.1103/PhysRevA.95.063849.

8. Felicetti S, Rossatto DZ, Rico E, Solano E, Forn-Díaz P. Two-photon quantum Rabi model with superconducting circuits. *Physical Review A: Covering Atomic, Molecular, and Optical Physics and Quantum Information*. 2018;97(1):013851. DOI: 10.1103/PhysRevA. 97.013851.

9. Stassi R, Macrì V, Kockum AF, Di Stefano O, Miranowicz A, Savasta S, et al. Quantum nonlinear optics without photons. *Physical Review A: Covering Atomic, Molecular, and Optical Physics and Quantum Information.* 2017;96(2):023818. DOI: 10.1103/PhysRevA. 96.023818.

10. Forn-Díaz P, Lamata L, Rico E, Kono J, Solano E. Ultrastrong coupling regimes of light-matter interaction. *Reviews of Modern Physics*. 2019;91(2):025005. DOI: 10.1103/RevModPhys.91.025005.

11. Braak D. Integrability of the Rabi model. *Physical Review Letters*. 2011;107(10):100401. DOI: 10.1103/PhysRevLett.107.100401.

12. Feranchuk ID, Komarov LI, Ulyanenkov AP. Two-level system in a one-mode quantum field: numerical solution on the basis of the operator method. *Journal of Physics A: Mathematical and General.* 1996;29(14):4035–4047. DOI: 10.1088/0305-4470/29/14/026.

13. Irish EK. Generalized rotating-wave approximation for arbitrarily large coupling. *Physical Review Letters*. 2007;99(17):173601. DOI: 10.1103/PhysRevLett.99.173601.

14. Yu-Yu Zhang, Qing-Hu Chen, Yang Zhao. Generalized rotating-wave approximation to biased qubit-oscillator systems. *Physical Review A: Covering Atomic, Molecular, and Optical Physics and Quantum Information.* 2013;87(3):033827. DOI: 10.1103/PhysRevA.87.033827.

15. Zi-Min Li, Batchelor MT. Generalized adiabatic approximation to the quantum Rabi model. *Physical Review A: Covering Atomic, Molecular, and Optical Physics and Quantum Information.* 2021;104(3):033712. DOI: 10.1103/PhysRevA.104.033712.

16. Di Stefano O, Settineri A, Macri V, Garziano L, Stassi R, Savasta S, et al. Resolution of gauge ambiguities in ultrastrong-coupling cavity quantum electrodynamics. *Nature Physics*. 2019;15(8):803–808. DOI: 10.1038/s41567-019-0534-4.

17. Feranchuk I, Ivanov A, Van-Hoang Le, Ulyanenkov A. *Non-perturbative description of quantum systems*. Cham: Springer International Publishing; 2015. xv, 362 p. (Lecture notes in physics; volume 894). DOI: 10.1007/978-3-319-13006-4.

18. Scully MO, Zubairy MS. *Quantum optics*. Cambridge: Cambridge University Press; 1997. xxi, 630 p. DOI: 10.1017/CBO97805 11813993.

19. Jaynes ET, Cummings FW. Comparison of quantum and semiclassical radiation theories with application to the beam maser. *Proceedings of the IEEE*. 1963;51(1):89–109. DOI: 10.1109/PROC.1963.1664.

20. Леонов А, Феранчук И. Двухуровневая система в одномодовом квантовом поле. Саарбрюккен: Lambert Academic Publishing; 2011. 116 с.

21. Леонов АВ. О сходимости итерационной схемы операторного метода для описания собственных состояний квантовой модели Раби. *Журнал Белорусского государственного университета.* Физика. 2018;3:74–80.

References

1. Rabi II. On the process of space quantization. *Physical Review*. 1936;49(4):324–328. DOI: 10.1103/PhysRev.49.324.

Rabi II. Space quantization in a gyrating magnetic field. *Physical Review*. 1937;51(8):652–654. DOI: 10.1103/PhysRev.51.652.
 Walther H, Varcoe BTH, Englert B-G, Becker T. Cavity quantum electrodynamics. *Reports on Progress in Physics*. 2006;69(5): 1325–1382. DOI: 10.1088/0034-4885/69/5/R02.

 4. Raimond JM, Brune M, Haroche S. Manipulating quantum entanglement with atoms and photons in a cavity. *Reviews of Mo*dern Physics. 2001;73(3):565–582. DOI: 10.1103/RevModPhys.73.565.

5. Holstein T. Studies of polaron motion: part I. The molecular-crystal model. Annals of Physics. 1959;8(3):325-342. DOI: 10.1016/0003-4916(59)90002-8.

6. Feranchuk ID, Leonov AV, Skoromnik OD. Physical background for parameters of the quantum Rabi model. *Journal of Physics A: Mathematical and Theoretical.* 2016;49(45):454001. DOI: 10.1088/1751-8113/49/45/454001.

7. Kockum AF, Miranowicz A, Macri V, Savasta S, Nori F. Deterministic quantum nonlinear optics with single atoms and virtual photons. *Physical Review A: Covering Atomic, Molecular, and Optical Physics and Quantum Information.* 2017;95(6):063849. DOI: 10.1103/PhysRevA.95.063849.

8. Felicetti S, Rossatto DZ, Rico E, Solano E, Forn-Díaz P. Two-photon quantum Rabi model with superconducting circuits. *Physical Review A: Covering Atomic, Molecular, and Optical Physics and Quantum Information*. 2018;97(1):013851. DOI: 10.1103/PhysRevA. 97.013851.

9. Stassi R, Macri V, Kockum AF, Di Stefano O, Miranowicz A, Savasta S, et al. Quantum nonlinear optics without photons. *Physical Review A: Covering Atomic, Molecular, and Optical Physics and Quantum Information*. 2017;96(2):023818. DOI: 10.1103/PhysRevA. 96.023818.

10. Forn-Díaz P, Lamata L, Rico E, Kono J, Solano E. Ultrastrong coupling regimes of light-matter interaction. *Reviews of Modern Physics*. 2019;91(2):025005. DOI: 10.1103/RevModPhys.91.025005.

11. Braak D. Integrability of the Rabi model. *Physical Review Letters*. 2011;107(10):100401. DOI: 10.1103/PhysRevLett.107.100401.

12. Feranchuk ID, Komarov LI, Ulyanenkov AP. Two-level system in a one-mode quantum field: numerical solution on the basis of the operator method. *Journal of Physics A: Mathematical and General.* 1996;29(14):4035–4047. DOI: 10.1088/0305-4470/29/14/026.

13. Irish EK. Generalized rotating-wave approximation for arbitrarily large coupling. *Physical Review Letters*. 2007;99(17):173601. DOI: 10.1103/PhysRevLett.99.173601.

14. Yu-Yu Zhang, Qing-Hu Chen, Yang Zhao. Generalized rotating-wave approximation to biased qubit-oscillator systems. *Physical Review A: Covering Atomic, Molecular, and Optical Physics and Quantum Information.* 2013;87(3):033827. DOI: 10.1103/PhysRevA.87.033827.

15. Zi-Min Li, Batchelor MT. Generalized adiabatic approximation to the quantum Rabi model. *Physical Review A: Covering Atomic, Molecular, and Optical Physics and Quantum Information*. 2021;104(3):033712. DOI: 10.1103/PhysRevA.104.033712.

16. Di Stefano O, Settineri A, Macrì V, Garziano L, Stassi R, Savasta S, et al. Resolution of gauge ambiguities in ultrastrong-coupling cavity quantum electrodynamics. *Nature Physics*. 2019;15(8):803–808. DOI: 10.1038/s41567-019-0534-4.

17. Feranchuk I, Ivanov A, Van-Hoang Le, Ulyanenkov A. *Non-perturbative description of quantum systems*. Cham: Springer International Publishing; 2015. xv, 362 p. (Lecture notes in physics; volume 894). DOI: 10.1007/978-3-319-13006-4.

18. Scully MO, Zubairy MS. *Quantum optics*. Cambridge: Cambridge University Press; 1997. xxi, 630 p. DOI: 10.1017/CBO97805 11813993.

19. Jaynes ET, Cummings FW. Comparison of quantum and semiclassical radiation theories with application to the beam maser. *Proceedings of the IEEE*. 1963;51(1):89–109. DOI: 10.1109/PROC.1963.1664.

20. Leonau A, Feranchuk I. Dvukhurovnevaya sistema v odnomodovom kvantovom pole [Two-level system in a single-mode quantum field]. Saarbrücken: Lambert Academic Publishing; 2011. 116 p. Russian.

21. Leonau AU. Investigating the convergence of the iteration scheme of operator method for description of eigenstates of the quantum Rabi model. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2018;3:74–80. Russian.

Получена 01.11.2021 / исправлена 03.12.2021 / принята 07.12.2021. Received 01.11.2021 / revised 03.12.2021 / accepted 07.12.2021. УДК 533.7

ТРАНСПОРТНЫЕ СВОЙСТВА ДВУХКОМПОНЕНТНЫХ РАДИЕВО-ГАЛОГЕННЫХ РАЗРЕЖЕННЫХ ГАЗОВЫХ СРЕД

Д. Н. МЕНЯЙЛОВА¹⁾, М. Б. ШУНДАЛОВ^{1), 2)}, Ю.-Ч. ХАНЬ^{2), 3)}

¹⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь ²⁾Совместный институт Даляньского политехнического университета и Белорусского государственного университета, 116024, г. Далянь, Китай ³⁾Даляньский политехнический университет, 116024, г. Далянь, Китай

Использованы неэмпирические функции потенциальной энергии и классической кинетической теории. В зависимости от температуры газовой смеси (вплоть до 3000 К) рассчитаны некоторые транспортные свойства (коэффициенты диффузии, вязкости и теплопроводности) двухкомпонентных разреженных газовых сред, состоящих из атомов радия и атомов галогена (F, Cl, Br, I). Расчеты выполнены на основе последовательного аналитического и (или) численного вычисления интегралов для угла рассеяния, сечения рассеяния и столкновений. Разработана подробная методика расчета транспортных свойств с использованием потенциала Морзе. Рассмотрены некоторые численные трудности, возникающие из-за особенностей подынтегральных выражений и разрывного характера переменной интегрирования. Показана зависимость транспортных свойств от массы изотопа. Оценены возможные ошибки, вносимые применением модельной потенциальной функции Морзе вместо реального потенциала взаимодействия между атомами. Полученные результаты могут быть использованы при планировании экспериментов по прямому лазерному охлаждению моногалогенидов щелочноземельных металлов.

Ключевые слова: транспортные свойства; интегралы столкновений; моногалогениды радия; лазерное охлаждение.

Благодарность. Работа выполнена при поддержке государственной программы научных исследований «Конвергенция-2025», а также Международного фонда совместных научных исследований Даляньского политехнического университета и БГУ (проект № ICR2105). Авторы также выражают благодарность Юлии Осика (БГУ) за техническую помощь.

Образец цитирования:

Меняйлова ДН, Шундалов МБ, Хань Ю-Ч. Транспортные свойства двухкомпонентных радиево-галогенных разреженных газовых сред. *Журнал Белорусского государственного университета.* Физика. 2022;1:52–64 (на англ.). https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-52-64

Авторы:

Дарья Николаевна Меняйлова – старший преподаватель кафедры высшей математики и математической физики физического факультета.

Максим Борисович Шундалов – кандидат физико-математических наук, доцент; доцент кафедры физической оптики и прикладной информатики физического факультета¹⁾, доцент²⁾.

Юн-Чан Хань – доктор физико-математических наук; профессор²), профессор физического факультета³.

For citation:

Meniailava DN, Shundalau MB, Han Y-C. Transport properties of two-component radium – halogen dilute gas media. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2022;1:52–64. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-52-64

Authors:

Darya N. Meniailava, senior lecturer at the department of high mathematics and mathematical physics, faculty of physics. *meniailava@bsu.by*

https://orcid.org/0000-0002-8848-8447

Maksim B. Shundalau, PhD (physics and mathematics), docent; associate professor at the department of physical optics and applied informatics, faculty of physics^a, and associate professor^b. *shundalau@bsu.by*

https://orcid.org/0000-0002-2911-7101

Yong-Chang Han, doctor of science (physics and mathematics); professor^b and professor at the department of physics^c. *ychan@dlut.edu.cn*

TRANSPORT PROPERTIES OF TWO-COMPONENT RADIUM – HALOGEN DILUTE GAS MEDIA

D. N. MENIAILAVA^a, M. B. SHUNDALAU^{a, b}, Y.-C. HAN^{b, c}

^aBelarusian State University, 4 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220030, Belarus ^bJoint Institute of the Dalian University of Technology and Belarusian State University, Dalian 116024, China ^cDalian University of Technology, Dalian 116024, China Corresponding author: D. N. Meniailava (meniailava@bsu.by)

Based on state-of-the-art *ab initio* potential energy functions and classical kinetic theory, some transport properties (diffusion, viscosity and thermal conductivity coefficients) of two-component dilute gas media of radium and halogen (F, Cl, Br, I) atoms were predicted as functions of the translation temperature up to 3000 K. Calculations were performed by sequential analytical and (or) numerical computations of deflection angle, cross-section and collision integrals. A detailed methodology for the calculation of the transport properties using the Morse potential was developed. Some numerical difficulties arising due to the singularity of the integrands and discontinuous character of the variable of integration are considered. The dependence of transport properties on isotope mass is also shown. Possible errors introduced by using the model Morse potential function instead of the real potential for the interaction between atoms are estimated. These data can be useful for the planning of the experiments on the direct laser cooling of the monohalides of alkaline earth metals.

Keywords: transport properties; collision integrals; radium monohalides; laser cooling.

Acknowledgements. This work was supported by the Belarusian state scientific research program «Convergence-2025» and the International Cooperation Fund Project of Dalian University of Technology and Belarusian State University (No. ICR2105). The authors are also grateful to Yuliya Osika (Belarusian State University) for technical assistance.

Introduction

Laser cooling is one of the effective techniques to obtain ultracold molecules [1; 2]. Among possible applications of ultracold molecules, such as the creation of a Bose – Einstein condensate, quantum information processing, controlled chemical reactions, a new promising application of ultracold molecules containing heavy nuclei, namely, research for electron's electric dipole moment, was recently proposed [3].

The monohalides of alkaline earth metals are promising diatomic molecules for the direct laser cooling due to the coincidence of the equilibrium internuclear distances of potential energy curves (PECs) involved in the cooling scheme states and, as a consequence, highly diagonal Franck – Condon factors. Other essential features required for effective direct laser cooling are strong transition dipole moment between the states involved in the cooling scheme and the absence of intervening electronic states between them in order to avoid leaks in the cooling cycle [2]. Generally, the monohalides of alkaline earth metals possess the mentioned key factors. Recently, the strontium monofluoride (SrF) [4–6] and calcium monofluoride (CaF) [7–9] molecules were successfully cooled and caught into a magneto-optical trap.

Among all monohalides of alkaline earth metals, the radium ones are least studied, possibly due to the high radioactivity of the radium. Nevertheless, the radium monofluoride (RaF) molecule is considered the most promising candidate for direct laser cooling in order to use it for measuring molecular parity violation [10]. In the recent experimental studies [11; 12] numerous molecular spectroscopic parameters for the lowest states of the RaF molecule with different radium isotopes were obtained for the first time. The method used in [11; 12] provides breakthrough possibilities for the high-precision studying short-lived radioactive molecules, including the development of laser cooling schemes. The latter task has different sides. On the one hand, it is necessary to calculate at the high level of theory the PECs involved in the cooling scheme states, spectroscopic and radiative characteristics of the vibronic states, etc. Another aspect of the problem under consideration is the calculation of the transport properties of alkaline earth metal atoms and halogen atoms under conditions of dilute gaseous media at various particle concentrations and temperatures. These data can be useful for the planning of the experiments. The most important transport properties that determine the dynamics of pair collisions in a gas medium are the coefficients of viscosity (pure gases and mixtures), thermal conductivity, diffusion, and effective collision cross-sections [13].

Lately, we performed the state-of-the-art FS-RCCSD (Fock-space relativistic coupled cluster singles and doubles) [14] calculations for the RaF [15], RaBr [16], and RaI [17] molecules. The results of these studies show that radium monohalides can be used for direct laser cooling. In this study, we use the classical Chapman – Enskog kinetic theory [13] in order to predict the transport properties of the dilute radium – halogen gas

media. The transport properties are evaluated in the terms of reduced collision integrals, and some numerical difficulties arise due to the singularity of the integrands and discontinuous character of the variable of integration [18; 19].

The main goals of the work are to develop a consistent scheme for the calculation of transport properties of the dilute gas media based on the classical kinetic theory [13] and Taylor's algorithm [18] and to evaluate some transport properties of the dilute radium – halogen media based on the Morse potential function for the interaction between atoms and modern possibilities of the numerical methods.

Theoretical details

It is convenient to consider the problem of two colliding particles with masses m_1 and m_2 in the center-ofmass system. In other words, the above-mentioned three-dimension problem turns into the two-dimension one for the motion of only one particle with reduced mass $\mu = \frac{m_1m_2}{m_1 + m_2}$ in the spherically symmetric potential field $\Phi(r)$. In this case, the collision process can be characterised by the following parameters: the total energy of particles *E*, which is equal to their relative initial kinetic energy $E = \frac{1}{2}\mu v_{\infty}^2$; the deflection angle χ ; the impact parameter *b* (fig. 1). According to definition of the deflection angle, its value varies from 0 to π , excluding the

parameter b (fig. 1). According to definition of the deflection angle, its value varies from 0 to π , excluding the orbiting case (see below). The value of π corresponds to the situation of head-on collision with zero impact parameter, and the value of 0 corresponds to the situation with avoiding collision at very large values of b.



Fig. 1. The two particles collision in the center-of-mass system

Moreover, the two-dimension colliding problem can be reduced to the one-dimension one for the motion of the particle with reduced mass μ in some effective potential field $\Phi_{eff}(r)$, which is given by the following equation:

$$\Phi_{eff}(r) = \Phi(r) + E \frac{b^2}{r^2}.$$
(1)

According to the classical kinetic theory of gases [13], the diffusion coefficient D, the viscosity coefficient η and the thermal conductivity coefficient λ for low-density atomic gases at the first approximation are

$$D = \frac{\sqrt[3]{\frac{\pi k_B^3 T^3}{2\mu}}}{8\pi \sigma^2 \Omega^{(1,1)} (T^*)},$$
(2)

$$\eta = \frac{\sqrt[5]{2\mu\pi k_B T}}{6\pi\sigma^2 \Omega^{(2,2)} (T^*)},$$
(3)

$$\lambda = \frac{\sqrt[25]{\frac{\pi k_B T}{2\mu}}}{32\pi\sigma^2 \Omega^{(2,2)} (T^*)},$$
(4)

where k_B is the Boltzmann constant; σ is the collision diameter, its value is equal to the distance between particles, for which $\Phi(r) = 0$; $\Omega^{(1,1)}(T^*)$ and $\Omega^{(2,2)}(T^*)$ are reduced collision integrals as functions of the reduced temperature $T^* = \frac{k_B T}{\varepsilon}$; ε is a parameter having the dimension of energy, its value is chosen as dissociation energy D_e for the potential energy function $\Phi(r)$ of interacting particles.

The collision integrals $\Omega^{(l,s)}(T^*)$ are expressed in the terms of cross-section integrals $Q^{(l)}(E)$:

$$\Omega^{(l,s)}(T^*) = \frac{1}{(s+1)!T^{s+1}} \int_0^\infty e^{-\frac{E}{T}} E^{s+1} Q^{(l)}(E) dE.$$
(5)

In its turn, the cross-section integrals $Q^{(l)}(E)$ are

$$Q^{(l)}(E) = \frac{2}{1 - \frac{1 + (-1)^l}{2(1+l)}} \int_0^{\infty} (1 - \cos^l \chi) b db.$$
(6)

The integral for the deflection angle $\chi(E, b)$ is determined as follows:

$$\chi(E, b) = \pi - 2b \int_{r_m}^{\infty} \frac{dr}{r^2 F(r)},\tag{7}$$

where r_m is the distance of closest approach, the function F(r) is

$$F(r) = \sqrt{1 - \frac{\Phi(r)}{E} - \frac{b^2}{r^2}}.$$
(8)

The distances *b*, *r* and r_m are expressed in the units of the collision diameter σ , while the energies *E* and $\Phi(r)$ are expressed in the units of the parameter ε .

For the given energy the impact parameter b and the distance of the closest approach r_m are related according to formula (8), where $F(r_m) = 0$, or

$$Er_m^2 - \Phi(r_m)r_m^2 - b^2 E = 0.$$
 (9)

The last equation should be solved numerically. As a result, the dependence of the distance of closest approach r_m on relative kinetic energy E and impact parameter b can be obtained. The function $r_m(E, b)$ allows to calculate integral (7) and to find the dependence of the deflection angle χ on the same parameters.

From the other hand, the equation (9) provides the relationship between b and r_m for a fixed energy:

$$b = r_m \sqrt{\frac{E - \Phi(r_m)}{E}}.$$
(10)

The minimal r_m value can be found using the condition b = 0, which corresponds to the head-on collision. In this case the equation (9) is reduced to

$$E = \Phi(r_m), \tag{11}$$

and the solution of the equation (11) is denoted as r_{F} .

Generally, the dependence of the distance of closest approach r_m on b and E has non-trivial character. Figure 2 shows the effective potential energy function $\Phi_{eff}(r)$, evaluated by formula (1), for a fixed energy and for three different values of the impact parameter. The difference between E and Φ_{eff} results in the relative kinetic energy for a given point:

$$E - \Phi_{eff}(r, b) = E_k = \frac{1}{2}\mu v^2,$$
 (12)

where v is relative radial velocity.



Fig. 2. Effective potential energy function: the oblique collision (1), the orbiting effect (2), the head-on collision (3)

If the left side of the equation (12) is equal to zero:

$$E - \Phi_{eff}(r, b) = 0, \tag{13}$$

it corresponds to the turning point (v = 0) or to the distance of closest approach r_m .

One can see that for some impact parameter $b = b_0$ the condition (13) is satisfied at the point $r = r_0$ (see fig. 2, curve 2). The second solution of the equation (13) for the case $b = b_0$ lies in the region $r < r_0$ and is denoted as r'_0 . For the case $b > b_0$ (see fig. 2, curve 1) there are also two values for the distance of closest approach r_m , namely $r_m^{(1)} < r_0$ and $r_m^{(2)} < r_0$. The only last one has physical meaning since a particle cannot penetrate to the region $r < r_0$. For the case $b < b_0$ (see fig. 2, curve 3) the equation (13) has only one solution, and its value $r_m < r_0'$. To find the r_0 value, it is necessary to consider the joint solution of the equation (13) and the extremum condition (14):

$$\frac{d\Phi_{eff}}{dr} = 0. \tag{14}$$

Elimination of the impact parameter b for the system (13), (14) gives equation

$$2(E-\Phi) - r\frac{d\Phi}{dr} = 0,$$
(15)

which can be solved numerically for r_0 . The r'_0 is a smaller root of the equation (13).

So, for $b > b_0$ the distance of closest approach is greater than r_0 , and for $b < b_0$ the distance of closest approach is less than r'_0 . It means that the distance of closest approach as a function of the impact parameter is discontinuous for $b = b_0$, and distances of closest approach in the interval $r'_0 < r_m < r_0$ are physically impossible. From the physical point of view, values $b > b_0$ correspond to rather oblique collisions, for which deflection

of particles occurs with fairly small angles, and attractive forces between particles dominate over repulsive ones. Case $b < b_0$ corresponds to almost head-on collisions, deflection occurs with large angles, and repulsive forces play main role. Case $b = b_0$ is characterised by the orbiting effect, or the formation of quasi-bound state of two particles. In this case particles long time orbit each other at a distance r_0 . The critical energy E_c , for which the orbiting occurs and below which r_m has discontinuous character, can

be found according to following. Based on equation (15) one can obtain the expression for energy:

$$E = \frac{1}{2}r_0\frac{d\Phi}{dr_0} + \Phi(r_0).$$
 (16)

Extremum of the energy corresponds to the critical energy E_c :

$$\frac{dE}{dr_0} = \frac{1}{2} \left(3 \frac{d\Phi}{dr_0} + r_0 \frac{d^2 \Phi}{dr_0^2} \right) = 0.$$
(17)

So, the solution of the equation (17) gives value of the critical distance of closest approach r_{c} . Substitution of the r_c into the equation (16) gives the critical energy E_c .

Thus, for the calculation of the deflection angle χ for energies $E < E_c$ the integral (7) should be divided into two parts: the integral over $r_E(E)$ to $r'_0(E)$ and the integral over $r_0(E)$ to infinity. For energies $E > E_c$ the integral (7) is over $r_E(E)$ to infinity.

Since the orbiting effect corresponds to the formation of a quasi-bound state of interacting particles, they orbit each other like a bound system. Therefore, the deflection angle increases continuously, and its value tends to infinity (fig. 3).



Fig. 3. The two particles collision in the orbiting case at energies less than E_c , where the deflection angle χ varies from zero to infinity

Figure 4 represents the dependence of the $(1 - \cos \chi)$ function on the impact parameter *b* for several values of reduced energy *E*. Figure 4, *a*, corresponds to relative energy E = 0.014, which is less than the critical energy $(E_c = 0.284)$, and, therefore, it demonstrates the orbiting effect. In addition, figure 4, *b*, represents energy E = 0.324 near-critical one, and $(1 - \cos \chi)$ function rapidly oscillates between values zero and two. Figure 4, *c* and *d*, correspond to energy values, which are greater (E = 0.490) or much greater (E = 42.0) than critical energy. The latter one demonstrates monotonic dependence of the $(1 - \cos \chi)$ function on the impact parameter *b*.

The exact empirical potentials for interaction between radium atom and halogen atoms (F, Cl, Br and I) are unknown. In order to calculate the required transport properties, we have used the *ab initio* PECs for the ground state of the RaF [15], RaCl [20], RaBr [16] and RaI [17] molecules. These PECs have been calculated at the FS-RCCSD [14] level of theory, which is one of the most successful tools for predicting the electronic structure and properties of molecular compounds containing heavy atoms. It provides the most accurate data on PECs and other characteristics of complex molecular systems [15; 20].

The ground state PECs were calculated near their minima and were extrapolated to the larger internuclear distance via the Morse potential [21]:

$$\Phi(r) = D_e \left(1 - e^{-a(r - r_e)} \right)^2 - D_e,$$
(18)

where D_e is the dissociation energy; r_e is the equilibrium internuclear distance; *a* depends on PEC's parameters:

$$a = \frac{\omega_e}{2\pi} \sqrt{\frac{\mu}{2D_e}},$$

where ω_{ρ} is a harmonic frequency.

Besides, the ground state PECs, obtained by formula (18), for the radium monohalides are shown in fig. 5. Since the real PEC can significantly differ on the Morse potential function, for comparison we have also calculated the transport properties for the potassium – rubidium medium. In contrast to radium monohalides, the ground state PEC for the KRb molecule has been obtained through both experimental [22] and theoretical [23; 24] methods. We have performed the calculations of the transport properties for the K – Rb medium using exact empirical potential [22] and the model Morse potential. It allows us to estimate possible errors introduced by using the model potential function instead of the real one.

The transport properties as well as the Morse potential, depend on the reduced mass of interacting particles. The radium does not have stable isotopes. The longest-lived isotope of radium is ²²⁶Ra with a half-life of about 1600 years. The fluorine has only one stable isotope, namely ¹⁹F. The chlorine has two stable isotopes (³⁵Cl and ³⁷Cl) with abundances of 75.77 and 24.23 %, respectively. The bromine also has two stable isotopes (⁷⁹Br and ⁸¹Br) with abundances of 50.69 and 49.31 %, respectively. The iodine has only one stable isotope, namely ¹²⁷I. The potassium has two stable isotopes (³⁹K and ⁴¹K) with abundances of 93.26 and 6.73 %, respectively. The rubidium has only one stable isotope (⁸⁵Rb) and one long-lived isotope (⁸⁷Rb) with abundances of 72.17 and 27.83 %, respectively. We calculated the transport properties for the ²²⁶Ra – ¹⁹F, ²²⁶Ra – ³⁵Cl, ²²⁶Ra – ³⁷Cl, ²²⁶Ra – ⁸⁵Rb dilute gas media.



Fig. 4. The dependence of the $(1 - \cos \chi)$ function on the impact parameter *b* for E = 0.014 (*a*), 0.324 (*b*), 0.490 (*c*) and 42.0 (*d*)



Fig. 5. Potential energy curves of the ground state of the RaF (1), RaCl (2), RaBr (3), RaI (4) and KRb (5) molecules

Calculation details

All calculations were performed in relative units described in the previous section using the package *Wol-fram Mathematica* [25]. At the first stage of calculations, a critical distance r_c and critical energy E_c were determined according to formulas (16) and (17). Optimal steps in selected ranges for energies E and impact parameter b were defined.

In the energy range $E < E_c$ the values of r_0 and b_0 were evaluated by using formulas (15) and (10), respectively. The angle χ was calculated for the given energies for the values of *b* belonging to five different intervals:

I, II, III, IV and V (fig. 6). To calculate the deflection angles using (7) in the intervals I and IV one needs the distances of closest approach r_m to be numerically evaluated using (13) according to the approach described previously. For $b < b_0$, the smallest positive root lying near distance where $\Phi(r) = 0$ was chosen as a solution. For $b > b_0$, the largest positive solution of equation (13), being usually located to the right of the potential inflection point, was taken as r_m . In intervals II and III near the point $b = b_0$, where the orbiting occurs, the angle χ tends to negative infinity. Taking into account this asymptotic behaviour, the angle χ was found as a function

 $\sqrt{\frac{-c}{b^2 - b_0^2}}$ in interval II to the left of the critical point and as a function $\sqrt{\frac{c'}{b^2 - b_0^2}}$ in interval III to the right of

 $b = b_0$, where *c* and *c'* are positive coefficients determined for each value of *E*. In the interval V the angle χ takes negative values, slowly increasing tending to zero as *b* approaches infinity. Considering this tendency, a func-

tion of the form $\frac{C_6}{b^6} + \frac{C_8}{b^8} + \frac{C_{12}}{b^{12}}$ was used as function $\chi(b)$, where C_6 , C_8 and C_{12} are coefficients determined

for each value of E.

For energies $E > E_c$, the integrals for deflection angles χ were calculated numerically exactly by using formula (7) after evaluating r_m according to (13). As for each value of E deflection angles $\chi(b) \xrightarrow[b \to +\infty]{} 0$ and are negative in the asymptotic region, so for curve-fitting was used the same function as for interval V ($E < E_c$). For energies E slightly larger than E_c in the vicinity of the minimum of the angle χ , where the function changes very rapidly, a more frequent step of b was used to obtain more points for the further interpolation. For the interpolation of the calculated χ points Hermite polynomials of third order were used.



Fig. 6. The dependence of deflection angle χ on impact parameter b: I–V are intervals

The integrals $Q^{(l)}(E)$ for the scattering cross-sections were calculated according to (6) for l = 1 and l = 2. For energies $E < E_c$ the values of $Q^{(l)}(E)$ were calculated as $Q^{(l)} = Q_{I}^{(l)} + Q_{II}^{(l)} + Q_{IV}^{(l)} + Q_{V}^{(l)} + Q_{V}^{(l)}$, where $Q_{i}^{(l)}$, $i = \overline{1, 5}$, are integrals over *b* belonging to intervals I–V. Integrals $Q_{I}^{(l)}$, $Q_{IV}^{(l)}$ and $Q_{V}^{(l)}$ were calculated numerically, integrals $Q_{II}^{(l)}$ and $Q_{III}^{(l)}$ were evaluated analytically. For energies $E > E_c$ the values of $Q^{(l)}(E)$ were obtained as sum of two integrals over *b* in the intervals of numerically and analytically defined χ data.

Besides, the $Q^{(l)}(E)$ function values for all energies were interpolated by Hermite 3rd order interpolation method. To describe the scattering cross sections $Q^{(l)}(E)$ in the regions $E \to 0$ and $E \to +\infty$ the curve-fitting functions of the form of $A^{(l)}E^{p^{(l)}}e^{-k^{(l)}E}$ were applied with the coefficients $A^{(l)}$, $p^{(l)}(p^{(l)} > 0)$ and $k^{(l)}$ being defined separately for the discussing regions for different values of *l*.

The collision integrals $\Omega^{(l,s)}$ were calculated by substituting the obtained integrals for the scattering cross-sections $Q^{(l)}(E)$ into (5) for $l = \overline{1, 2}$. The range of relative temperatures T^* for these integrals was chosen to correspond to the real temperatures T from 5 to 3000 K for each of the gaseous media under study. As $Q^{(l)}(E)$

and $Q^{(2)}(E)$ were obtained for three ranges of energy: $E \to 0$, values E, selected for the numerical calculation and $E \to +\infty$, than $\Omega^{(l,s)}$ were evaluated as sum of three integrals over E. The integrals over second range were obtained numerically. The rest integrals in the sum were calculated analytically as integrals of gamma functions.

The described calculation technique was tested on the Lennard-Jones potential. The integrals calculated by us occurred to be in full agreement with the already known $\Omega^{(l,s)}$ collision integrals [13], being widely used for predicting transport properties of gases.

All calculations were performed at a pressure of 1 atm.

Results and discussion

The calculated transport properties for the two-component radium – halogen dilute gas media as functions of the translation temperature in the range 5–3000 K are shown in fig. 7, *a*, 8, *a*, and 9, *a*. The dependencies of the transport properties on chlorine isotope mass are presented in fig. 7, *b*, 8, *b*, and 9, *b*, where inserts demonstrate mentioned functions for high temperatures. Figures 7, *c*, 8, *c*, and 9, *c*, show calculated transport properties for the K – Rb medium using exact empirical (curve 8) and model Morse (curve 7) PECs.

The difference in behaviour of the diffusion D and thermal conductivity λ functions and viscosity η function is due to the following reasons. The dependencies of the D, λ and η coefficients on medium's characteristics are (see also equations (2)–(4))

[m

$$D \sim \frac{\sqrt[T]{\frac{T}{\mu}}}{\Omega^{(1,1)}},\tag{19}$$

$$\lambda \sim \frac{\sqrt{\frac{T}{\mu}}}{\Omega^{(2,2)}},\tag{20}$$

$$\eta \sim \frac{\sqrt[\mu]{\frac{T}{\mu}}}{\Omega^{(2,2)}}.$$
(21)

Since the dependencies of the collision integrals $\Omega^{(1,1)}$ and $\Omega^{(2,2)}$ on temperature have the same character, namely, they monotonically decrease when temperature increases, the reduced mass and the PEC's parameters are crucial in differences of the coefficients for different media. For the diffusion coefficient D (see fig. 7, a) and thermal conductivity coefficient λ (see fig. 8, a) for the Ra – Cl and Ra – Br media mentioned dependencies partly compensate each other (see also fig. 5). As a result, D and λ functions for the Ra – Cl and Ra – Br media are similar. The diffusion coefficient D (19), in fact, differs from the thermal conductivity coefficient λ (20) only by a factor of temperature, which results in a faster rise of corresponding dependencies for high temperature. Wherein, a character of rising of the functions remains the same.

Generally, the transport properties are weakly dependent on isotope mass (see fig. 7, *b*, 8, *b*, and 9, *b*). For low temperatures, this dependence almost vanishes at all.

The viscosity coefficient η (21), in fact, is the thermal conductivity coefficient λ (20), which is multiplied by the reduced mass μ . As a result, a character of rising of the η function drastically differs on λ function (comp. fig. 8, *a*, and 9, *a*). It is reflected in dependencies of the thermal conductivity coefficient λ and viscosity coefficient η for the Ra – Cl medium for different chlorine isotopes (see fig. 8, *b*, and 9, *b*). The thermal conductivity coefficient λ function for the chlorine-35 isotope lies above the chlorine-37 one, wherein for the viscosity coefficient η the dependencies are reversed.

However, the analysis of dependencies of the transport properties on temperature for the K – Rb medium (see fig. 7, *c*, 8, *c*, and 9, *c*) shows that the model Morse potential energy function underestimates the *D*, λ and η coefficients compared with exact empirical one [22]. Our results are in agreement with calculations of [26] on the alkali metal (Rb, Cs) – rare gas (He, Ne, Ar, Kr, Xe) media, for which calculated transport properties using the Morse potential are also underestimated relatively experimental values. It should be taken into account when comparing theoretical results with future experimental data.



Fig. 7. Predicted diffusion coefficient for the dilute gas media: illustration *a* demonstrates 226 Ra – 19 F (*1*), 226 Ra – 35 Cl (*2*), 226 Ra – 79 Br (*3*), 226 Ra – 127 I (*4*); illustration *b* presents 226 Ra – 35 Cl (*5*), 226 Ra – 37 Cl (*6*); illustration *c* shows 39 K – 85 Rb (*7*, *8*)



Fig. 8. Predicted thermal conductivity coefficient for the dilute gas media: illustration *a* demonstrates 226 Ra – 19 F (*1*), 226 Ra – 35 Cl (*2*), 226 Ra – 79 Br (*3*), 226 Ra – 127 I (*4*); illustration *b* presents 226 Ra – 35 Cl (*5*), 226 Ra – 37 Cl (*6*); illustration *c* shows 39 K – 85 Rb (*7*, *8*)



Fig. 9. Predicted viscosity coefficient for the dilute gas media: illustration *a* demonstrates 226 Ra – 19 F (*I*), 226 Ra – 35 Cl (*2*), 226 Ra – 79 Br (*3*), 226 Ra – 127 I (*4*); illustration *b* presents 226 Ra – 35 Cl (*5*), 226 Ra – 37 Cl (*6*); illustration *c* shows 39 K – 85 Rb (*7*, *8*)

Conclusions

Based on the classical kinetic theory of gaseous media, a detailed methodology for the calculation of the transport properties using the Morse potential has been developed. The diffusion, thermal conductivity and viscosity coefficients as functions of the translation temperature in the range 5–3000 K for the two-component radium – halogen (F, Cl, Br, I) dilute gas media are calculated for the first time. The influence of an isotope mass on the transport properties is defined. Possible errors introduced by using the model Morse potential function instead of the real potential for the interaction between atoms are estimated. Calculated data can be useful for the planning of the experiments on the direct laser cooling of the monohalides of alkaline earth metals.

References

1. Dulieu O, Gabbanini C. The formation and interactions of cold and ultracold molecules: new challenges for interdisciplinary physics. *Reports on Progress in Physics*. 2009;72(8):086401. DOI: 10.1088/0034-4885/72/8/086401.

 Tarbutt MR. Laser cooling of molecules. *Contemporary Physics*. 2018;59(4):356–376. DOI: 10.1080/00107514.2018.1576338.
 Sunaga A, Abe M, Hada M, Das BP. Merits of heavy-heavy diatomic molecules for electron electric-dipole-moment searches. *Physical Review A*. 2019;99(6):062506. DOI: 10.1103/PhysRevA.99.062506.

4. Shuman ES, Barry JF, Glenn DR, DeMille D. Radiative force from optical cycling on a diatomic molecule. *Physical Review Letters*. 2009;103(22):223001. DOI: 10.1103/PhysRevLett.103.223001.

5. Shuman ES, Barry JF, DeMille D. Laser cooling of a diatomic molecule. *Nature*. 2010;467(7317):820-823. DOI: 10.1038/ nature09443.

6. Barry JF, McCarron DJ, Norrgard EB, Steinecker MH, DeMille D. Magneto-optical trapping of a diatomic molecule. *Nature*. 2014;512(7514):286–289. DOI: 10.1038/nature13634.

7. Hemmerling B, Chae E, Ravi A, Anderegg L, Drayna GK, Hutzler NR, et al. Laser slowing of CaF molecules to near the capture velocity of a molecular MOT. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics.* 2016;49(17):174001. DOI: 10.1088/0953-4075/49/17/174001.

8. Truppe S, Williams HJ, Hambach M, Caldwell L, Fitch NJ, Hinds EA, et al. Molecules cooled below the Doppler limit. *Nature Physics*. 2017;13(12):1173–1176. DOI: 10.1038/nphys4241.

9. Cheuk LW, Anderegg L, Augenbraun BL, Bao Y, Burchesky S, Ketterle W, et al. Λ-enhanced imaging of molecules in an optical trap. *Physical Review Letters*. 2018;121(8):083201. DOI: 10.1103/PhysRevLett.121.083201.

10. Isaev TA, Hoekstra S, Berger R. Laser-cooled RaF as a promising candidate to measure molecular parity violation. *Physical Review A*. 2010;82(5):052521. DOI: 10.1103/PhysRevA.82.052521.

11. Garcia Ruiz RF, Berger R, Billowes J, Binnersley CL, Bissell ML, Breier AA, et al. Spectroscopy of short-lived radioactive molecules. *Nature*. 2020;581(7809):396–400. DOI: 10.1038/s41586-020-2299-4.

12. Udrescu SM, Brinson AJ, Garcia Ruiz RF, Gaul K, Berger R, Billowes J, et al. Isotope shifts of radium monofluoride molecules. *Physical Review Letters*. 2021;127(3):033001. DOI: 10.1103/PhysRevLett.127.033001.

13. Hirschfelder JO, Curtiss ChF, Bird RB. Molecular theory of gases and liquids. New York: Wiley; 1954. 1219 p.

14. Visscher L, Eliav E, Kaldor U. Formulation and implementation of the relativistic Fock-space coupled cluster method for molecules. *Journal of Chemical Physics*. 2011;115(21):9720–9726. DOI: 10.1063/1.1415746.

15. Osika Y, Shundalau M. Fock-space relativistic coupled cluster study on the RaF molecule promising for the laser cooling. *Spectrochimica Acta A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy.* 2022;264:120274. DOI: 10.1016/j.saa.2021.120274.

16. Osika Y, Shundalau M. Fock-space relativistic coupled cluster study on the spectroscopic properties of the low-lying states of the radium monobromide RaBr molecule. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*. 2021;276:107947. DOI: 10.1016/j.jgsrt.2021.107947.

17. Osika Y, Shundalau M, Han Y-C. *Ab initio* study on the spectroscopic and radiative properties of the low-lying states of the radium monoiodide RaI molecule. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*. Forthcoming 2022.

18. Taylor WL. *Algorithms and FORTRAN programs to calculate classical collision integrals for realistic intermolecular potential* [technical report]. Miamisburg (Ohio): Mound Facility, United States Department of Energy; 1979. 45 p.

19. Colonna G, Laricchiuta A. General numerical algorithm for classical collision integral calculation. *Computer Physics Communications*. 2008;178(11):809–816. DOI: 10.1016/j.cpc.2008.01.039.

20. Isaev TA, Zaitsevskii AV, Oleynichenko A, Eliav E, Breier AA, Giesen TF, et al. *Ab initio* study and assignment of electronic states in molecular RaCl. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*. 2021;269:107649. DOI: 10.1016/j.jqsrt. 2021.107649.

21. Morse PM. Diatomic molecules according to the wave mechanics. II. Vibrational levels. *Physical Review*. 1929;34(1):57–64. DOI: 10.1103/PhysRev.34.57.

22. Pashov A, Docenko O, Tamanis M, Ferber R, Knöckel H, Tiemann E. Coupling of the $X^1\Sigma^+$ and $a^3\Sigma^+$ states of KRb. *Physical Review A*. 2007;76(2):022511. DOI: 10.1103/PhysRevA.76.022511.

23. Shundalau MB, Minko AA. Determination of the optimal energy denominator shift parameter of KRb electronic states in quantum chemical computations using perturbation theory. *Journal of Applied Spectroscopy*. 2016;82(6):901–904. DOI: 1007/s10812-016-0201-9.

24. Shundalau MB, Pitsevich GA, Malevich AE, Hlinisty AV, Minko AA, Ferber R, et al. *Ab initio* multi-reference perturbation theory calculations of the ground and low-lying electronic states of the KRb molecule. *Computational and Theoretical Chemistry.* 2016;1089:35–42. DOI: 10.1016/j.comptc.2016.04.029.

25. Wolfram Research, Inc. Mathematica. Version 12.2. Champaign: Wolfram Research, Inc.; 2020.

26. Medvedev AA, Meshkov VV, Stolyarov AV, Heaven MC. *Ab initio* interatomic potentials and transport properties of alkali metal (M = Rb and Cs)-rare gas (Rg = He, Ne, Ar, Kr, and Xe) media. *Physical Chemistry Chemical Physics*. 2018;20:25974–25982. DOI: 10.1039/C8CP04397C.

Received 20.12.2021 / revised 11.01.2022 / accepted 13.01.2022.

Физика конденсированного состояния

Condensed state physics

УДК 669.234 '788:620.17

ВОДОРОДОФАЗОВЫЙ НАКЛЕП В РЕЗУЛЬТАТЕ ОДНОКРАТНЫХ ИЗОТЕРМИЧЕСКИХ ГИДРИДНЫХ ПРЕВРАЩЕНИЙ

*Г. И. ЖИРОВ*¹⁾, *М. В. ГОЛЬЦОВА*¹⁾

¹⁾Белорусский национальный технический университет, пр. Независимости, 65, 220013, г. Минск, Беларусь

Водородная обработка металлических материалов, заключающаяся в управляемом водородном воздействии на металлы и сплавы в целях придания им особых свойств, является перспективным направлением. В работе экспериментально изучены изменения механических свойств палладия при однократных гидридных превращениях, инициированных в исходно ненаклепанном гидриде палладия. Материалом для исследования выступили проволочные палладиевые образцы чистотой 99,98 %, диаметром 0,5 мм, длиной 165 мм. Предварительно исследуемые образцы подвергали водородной обработке, а затем проводили механические испытания. Представлены механические свойства ненаклепанного гидрида палладия. Изучен водородофазовый наклеп палладия при водородной обработке. Показано, что гидрид палладия является пластичным материалом с невысокими прочностными характеристиками. При обратном гидридном превращении развивается водородофазовый наклеп палладия. Обсуждены экспериментальные факты возникновения водородофазового наклепа при взаимодействии водорода с другими металлами и сплавами.

Ключевые слова: гидридное превращение; система палладий – водород; гидрид палладия; механические свойства; водородная обработка; водородофазовый наклеп.

Образец цитирования:

Жиров ГИ, Гольцова МВ. Водородофазовый наклеп в результате однократных изотермических гидридных превращений. *Журнал Белорусского государственного университета.* Физика. 2022;1:65–74. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-65-74

For citation:

Zhirov GI, Goltsova MV. Hydrogen-phase naklep as a result of single isothermal hydride transformations. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2022;1:65–74. Russian. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-65-74

Авторы:

Григорий Иванович Жиров – кандидат физико-математических наук; доцент кафедры технической физики факультета информационных технологий и робототехники. Мария Викторовна Гольцова – кандидат технических наук,

доцент; доцент кафедры порошковой металлургии, сварки и технологии материалов механико-технологического факультета.

Authors:

Gregory I. Zhirov, PhD (physics and mathematics); associate professor at the department of technical physics, faculty of information technology and robotics.

hytro-hydro@mail.ru

Mariya V. Goltsova, PhD (engineering), docent; associate professor at the department of powder metallurgy, welding and materials technology, faculty of mechanics and technology. *hytro-hydro@mail.ru*



HYDROGEN-PHASE NAKLEP AS A RESULT OF SINGLE ISOTHERMAL HYDRIDE TRANSFORMATIONS

G. I. ZHIROV^a, M. V. GOLTSOVA^a

^aBelarusian National Technical University, 65 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220013, Belarus Corresponding author: G. I. Zhirov (hytro-hydro@mail.ru)

Hydrogen treatment of metallic materials is a promising area of controlled hydrogen action on metals and alloys in order to impart special properties to them. In this work, the changes in the mechanical properties of palladium during single hydride transformations, which are initiated in the initially non-nakleped palladium hydride, have been experimentally studied. Were investigated wire palladium samples with a purity of 99.98 %, a diameter of 0.5 mm and a length of 165 mm. Samples for research were preliminarily subjected to hydrogen treatment, and then mechanical tests were carried out. The mechanical properties of non-nakleped palladium hydride are presented. Hydrogen-phase naklep of palladium during hydrogen treatment has been studied. It is shown that palladium hydride is a plastic material with low strength characteristics. During the reverse hydride transformation, the hydrogen phase naklep of palladium develops. Experimental facts of the appearance of hydrogen-phase naklep during the interaction of hydrogen with other metals and alloys are discussed.

Keywords: hydride transformation; palladium – hydrogen system; palladium hydride; mechanical properties; hydrogen treatment; hydrogen-phase naklep.

Введение

Проблема взаимодействия водорода с металлами не теряет своей актуальности для исследователей, и на это есть веские причины:

 последствия взаимодействия водорода с конструкционными материалами атомных реакторов [1], что становится особенно актуальным для Республики Беларусь в связи с запуском в 2020 г. Белорусской атомной электростанции;

2) коммерциализация проектов водородной энергетики, набирающая обороты как в странах Запада [2], так и в Российской Федерации, где уже прошел все стадии согласования план мероприятий «Развитие водородной энергетики в Российской Федерации до 2024 года»¹.

Одним из перспективных направлений в области взаимодействия водорода с металлами является обработка металлических материалов с помощью обратимого водородного воздействия в целях улучшения структуры и получения заданных свойств. В настоящей статье приведен сравнительный анализ фазового наклепа и водородофазового наклепа (ВФН), суммированы результаты экспериментальных исследований ВФН в ненаклепанном гидриде палладия PdH_x, даны оценки перспектив практического использования данного явления.

Краткие теоретические сведения, постановка задачи

Фазовый наклеп, как физическое явление и как метод упрочнения сталей и сплавов, был установлен и разработан в начале прошлого столетия. Еще в 1930-х гг. академик АН СССР А. А. Бочвар [3] сформулировал научное положение о том, что в процессе фазовых превращений должен иметь место внутренний (фазовый) наклеп сталей, обусловленный разностью удельных объемов превращающихся фаз $\alpha \leftrightarrow \gamma$. В последующем академик АН СССР В. Д. Садовский и его ученики разработали физические основы и технологию упрочнения аустенитных сталей методом фазового наклепа² [4–9].

Например, фазовый наклеп в двойных (или дополнительно легированных) железоникелевых аустенитных сталях достигается следующим образом. Химический состав подбирается так, чтобы при комнатной температуре сталь находилась в аустенитном состоянии и при этом имела мартенситную точку при температуре несколько ниже комнатной. Тогда при охлаждении в жидком азоте в такой стали развивается мартенситное превращение и образуется 70–95 % мартенсита. После этого этапа обработки сплав находится в двухфазном состоянии: мартенсит плюс остаточный аустенит.

На втором этапе обработки сплав нагревается выше температурного интервала развития обратного мартенситного превращения $\alpha \rightarrow \gamma$, т. е. обычно до температур 550–650 °C. В результате сталь переходит в однофазное аустенитное состояние, которое отличается от исходного тем, что сталь оказывается

¹Газпром и Росатом начнут производить «чистый» водород в 2024 году [Электронный ресурс]. URL: https://www.rbc.ru/ business/22/07/2020/5f1565589a794712b40faedf (дата обращения: 24.10.2020).

²Горбач В. Г. Исследование процессов фазового наклепа в сплавах на основе железа : автореф. дис. ... д-ра техн. наук : 05.16.01. Киев, 1968. 38 с.

существенно упрочненной. Естественно, что это фазонаклепанное аустенитное состояние стали сохраняется при более низких температурах вплоть до комнатной.

Концепция о ВФН была выдвинута, обоснована и экспериментально подтверждена в 1972 г. на палладии при его термической обработке в газообразном водороде³, а в последующие годы всесторонне разработана и обобщена на палладии, сплавах палладия и ниобии [10–17].

Сущность этого неизвестного ранее явления в наиболее общей форме сформулирована [10] следующим образом. ВФН – это явление управляемого перехода металлов в высокопрочные структурные состояния с особыми физическими свойствами, обусловленное воздействием на металл водорода и индуцированных им фазовых превращений, протекающих с развитием внутренней пластической деформации (из-за разности удельных объемов превращающихся фаз ($\alpha \leftrightarrow \beta$ (α – твердый раствор внедрения металл – водород, β – гидридная фаза)).

Конкретные схемы и режимы водородной обработки гидридообразующих металлов и сплавов на ВФН были обобщены в [10]. Они заключаются в насыщении металла водородом (электрохимическим методом из газовой фазы) и развитии в полученных сплавах внедрения фазовых превращений $\alpha \leftrightarrow \beta$ заданной полноты и т. д. На завершающем этапе металл либо дегазируется полностью (монофазонаклепанное состояние), либо не дегазируется совсем или дегазируется частично (полифазонаклепанное состояние).

Таким образом, палладий, ниобий и другие гидридообразующие металлы и сплавы, *не обладающие природным полиморфизмом* (классический вариант фазового наклепа невозможен), при определенных условиях могут быть упрочнены ВФН в столь же сильной степени, как и при пластической деформации, без изменения размеров и формы. Необходимо подчеркнуть, что феноменологические особенности упрочнения при ВФН даже палладия во многом остаются пока недостаточно исследованными. В этом плане можно поставить закономерный вопрос: «Какую роль в явлении ВФН гидридообразующих металлов и сплавов играют прямые превращения $\alpha \rightarrow \beta$, а какую – обратные превращения $\beta \rightarrow \alpha$?»

Соответственно, задача настоящей работы – путем экспериментов систематически исследовать изменение механических свойств палладия в результате однократных изотермических гидридных превращений $\beta \to \alpha$, инициированных в исходно *ненаклепанном* гидриде палладия. Данная задача тем более интересна, что в случае гидридных превращений $\beta \to \alpha$ образующаяся α -фаза имеет меньший удельный объем, чем матрица (β -фаза).

Поставленная задача представляет самостоятельный научный интерес. Ее решение позволит прояснить, какие механические свойства имеет *ненаклепанный* гидрид палладия. Действительно, в физике твердого тела и химии широко распространено однозначное мнение, что любые гидриды по своей природе – это всегда твердые и хрупкие вещества. Так ли это?

Материалы и методы исследования

Материалом для исследований служил палладий чистотой 99,98 %, который содержал следующие микропримеси: Pt – 0,009 %; Rh, Fe – по 0,002 %; Ir, Au, Ni, In, Si – не более 0,000 1 %. В нагартованном состоянии поставки (деформации ~95 %) палладий имел следующие механические характеристики: предел прочности ($\sigma_{\rm B}$) – 297 H/мм²; условный предел текучести ($\sigma_{0,2}$) – 224 H/мм²; относительное удлинение (δ) – 1,1 %.

Выбор материала для исследований неслучаен. Во-первых, палладий, как единственный металл, позволяющий диффузионную очистку водорода до ультравысокой чистоты 99,9999 %, играет одну из ключевых ролей в технологиях водородной энергетики. Во-вторых, вследствие специфики диаграммы состояния системы Pd – H он является модельным материалом для изучения основных закономерностей взаимодействия водорода с металлами (а система Pd – H, соответственно, модельной системой).

Для изучения механических свойств палладия и его гидридов (β -фазы) использовали проволочные образцы палладия диаметром 0,5 мм и длиной 165 мм. Образцы отжигали в вакууме при 750 °C в течение 0,5 ч. Палладий, отожженный при указанных условиях, имел следующие механические характеристики: $\sigma_{\rm B} = 188 \text{ H/mm}^2$; $\sigma_{0,2} = 38 \text{ H/mm}^2$; $\delta = 33$ %. Далее отожженные образцы насыщали водородом в разработанной водородно-вакуумной установке (ВВУ-3). Эта установка позволяет осуществлять водородную обработку проволочных палладиевых образцов длиной 150–200 мм при температуре до 1000 °C и давлении газообразного водорода до 4 МПа с одновременной фиксацией изменений электрического сопротивления образца-свидетеля.

Механические испытания образцов после их водородной обработки в BBУ-3 проводили при комнатной температуре на разрывной машине PMУ-0,05-1 в соответствии с требованиями ГОСТ 7855–68

³Способ упрочнения гидридообразующих материалов и сплавов : а. с. 510529 СССР : МКИ² С 22 F 1/00 / В. А. Гольцов, Н. И. Тимофеев (СССР). № 1936144/01 ; заявл. 11.06.73 ; опубл. 06.07.76, Бюл. № 14.

для проволочных образцов. Длина рабочей части образцов составляла 100 мм, что соответствует ГОСТ 10446–80. Перед проведением механических испытаний на рабочую часть образцов наносили метки с шагом 5 мм. Растяжение образцов осуществляли при постоянной скорости перемещения подвижного зажима разрывной машины (10 мм/мин). Запись диаграммы нагрузка – деформация проводили в десятикратно увеличенном масштабе. По результатам испытаний, используя стандартные методики, определяли механические характеристики палладия и гидрида палладия: предел прочности ($\sigma_{\rm B}$, H/мм²); условный предел текучести ($\sigma_{0,2}$, H/мм²); относительное удлинение (δ , %). Каждое представленное далее в работе значение механических свойств является средним значением не менее трех испытаний (трех образцов). Приборная относительная ошибка измерения механических свойств составляла 1–2 %.

Следует подчеркнуть, что поскольку испытания механических свойств проводили при комнатной температуре на воздухе, то дополнительно осуществляли измерения удельного электросопротивления насыщенных водородом образцов до и после механических испытаний. Измерения удельного электросопротивления показали, что *во время испытаний* содержание водорода в образцах не изменялось.

На рис. 1 представлена диаграмма состояния системы Pd – H [18, с. 91–189], из которой видно, что при $T > T_{\rm kp} = 292$ °C эта система является однофазной и представляет собой непрерывный ряд твердых растворов водорода в палладии.



 Рис. 1. Диаграмма состояния системы Pd – Н и схемы водородных обработок: I – изобара 0,99 МПа; II – изобара 2,3 МПа

 Fig. 1. Diagram of Pd – H system and schemes of hydrogen treatments: I – 0.99 MPa isobar; II – 2.3 MPa isobar

При температурах ниже $T_{\kappa p}$ (см. рис. 1) система Pd – Н имеет три области: α -область твердых растворов внедрения палладий – водород, β -область гидридов палладия PdH_x и двухфазную ($\alpha + \beta$)-область (отделена бинодалью).

При насыщении палладия водородом при $T = \text{const} < T_{\kappa p}$ сначала образуется α -область твердого раствора внедрения PdH_x, где H_x < H_{кp}, определяющегося соответствующей точкой на левой ветви бинодали. Дальнейшее насыщение водородом и переход системы из α - в β -область, как теперь хорошо известно [16], осуществляется фазовым превращением $\alpha \rightarrow \beta$ по механизму зарождения и роста. Следовательно, получаемый в этих условиях гидрид палладия неизбежно оказывается водородофазонаклепанным.

В соответствии с поставленной задачей в настоящей работе использовали методику получения равновесного (ненаклепанного) гидрида палладия. Для разработанной методики характерны две принципиальные особенности.

Во-первых, насыщение палладия водородом осуществляется «в обход» купола двухфазной ($\alpha + \beta$)области диаграммы состояния системы Pd – H. При таком насыщении палладия водородом до гидридного состояния удается избежать фазового превращения $\alpha \rightarrow \beta$, а значит, и ВФН гидрида палладия.

Во-вторых, в данной методике учтено, что атомы внедрения водорода расширяют кристаллическую решетку металла. Соответственно, любые неоднородности распределения растворенного водорода в металле неизбежно приводят к появлению водородных концентрационных (ВК) напряжений, которые могут как не превышать предела упругости палладия (явление водородоупругости [14]), так и превосходить его и в результате вызывать развитие внутренней пластической деформации. Последний случай, к сожалению, пока мало изучен. Соответственно, эту часть методической задачи мы решали чисто экспериментальным путем.

Схема проводившихся водородных обработок представлена на рис. 1 (путь $1 \rightarrow 2 \rightarrow 3 \rightarrow 4 \rightarrow 8$). Первоначально отожженные палладиевые образцы помещают в установку BBУ-3, вакуумируют и нагревают до температуры 350 °C (точка 2) со скоростью 5–7 °C/мин. Затем осуществляют выдержку образцов для медленного напуска водорода в установку при постоянной температуре до давления 2,3 МПа (точка 3), которое превышает давление в критической точке системы Pd – H, при этом скорость подачи водорода в камеру составляет 0,1–0,2 МПа/мин. Далее производят дополнительную выдержку образцов в атмосфере водорода при давлении 2,3 МПа до стабилизации их электросопротивления, после чего уже при этом постоянном давлении $P_{H_2} = 2,3$ МПа осуществляют охлаждение образцов со скоростью 2–3 °C/мин, что обеспечивает движение фигуративной точки системы по изобаре II (см. рис. 1). При этом образцы дополнительно поглощают водород и переходят в гидридную область.

Итак, главная особенность методики получения ненаклепанных («отожженных») гидридов палладия состоит в том, что отожженный палладий насыщается водородом «в обход» купола двухфазной ($\alpha + \beta$)-области. В результате удается избежать прямого превращения $\alpha \to \beta$ и, соответственно, ВФН палладия.

Другой важной особенностью методики является то, что насыщение палладия водородом «в обход» купола двухфазной области осуществляется в столь мягких условиях (медленное изменение температуры и давления водорода), что неизбежно возникающие ВК-напряжения не превосходят предела упругости отожженного палладия, а следовательно, не вызывают изменений его отожженного состояния.

Сохранность отожженного состояния металла и получение заданного «отожженного» гидрида палладия первоначально оценивали положительно, если полированный шлиф контрольного образца после обработки сохранял свое полированное состояние.

Результаты и их обсуждение

Условия исходных обработок образцов палладия и результаты их механических испытаний обобщены в табл. 1. В нагартованном состоянии поставки палладий обладает весьма высокими прочностными свойствами и исключительно низкой пластичностью (см. табл. 1, № 1). После отжига в вакууме при 750 °C он имеет рекристаллизованную структуру с размером зерна ~50 мкм и приобретает свойства, характерные для отожженного металла (см. табл. 1, № 2), т. е. низкие прочностные показатели и исключительно высокую пластичность ($\delta = 33$ %).

Дополнительная водородная обработка отожженного палладия при 310 и 350 °С (см. табл. 1, № 3 и 4) при медленном насыщении его водородом и последующей медленной дегазации в целом обеспечивает сохранение механических свойств, характерных для исходного отожженного состояния палладия. Тем не менее последующая водородная обработка отожженного палладия, описанная ниже, была дополнительно смягчена в отношении скоростей изменения температуры и давления водорода.

Таблица 1

Механические свойства палладия после различных исходных обработок

Table 1

№ п/п	Обработка	Предел прочности ($\sigma_{_B}$), Н/мм ²	Условный предел текучести ($\sigma_{0,2}$), Н/мм ²	Относительное удлинение (δ), %
1	Нагартованное состояние поставки (деформация 95 %)	297	224	1,1
2	Отжиг в вакууме при 750 °C в течение 0,5 ч	188	38	33
3	Отжиг при 750 °C, насыщение водородом и дегазация при 310 °C	182	40	30
4	Отжиг при 750 °C, насыщение водородом и дегазация при 350 °C	216	41	27

Mechanical properties of palladium after various initial treatments

Установлено, что «отожженный» гидрид палладия, полученный по нашей методике (см. рис. 1, путь $1 \rightarrow 2 \rightarrow 3 \rightarrow 4 \rightarrow 8$), имеет следующие механические свойства при комнатной температуре: $\sigma_{\rm B} = 216 \text{ H/mm}^2$; $\sigma_{0.2} = 41 \text{ H/mm}^2$; $\delta = 27 \%$.

Напомним, что механические свойства отожженного палладия, использованного в настоящей работе, были следующими: $\sigma_{\rm B} = 188 \text{ H/mm}^2$; $\sigma_{0.2} = 38 \text{ H/mm}^2$; $\delta = 33 \%$.

Сопоставление приведенной выше информации наглядно свидетельствует, что полученные по разработанной методике ненаклепанные гидриды палладия являются *высокопластичными металлическими материалами*. При этом их прочностные свойства невысоки и вполне сопоставимы со свойствами исходного металла (в данном случае – отожженного палладия). Этот экспериментальный факт имеет общенаучное значение, поскольку, как уже отмечалось при постановке задачи, в физике твердого тела и особенно в химии широко распространено мнение, что гидриды – это всегда высокопрочные и хрупкие материалы.

Рассмотрим далее экспериментальные результаты по изучению вопроса: «Имеет ли место явление ВФН при обратном гидридном превращении, иными словами, происходит ли упрочнение палладия при его обработке по схеме $1 \rightarrow 2 \rightarrow 3 \rightarrow 4 \rightarrow 5 \rightarrow 6 \rightarrow 7 \rightarrow 1$ (см. рис. 1)?»

Необходимо подчеркнуть, что при снижении давления водорода на участке 4 \rightarrow 5 (см. рис. 1) сначала мы получаем гидрид с критически низким содержанием водорода при данной температуре (β -PdH_{x кр}). Затем водород откачивается из установки BBУ-3 полностью, и переход системы 5 \rightarrow 6 сопровождается естественным обезгаживанием палладия и развитием обратного фазового превращения $\beta \rightarrow \alpha$. На пути 5 \rightarrow 6 \rightarrow 7 мы получаем полностью обезгаженный палладий при температуре, соответствующей точке 7 на рис. 1. При этом окончательная дегазация образцов контролируется путем измерения электро-сопротивления образца-свидетеля. Далее на участке 7 \rightarrow 1 образцы палладия охлаждаются до комнатной температуры, извлекаются из установки BBУ-3 и подвергаются механическим испытаниям.

По разработанной методике была выполнена серия из 15 экспериментов, в которых обратные изотермические гидридные фазовые превращения $\beta \rightarrow \alpha$ осуществлялись при T = const в интервале температур от 170 до 285 °C. Результаты этих экспериментов обобщены в табл. 2, где для сравнения также представлены механические свойства отожженного и нагартованного (сильно деформированного) палладия.

Таблица 2

Механические свойства водородофазонаклепанного палладия, претерпевшего водородную обработку с развитием только обратного гидридного превращения β → α

Table 2

№ п/п	Температура изотермического превращения $\beta \to \alpha$ (<i>T</i>), °С	Предел прочности (σ _в), Н/мм ²	Условный предел текучести ($\sigma_{0,2}$), Н/мм ²	Относительное удлинение (δ), %
1	170	285	188	1,0
2	180	268	218	1,7
3	190	235	184	1,3
4	200	251	201	1,5
5	210	223	192	2,2
6	220	222	178	2,0
7	230	220	184	2,0
8	240	227	192	2,7
9	250	201	182	1,2
10	260	241	178	13,0
11	265	204	142	10,0
12	270	180	152	15,0
13	275	186	132	12,0
14	280	201	119	17,0
15	285	252	157	26,0
16	Отожженный Pd	188	38	33,0
17	Нагартованный Pd (деформация 95 %)	297	224	1,1

Mechanical properties of hydrogen-phase-nakleped palladium subjected to hydrogen treatment with the development of only the reverse $\beta \rightarrow \alpha$ hydride transformation

Как видно из приведенных в табл. 2 экспериментальных данных, обратное гидридное фазовое превращение $\beta \rightarrow \alpha$ вызывает упрочнение палладия ВФН, интенсивность которого сильно зависит от температуры развития этого фазового превращения. Так, при температуре изотермического превращения $\beta \rightarrow \alpha$ от 170 до 200 °C (см. табл. 2, № 1–4) палладий весьма значительно упрочняется: его прочностные свойства возрастают до значений $\sigma_{\rm B} = 285$ H/мм² и $\sigma_{\rm B} = 251$ H/мм², $\sigma_{0,2} = 188$ H/мм² и $\sigma_{0,2} = 201$ H/мм², а относительное удлинение δ уменьшается до 1,0 и 1,5 % соответственно.

Таким образом, упрочнение палладия в результате ВФН при указанных условиях обработки оказывается вполне сопоставимым с упрочнением палладия при сильной внешней пластической деформации (см. табл. 2, № 17).

По мере повышения температуры развития изотермических гидридных превращений β → α обусловленный ими ВФН палладия постепенно уменьшается.

Этот экспериментальный факт должен учитываться на практике при ВФН-обработке палладия и его сплавов, а также других металлов и сплавов, имеющих сходные с палладием диаграммы состояния (например, ниобия и его сплавов).

Кроме того, очевидно, что полученные экспериментальные результаты, несомненно, имеют интересные научные аспекты. Учитывая задачи настоящей работы, поставим вопрос следующим образом: «Каков главный экспериментально значимый фактор, зависящий от температуры и столь сильно влияющий на степень упрочнения палладия при ВФН, обусловленном обратными гидридными превращениями $\beta \rightarrow \alpha$?» По нашему мнению, этим фактором, как указывал еще А. А. Бочвар [3], является разность удельных объемов превращающихся фаз (в рассматриваемом случае – β - и α -фазы системы Pd – H).

Информация о диаграмме состояния системы Pd – H [18, с. 91–189] дает возможность рассчитать эту относительную разность удельных объемов превращающихся фаз. Результаты расчетов представлены на рис. 2. На этом же рисунке приведены температурные зависимости условного предела текучести и относительного удлинения палладия, претерпевшего ВФН при развитии изотермических гидридных превращений $\beta \rightarrow \alpha$, согласно данным табл. 2.

На рис. 2 весьма наглядно видна корреляция температурной зависимости относительной разности удельных объемов превращающихся фаз и температурных зависимостей механических свойств палладия, упрочненного при этих превращениях.

Как следует из рис. 2, упрочнение происходит до определенной температуры (250 °C) при разности удельных объемов фаз 4,47 %. Из рис. 2 видно, что при росте разности удельных объемов выше 4,47 % пластичность резко падает, а прочность растет. Как показали видеонаблюдения приповерхностных слоев [19], в этом интервале температур обратное гидридное превращение развивается по классическому механизму зарождения и роста зародышей.



on the temperature of the reverse hydride transformation

Если рассмотреть температурный интервал от 250 до 290 °C в сравнении с интервалом температур ниже 250 °C, то выше температуры 250 °C происходит резкое снижение прочностных характеристик при значительном увеличении пластичности [20]: предел текучести $\sigma_{0,2}$ уменьшается от 182 до 119 H/мм², а относительное удлинение δ возрастает от 1,2 до 26,0 %, что соответствует изменению разности удельных объемов фаз от 4,47 до 0 %. Как показали результаты видеонаблюдений приповерхностных слоев [19], обратное гидридное превращение в этой области температур (от 250 до 290 °C) развивается без видимых в оптический микроскоп зародышей α -фазы. Подробное изучение механизма превращения требует проведения исследований тонкой структуры при этих условиях.

В заключение подчеркнем, что в настоящей работе впервые экспериментально установлена важная особенность явления ВФН, состоящая в следующем: обратные фазовые превращения гидрида палладия (β-фаза) в твердый раствор водорода в палладии (α-фаза) вносят существенный вклад в упрочнение палладия при осуществлении водородной обработки, несмотря на то что удельный объем новой фазы, образующейся в результате этого превращения, существенно меньше удельного объема матрицы.

Здесь уместно вновь напомнить, что при обработке аустенитных сталей на фазовый наклеп путем осуществления превращений $\gamma \to \alpha \to \gamma$ обратное мартенситное превращение $\alpha \to \gamma$ не приводит к существенному дополнительному упрочнению стали. В настоящей работе на примере ВФН палладия показано, что роль обратных превращений в формировании свойств металлических материалов при реализации фазового наклепа (как общего физического явления) не столь однозначна и подлежит дополнительному исследованию и осмыслению.

Заключение

1. В работе экспериментально изучено изменение механических свойств палладия в результате однократных изотермических гидридных превращений $\beta \rightarrow \alpha$, инициированных в исходно *ненаклепанном* гидриде палладия. Для этого использована методика получения ненаклепанного («отожженного») гидрида палладия, которая состоит в следующем: во-первых, отожженный палладий насыщается водородом «в обход» купола двухфазной области и не претерпевает ВФН при гидридном превращении $\alpha \rightarrow \beta$; во-вторых, скорости изменения температуры и насыщения палладия водородом выбираются настолько малыми, что удается избежать развития актов внутренней пластической деформации в формирующихся сплавах палладий – водород, обусловленных возникновением ВК-напряжений.

2. «Отожженные» гидриды палладия являются низкопрочными высокопластичными металлическими материалами, их механические свойства ($\sigma_{\rm B} = 216$ H/мм²; $\sigma_{0,2} = 41$ H/мм²; $\delta = 27$ %) сопоставимы с механическими свойствами отожженного палладия ($\sigma_{\rm B} = 180$ H/мм²; $\sigma_{0,2} = 40$ H/мм²; $\delta = 30$ %) [17].

3. Впервые изучен ВФН палладия при водородной обработке, включающей однократное изотермическое обратное фазовое превращение $\beta \rightarrow \alpha$ ненаклепанного гидрида палладия в полностью обезводороженный палладий. Установлено, что превращение $\beta \rightarrow \alpha$ вызывает развитие ВФН и обусловливает весьма сильное упрочнение палладия при низких температурах превращения $\beta \rightarrow \alpha$ (170–250 °C).

4. При температурах гидридного превращения $\beta \rightarrow \alpha$ выше 250 °C упрочнение палладия при ВФН соответствующим образом уменьшается.

5. Зарегистрированные экспериментальные факты должны учитываться на практике при ВФН-обработке палладия и его сплавов, а также других металлов и сплавов, имеющих сходные с палладием диаграммы состояния (например, ниобия и его сплавов).

Библиографические ссылки

1. Неклюдов ИМ, Толстолуцкая ГД. Гелий и водород в конструкционных материалах. *Вопросы атомной науки и техники*. *Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение.* 2003;3:3–14.

2. Дли МИ, Балябина АА, Дроздова НВ. Водородная энергетика и перспективы ее развития. Альтернативная энергетика и экология (ISJAEE). 2015;22:37–41. DOI: 10.15518/isjaee.2015.22.004.

3. Бочвар АА. Основы термической обработки сплавов. Москва: ОГИЗ; 1931. 214 с. Совместно с Государственным научнотехническим издательством.

4. Садовский ВД. Структурный механизм фазовой перекристаллизации при нагреве стали. В: Академия наук СССР, Уральский филиал. *Труды Института физики металлов. Выпуск 20*. Москва: Издательство Академии наук СССР; 1958. с. 303–310.

5. Горбач ВГ, Садовский ВД. Влияние предварительной термической обработки стали на кинетику превращения переохлажденного аустенита. В: Академия наук СССР, Уральский филиал. *Труды Института физики металлов. Выпуск 20*. Москва: Издательство Академии наук СССР; 1958. с. 311–327.

6. Зайцев ВИ, Горбач ВГ. Изменение структуры и прочностных свойств при нагреве сплава, деформированного в мартенситном состоянии. *Физика металлов и металловедение*. 1964;17(5):714–718.

7. Зайцев ВИ, Горбач ВГ. Влияние исходной структуры мартенсита на упрочнение аустенита при фазовом наклепе. *Физика металлов и металловедение*. 1965;20(4):608–613.
8. Малышев КА, Сагарадзе ВВ, Сорокин ИП, Земцова НД, Теплов ВА, Уваров АИ. Фазовый наклеп аустенитных сплавов на железоникелевой основе. Садовский ВД, редактор. Москва: Наука; 1982. 260 с.

9. Сагарадзе BB, Уваров AИ. Упрочнение аустенитных сталей. Садовский ВД, редактор. Москва: Наука; 1989. 269 с. 10. Goltsov VA. The phenomenon of controllable hydrogen phase naklep and the prospects for its use in metal science and engi-

neering. Materials Science and Engineering. 1981;49(2):109–125. DOI: 10.1016/0025-5416(81)90146-4.

11. Гольцов ВА. Об особенностях водородофазового наклепа металлов как управляемого физического явления. *Физикохимическая механика материалов*. 1983;19(3):18–23.

12. Гольцов ВА, Кириллов ВА, Железный ВС. Структурные изменения палладия при водородофазовом наклепе. Доклады Академии наук СССР. 1981;259(2):355–359.

13. Гольцов ВА, Лобанов БА. Изменение субструктуры палладия при водородофазовом наклепе и последующем отжиге. Доклады Академии наук СССР. 1985;283(3):598–601.

14. Жиров ГИ, Гольцова МВ. Экспериментальное наблюдение и анализ солитоноподобного движущегося выпучивания на поверхности сплава палладий – водород. В: Водородная экономика и водородная обработка материалов. Труды Пятой Международной конференции; 21–25 мая 2007 г.: Донецк, Украина. Донецк: ДонНТУ; 2007. с. 475–490. Совместно с ДонИФЦ ИАУ.

15. Жиров ГИ, Гольцова МВ. Экспериментальное наблюдение солитоноподобного движущегося выпучивания на поверхности сплава палладий – водород. Физика металлов и металловедение. 2007;104(6):634–640.

16. Гольцова МВ, Артеменко ЮА, Жиров ГИ. Гидридные превращения: природа, кинетика, морфология. Альтернативная энергетика и экология (ISJAEE). 2014;1:70–84.

17. Гольцов ВА. Водородная обработка материалов – новая область физического материаловедения. В: Мерсон ДЛ, редактор. *Перспективные материалы. Том 6.* Тольятти: Издательство ТГУ; 2017. с. 5–118.

18. Алефельд Г, Фёлькль И, редакторы. *Водород в металлах. Том 2. Прикладные аспекты.* Каган ЮМ, переводчик. Москва: Мир; 1981. 431 с. (Проблемы прикладной физики).

19. Goltsova MV, Artemenko YuA, Zhirov GI, Zaitsev VI. Video-investigation of reverse hydride transformations in the Pd – H system. *International Journal of Hydrogen Energy*. 2002;27(7/8):757–763. DOI: 10.1016/S0360-3199(01)00104-5.

20. Жиров ГИ, Гляков ДА, Гольцов ВА. Механические свойства палладия после воздействия водорода. В: *Благородные* и редкие металлы. Труды Четвертой Международной конференции; 22–26 сентября 2003 г.; Донецк, Украина. Донецк: [б. и.]; 2003. с. 540–542.

References

1. Nekluydov IM, Tolstolutskaya GD. Helium and hydrogen in structural materials. Voprosy atomnoi nauki i tekhniki. Seriya: Fizika radiatsionnykh povrezhdenii i radiatsionnoe materialovedenie. 2003;3:3–14. Russian.

2. Dli MI, Baliabina AA, Drozdova NV. Hydrogen energy and development prospects. *Alternative Energy and Ecology (ISJAEE)*. 2015;22:37–41. Russian. DOI: 10.15518/isjaee.2015.22.004.

3. Bochvar AA. Osnovy termicheskoi obrabotki splavov [Fundamentals of heat treatment of alloys]. Moscow: OGIZ; 1931. 214 p. Co-published by the Gosudarstvennoe nauchno-tekhnicheskoe izdatel'stvo. Russian.

4. Sadovskii VD. [Structural mechanism of phase recrystallisation during heating of steel]. In: Academy of Sciences of the USSR, Ural branch. *Trudy Instituta fiziki metallov. Vypusk* 20 [Proceedings of the Institute of Physics of Metals. Issue 20]. Moscow: Publishing House of the Academy of Sciences of the USSR; 1958. p. 303–310. Russian.

5. Gorbach VG, Sadovskii VD. [Effect of preliminary heat treatment of steel on the kinetics of transformation of supercooled austenite]. In: Academy of Sciences of the USSR, Ural branch. *Trudy Instituta fiziki metallov. Vypusk* 20 [Proceedings of the Institute of Physics of Metals. Issue 20]. Moscow: Publishing House of the Academy of Sciences of the USSR; 1958. p. 311–327. Russian.

6. Zaitsev VI, Gorbach VG. [Change in structure and strength properties during heating of an alloy deformed in the martensitic state]. *Fizika metallov i metallovedenie*. 1964;17(5):714–718. Russian.

7. Zaitsev VI, Gorbach VG. [Influence of the initial structure of martensite on the hardening of austenite during phase hardening]. *Fizika metallov i metallovedenie*. 1965;20(4):608–613. Russian.

8. Malyshev KA, Sagaradze VV, Sorokin IP, Zemtsova ND, Teplov VA, Uvarov AI. *Fazovyi naklep austenitnykh splavov na zhelezonikelevoi osnove* [Phase hardening of austenitic alloys on an iron-nickel basis]. Sadovskii VD, editor. Moscow: Nauka; 1982. 260 p. Russian.

9. Sagaradze VV, Uvarov AI. Uprochnenie austenitnykh stalei [Hardening of austenitic steels]. Sadovskii VD, editor. Moscow: Nauka; 1989. 269 p. Russian.

10. Goltsov VA. The phenomenon of controllable hydrogen phase naklep and the prospects for its use in metal science and engineering. *Materials Science and Engineering*. 1981;49(2):109–125. DOI: 10.1016/0025-5416(81)90146-4.

11. Goltsov VA. [On the features of hydrogen-phase metal naklep as a controlled physical phenomenon]. *Fiziko-khimicheskaya mekhanika materialov*. 1983;19(3):18–23. Russian.

12. Goltsov VA, Kirillov VA, Zheleznyi VS. [Structural changes of palladium during hydrogen-phase naklep]. Doklady Akademii nauk SSSR. 1981;259(2):355–359. Russian.

13. Goltsov VA, Lobanov BA. [Change of palladium substructure during hydrogen-phase naklep and subsequent annealing]. *Doklady Akademii nauk SSSR*. 1985;283(3):598–601. Russian.

14. Zhirov GI, Goltsova MV. [Experimental observation and analysis of soliton-like moving buckling on the surface of a palladium – hydrogen alloy]. In: *Vodorodnaya ekonomika i vodorodnaya obrabotka materialov. Trudy Pyatoi Mezhdunarodnoi konferentsii;* 21–25 maya 2007 g.; Donetsk, Ukraina [Hydrogen economy and hydrogen processing of materials. Proceedings of the Fifth International conference; 2007 May 21–25; Donetsk, Ukraine]. Donetsk: Donetsk National Technical University; 2007. p. 475–490. Co-published by the Donetsk Engineering and Physics Center of the Engineering Academy of Ukraine. Russian.

15. Zhirov GI, Goltsova MV. [Experimental observation of soliton-like moving buckling on the surface of a palladium – hydrogen alloy]. *Fizika metallov i metallovedenie*. 2007;104(6):634–640. Russian.

16. Goltsova MV, Artemenko YuA, Zhirov GI. Hydride transformations: nature, kinetics, morphology. *Alternative Energy and Ecology (ISJAEE)*. 2014;1:70–84. Russian.

17. Goltsov VA. [Hydrogen processing of materials is a new field of physical materials science]. In: Merson DL, editor. *Perspektivnye materialy. Tom 6* [Promising materials. Volume 6]. Tolyatti: Publishing House of the Tolyatti State University; 2017. p. 5–118. Russian.

18. Alefeld G, Völkl J, editors. *Hydrogen in metals II. Application-oriented properties*. Berlin: Springer-Verlag; 1978. XXII, 387 p. (Topics in applied physics; volume 29).

Russian edition: Alefeld G, Völkl J, editors. *Vodorod v metallakh. Tom 2. Prikladnye aspekty*. Kagan YuM, translator. Moscow: Mir; 1981. 431 p. (Problemy prikladnoi fiziki).

19. Goltsova MV, Artemenko YuA, Zhirov GI, Zaitsev VI. Video-investigation of reverse hydride transformations in the Pd – H system. *International Journal of Hydrogen Energy*. 2002;27(7/8):757–763. DOI: 10.1016/S0360-3199(01)00104-5.

20. Zhirov GI, Glyakov DA, Goltsov VA. [Mechanical properties of palladium after exposure to hydrogen]. In: *Blagorodnye i redkie metally. Trudy Chetvertoi Mezhdunarodnoi konferentsii; 22–26 sentyabrya 2003 g.; Donetsk, Ukraina* [Precious and rare metals. Proceedings of the Fourth International conference; 2003 September 22–26; Donetsk, Ukraine]. Donetsk: [s. n.]; 2003. p. 540–542. Russian.

Получена 07.12.2021 / исправлена 28.12.2021 / принята 28.12.2021. Received 07.12.2021 / revised 28.12.2021 / accepted 28.12.2021. УДК 546.62;542.93

СТРУКТУРА БЫСТРОЗАТВЕРДЕВШИХ ФОЛЬГ СПЛАВОВ AI – Bi

В. Г. ШЕПЕЛЕВИЧ¹⁾

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

Представлены результаты исследования микроструктуры и текстуры фольг сплавов алюминия с содержанием висмута 0,12 и 0,25 ат. %, изготовленных высокоскоростным затвердеванием (скорость охлаждения расплава – не менее 10^5 K/c). В быстрозатвердевших фольгах исследуемых сплавов формируется текстура (111) алюминия, которая сохраняется при отжиге фольг при 523 К в течение 2 ч. Средняя хорда сечений шарообразных выделений висмута не превышает 0,05 мкм. При перемещении фронта кристаллизации от поверхности *A*, контактирующей с кристаллизатором, к противоположной поверхности *B* средний размер частиц висмута монотонно возрастает. Фольги сплавов растворяются в воде при комнатной температуре, образуя пузырьки водорода и белый порошок аморфного оксида алюминия, содержащий выделения висмута. Изотермический отжиг фольг при 573 К в течение 5 ч вызывает изменение распределения частиц висмута по размерным группам и увеличивает их среднее значение. После отжига частицы висмута локализованы на мало- и высокоугловых границах. Быстрозатвердевшие фольги сплавов системы Al – Bi могут применяться для получения водорода, а также синтеза порошка аморфного оксида алюминия и создания технических устройств, использующих водород.

Ключевые слова: генерация водорода; алюминиевый сплав; вода; текстура; высокоскоростное затвердевание; дисперсные частицы висмута.

THE STRUCTURE OF RAPIDLY SOLIDIFIED FOIL OF AI – Bi ALLOYS

V. G. SHEPELEVICH^a

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

The results of study of the microstructure and texture of aluminum alloys, containing 0.12 and 0.25 at. % Bi, obtained with high-speed solidification, are presented (melt cooling rate liquid – not less 10^5 K/s). Texture (111) aluminum is formed in the rapidly solidified foils of investigated alloys and it is conserved under annealing at 523 K during 2 h. The average chord of bismuth sections does not exceed 0.05 µm. As the crystallisation front moves from surface A contacted with crystalliser to the surface B, the average size of dispersed bismuth particles increases. Foils of the alloys dissolve in water at room temperature actively forming hydrogen bubbles in vessel with water, white powder of aluminum oxide in an amorphous state and bismuth precipitations. Isotermical annealing of foils at 573 K for 5 h causes a change in distribution of chords in size groups and increases their average value. After the annealing bismuth particles are localised on low- and high-angle boundaries. The rapidly solidified foils of Al – Bi system can be used to produced hydrogen, aluminum oxide powder and create technical devices using hydrogen.

Keywords: generation of hydrogen; aluminum alloy; water; texture; high-speed solidification; dispersive particles of bismuth.

Образец цитирования:

Шепелевич ВГ. Структура быстрозатвердевших фольг сплавов Al – Bi. Журнал Белорусского государственного университета. Физика. 2022;1:75–79. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-75-79

Автор:

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

For citation:

Shepelevich VG. The structure of rapidly solidified foil of A1–Bi alloys. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2022; 1:75–79. Russian. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-75-79

Author:

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



Введение

В настоящее время водород рассматривается как высокоэффективный и экологически чистый энергоноситель. При этом наиболее привлекательной является особенность его извлечения из воды, запасы которой на Земле неограниченны. Также водород находит широкие возможности применения и в других областях (например, в автомобилестроении, здравоохранении и пр.). В последние десятилетия активно ведутся исследования по воздействию водорода на организм человека, разрабатываются схемы лечения водородом людей с различными заболеваниями. Однако хранение и транспортировка водорода являются опасными. В связи с этим разрабатываются непрерывные способы его получения и использования, когда полученный водород тут же и используется. Известен экономически выгодный способ извлечения водорода из воды [1–3], основанный на взаимодействии активированного алюминия с водой. Очистить металл от защитной оксидной пленки удается путем применения алюминия, легированного галлием, индием и оловом с общей их концентрацией до 5 %. Считается, что данный сплав является перспективным для генерирования водорода [4]. Указанные легирующие добавки в алюминий препятствуют образованию его оксидов, но не принимают участия в реакции и могут использоваться многократно. Однако мировые запасы галлия и индия ограниченны, а сами компоненты недешевы. В последние десятилетия обнаружено, что получение алюминия с дисперсными фазами легкоплавких металлов возможно с использованием быстрой кристаллизации со скоростями охлаждения расплава 10³–10⁴ К/с и более дешевого легкоплавкого компонента – висмута [5]. В связи с этим целью данной работы являются исследование структуры быстрозатвердевших сплавов системы Al – Bi, содержащих 0,12–0,25 ат. % висмута, при более высоких скоростях охлаждения расплава (не менее 10⁵ К/с), анализ влияния отжига при термообработке на структуру фольг и изучение возможности их применения для получения водорода из воды.

Методика эксперимента

Сплавы алюминия, содержащие 0,12–0,25 ат. % висмута, изготавливались сплавлением компонентов в кварцевой ампуле. Затем небольшой кусок поликристалла массой ≈0,2 г расплавлялся и инжектировался на внутреннюю полированную поверхность быстровращающегося медного цилиндра. Капля расплава растекалась по поверхности кристаллизатора и затвердевала в виде фольги толщиной несколько десятков микрон. Скорость охлаждения расплава составляла не менее 10⁵ К/с. Рентгеноструктурные исследования быстрозатвердевших фольг проводились на дифрактометре ДРОН-3. При изучении текстуры фольг сплавов алюминия методом обратных полюсных фигур использовались дифракционные линии 111, 200, 220, 311, 331 и 420 [6]. Исследование морфологии внешней поверхности фольг и их поперечного сечения осуществлялось с помощью растрового электронного микроскопа LEO 1455VP. Отжиг проводился в сушильном шкафу SNOL. Для расчета параметров структуры использовался метод случайных секущих [7]. Погрешность измерения составила ≈10–15 %.

Результаты и их обсуждение

Толщина быстрозатвердевших фольг находилась в пределах 30-80 мкм. Поверхность A, контактирующая с кристаллизатором, была блестящей и содержала раковины микронных размеров. Противоположная поверхность B имела бугристую структуру, на ней наблюдались впадины и выступы. Изображение участка поперечного сечения фольги сплава A1 - 0,25 ат. % Ві представлено на рис. 1. На нем видны светлые дисперсные шарообразные выделения висмута на темном фоне, создаваемом алюминием. По мере перемещения фронта кристаллизации от поверхности A к поверхности B диаметр частиц висмута увеличивается, что обусловлено уменьшением переохлаждения жидкой фазы из-за выделения тепла при кристаллизации предшествующих слоев фольги, а следовательно, уменьшения скорости зарождения центров кристаллической фазы в последующих слоях.

Распределение хорд случайных секущих на сечениях частиц висмута после изготовления и после отжига при 573 К в течение 5 ч представлено на рис. 2.

Максимальная доля (≈80 %) хорд на сечениях частиц висмута быстрозатвердевших фольг приходится на первую размерную группу (от 0 до 0,01 мкм). С увеличением номера размерной группы доля хорд уменьшается. Средний диаметр частиц висмута равен 0,011 мкм. Отжиг фольг при 573 К в течение 5 ч изменяет распределение хорд по размерным группам. Так, доля хорд в первой размерной группе уменьшилась, а в остальных группах увеличилась. Наряду с этим увеличился и средний размер частиц висмута и протеканием диффузионных процессов в сплаве, вызывающих коалесценцию частиц висмута, а также распадом пересыщенного твердого раствора висмута в алюминии. Отжиг быстрозатвердевших фольг приводит к преимущественной локализации частиц висмута на мало- и высокоугловых границах.



Рис. 1. Изображение микроструктуры поперечного сечения фольги сплава Al - 0,25 ат. % Bi *Fig. 1.* Image of the microstructure of the Al - 0.25 at. % Bi alloy foil cross section





Фольги характеризуются преимущественной ориентацией зерен алюминия. В таблице представлены значения полюсных плотностей дифракционных линий алюминия для слоя, прилегающего к поверхности А. Наибольшим значением полюсной плотности характеризуется дифракционная линия 111, что указывает на формирование текстуры (111). Такая текстура наблюдалась в фольгах чистого алюминия и других его сплавах [8]. Ее формирование обусловлено тем, что кристаллографическая плоскость (111) алюминия является наиболее плотноупакованной, это способствует преимущественному росту зерен с такой ориентировкой в направлении теплового потока [7; 10]. Отжиг фольг при 523 К в течение 2 ч не оказывает влияния на текстуру.

Полюсные плотности дифракционных линий фольг алюминия и сплавов, содержащих 0,12 и 0,25 ат. % Ві

Pole densities of diffraction lines of aluminum and its alloy foils, containing 0.12 and 0.25 at. % Bi

Дифракционные	Концентрация висмута, ат. %			
линии алюминия	0	0,12	0,25	
111	2,8	3,0	2,7	
200	0,7	0,7	0,6	
220	0,8	0,7	0,8	
311	0,6	0,6	0,8	
331	0,5	0,4	0,4	
420	0,6	0,6	0,7	

Выдержка быстрозатвердевших фольг исследуемых сплавов при комнатной температуре приводит к появлению микротрещин. В результате коррозии фольга разрушается и превращается в черный порошок. Размер частиц после разрушения фольги изменяется от нескольких микрон до 20 мкм. Рентгеноструктурный анализ показал, что черный порошок имеет кристаллическую структуру. На дифрактограмме порошка наблюдаются дифракционные отражения, которые соответствуют соединениям Al₂O₃ · 5H₂O и AlO(OH) (рис. 3).



Рис. 3. Дифрактограммы черного (1) и белого (2) порошков *Fig. 3.* Diffractogramms of black (1) and white (2) powders

При погружении фольги в воду при комнатной температуре происходит образование аморфного оксида алюминия в результате реакции $2Al + 3H_2O_3 \rightarrow Al_2O_3 + 3H_2$, при которой выделяется водород. Дисперсные частицы висмута в быстрозатвердевшей фольге играют роль катализатора в протекающей реакции. Выделение водорода при взаимодействии воды и быстрозатвердевших фольг сплавов Al - Bi происходит при нормальных условиях (T = 293 K, $P = 1 \cdot 10^5$ Па) без применения дополнительных реагентов, что имеет практическое значение в развитии водородной энергетики и дает возможность использовать полученные исследования для создания энергоаккумулирующих веществ и технических устройств на их основе.

Заключение

Таким образом, в быстрозатвердевших фольгах алюминиевых сплавов с концентрацией висмута 0,12–0,25 ат. % образуются нанокристаллические частицы висмута. Они имеют шарообразную форму, а средняя длина хорд сечений частиц висмута не превышает 0,05 мкм. В фольгах формируется слабовыраженная текстура (111) алюминия. При наличии дисперсных частиц висмута в быстрозатвердевших фольгах сплавов алюминия при комнатной температуре и нормальном давлении происходит расщепление молекул воды с образованием водорода, оксида алюминия и выделений висмута, что имеет практическое значение для создания технических устройств, использующих водород, а также синтеза аморфного оксида алюминия.

Библиографические ссылки

1. Zou Z, Ye J, Sayama K, Arakawa H. Direct splitting of water under visible light irradiation with an oxide semiconductor photocatalyst. *Nature*. 2001;414(6864):625–627. DOI: 10.1038/414625a.

2. Sakai O, Jana Y, Higashinaka R, Fukazawa H, Nakatsuji S, Maeno Y. New compounds based on pyrochlore structure: $R_2Nb_2O_7$ (R = Dy, Yb). Journal of the Physical Society of Japan. 2004;73(10):2829–2833. DOI: 10.1143/JPSJ.73.2829.

3. Woodall JM, Allen CR, Ziebarth JT, inventors; Purdue Research Foundation, assignee. *Power generation from solid aluminum*. United States patent US 8,080,233 B2. 2011 December 20.

4. Ziebarth JT, Woodall JM, Kramer RA, Go Choi. Liquid phase-enabled reaction of Al – Ga and Al – Ga – In – Sn alloys with water. *International Journal of Hydrogen Energy*. 2011;36(9):5271–5279. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2011.01.127.

5. Школьников ЕИ, Атманюк ИН, Долженко АВ, Янилкин ИВ, авторы; общество с ограниченной ответственностью «Хэнди-Пауэр», правообладатель. Способ активации алюминия для получения водорода. Патент RU 2606449 С2. 10 января 2017 г.

6. Русаков АА. Рентгенография металлов. Москва: Атомиздат; 1977. 479 с.

7. Салтыков СА. Стереометрическая металлография. Москва: Металлургия; 1976. 271 с.

8. Li DY, Szpunar JA. A possible role for surface packing density in the formation of {111} texture in solidified FCC metals. *Journal of Materials Science Letters*. 1994;13(21):1521–1523. DOI: 10.1007/BF00626496.

References

1. Zou Z, Ye J, Sayama K, Arakawa H. Direct splitting of water under visible light irradiation with an oxide semiconductor photocatalyst. *Nature*. 2001;414(6864):625–627. DOI: 10.1038/414625a.

2. Sakai O, Jana Y, Higashinaka R, Fukazawa H, Nakatsuji S, Maeno Y. New compounds based on pyrochlore structure: $R_2Nb_2O_7$ (R = Dy, Yb). Journal of the Physical Society of Japan. 2004;73(10):2829–2833. DOI: 10.1143/JPSJ.73.2829.

3. Woodall JM, Allen CR, Ziebarth JT, inventors; Purdue Research Foundation, assignee. *Power generation from solid aluminum*. United States patent US 8,080,233 B2. 2011 December 20.

4. Ziebarth JT, Woodall JM, Kramer RA, Go Choi. Liquid phase-enabled reaction of Al – Ga and Al – Ga – In – Sn alloys with water. *International Journal of Hydrogen Energy*. 2011;36(9):5271–5279. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2011.01.127.

5. Shkolnikov EI, Atmanyuk IN, Dolzhenko AV, Yanilkin IV, inventors; obshchestvo s ogranichennoj otvetstvennostyu «Khendi-Pauer», assignee. *Sposob aktivatsii alyuminiya dlya polucheniya vodoroda* [Method of activating aluminum for producing hydrogen]. Russian Federation patent RU 2606449 C2. 2017 January 10. Russian.

6. Rusakov AA. Rentgenografiya metallov [Rentgenografy of metals]. Moscow: Atomizdat; 1977. 479 p. Russian.

7. Saltykov SA. *Stereometricheskaya metallografiya* [Stereometrical metallografy]. Moscow: Metallurgiya; 1976. 271 p. Russian. 8. Li DY, Szpunar JA. A possible role for surface packing density in the formation of {111} texture in solidified FCC metals. *Journal of Materials Science Letters*. 1994;13(21):1521–1523. DOI: 10.1007/BF00626496.

> Получена 28.12.2021 / исправлена 11.01.2022 / принята 11.01.2022. Received 28.12.2021 / revised 11.01.2022 / accepted 11.01.2022.

Физика и техника полупроводников

Semiconductor physics and engineering

УДК 621.382

ЗАРЯДОВЫЕ СВОЙСТВА ТОНКИХ ПОДЗАТВОРНЫХ ДИЭЛЕКТРИКОВ, ПОЛУЧЕННЫХ МЕТОДОМ БЫСТРОЙ ТЕРМООБРАБОТКИ

*Н. С. КОВАЛЬЧУК*¹⁾, *Ю. А. МАРУДО*¹⁾, *А. А. ОМЕЛЬЧЕНКО*¹⁾, *В. А. ПИЛИПЕНКО*¹⁾, *В. А. СОЛОДУХА*¹⁾, *С. А. ДЕМИДОВИЧ*¹⁾, *В. В. КОЛОС*¹⁾, *В. М. АНИЩИК*²⁾, *В. А. ФИЛИПЕНЯ*¹⁾, *Д. В. ШЕСТОВСКИЙ*¹⁾

¹⁾«Интеграл» – управляющая компания холдинга «Интеграл», ул. Казинца, 121А, 220108, г. Минск, Беларусь ²⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

Исследованы зарядовые свойства полученных методом быстрой термообработки (БТО) тонких слоев диэлектриков и их границы раздела с кремнием для МОП-транзисторов. Формирование слоев производилось двух- либо трехстадийным процессом БТО с аналогичными для каждой стадии режимами фотонной обработки (длительность – 12 с, максимальная температура – 1250 °C). Установлено, что у оксидов затвора, полученных двухстадийным процессом БТО в атмосфере кислорода, после проведения третьей стадии обработки в атмосфере азота происходят частичная ликвидация дефектов, ответственных за локальные зарядовые центры, и рост относительного значения поверхностного потенциала в среднем на 100 отн. ед. Ликвидация дефектов является следствием перестройки структуры диэлектрика и его границы с кремнием, а также диффузии атомов кислорода и кремния вдоль границ раздела слоя изолятора. Для образцов, полученных двухстадийным процессом БТО в атмосфере кислорода, после проведения третьей стадии обработки практически полная ликвидация локальных зарядовых центров и рост относительной величины поверхностного потенциала в среднем на 300 отн. ед. В данном случае, помимо процессов, происходящих при обработке SiO₂ методом БТО в атмоссфере азота, ликвидацию зарядовых центров обусловливает пассивация дефектов атомами водорода.

Ключевые слова: подзатворный диэлектрик; быстрая термообработка; трехстадийный процесс; поверхностный потенциал.

Образец цитирования:

Ковальчук НС, Марудо ЮА, Омельченко АА, Пилипенко ВА, Солодуха ВА, Демидович СА, Колос ВВ, Анищик ВМ, Филипеня ВА, Шестовский ДВ. Зарядовые свойства тонких подзатворных диэлектриков, полученных методом быстрой термообработки. *Журнал Белорусского государственного университета.* Физика. 2022;1:80–87. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-80-87

Сведения об авторах см. на с. 86-87.

For citation:

Kovalchuk NS, Marudo YA, Omelchenko AA, Pilipenka UA, Saladukha VA, Demidovich SA, Kolos VV, Anishchik VM, Filipenia VA, Shestovski DV. Charging properties of thin gate dielectrics, obtained by the method of rapid thermal processing. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2022;1: 80–87. Russian. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-80-87

Information about the authors see p. 86–87.



CHARGING PROPERTIES OF THIN GATE DIELECTRICS, OBTAINED BY THE METHOD OF RAPID THERMAL PROCESSING

N. S. KOVALCHUK^a, Y. A. MARUDO^a, A. A. OMELCHENKO^a, U. A. PILIPENKA^a, V. A. SALADUKHA^a, S. A. DEMIDOVICH^a, V. V. KOLOS^a, V. M. ANISHCHIK^b, V. A. FILIPENIA^a, D. V. SHESTOVSKI^a

^a«Integral» – Holding Management Company, 121A Kazinca Street, Minsk 220108, Belarus ^bBelarusian State University, 4 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220030, Belarus Corresponding author: D. V. Shestovski (dshestovski@integral.by)

The charge properties of thin dielectrics, obtained by rapid thermal processing (RTP), and their interfaces with silicon for MOS transistors are investigated. The production of insulator layers was carried out by a two- or three-stage RTP with photon processing regimes similar for each stage (duration -12 s, maximum temperature -1250 °C). After the third stage of RTP in a nitrogen atmosphere of the gate oxides, obtained by a two-stage process in oxygen atmosphere, the defects responsible for local charge centers are partially eliminated. There is also an increase in the relative value of the surface potential by an average of 100 relative units. The elimination of defects is a consequence of the rearrangement of the insulator layer. For samples obtained by a two-stage RTP in an oxygen atmosphere and subjected to the third stage of processing in a forming gas, there is an almost complete elimination of local charge centers and an increase in the relative value of the surface potential by an average of 300 relative units. In this case, in addition to the processes occurring during the treatment of SiO₂ by the RTP method in an nitrogen atmosphere, the liquidation of charge centers is a consequence of the passivation of defects by hydrogen atoms.

Keywords: gate dielectric; rapid thermal processing; three-stage process; surface potential.

Введение

В связи с непрерывным совершенствованием номенклатуры изделий интегральной электроники к эксплуатационным параметрам кремниевых цифровых интегральных схем (ИС) [1; 2], основой логических элементов которых выступают МОП-транзисторы, предъявляются все более высокие требования. Наличие структурных дефектов как на границе раздела Si – SiO₂, так и в оксиде кремния приводит к образованию соответствующих им локализированных зарядовых центров, что оказывает негативное влияние на функциональные параметры транзисторов с изолированным затвором [3; 4].

Согласно [5] зарядовые свойства тонких пленок SiO₂, полученных методом быстрой термообработки (БТО), превосходят зарядовые свойства термических оксидов кремния, полученных в термодиффузионных печах. Однако стандартная длительность процесса БТО составляет от 60 до 170 с, при этом отсутствует возможность проведения групповых операций сразу для нескольких пластин [5; 6]. Эти факторы делают затруднительным применение предлагаемого процесса на высокопроизводительных участках крупносерийного производства.

Одними из способов улучшения электрофизических характеристик тонких пленок SiO₂ затвора являются азотирование их методом ионной имплантации и нитрирование в азотсодержащих средах (NO, N₂O или NH₃) [7]. Ввиду невысокой стоимости и широкого практического применения азота в электронной промышленности интерес представляет процесс азотирования SiO₂ в атмосфере азота.

В настоящей статье были исследованы зарядовые свойства тонких диэлектриков затвора, полученных методом БТО в ходе фотонной обработки секундной длительности, и их границ раздела с кремнием для МДП-структур ИС.

Материалы и методы исследования

В качестве исходных образцов применялись пластины *n*-типа монокристаллического кремния ориентацией <100> с удельным сопротивлением $\rho = 4,5$ Ом · см, легированные фосфором. Перед формированием диэлектриков затвора проводилось предварительное окисление пластин при 1000 °C в атмосфере влажного кислорода (толщина *d* полученного SiO₂ равна 100 нм) в целях ликвидации приповерхностного дефектного слоя. Образование нанометрового дефектного слоя происходит после операций механической обработки (резки, шлифовки и полировки), осуществляемых при изготовлении кремниевых пластин [8; 9]. Затем оксид кремния полностью стравливался в растворе плавиковой кислоты, после чего пластины подвергались химической очистке по технологии компании *Radio Corporation of Ameriса* (RCA) согласно методике, приведенной в [10]. Обработка по технологии RCA применялась ввиду ее высокой эффективности и активного применения в производстве ИС для очистки поверхности пластин от органических соединений, механических частиц, атомов щелочных и переходных металлов, а также для снятия слоя естественного оксида кремния [10; 11].

Получение диэлектриков затвора методом БТО осуществлялось с использованием системы As-Master в стационарной атмосфере кислорода, азота либо формовочного газа (97 % N₂, 3 % H₂). Непланарная сторона пластин облучалась некогерентным излучением потоками фотонов 20 галогенных ламп с длительностью импульсов 12 с в режиме теплового баланса при атмосферном давлении. Мощность излучения галогенных ламп подбиралась предварительно, исходя из достижения температуры 1250 °С на аналогичных рабочим тестовых пластинах в течение фотонной обработки требуемой длительности. Контроль температуры осуществлялся пирометром, расположенным над центром планарной стороны пластины. По окончании каждой стадии БТО образцы охлаждались до комнатной температуры, последующая стадия проводилась с использованием аналогичных режимов без предварительного извлечения пластин из реактора установки.

Получение топограмм распределения поверхностного потенциала проводилось методом сканирующего зонда Кельвина с пространственным разрешением 1 мм в системе СКАН-2019 в сканирующем режиме согласно методике, описанной в [12].

Результаты и их обсуждение

Ранее было показано [13], что для оксидов затвора, полученных двухстадийным процессом БТО в атмосфере кислорода, характерна меньшая неравномерность толщины диэлектрика (26 %), чем для термических оксидов кремния (32 %). Это свидетельствует о снижении градиента температуры по поверхности пластины в ходе проведения процессов БТО по сравнению с таковым при термическом окислении (рис. 1). После проведения третьей стадии фотонной обработки в формовочном газе неравномерность толщины слоя сформированного диэлектрика составила 22 %, также наблюдалось снижение среднего значения толщины полученного слоя с 10,5 до 9,7 нм.

В [10] установлено, что для диэлектриков, полученных трехстадийным процессом БТО с заключительной обработкой в атмосфере азота либо формовочного газа, значения показателя преломления составляют 1,51 и 1,48 соответственно. Данные значения показателя преломления соответствуют 8 и 4 % массовой доли азота в полученных слоях. По правилу Мотта [14] для Si_xO_yN_z, сформированных БТО с третьей стадией обработки в атмосфере азота, расчетные значения индексов – SiO_{1,72}N_{0,18}. В диэлектриках, полученных методом БТО с заключительной обработкой в формовочном газе, соотношение атомов составило SiO_{1,47}N_{0,35}.

На рис. 2 приведены топограммы распределения потенциала по поверхности пластин. Метод сканирующего зонда Кельвина качественно характеризует зарядовые свойства изолятора (изменения плотности поверхностных состояний на границе раздела, объемный заряд). Для рассматриваемого случая расположение неоднородностей поверхностного потенциала и толщин диэлектриков, полученных методом БТО, не совпадает (см. рис. 1 и 2), причем неравномерность толщин этих слоев не превышает 22–26 %. В связи с этим основное влияние на распределение потенциала будут оказывать качество границы раздела диэлектрик – полупроводник и наличие кулоновских центров в изоляторе.

На топограммах образцов с SiO₂, полученным двухстадийным процессом БТО в атмосфере кислорода, наблюдаются неоднородности распределения потенциала по краям пластины, а также несколько крупных включений около центра. Наиболее вероятным механизмом образования дефектных областей является формирование диэлектрика на естественном оксиде. Согласно [15] уже после нескольких минут в атмосфере воздуха на идеально чистой поверхности кремниевых пластин будет образовываться слой неупорядоченного естественного оксида кремния толщиной 0,5-0,7 нм. Так, после проведения очистки поверхности пластин (в том числе жидкостными методами травления SiO₂ и обработки по технологии RCA) на ней будут адсорбироваться молекулы кислорода и воды из воздуха [16; 17]. В результате физико-химического взаимодействия этих компонентов с верхними слоями кремниевой пластины формируется слой неупорядоченного естественного оксида кремния [16]. На поверхности пластины также могут локализироваться летучие органические соединения, выделяющиеся из присутствующих в производственных помещениях полимерных материалов и адсорбирующиеся благодаря полярным группам атомов.

Присутствие на кремниевой пластине оксида кремния с неупорядоченной структурой, а также различного рода загрязнений приведет к локальному изменению энергии активации процесса окисления, а значит, и скорости его протекания. В связи с наличием градиента скорости роста по поверхности пластины будет происходить образование неравномерностей толщины, что впоследствии приведет к формированию областей с неупорядоченной структурой в оксиде кремния и на границе раздела Si – SiO₂. Согласно [18] в процессе получения подзатворного оксида кремния с применением термодиффузионных печей наличие загрязнений, разного рода дефектов, повышенной шероховатости на поверхности кремния приведет к образованию структурных несовершенств полученной системы Si – SiO₂ в соответствующих им областях.



Рис. 1. Топограммы распределения толщин: *a* – термического SiO₂, полученного при 900 °C в течение 30 мин (<*d*> = 9,7 нм); *б*, *в* – оксидов, полученных методом БТО в ходе фотонных обработок длительностью 12 с при максимальной температуре 1250 °C (*б* – двухстадийный процесс в атмосфере O₂ (<*d*> = 10,5 нм); *в* – трехстадийный процесс с двумя обработками в атмосфере O₂ и третьей обработкой в формовочном газе (<*d*> = 9,7 нм))

Fig. 1. Topograms of the thickness distribution: a – thermal SiO₂ obtained at 900 °C for 30 min (<d>=9.7 nm); b, c – oxides obtained by the RTP method by photonic treatments for 12 s and a maximum temperature of 1250 °C (b – two-stage process in O₂ atmosphere (<d>=10.5 nm); c – three-stage process with two treatments in an O₂ atmosphere, the third treatment in a forming gas (<d>=9.7 nm))

Применение дополнительной фотонной обработки методом БТО в атмосфере азота к оксиду затвора, полученному двухстадийным процессом, способствует ликвидации большинства включений на топограммах, повышению равномерности и росту значения поверхностного потенциала в среднем на 100 отн. ед. (см. рис. 2, δ). Полученные результаты являются следствием снижения концентрации поверхностных состояний на границе раздела диэлектрик – полупроводник и, предположительно, ликвидации части кулоновских центров в изоляторе из-за перестройки системы Si – SiO₂, диффузии атомов кремния и кислорода вдоль границ раздела диэлектрика в процессе третьей стадии БТО. Другим механизмом ликвидации зарядовых центров является частичная пассивации дефектов на границе раздела Si – SiO₂ атомами азота. Для тонких оксидов, подвергнутых фотонной обработке при высокой температуре, вероятна локализация атомов азота на границе раздела Si – SiO₂. При наличии атомов азота в системе Si – SiO₂ будет проходить их локализация вблизи границы раздела Si – SiO₂. Атомы азота, встраиваясь в дефекты структуры на границе раздела, находят себе ниши в соответствии со своим ковалентным радиусом, что приводит к частичной пассивации зарядовых центров поверхностных состояний (в частности, парамагнитных Р_{ьо}-центров) [19].

Журнал Белорусского государственного университета. Физика. 2022;1:80–87 Journal of the Belarusian State University. Physics. 2022;1:80–87

0

0

50





100

100

0

0

150

Для диэлектриков, полученных трехстадийным процессом БТО с применением заключительной фотонной обработки в формовочном газе, отмечены рост величины поверхностного потенциала в среднем на 300 отн. ед., ликвидация включений на топограммах и повышение равномерности распределения потенциала (см. рис. 2, в). За исключением перестройки системы Si – SiO₂ и прямого азотирования, в образцах, полученных с применением обработки в формовочном газе, будут протекать процессы образования гидроксильных групп в системе диэлектрик – полупроводник и, как следствие, инактивация электрически активных центров атомами водорода.

В работе [20] показано, что пассивация поверхностных электрически активных P_{b0} -центров молекулярным водородом становится эффективной при температурах >250 °C. Также установлено, что после отжига в атмосфере с добавлением водорода при 900 °C пластин кремния ориентацией (100) со слоем оксида будет происходить пассивация как дефектов класса P_b , так и других неклассифицированных дефектов в системе Si – SiO₂ [21]. Возможно образование в SiO₂ мостикового водорода Si—H—Si и гидроксильного E'-центра как на границе раздела Si – SiO₂ [21], так и в оксиде [22].

Заключение

Установлено, что для оксидов затвора, полученных методом БТО с двумя стадиями фотонных обработок пластин кремния длительностью 12 с в атмосфере кислорода при максимальной температуре 1250 °C, после проведения третьей стадии обработки в атмосфере азота при аналогичных режимах на топограммах распределения электрического поверхностного потенциала наблюдаются повышение его равномерности и ликвидация включений. Также отмечается рост среднего значения поверхностного потенциала на 100 отн. ед. Это обусловлено снижением концентрации заряженных центров в слое диэлектрика и плотности поверхностных состояний на границе с кремнием вследствие перестройки структуры диэлектрика и границы раздела Si – SiO₂, а также диффузии вдоль границ раздела слоя и по его поверхности атомов кислорода и кремния.

Для оксида, полученного двухстадийным процессом БТО (каждая стадия проводилась с использованием аналогичных указанным выше режимов), после проведения третьей стадии обработки методом БТО в формовочном газе на топограммах распределения поверхностного потенциала наблюдаются значительное повышение равномерности и практически полная ликвидация включений. Возрастает среднее значение поверхностного потенциала на 300 отн. ед. Вместе с аналогичными процессами, протекающими при проведении БТО в атмосфере азота, происходит инактивация атомами водорода как кулоновских центров в диэлектрике, так и поверхностных состояний на границе раздела диэлектрика с кремнием.

Библиографические ссылки

1. Ahopelto J, Ardila G, Baldi L, Balestra F, Belot D, Fagas G, et al. NanoElectronics Roadmap for Europe: from nanodevices and innovative materials to system integration. *Solid-State Electronics*. 2019;155:7–19. DOI: 10.1016/j.sse.2019.03.014.

2. Balestra F. Challenges for high performance and very low power operation at the end of the Roadmap. *Solid-State Electronics*. 2019;155:27–31. DOI: 10.1016/j.sse.2019.03.011.

3. Omura Y, Mallik A, Matsuo N. *MOS devices for low-voltage and low-energy applications*. Singapore: John Wiley & Sons; 2017. 496 p.

4. Deleonibus S, editor. *Electronic device architectures for the nano-CMOS era: from ultimate CMOS scaling to beyond CMOS devices.* Boca Raton: CRC Press; 2009. 426 p.

5. Borisenko VE, Hesketh PJ. *Rapid thermal processing of semiconductors*. New York: Springer Science + Business Media; 1997. XXII, 358 p. (Microdevices: physics and fabrication technologies).

6. Fair RB, editor. Rapid thermal processing: science and technology. Boston: Academic Press; 1993. VIII, 430 p.

7. Красников ГЯ. Конструктивно-технологические особенности субмикронных МОП-транзисторов. 2-е издание. Москва: Техносфера; 2011. 799 с.

8. Hu GQ, Lu J, Shen JY, Xu XP. Surface characterization of silicon wafers polished by three different methods. *Key Engineering Materials*. 2011;487:233–237. DOI: 10.4028/www.scientific.net/KEM.487.233.

9. Наливайко ОЮ, Солодуха ВА, Пилипенко ВА, Колос ВВ, Белоус АИ, Липинская ТИ и др. Базовые технологические процессы изготовления полупроводниковых приборов и интегральных микросхем на кремнии. Том 1. Турцевич АС, редактор. Минск: Интегралполиграф; 2013. 703 с.

10. Doering R, Nishi Y, editors. *Handbook of semiconductor manufacturing technology*. 2nd edition. Boca Raton: CRC Press; 2008. 1720 p.

11. Reinhardt KA, Reidy RF, editors. *Handbook for cleaning for semiconductor manufacturing: fundamentals and applications*. Hoboken: John Wiley & Sons; 2011. 614 p. Co-published by the Scrivener Publishing LLC.

12. Пилипенко ВА, Солодуха ВА, Филипеня ВА, Воробей РИ, Гусев ОК, Жарин АЛ и др. Характеризация электрофизических свойств границы раздела кремний – двуокись кремния с использованием методов зондовой электрометрии. *Приборы* и методы измерений. 2017;8(4):344–356.

13. Ковальчук НС, Омельченко АА, Пилипенко ВА, Солодуха ВА, Шестовский ДВ. Формирование подзатворного диэлектрика нанометровой толщины методом быстрой термообработки. Доклады БГУИР. 2021;19(4):103–112. DOI: 10.35596/1729-7648-2021-19-4-103-112.

14. Гриценко ВА. Атомная структура аморфных нестехиометрических оксидов и нитридов кремния. *Успехи физических наук.* 2008;178(7):727–737. DOI: 10.3367/UFNr.0178.200807c.0727.

15. Xiaoge Gregory Zhang. *Electrochemistry of silicon and its oxide*. Boston: Springer Science + Business Media; 2001. XXVI, 510 p. DOI: 10.1007/b100331.

16. Родионов ЮА. Технологические процессы в микро- и наноэлектронике. Москва: Инфра-Инженерия; 2019. 353 с.

17. Takahagi T, Sakaue H, Shingubara S. Adsorbed water on a silicon wafer surface exposed to atmosphere. *Japanese Journal of Applied Physics*. 2001;40(11R):6198–6201. DOI: 10.1143/JJAP.40.6198.

18. Carim AH, Sinclair R. The evolution of Si/SiO₂ interface roughness. *Journal of the Electrochemical Society*. 1987;134(3):741–746.

19. Оджаев ВБ, Панфиленко АК, Петлицкий АН, Просолович ВС, Ковальчук НС, Соловьев ЯА и др. Влияние ионной имплантации азота на электрофизические свойства подзатворного диэлектрика силовых МОП-транзисторов. *Журнал Белорусского государственного университета.* Физика. 2020;3:55–64. DOI: 10.33581/2520-2243-2020-3-55-64.

20. Nalwa HS, editor. Handbook of surfaces and interfaces of materials. San Diego: Academic Press; 2001. 5 volumes.

21. Fleetwood DM. Border traps and bias-temperature instabilities in MOS devices. *Microelectronics Reliability*. 2018;80:266–277. DOI: 10.1016/j.microrel.2017.11.007.

22. Grasser T, editor. Noise in nanoscale semiconductor devices. Cham: Springer Nature; 2020. VI, 729 p.

References

1. Ahopelto J, Ardila G, Baldi L, Balestra F, Belot D, Fagas G, et al. NanoElectronics Roadmap for Europe: from nanodevices and innovative materials to system integration. *Solid-State Electronics*. 2019;155:7–19. DOI: 10.1016/j.sse.2019.03.014.

2. Balestra F. Challenges for high performance and very low power operation at the end of the Roadmap. *Solid-State Electronics*. 2019;155:27–31. DOI: 10.1016/j.sse.2019.03.011.

3. Omura Y, Mallik A, Matsuo N. *MOS devices for low-voltage and low-energy applications*. Singapore: John Wiley & Sons; 2017. 496 p.

4. Deleonibus S, editor. *Electronic device architectures for the nano-CMOS era: from ultimate CMOS scaling to beyond CMOS devices.* Boca Raton: CRC Press; 2009. 426 p.

5. Borisenko VE, Hesketh PJ. *Rapid thermal processing of semiconductors*. New York: Springer Science + Business Media; 1997. XXII, 358 p. (Microdevices: physics and fabrication technologies).

6. Fair RB, editor. Rapid thermal processing: science and technology. Boston: Academic Press; 1993. VIII, 430 p.

7. Krasnikov GYa. *Konstruktivno-tekhnologicheskie osobennosti submikronnykh MOP-tranzistorov* [Design and technological features of submicron MOS transistors]. 2nd edition. Moscow: Tekhnosfera; 2011. 799 p. Russian.

8. Hu GQ, Lu J, Shen JY, Xu XP. Surface characterization of silicon wafers polished by three different methods. *Key Engineering Materials*. 2011;487:233–237. DOI: 10.4028/www.scientific.net/KEM.487.233.

9. Nalivaiko OYu, Saladukha VA, Pilipenka UA, Kolos VV, Belous AI, Lipinskaya TI, et al. *Bazovye tekhnologicheskie protsessy izgotovleniya poluprovodnikovykh priborov i integral'nykh mikroskhem na kremnii. Tom 1* [Basic technological processes for the manufacture of semiconductor devices and integrated microcircuits on silicon. Volume 1]. Turtsevich AS, editor. Minck: Integralpoligraf; 2013. 703 p. Russian.

10. Doering R, Nishi Y, editors. *Handbook of semiconductor manufacturing technology*. 2nd edition. Boca Raton: CRC Press; 2008. 1720 p.

11. Reinhardt KA, Reidy RF, editors. *Handbook for cleaning for semiconductor manufacturing: fundamentals and applications*. Hoboken: John Wiley & Sons; 2011. 614 p. Co-published by the Scrivener Publishing LLC.

12. Pilipenko VA, Saladukha VA, Filipenya VA, Vorobey RI, Gusev OK, Zharin AL, et al. Characterization of the electrophysical properties of silicon – silicon dioxide interface using probe electrometry methods. *Devices and Methods of Measurements*. 2017;8(4): 344–356. Russian.

13. Kovalchuk NS, Omelchenko AA, Pilipenko VA, Solodukha VA, Shestovski DV. Formation of a gate dielectric of nanometer thickness by rapid thermal treatment. *Doklady BGUIR*. 2021;19(4):103–112. Russian. DOI: 10.35596/1729-7648-2021-19-4-103-112.

14. Gritsenko VA. Atomic structure of the amorphous nonstoichiometric silicon oxides and nitrides. *Uspekhi fizicheskikh nauk.* 2008;178(7):727–737. Russian. DOI: 10.3367/UFNr.0178.200807c.0727.

15. Xiaoge Gregory Zhang. *Electrochemistry of silicon and its oxide*. Boston: Springer Science + Business Media; 2001. XXVI, 510 p. DOI: 10.1007/b100331.

16. Rodionov YuA. *Tekhnologicheskie protsessy v mikro- i nanoelektronike* [Technological processes in micro- and nanoelectronics]. Moscow: Infra-Inzheneriya; 2019. 353 p. Russian.

17. Takahagi T, Sakaue H, Shingubara S. Adsorbed water on a silicon wafer surface exposed to atmosphere. *Japanese Journal of Applied Physics*. 2001;40(11R):6198–6201. DOI: 10.1143/JJAP.40.6198.

Carim AH, Sinclair R. The evolution of Si/SiO₂ interface roughness. *Journal of the Electrochemical Society*. 1987;134(3):741–746.
Odzaev VB, Panfilenka AK, Pyatlitski AN, Prasalovich US, Kovalchuk NS, Soloviev YaA, et al. Influence of nitrogen ion implantation on the electrophysical properties of the gate dielectric of power MOSFETs. *Journal of the Belarusian State University*. *Physics*. 2020;3:55–64. Russian. DOI: 10.33581/2520-2243-2020-3-55-64.

20. Nalwa HS, editor. Handbook of surfaces and interfaces of materials. San Diego: Academic Press; 2001. 5 volumes.

21. Fleetwood DM. Border traps and bias-temperature instabilities in MOS devices. *Microelectronics Reliability*. 2018;80:266–277. DOI: 10.1016/j.microrel.2017.11.007.

22. Grasser T, editor. Noise in nanoscale semiconductor devices. Cham: Springer Nature; 2020. VI, 729 p.

Получена 08.12.2021 / исправлена 28.12.2021 / принята 28.12.2021. Received 08.12.2021 / revised 28.12.2021 / accepted 28.12.2021.

Авторы:

Наталья Станиславовна Ковальчук – кандидат технических наук, доцент; заместитель главного инженера.

Юлия Александровна Марудо – инженер государственного центра «Белмикроанализ» филиала НТЦ «Белмикросистемы».

Анна Александровна Омельченко – инженер государственного центра «Белмикроанализ» филиала НТЦ «Белмикросистемы».

Владимир Александрович Пилипенко – член-корреспондент НАН Беларуси, доктор технических наук, профессор; заместитель директора по научному развитию государственного центра «Белмикроанализ» филиала НТЦ «Белмикросистемы».

Authors:

Natalya S. Kovalchuk, PhD (engineering), docent; deputy chief engineer.

Yuliya A. Marudo, engineer at the state center «Belmicroanalysis», branch STC «Belmicrosystems».

Anna A. Omelchenko, engineer at the state center «Belmicroanalysis», branch STC «Belmicrosystems».

Uladzimir A. Pilipenka, corresponding member of the National Academy of Sciences of Belarus, doctor of science (engineering), full professor; deputy director for scientific development at the state center «Belmicroanalysis», branch STC «Belmicrosystems». office@bms.by

Виталий Александрович Солодуха – доктор технических наук; генеральный директор.

Сергей Александрович Демидович – ведущий инженер отраслевой лаборатории новых технологий и материалов.

Владимир Владимирович Колос – кандидат физико-математических наук; начальник отраслевой лаборатории новых технологий и материалов.

Виктор Михайлович Анищик – доктор физико-математических наук, профессор; профессор кафедры физики твердого тела физического факультета.

Виктор Анатольевич Филипеня – ведущий инженер государственного центра «Белмикроанализ» филиала НТЦ «Белмикросистемы».

Дмитрий Викторович Шестовский – инженер-технолог отдела перспективных технологических процессов.

Vitali A. Saladukha, doctor of science (engineering); general director.

Sergey A. Demidovich, leading engineer at the industrial laboratory of new technologies and materials.

Vladimir V. Kolos, PhD (physics and mathematics); chief of the industrial laboratory of new technologies and materials.

Victor M. Anishchik, doctor of science (physics and mathematics), full professor; professor at the department of solid state physics, faculty of physics.

anishchik@bsu.by

Viktar A. Filipenia, leading engineer at the state center «Belmicroanalysis», branch STC «Belmicrosystems».

Dmitry V. Shestovski, engineer-technologist at the department of advanced technological processes.

dshestovski@integral.by

https://orcid.org/0000-0002-4259-3276

ГРИБОРЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Kesearch **INSTRUMENTS AND METHODS**

УДК 543.42

МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЯ ФОТОСТАБИЛЬНОСТИ СОЛНЕЧНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ НА ОСНОВЕ ОРГАНО-НЕОРГАНИЧЕСКИХ ПЕРОВСКИТОВ С ПОМОЩЬЮ КОНФОКАЛЬНОГО СПЕКТРОМЕТРА

*Н. С. МАГОНЬ*¹⁾, *О. В. КОРОЛИК*¹⁾, *А. В. МАЗАНИК*¹⁾

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

На примере изучения фотодеградации и темнового восстановления органо-неорганических перовскитных солнечных элементов представлена методика исследования фоточувствительных структур, основанная на использовании конфокального спектрометра для измерения спектров комбинационного рассеяния света, спектров и кинетик фото- и электролюминесценции, кинетик тока короткого замыкания и напряжения холостого хода при локальном воздействии монохроматическим излучением. Спектры комбинационного рассеяния света помогают

Образец цитирования: Магонь НС, Королик ОВ, Мазаник АВ. Методика исследования фотостабильности солнечных элементов на основе органо-неорганических перовскитов с помощью конфокального спектрометра. Журнал Белорусского государственного университета. Физика. 2022;1:88-97. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-88-97

Авторы:

Наталья Сергеевна Магонь – аспирантка кафедры энергофизики физического факультета. Научный руководитель -А. В. Мазаник.

Ольга Васильевна Королик - кандидат физико-математических наук; заведующий научно-исследовательской лабораторией энергоэффективных материалов и технологий кафедры энергофизики физического факультета.

Александр Васильевич Мазаник – кандидат физико-математических наук, доцент; заведующий кафедрой энергофизики физического факультета.

For citation:

Mahon NS, Korolik OV, Mazanik AV. Method for studying the photostability of solar cells based on organic-inorganic perovskites using a confocal spectrometer. Journal of the Belarusian State University. Physics. 2022;1:88-97. Russian. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-88-97

Authors:

Natallia S. Mahon, postgraduate student at the department of energy physics, faculty of physics.

natalimahon@gmail.com

https://orcid.org/0000-0003-0576-2277

Olga V. Korolik, PhD (physics and mathematics); head of the laboratory of energy-efficient materials and technologies, department of energy physics, faculty of physics.

olga zinchuk@tut.by

https://orcid.org/0000-0001-9430-4010

Alexander V. Mazanik, PhD (physics and mathematics), docent; head of the department of energy physics, faculty of physics. mazanikalexander@gmail.com https://orcid.org/0000-0002-4725-0969

установить наличие или отсутствие вторичных фаз, образование которых возможно в фоточувствительных слоях под воздействием света, а спектры фотолюминесценции дают возможность выявить однофазность изучаемого объекта. Картирование интенсивности и положения центра масс полосы фотолюминесценции в плоскости исследуемого объекта позволяет судить о пространственном расположении центров безызлучательной рекомбинации носителей заряда, распределении участков с наибольшей и наименьшей эффективностью экстракции носителей заряда транспортно-акцепторными слоями и пространственной однородности химического состава. Сравнение спектров электролюминесценции до и после светового воздействия дает возможность выявить образование центров безызлучательной рекомбинации в фотопоглощающем слое и на его границах с транспортными слоями. Анализ кинетик изменения параметров полосы фотолюминесценции, полученных при измерении тока короткого замыкания и напряжения холостого хода, позволяет установить доминирующие фотоиндуцированные процессы, приводящие к изменению интенсивности полосы фотолюминесценции.

Ключевые слова: конфокальный спектрометр; люминесценция; комбинационное рассеяние света; органо-неорганические перовскиты; перовскитные солнечные элементы; методика исследования фотостабильности.

Благодарность. Работа выполнена при поддержке Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований (проект № Ф20ПТИ-019).

METHOD FOR STUDYING THE PHOTOSTABILITY OF SOLAR CELLS BASED ON ORGANIC-INORGANIC PEROVSKITES USING A CONFOCAL SPECTROMETER

N. S. MAHON^a, O. V. KOROLIK^a, A. V. MAZANIK^a

^aBelarusian State University, 4 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220030, Belarus Corresponding author: N. S. Mahon (natalimahon@gmail.com)

A method for studying photosensitive structures using the example of studying the photodegradation and dark recovery of organic-inorganic perovskite solar cells is present. The method is based on the use of a confocal spectrometer to measure Raman spectra, photo- and electroluminescence spectra and kinetics, the kinetics of the short-circuit current and the open-circuit voltage under local exposure to monochromatic radiation. Raman spectra make it possible to establish the presence or absence of secondary phases, the formation of which is possible in photosensitive layers under the influence of light. The photoluminescence spectra enable to reveal the single-phase nature of the object under study. Mapping the intensity and position of the center of mass of the photoluminescence band in the plane of the object makes it possible to judge the spatial arrangement of the centers of non-radiative recombination of charge carriers, the distribution of the regions with the highest and lowest efficiency of the extraction of charge carriers by transport-acceptor layers and the spatial homogeneity of the chemical composition. Comparison of the electroluminescence spectra before and after light exposure allows revealing the formation of non-radiative recombination centers in the photoluminescence band obtained by measuring the short-circuit current and the open-circuit voltage makes it possible to establish the dominant photoinduced processes leading to a change in the intensity of the photoluminescence band.

Keywords: confocal spectrometer; luminescence; Raman scattering; organic-inorganic perovskites; perovskite solar cells; method for studying photostability.

Acknowledgements. This work was supported by the Belarusian Republican Foundation for Fundamental Research (project No. F20PTI-019).

Введение

Гибридные органо-неорганические перовскитные солнечные элементы (ПСЭ) появились в 2009 г. [1] и сразу привлекли к себе повышенное внимание. Они характеризуются высоким коэффициентом поглощения света в сочетании с близкой к оптимальному значению шириной запрещенной зоны, большим временем жизни носителей заряда (до единиц микросекунд), а также возможностью малостадийного и низкотемпературного (не более 100 °C) синтеза из растворов [2–6]. За короткий промежуток времени КПД данных солнечных элементов удалось повысить более чем до 25 % за счет варьирования архитектуры, а также химического состава перовскитного (фотопоглощающего) и транспортных слоев [7–9]. Однако серьезной проблемой на пути коммерциализации ПСЭ является быстрая деградация, обусловленная многими факторами, в частности светом, повышенной температурой, атмосферной влагой и кислородом [10–14]. Подбор и замена химических элементов в структуре перовскита и акцепторных слоях, а также использование инкапсуляции позволили добиться значительной устойчивости к воздействию влаги, кислорода и повышенной температуры [15]. Кроме того, была обнаружена способность восстановления (по крайней мере, частичного) ПСЭ при их нахождении в темновых условиях [16]. Однако фотодеградация ПСЭ по-прежнему остается нерешенной проблемой, поскольку темновое восстановление протекает недостаточно быстро для того, чтобы полностью восстановить рабочие параметры, ухудшенные после светового воздействия в реальных условиях эксплуатации [15–17].

Таким образом, в настоящее время значительное внимание исследователей сконцентрировано на выявлении закономерностей фотодеградации и восстановления ПСЭ, установлении механизмов, отвечающих за эти процессы, а также поиске способов снижения скорости деградации [5; 17; 18]. Экспериментальное исследование ПСЭ существенно затруднено тем, что активная область (перовскитный и акцепторные слои) труднодоступна из-за наличия инкапсуляции, вследствие чего применение традиционных методов анализа (рентгенодифракционный анализ, сканирующая электронная и зондовая микроскопия, фотоэлектронная спектроскопия) является невозможным. Это приводит к необходимости разработки методик на основе иных бесконтактных неразрушающих методов исследования, одним из которых может быть конфокальная оптическая спектроскопия.

Целью работы являлось развитие методики исследования фоточувствительных полупроводниковых структур с помощью конфокального спектрометра. Объектом исследования выступали солнечные элементы на основе органо-неорганических перовскитов сложного состава. Предложенная методика позволяет использовать лазерный луч спектрометра не только для возбуждения спектров комбинационного рассеяния света (КРС) и фотолюминесценции (ФЛ), но и для локального измерения фотоэлектрических параметров солнечных элементов (тока короткого замыкания, напряжения холостого хода), а также в качестве источника светового воздействия в целях установления динамики свойств ПСЭ при их освещении. Кроме того, система регистрации спектрометра может быть использована для записи спектров электролюминесценции (ЭЛ) при пропускании инжекционного тока от внешнего источника. Наличие 3D-пьезосканера позволяет выполнять картирование спектральных и фотоэлектрических параметров, что важно для определения степени пространственной однородности исследуемых объектов. Как будет показано ниже, комбинация перечисленных выше взаимодополняющих методов исследования, которые могут быть реализованы с помощью конфокального спектрометра, обеспечивает получение обширной информации о процессах фотодеградации и восстановления фоточувствительных материалов (посредством анализа фазового состава и спектра электронных состояний (по спектрам КРС, ФЛ, ЭЛ)), а также о генерации, транспорте и рекомбинации носителей заряда. В частности, регистрация спектров ФЛ, тока короткого замыкания и напряжения холостого хода при длительном освещении лазерным лучом позволяет наблюдать эволюцию системы в режиме реального времени, что дает представление о процессах, происходящих в солнечных элементах при их освещении.

Методика эксперимента

В работе был использован конфокальный спектрометр Nanofinder НЕ (LOTIS TII, Беларусь – Япония), предназначенный для измерения спектров КРС и ФЛ.

Спектры ФЛ, представленные в работе, были получены при следующих условиях измерения: длина волны возбуждающего света – 532 нм, спектральное разрешение – не хуже 0,1 нм, мощность возбуждающего излучения – 0,6 мкВт, диаметр светового пятна на образце – 2 мкм, время накопления сигнала – 5 с. Сканирование образцов с помощью 3D-пьезосканера осуществлялось путем снятия спектров ФЛ (при тех же условиях измерения) на участках размером 20 × 20 мкм. Мощность лазерного излучения экспериментально была подобрана таким образом, чтобы она не оказывала разрушающего воздействия на образец, но при этом обеспечивала минимальное воздействие, позволяющее детектировать динамику изменения параметров объектов исследования при локальном освещении.

Условия измерения спектров КРС: длина волны возбуждающего света – 532 нм, спектральное разрешение – не хуже 2,5 см⁻¹, мощность возбуждающего излучения – 6 мкВт, диаметр светового пятна на образце – 2 мкм, время накопления сигнала – 120 с. В качестве контрольного образца использовалась пленка дийодида свинца (PbI₂) как наиболее распространенного продукта деградации свинецсодержащих органо-неорганических перовскитов. Толщина пленки, определенная методом интерферометрии, составляла 4,1 мкм.

Измерения спектров ЭЛ проводились в следующей последовательности. Для обеспечения фокусировки ЭЛ излучения на входной щели спектрометра на поверхности образца с помощью объектива спектрометра фокусировался лазерный луч. Далее выполнялось измерение спектра ФЛ (возбуждение – 532 нм, 0,6 мкВт; время накопления сигнала – 5 с). После этого лазерный луч перекрывался, а через образец пропускался прямой постоянный ток от внешнего источника, обеспечивающий инжекцию носителей заряда в перовскитный слой. Величина тока устанавливалась равной по модулю току короткого замыкания образца при освещении светом стандарта AM1,5 и составляла 2 мА (плотность тока – 22 мА/см²). После достижения постоянного значения напряжения на образце, что соответствовало завершению зарядки емкостей и исчезновению тока смещения, начиналась регистрация сигнала ЭЛ (время накопления – 300 с). Затем ток отключался и повторно записывался спектр ФЛ при таких же условиях, как и до измерения спектра ЭЛ. Это делалось для оценки возможных изменений в образце при пропускании прямого тока.

Для исследования фотоиндуцированных процессов и измерения световых вольт-амперных характеристик (ВАХ) (рис. 1) в качестве источника белого света использован светодиод PABB-100FWL-NAAN (*ProLight Opto Technology Corporation*, Тайвань) (цветовая температура – 5700 К). Для питания светодиода применялся стабилизированный источник IT6333B (*Itech*, Тайвань), обеспечивающий нестабильность тока не хуже 0,1 %. Ток светодиода задавался таким образом, чтобы обеспечить такое же значение тока короткого замыкания, как и при использовании имитатора солнца класса ААА (AM1,5; 1000 BT/m²). При исследовании процессов фотодеградации применялась маска, позволяющая осуществлять засветку лишь ограниченного участка образца размером 15×15 мм. Световые ВАХ измерялись каждые 20 мин при прямом (от режима короткого замыкания к режиму холостого хода) и обратном (от режима холостого хода к режиму короткого замыкания) сканировании в диапазоне -0,2 В $\rightarrow +1,2$ В $\rightarrow -0,2$ В с помощью источника-измерителя Keithley 2400 (*Keithley*, США). Погрешность измерения силы тока и напряжения не превышала 0,01 %. Знак «минус» соответствует обратному смещению, знак «плюс» – прямому. Использовалось программное ограничение прямого тока до величины, равной по модулю току короткого замыкания. В интервалах между измерениями ВАХ солнечные элементы подвергались световому воздействию в режиме холостого хода.



 Рис. 1. Световые ВАХ ПСЭ, измеренные при прямом (a)
и обратном (б) направлениях сканирования, а также после темнового восстановления и последующего светового воздействия (в)



В работе были исследованы образцы ПСЭ на основе перовскитов составов $Cs_{0,15}FA_{0,85}PbI_{2,7}Br_{0,3}$ и $Cs_{0,05}(MA_{0,15}FA_{0,85})_{0,95}PbI_{2,55}Br_{0,45}$ (FA – формамидин (HC(NH₂)⁺₂), MA – метиламмоний (CH₃NH₃⁺)), подвергнутые различным световым нагрузкам, а также восстановленные в темновых условиях после светового воздействия. Образцы ПСЭ изготовлены в *Holst Centre* (Нидерланды) по технологии, подробно описанной в [16]. Структура ПСЭ приведена в статье [19]. Первичная характеризация изготовленных ПСЭ (недеградированных) выполнена производителем посредством измерения BAX при освещении светом стандарта AM1,5G с помощью имитатора класса AAA и источника-измерителя Keithley 2400. Среднее значение КПД исходных солнечных элементов составило 16 %.

Полученные ВАХ (см. рис. 1, *a*, *б*) демонстрируют деградацию ПСЭ при световом воздействии. Например, после освещения в течение 3 ч напряжение холостого хода снизилось с 1,03 до 0,97 В, а плотность тока короткого замыкания уменьшилась с 21,2 до 18,7 мА/см². Также при обратном сканировании наблюдается гистерезис. В результате после светового воздействия рассчитанный КПД для прямой ветви снизился на 7,5 %, а для обратной – на 30 %. Последующее нахождение в темновых условиях на протяжении ночи привело к незначительному повышению напряжения холостого хода (до 0,98 В) и заметному увеличению плотности тока короткого замыкания (до 20,3 мА/см²), что показано на рис. 1, *в* (ВАХ-1). Однако световое воздействие после восстановления не вызвало существенного снижения напряжения холостого хода (0,98 В) для прямого и обратного сканирования. Более того, несмотря на то что в процессе фотодеградации ВАХ обратного сканирования оказалась «чувствительнее» к длительному освещению, дальнейшая фотодеградация после восстановления в темновых условиях в инертной атмосфере продемонстрировала устойчивость ВАХ обратного сканирования. При этом после фотодеградация после восстановления в темновых условиях в инертной атмосфере продемонстрировала устойчивость ВАХ обратного сканирования. При этом после фотодеградация после восстановления в темновых условиях в инертной атмосфере продемонстрировала устойчивость ВАХ обратного сканирования. При этом после фотодеградация после восстановления в темновых условиях в инертной атмосфере продемонстрировала устойчивость ВАХ обратного сканирования. При этом после фотодеградация после восстановления в темновых условиях в инертной атмосфере продемонстрирована условиях в течение ночи произошла «дестабилизация» плотности тока короткого замыкания.

Результаты и их обсуждение

Первичная характеризация: анализ фазового состава образцов с помощью спектров КРС и ФЛ, картирования параметров полосы ФЛ. Измерение ВАХ не позволяет однозначно определить процессы, ответственные за ухудшение и восстановление рабочих параметров ПСЭ. Возможными причинами ухудшения параметров могут быть накопление заряда на границах перовскитного слоя с транспортноакцепторными слоями (препятствует экстракции носителей заряда), фотоиндуцированная генерация центров безызлучательной рекомбинации неравновесных носителей заряда, а также фотохимическая деградация органо-неорганического перовскита. В связи с этим необходимо прибегнуть к дополнительным методам идентификации процессов, протекающих при освещении и последующем хранении в темноте. Как упоминалось выше, в силу инкапсуляции ПСЭ дифракционные методы оказываются неприменимы, поэтому единственным доступным методом анализа фазового состава является спектроскопия КРС. Установление наличия или отсутствия вторичных фаз, образование которых возможно под воздействием света, – один из важнейших этапов изучения фоточувствительных структур [15]. Перовскиты не проявляют активности в спектрах КРС [20], однако данный метод позволяет выявить наличие возможных неорганических продуктов их фотодеградации, в частности PbI₂. Параметры измерения спектров КРС, указанные в разделе «Методика эксперимента», подбирались таким образом, чтобы они не оказывали разрушающего воздействия на объекты исследования, но при этом позволяли извлечь необходимую информацию о них. Для контроля неразрушающего характера воздействия после фокусировки лазерного пучка в одной позиции были зарегистрированы последовательные спектры КРС при заданных условиях. Кроме того, до и после эксперимента записаны спектры ФЛ. Идентичность формы и положения полученных спектров КРС и ФЛ позволила сделать вывод о том, что лазерный луч не оказывает разрушающего воздействия в процессе регистрации спектра КРС.

В качестве примера на рис. 2 сопоставлены спектры КРС контрольной пленки PbI_2 и ПСЭ на основе $Cs_{0,05}(MA_{0,15}FA_{0,85})_{0,95}PbI_{2,55}Br_{0,45}$, который предварительно был деградирован естественным солнечным светом в течение нескольких дней при температуре 60–70 °С. Аппроксимация линией Лоренца спектров КРС фотодеградированных ПСЭ демонстрирует наличие слабой полосы 98,7 см⁻¹, которую можно соотнести с наиболее интенсивной полосой фазы PbI_2 (95,5 см⁻¹ [20]). Вместе с тем интенсивность данной полосы в спектре ПСЭ на основе $Cs_{0,05}(MA_{0,15}FA_{0,85})_{0,95}PbI_{2,55}Br_{0,45}$ на два порядка меньше, чем в спектре контрольной пленки PbI_2 , что указывает на незначительное образование фазы PbI_2 в этом эксперименте.

Совместно со спектроскопией КРС было предложено измерение спектров ФЛ для качественного анализа фазового состава образцов. На сегодняшний день установлено, что органо-неорганические перовскиты сложного состава (содержат более одного вида ионов в катионной и (или) анионной подрешетках) обладают лучшими фотовольтаическими свойствами и стабильностью [15]. Однако

при попытке получения твердых растворов в перовскитах зачастую формируются многофазные гетерогенные системы. Очевидно, что в этом случае в спектре ФЛ будет присутствовать не один, а несколько пиков, соответствующих отдельным фазам, находящимся в конфокальном объеме. Таким образом, регистрация спектров ФЛ – простой метод, позволяющий выявить однофазность изучаемого объекта.



на основе $Cs_{0.05}(MA_{0,15}FA_{0,85})_{0.95}PbI_{2,55}Br_{0,45}(a)$ и контрольной пленки $PbI_2(\delta)$ *Fig. 2.* Raman spectra of the photodegraded perovskite solar cell based on $Cs_{0.05}(MA_{0.15}FA_{0.85})_{0.95}PbI_{2,55}Br_{0.45}(a)$ and the reference PbI_2 film (*b*)

Характерный спектр ФЛ ПСЭ на основе фотопоглощающего слоя Cs_{0,15}FA_{0,85}PbI_{2,7}Br_{0,3} представлен на рис. 3. Одиночный пик (положение центра масс – 774 нм), соответствующий межзонной излучательной рекомбинации в перовскитном слое, указывает на присутствие в исследованном ПСЭ единственной фазы. Полученные спектры ФЛ не только характеризуют качество перовскитного слоя, но и помогают отслеживать возможное образование вторичных фаз на разных стадиях жизненного цикла солнечного элемента. Выявление разброса таких параметров спектров ФЛ, как интенсивность и положение центра масс (см. вставку на рис. 3), от точки к точке в плоскости исследуемого объекта позволяет судить о пространственном расположении центров безызлучательной рекомбинации носителей заряда, распределении участков с наибольшей и наименьшей эффективностью экстракции носителей заряда транспортно-акцепторными слоями и пространственной однородности химического состава соответственно. Определение степени пространственной однородности является важным этапом первичной характеризации образцов, поскольку фотодеградация осуществляется путем освещения рабочей поверхности ПСЭ, линейные размеры которой на три порядка величины превышают диаметр лазерного пучка, используемого при записи спектров КРС и ФЛ. Поэтому без анализа пространственной однородности полученные результаты могут быть противоречивыми, а сделанные выводы – некорректными.

Установление доминирующих процессов, ответственных за фотодеградацию и темновое восстановление образцов, путем сравнения спектров ЭЛ и ФЛ. Интенсивность пика ФЛ, соответствующего межзонной излучательной рекомбинации, зависит от многих параметров (например, скорости генерации и рекомбинации носителей заряда), а также от эффективности разделения электронов и дырок транспортно-акцепторными слоями. В связи с этим динамика интенсивности ФЛ не позволяет однозначно определить процессы, ответственные за фотодеградацию и восстановление перовскитного слоя. Так, увеличение интенсивности ФЛ одновременно может быть связано как с фотодеактивацией центров безызлучательной рекомбинации в перовскитном слое, так и с образованием заряженных слоев на интерфейсах между перовскитным и транспортно-акцепторными слоями, что препятствует экстракции носителей заряда из перовскитного слоя и увеличивает вероятность их излучательной рекомбинации. По этой причине для однозначной идентификации процессов, ответственных за динамику интенсивности ФЛ, необходимо сравнение спектров ФЛ со спектрами ЭЛ.

В работе спектры ЭЛ были измерены при протекании постоянного тока через образец, что обеспечило инжекцию носителей заряда в перовскитный слой и тем самым позволило устранить возможный вклад состояния интерфейсов с транспортно-акцепторными слоями. Таким образом, интенсивность ЭЛ, измеренной при одинаковых значениях инжекционного тока, зависит лишь от концентрации центров безызлучательной рекомбинации в фотопоглощающем слое и на его границах с транспортными слоями. Журнал Белорусского государственного университета. Физика. 2022;1:88–97 Journal of the Belarusian State University. Physics. 2022;1:88–97



Рис. 3. Спектр ФЛ ПСЭ на основе Cs_{0,15}FA_{0,85}PbI_{2,7}Br_{0,3}.
На вставке представлено распределение центра масс полосы ФЛ по поверхности образца
Fig. 3. The photoluminescence (PL) spectrum of the Cs_{0,15}FA_{0.85}PbI_{2,7}Br_{0,3} based perovskite solar cell. The inset presents the distribution of PL mass center over the surface of the sample

Представленные в качестве примера спектры ЭЛ исходного, деградированного и восстановленного образцов (рис. 4, *a*), а также спектры ФЛ до и после измерения ЭЛ (рис. 4, *б*) позволяют сделать следующие выводы: фотодеградация приводит к возникновению центров безызлучательной рекомбинации в перовскитном слое, о чем свидетельствует пониженная до порога чувствительности интенсивность ЭЛ, а восстановление в темновых условиях обеспечивает лишь неполную деактивацию данных дефектов, что согласуется с результатами измерения световых ВАХ (см. рис. 1).



Рис. 4. Спектры ЭЛ исходного, деградированного и восстановленного в темновых условиях ПСЭ на основе Cs_{0,15}FA_{0,85}PbI_{2,7}Br_{0,3} (*a*); спектры ΦЛ ПСЭ на основе Cs_{0,15}FA_{0,85}PbI_{2,7}Br_{0,3} до и после инжекции носителей заряда и спектр ЭЛ исходного ПСЭ (*б*)

Fig. 4. Electroluminescence spectra of the fresh, degraded and recovered in the dark $Cs_{0.15}FA_{0.85}PbI_{2.7}Br_{0.3}$ based perovskite solar cell (*a*); PL spectra of the $Cs_{0.15}FA_{0.85}PbI_{2.7}Br_{0.3}$ based perovskite solar cell before and after injection of charge carriers and its electroluminescence spectrum in the fresh state (*b*)

Получение представления о процессах, происходящих в ПСЭ при освещении в режиме реального времени. Отдельные спектры КРС, ФЛ и ЭЛ, а также ВАХ не дают полного представления о процессах, происходящих в солнечном элементе при его освещении, поскольку изменения на микроуровне невозможно однозначно определить из ВАХ, а спектры дают информацию лишь об определенном состоянии ПСЭ (исходном, после светового воздействия либо темнового восстановления) и не позволяют установить его динамику. Кроме того, на разных стадиях жизненного цикла ПСЭ некоторые параметры, например интенсивность и положение центра масс пика ФЛ, могут быть идентичными, в то время как скорости их изменения будут различаться, поскольку за изменение данных параметров отвечают разные процессы.

Таким образом, было предложено последовательное измерение спектров КРС, ФЛ, ЭЛ, тока короткого замыкания и напряжения холостого хода в течение времени, соответствующего световой энергии, поступающей на солнечный элемент на протяжении дня в условиях реальной эксплуатации, что достигнуто путем выбора определенных мощности лазерного пучка (0,6 мкВт) и времени засветки (250 с). Мощность лазерного излучения подбиралась так, чтобы избежать разрушающего воздействия на образец, но при этом обеспечить детектирование поведения объекта исследования при локальном освещении. В качестве примера на рис. 5 представлены кинетики изменения параметров полосы ФЛ, полученные при измерении напряжения холостого хода (см. рис. 5, *a*, *e*, *d*) и тока короткого замыкания (см. рис. 5, *б*, *c*, *e*). Условия измерения спектров ФЛ аналогичны вышеуказанным.



Puc. 5. Аппроксимированные кинетики изменения интенсивности и центра масс полосы ФЛ ПСЭ на основе Cs_{0,15}FA_{0,85}PbI_{2,7}Br_{0,3}
при измерении напряжения холостого хода (*a*, *e*, *d*) и тока короткого замыкания (*б*, *e*, *e*)
Fig. 5. Approximated kinetics of PL band intensity and mass center variation for a Cs_{0.15}FA_{0.85}PbI_{2,7}Br_{0.3}
based perovskite solar cell when measuring the open-circuit voltage (*a*, *c*, *e*) and short-circuit current (*b*, *d*, *f*)

Как видно из рис. 5, за время использованного светового воздействия происходит небольшой (менее чем на 1 нм) красный сдвиг полосы ФЛ. В работе [19] было показано, что в органо-неорганических перовскитах сложного состава при аналогичных воздействиях могут наблюдаться изменения положения пика ФЛ на 2–6 нм в область длинных волн в связи с фотоиндуцированным возникновением неоднородности химического состава. Аппроксимация полученных кинетик экспоненциальной функцией демонстрирует равенство характеристических времен (~16 с) процессов, ответственных за начальное уменьшение интенсивности ФЛ в режиме тока короткого замыкания и возрастание напряжения холостого хода. Постоянство тока короткого замыкания свидетельствует о том, что процессы, приводящие к уменьшению интенсивности ФЛ, не связаны с образованием дефектов на интерфейсах.

Заключение

Первичная характеризация ПСЭ посредством измерения спектров КРС и ФЛ, а также картирования параметров полосы ФЛ позволила заключить, что объекты исследования представляют собой однофазные гомогенные системы. В то же время световое воздействие приводит к ухудшению рабочих параметров образцов, таких как ток короткого замыкания и напряжение холостого хода, а нахождение в темноте в течение ночи обеспечивает лишь частичное восстановление. Для определения процессов, ответственных за наблюдаемые изменения, был предложен анализ параметров спектров ЭЛ в сравнении с параметрами спектров ФЛ. Полученные данные указывают на возникновение центров безызлучательной рекомбинации в перовскитном слое при освещении и их неполную деактивацию в темноте. Аппроксимация кинетик изменения интенсивности и центра масс полосы ФЛ, полученных при измерении напряжения холостого хода и тока короткого замыкания, позволила подтвердить вывод о том, что фотодеградация параметров образцов не связана с образованием дефектов на интерфейсах (границах перовскитного и акцепторных слоев).

Таким образом, разработанная и апробированная методика локального исследования фоточувствительных структур, основанная на использовании конфокального спектрометра и позволяющая измерять спектры и кинетики ЭЛ, а также спектры КРС и ФЛ, кинетики напряжения холостого хода и тока короткого замыкания при воздействии монохроматическим излучением, может быть использована для неразрушающего анализа фоточувствительных и светоизлучающих структур различных типов. Представленная методика особенно актуальна при исследовании объектов, обладающих низкой стабильностью по отношению к атмосферному воздействию и требующих инкапсуляции.

Библиографические ссылки/References

1. Park N-G, Grätzel M, Miyasaka T, editors. Organic-inorganic halide perovskite photovoltaics: from fundamentals to device architectures. [Cham]: Springer; 2016. viii, 366 p.

2. Ščajev P, Miasojedovas S, Juršėnas S. A carrier density dependent diffusion coefficient, recombination rate and diffusion length in MAPbI₃ and MAPbBr₃ crystals measured under one-and two-photon excitations. *Journal of Materials Chemistry C.* 2020;8(30): 10290–10301. DOI: 10.1039/D0TC02283G.

3. Di Zhou, Tiantian Zhou, Yu Tian, Xiaolong Zhu, Yafang Tu. Perovskite-based solar cells: materials, methods, and future perspectives. *Journal of Nanomaterials*. 2018:8148072. DOI: 10.1155/2018/8148072.

4. Kojima A, Teshima K, Shirai Y, Miyasaka T. Organometal halide perovskites as visible-light sensitizers for photovoltaic cells. *Journal of the American Chemical Society.* 2009;131(17):6050–6051. DOI: 10.1021/ja809598r.

5. Gottesman R, Zaban A. Perovskites for photovoltaics in the spotlight: photoinduced physical changes and their implications. *Accounts of Chemical Research*. 2016;49(2):320–329. DOI: 10.1021/acs.accounts.5b00446.

6. Berhe TA, Wei-Nien Su, Ching-Hsiang Chen, Chun-Jern Pan, Ju-Hsiang Cheng, Hung-Ming Chen, et al. Organometal halide perovskite solar cells: degradation and stability. *Energy & Environmental Science*. 2016;9(2):323–356. DOI: 10.1039/C5EE02733K.

7. Jeong-Hyeok Im, Chang-Ryul Lee, Jin-Wook Lee, Sang-Won Park, Nam-Gyu Park. 6.5 % efficient perovskite quantum-dot-sensitized solar cell. *Nanoscale*. 2011;3(10):4088–4093. DOI: 10.1039/C1NR10867K.

8. Dong Yang, Ruixia Yang, Xiaodong Ren, Xuejie Zhu, Zhou Yang, Can Li, et al. Hysteresis-suppressed high-efficiency flexible perovskite solar cells using solid-state ionic-liquids for effective electron transport. *Advanced Materials*. 2016;28(26):5206–5213. DOI: 10.1002/adma.201600446.

9. Domanski K, Roose B, Matsui T, Saliba M, Turren-Cruz S-H, Correa-Baena J-P, et al. Migration of cations induces reversible performance losses over day/night cycling in perovskite solar cells. *Energy & Environmental Science*. 2017;10(2):604–613. DOI: 10.1039/C6EE03352K.

10. Yanqing Yao, Gang Wang, Fei Wu, Debei Liu, Chunyan Lin, Xi Rao, et al. The interface degradation of planar organic-inorganic perovskite solar cell traced by light beam induced current (LBIC). *RSC Advances*. 2017;7(68):42973–42978. DOI: 10.1039/ C7RA06423C.

11. Jiangang Hu, Gottesman R, Gouda L, Kama A, Priel M, Tirosh S, et al. Photovoltage behavior in perovskite solar cells under light-soaking showing photoinduced interfacial changes. *ACS Energy Letters*. 2017;2(5):950–956. DOI: 10.1021/acsenergylett.7b00212.

12. Yicheng Zhao, Wenke Zhou, Hairen Tan, Rui Fu, Qi Li, Fang Lin, et al. Mobile-ion-induced degradation of organic hole-selective layers in perovskite solar cells. *The Journal of Physical Chemistry C.* 2017;121(27):14517–14523. DOI: 10.1021/acs.jpcc.7b04684.

13. de Souza ECC, Muccillo R. Properties and applications of perovskite proton conductors. *Materials Research*. 2010;13(3):385–394. DOI: 10.1590/S1516-14392010000300018.

14. Christians JA, Miranda Herrera PA, Kamat PV. Transformation of the excited state and photovoltaic efficiency of CH₃NH₃PbI₃ perovskite upon controlled exposure to humidified air. *Journal of the American Chemical Society*. 2015;137(4):1530–1538. DOI: 10.1021/ja511132a.

15. Dian Wang, Wright M, Elumalai NK, Uddin A. Stability of perovskite solar cells. Solar Energy Materials and Solar Cells. 2016;147:255–275. DOI: 10.1016/j.solmat.2015.12.025.

16. Khenkin M, Anoop KM, Visoly-Fisher I, Kolusheva S, Galagan Yu, Di Giacomo F, et al. Dynamics of photoinduced degradation of perovskite photovoltaics: from reversible to irreversible processes. *ACS Applied Energy Materials*. 2018;1(2):799–806. DOI: 10.1021/acsaem.7b00256.

17. Prete M, Khenkin MV, Glowienka D, Patil BR, Lissau JS, Dogan I, et al. Bias-dependent dynamics of degradation and recovery in perovskite solar cells. *ACS Applied Energy Materials*. 2021;4(7):6562–6573. DOI: 10.1021/acsaem.1c00588.

18. Khenkin MV, Anoop KM, Visoly-Fisher I, Di Giacomo F, Dogan I, Patil BR, et al. Peculiarities of perovskite photovoltaics degradation and how to account for them in stability studies. In: 47th IEEE photovoltaic specialists conference (PVSC); 2020 June 15 – August 21; Calgary, Canada. [S. 1.]: Institute of Electrical and Electronics Engineers; 2020. p. 0305–0308. DOI: 10.1109/PVSC45281. 2020.9300576.

19. Mahon NS, Korolik OV, Khenkin MV, Arnaoutakis GE, Galagan Yu, Soriūtė V, et al. Photoluminescence kinetics for monitoring photoinduced processes in perovskite solar cells. *Solar Energy*. 2020;195:114–120. DOI: 10.1016/j.solener.2019.11.050.

20. Ledinský M, Löper P, Niesen B, Holovský J, Soo-Jin Moon, Jun-Ho Yum, et al. Raman spectroscopy of organic-inorganic halide perovskites. *The Journal of Physical Chemistry Letters*. 2015;6(3):401–406. DOI: 10.1021/jz5026323.

> Получена 09.09.2021 / исправлена 29.09.2021 / принята 04.10.2021. Received 09.09.2021 / revised 29.09.2021 / accepted 04.10.2021.

Физика дозиметрии облучения

$\mathbf{P}_{\mathrm{HYSICS}}$ of radiation dosimetry

УДК 539.1.08:539.16.08

ОЦЕНКА ВКЛАДА РАССЕЯННОГО ИОНИЗИРУЮЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ В ПОКАЗАНИЯ ДОЗИМЕТРА ПРИ ИЗМЕРЕНИЯХ В НИЗКОФОНОВОЙ КАМЕРЕ

А. А. ЗАГОРОДНЮК¹⁾, Р. В. ЛУКАШЕВИЧ¹⁾

¹⁾Атомтех, ул. Гикало, 5, 220005, г. Минск, Беларусь

С помощью моделирования Монте-Карло оценен вклад ионизирующего гамма-излучения, рассеянного на конструкционных материалах, в суммарную мощность дозы при измерениях в низкофоновой камере. В компьютерной программе *Fluka* создана модель низкофоновой камеры и размещенных в ней сцинтилляционного дозиметрического блока детектирования БДКГ-05К и точечного источника гамма-излучения с радионуклидом ¹³⁷Сs. Доля рассеянного излучения рассчитана путем сравнения модельных показаний прибора при измерении мощности дозы в внутри низкофоновой камеры с модельными показаниями прибора при измерении мощности дозы в вакууме (в последнем случае рассеянное излучение отсутствует). Моделирование выполнено для двух положений прибора относительно источника (на расстоянии 30 и 100 см). Установлено, что максимальный вклад рассеянного излучения в мощность дозы достигает 38 %. Для минимизации вклада рассеянного излучения в мощность дозы использована конструкция в виде коллиматора, внутри которого располагается источник. Дополнительно исследована зависимость мощности дозы, формируемой рассеянным излучением, от конструктивных особенностей коллиматора. Показано, что использование коллиматора позволяет снизить вклад рассеянного излучения до 3 %. Цель работы – оценка доли рассеянного излучения и расчет оптимальной конструкции коллиматора, при которой вклад рассеянного излучения, то истора в позволяет снизить вклад рассеянного излучения в суммарную мощность дозы будет минимальным.

Ключевые слова: моделирование Монте-Карло; *Fluka*; низкофоновая камера; ионизирующее излучение; дозиметрия; рассеянное излучение.

Образец цитирования:

Загороднюк АА, Лукашевич РВ. Оценка вклада рассеянного ионизирующего излучения в показания дозиметра при измерениях в низкофоновой камере. *Журнал Белорусского государственного университета.* Физика. 2022;1:98–108. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-98-108

Авторы:

Алексей Александрович Загороднюк – инженер 2-й категории сектора дозиметрии.

Роман Васильевич Лукашевич – начальник сектора дозиметрии.

For citation:

Zaharadniuk AA, Lukashevich RV. Estimation of the contribution of scattered ionising radiation to the dosimeter readings during measurements inside a low-background chamber. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2022;1:98–108. Russian. https://doi.org/10.33581/2520-2243-2022-1-98-108

Authors:

Aleksei A. Zaharadniuk, engineer of the 2nd category at the dosimetry sector. *fiz.zagorodnaa@gmail.com*

Roman V. Lukashevich, head of the dosimetry sector. *lukashevich@atomtex.com*

ESTIMATION OF THE CONTRIBUTION OF SCATTERED IONISING RADIATION TO THE DOSIMETER READINGS DURING MEASUREMENTS INSIDE A LOW-BACKGROUND CHAMBER

A. A. ZAHARADNIUK^a, R. V. LUKASHEVICH^a

^aAtomtex, 5 Hikala Street, Minsk 220005, Belarus Corresponding author: A. A. Zaharadniuk (fiz.zagorodnaa@gmail.com)

The article evaluates the contribution of ionising gamma radiation scattered by structural materials when measuring the dose rate in a low-background chamber. The contribution of scattered radiation to the total dose rate was estimated using Monte Carlo simulations. A model of a low-background camera and a BDKG-05K dosimeter was created in the computer program *Fluka*. In addition, a model of a point source of ¹³⁷Cs gamma radiation was placed in the low-background chamber. The fraction of scattered radiation was calculated by comparing the dosimeter readings when measuring the dose rate inside the low-background chamber with the reference model (the dosimeter model is placed together with the source in a vacuum, as a result, scattered radiation is completely absent). The calculation was carried out for two positions of the dosimeter relative to the source (30 and 100 cm). It was found that the contribution of scattered radiation to the dose rate reaches 38 % (distance from the source to the detector is 100 cm). To minimise the contribution of scattered radiation to the readings of the dosimeter, a design in the form of a collimator, inside which the source is located, was considered. Additionally, the work investigated the dependence of the dose rate formed by the scattered radiation on the design features of the collimator. It was found that the use of a collimator makes it possible to reduce the contribution of scattered radiation to 3 %. The aim of the work was to calculate the optimal design of the collimator, in which the contribution of scattered radiation to the total dose rate will be minimal. The results of the work will be used to create a prototype of a low-background camera and an optimised collimator.

Keywords: Monte Carlo modelling; Fluka; low-background chamber; ionising radiation; dosimetry; scattering radiation.

Введение

В настоящее время измерение полей ионизирующего излучения, формирующих низкие и сверхнизкие мощности дозы (МД), является актуальной и востребованной задачей в таких областях науки и техники, как радиационный мониторинг, ядерная и радиационная безопасность, метрология и др. [1]. Для измерения МД в подобных околофоновых радиационных полях необходимо использовать высокочувствительные дозиметры (например, с детекторами на основе неорганических сцинтилляторов).

У дозиметра нижняя граница измерения МД в заданной точке в основном определяется МД, формируемой фоновым излучением. Под фоновым излучением подразумевается излучение, создаваемое любыми источниками ионизирующего излучения, отличными от измеряемого образца (или источника). Типичными источниками фонового излучения являются:

1) естественные радионуклиды, распределенные в почве и стройматериалах (40 K, 226 Ra, 232 Th) [2];

2) космическое излучение, представленное на поверхности планеты потоком протонов, нейтронов, мюонов, электронов, позитронов и фотонов [3];

3) промышленные и техногенные радионуклиды, попавшие в атмосферу в результате испытания ядерного оружия либо аварий на ядерных объектах (¹³⁷Cs, ²⁴¹Am, ⁶⁰Co).

Для обеспечения измерений низкоактивных образцов, а также калибровки дозиметров в диапазонах МД ниже фоновых значений используются подземные низкофоновые лаборатории, расположенные в соляных шахтах (лаборатория UDO II PTB (Physikalisch-Technische Bundesanstalt) в Германии и лаборатория IFIN-HH (Institutul Național de Cercetare-Dezvoltare pentru Fizică și Inginerie Nucleară «Horia Hulubei») в Румынии) [4]. Однако измерения и калибровки по МД в околофоновых полях фотонного излучения в таких лабораториях ограничены их расположением, что создает определенные сложности при проведении периодических измерений. Альтернативным решением данной задачи может быть применение низкофоновых защитных камер. Типичная низкофоновая камера, как правило, представляет собой полость, окруженную слоем конструкционного материала, основное предназначение которого – снижение интенсивности внешнего ионизирующего излучения в целях минимизации его влияния на дозиметр, находящийся внутри данной камеры. Путем подбора конструкционных материалов и толщины стенки можно добиться того, чтобы МД фонового излучения внутри камеры не превышала 2 нЗв/ч.

В процессе проведения измерений в низкофоновой камере, помимо излучения, приходящего непосредственно от источника (излучение в прямом пучке), на детектор попадает излучение, рассеянное на конструкционных материалах стенок. Интенсивность и спектр рассеянного излучения при заданных характеристиках источника сильно зависят как от материалов стенок, так и от геометрии самой камеры. Рассеянное излучение является нежелательным ввиду того, что оно искажает показания дозиметра, внося существенную погрешность в результат измерения. Одним из возможных способов минимизации влияния рассеянного излучения на показания прибора при измерениях МД в низкофоновой камере выступает использование дополнительного устройства – коллиматора, позволяющего существенно снизить интенсивность излучения вне прямого пучка.

Основной целью данной работы являлись оценка вклада рассеянного излучения при измерениях МД, создаваемой точечным источником ¹³⁷Cs, в низкофоновой камере большого размера (внутренний объем камеры – 0,83 м³) и расчет оптимальной конструкции коллиматора, позволяющей минимизировать этот вклад. Результаты работы будут использованы при создании опытного образца рабочего эталона 3-го разряда, предназначенного для поверки, калибровки и исследований дозиметрических средств измерений по МД в диапазоне 0,03–0,30 мкЗв/ч в соответствии с поверочной схемой¹.

Методика исследования

Оценка вклада рассеянного излучения была проведена с помощью моделирования Монте-Карло путем создания компьютерной модели низкофоновой камеры в программе *Fluka*² (версия 4.1.1) [5]. Данная программа является кодом Монте-Карло широкого профиля, позволяющим моделировать взаимодействие ионизирующего излучения с веществом. В общем виде алгоритм расчета вклада рассеянного излучения в значение МД может быть представлен следующей последовательностью действий:

1) создание и верификация компьютерной модели детектора, т. е. построение компьютерной модели Монте-Карло и ее сравнение с реальным прибором;

2) расчет референсных значений МД, формируемой точечным источником ионизирующего излучения, расположенным на заданном расстоянии относительно переднего края модели дозиметра (прибор и источник размещены в вакууме, следовательно, в такой модели полностью отсутствует рассеянное излучение);

3) создание модели низкофоновой камеры и расчет значений МД, формируемой точечным источником внутри камеры в той же геометрии, которая использовалась в п. 2;

4) создание модели коллиматора и расчет МД внутри низкофоновой камеры при размещении источника излучения внутри коллиматора в геометрии, используемой в п. 2, а также определение оптимальной конструкции коллиматора путем варьирования его параметров.

Создание и верификация компьютерной модели детектора

В качестве основы для построения компьютерной модели детектора использовался блок детектирования БДКГ-05К, разработанный и произведенный предприятием «Атомтех» (детектор – сцинтилляционный кристалл NaI(Tl) размером 40 × 40 мм; количество каналов АЦП – 1024, диапазон энергий – от 40 кэВ до 3 МэВ, диапазон измерения МД – от 100 нЗв/ч до 50 мкЗв/ч, предел основной относительной погрешности измерения МД – 7 %).

Создание и верификация модели (рис. 1) происходили согласно алгоритму, описанному в работах [6; 7].

Шаг 1. Реальный прибор, работающий в спектрометрическом режиме, последовательно облучался излучением набора радионуклидов с известным спектром. В качестве опорных радионуклидов в эксперименте использовались следующие источники гамма-излучения: ²⁴¹Am, ¹³⁹Ce, ⁵⁷Co, ¹³⁷Cs, ⁵⁴Mn, ²²Na, ¹¹³Sn, ⁸⁸Y, ⁶⁵Zn. В результате измерений был получен набор аппаратурных спектров прибора.

Шаг 2. Путем анализа параметров пиков полного поглощения аппаратурных спектров строилась кривая зависимости полной ширины пика на полувысоте от положения центроиды этого пика на энергетической шкале. Далее кривая аппроксимировалась следующей формулой в целях определения не-

$$FWHM_i = a + b\sqrt{E_i + cE_i^2},\tag{1}$$

где $FWHM_i$ – полная ширина на полувысоте *i*-го пика полного поглощения; *a*, *b*, *c* – определяемые константы; E_i – энергия центроиды *i*-го пика полного поглощения.

обходимых констант [7; 8; 9, р. 2-106]:

¹Государственная поверочная схема для средств измерений кермы в воздухе, мощности кермы в воздухе, экспозиционной дозы, мощности экспозиционной дозы, амбиентного, направленного и индивидуального эквивалентов дозы, мощностей амбиентного, направленного и индивидуального и индивидуального эквивалентов дозы, мощностей амбиентного, направленного и индивидуального эквивалентов дозы и потока энергии рентгеновского и гамма-излучений : утв. Федер. агентством по техн. регулированию и метрологии. М. : Росстандарт, 2020. 13 с.

²Fluka-4 manual [Electronic resource]. URL: https://flukafiles.web.cern.ch/manual/fluka.html (date of access: 03.08.2021).

Шаг 3. Компьютерная модель прибора, разработанная в программе *Fluka*, последовательно облучалась при тех же условиях, при которых происходил набор аппаратурных спектров в шаге 1. Результатом данного расчета является набор модельных спектров. Далее модельные спектры сворачивались с функцией, описываемой уравнением [9, р. 2-106]:

$$F(E) = Ce^{-\left(\frac{2\sqrt{\ln 2}(E-E_0)}{a+b\sqrt{E+cE^2}}\right)^2},$$

где *a*, *b*, *c* – константы, определяемые из уравнения (1); *E*₀ – энергия центроиды пика полного поглощения; *E* – энергия (значение из заданного энергетического диапазона); *C* – нормировочная константа.



Puc. 1. Модель детектора БДКГ-05К с указанием основных конструкционных материалов *Fig. 1.* Model of the BDKG-05K detector with main construction materials

Верификация модели была произведена путем сопоставления аппаратурного спектра, полученного при измерении излучения радионуклида ¹³⁷Cs, с модельным спектром (рис. 2). Результат сопоставления показал, что модель адекватно описывает поведение реального прибора и может быть использована для дальнейших расчетов.



Puc. 2. Сравнение аппаратурного и модельного спектров для радионуклида ¹³⁷Cs *Fig. 2.* Comparison of measured and modelled spectra of ¹³⁷Cs radionuclide

Расчет референсных значений МД

Референсные значения МД, создаваемой полем излучения точечного источника ¹³⁷Cs, определялись путем расчета компьютерной модели, в которой прибор расположен в вакууме на заданном расстоянии относительно источника. При таких начальных условиях в модели полностью отсутствует рассеянное излучение, что позволяет использовать результаты расчета в качестве истинного значения МД, формируемой этим источником.

Метод Монте-Карло позволяет рассчитывать характеристики поля ионизирующего излучения и результат его взаимодействия с веществом. В данной работе программа вычисляла спектр излучения, поглощенного в активном объеме прибора. Для того чтобы смоделировать режим измерения МД реального дозиметра, над модельным спектром был проведен ряд математических преобразований:

1) модельный спектр нормировался на активность реального источника излучения;

2) нормированный модельный спектр разбивался на энергетические интервалы, соответствующие энергетическим окнам реального прибора, работающего в режиме измерения МД;

3) для каждого энергетического интервала определялось суммарное количество попавших в него импульсов. Результирующая МД (D) вычислялась по формуле [10]

$$D = \Sigma_i n_i \cdot a_i,$$

где n_i – суммарное количество импульсов в *i*-м энергетическом интервале; a_i – коэффициент перевода количества импульсов в МД.

Дополнительно МД рассчитывалась аналитически для случая точечного источника с заданной активностью при отсутствии рассеянного излучения [11, р. 25, 69]:

$$D = \Sigma_i \Phi_i \cdot E_i \left(\frac{\mu_{en}}{\rho}\right)_i,$$

где Φ_i – плотность потока в *i*-м энергетическом интервале; E_i – средняя энергия фотонов в *i*-м энергети-

ческом интервале; $\left(\frac{\mu_{en}}{\rho}\right)_i$ – массовый коэффициент передачи энергии в *i*-м энергетическом интервале.

Создание модели низкофоновой камеры

Рассматриваемая в данной работе низкофоновая камера представляет собой параллелепипед размером 1476 × 765 × 750 мм, окруженный несколькими слоями конструкционных материалов (рис. 3). Внешний слой толщиной 3 см выполнен из полиэтилена и предназначен для поглощения внешнего нейтронного излучения. Промежуточный слой толщиной 10 см изготовлен из свинца и служит для поглощения внешнего гамма-излучения. Внутренний слой толщиной 1 см выполнен из стали и предназначен для поглощения характеристического излучения свинца и рассеянного излучения из промежуточного слоя.



Рис. 3. Модель низкофоновой камеры с указанием конструкционных материалов для случая, когда расстояние между источником и детектором равно 100 см *Fig. 3.* Low-background chamber model with construction materials

for the case when the distance between the source and the detector is 100 cm

Внутри низкофоновой камеры возле одной из стенок располагается точечный источник ¹³⁷Cs. На заданном расстоянии от источника (в работе рассматриваются два стандартных расстояния – 30 и 100 см) находится детектор. Расположение источника возле стенки связано с условиями эксплуатации, а именно с необходимостью размещения детекторов различного размера и соединительных кабелей для приборов внутри камеры. Модель рассчитывает МД, генерируемую источником в точке расположения прибора. Доля МД, формируемая рассеянным излучением, определяется как превышение показаний дозиметра над референсным значением. Ввиду отсутствия дополнительных узлов, ограничивающих поле излучения источника, количество рассеянного излучения, приходящееся на прибор при заданной геометрии его расположения, будет максимальным.

Создание модели коллиматора

Введение в конструкцию низкофоновой камеры дополнительного узла – коллиматора – необходимо для ограничения вклада излучения, рассеянного от конструкционных материалов стенок камеры.

Конструктивно коллиматор представляет собой полость, окруженную свинцом толщиной 6 см, внутри которой расположен точечный источник фотонного излучения. Предварительный аналитический расчет показал, что данной толщины достаточно, чтобы ослабить излучение радионуклида ¹³⁷Cs по МД в 1000 раз (с учетом фактора накопления). В одной из стенок коллиматора имеется отверстие, формирующее пространственный профиль поля прямого пучка (рис. 4). В работе исследовалась зависимость количества вторичного излучения, приходящего на детектор, от конструктивных особенностей коллиматора, а именно угла полураствора диафрагмы α и расстояния от точечного источника до передней стенки коллиматора *L*. Количество разыгранных историй для каждой модели Монте-Карло составляло 5 млрд. Варьируемые характеристики коллиматора для каждой модели представлены в табл. 1.



Рис. 4. Конструктивная схема коллиматора с размещенным внутри него точечным источником (буквами обозначены варьируемые в модели параметры:
α – угол полураствора диафрагмы; *L* – расстояние между источником и диафрагмой) (*a*) и трехмерная модель коллиматора, прикрепленная к стенке низкофоновой камеры (*б*)
Fig. 4. Collimator principle scheme with point source inside (the letters on the figure stands)

for variable parameters: α – diaphragm half-angle; L – distance between source and diaphragm) (a) and three-dimensional model of the collimator, placed on the wall of the chamber (b)

Таблица 1

Параметры коллиматора, варьируемые в моделях

Table 1

Модель	Расстояние между источником и диафрагмой (<i>L</i>), см	Толщина диафрагмы (D), см	Угол полураствора диафрагмы (α)*, град
Модель 1	1,9	6	11,76
Модель 2	1,9	6	18,43
Модель 3	0,6	6	13,89
Модель 4	2,6	6	13,89
Модель 5	4,6	6	13,89
Модель 6	1,9	6	13,89

Collimator variable parameters

*Угол полураствора 11,76° соответствует диаметру поля 12,5 см (41,0 см) на расстоянии 30 см (100 см), угол полураствора 13,89° – диаметру поля 14,8 см (49,0 см) на расстоянии 30 см (100 см), угол полураствора 18,43° – диаметру поля 20,0 см (66,6 см) на расстоянии 30 см (100 см).

Дополнительно были рассмотрены две модели:

• модель точечного источника без коллиматора (модель А) (полагается, что при данной геометрии количество вторичного рассеянного излучения будет максимальным);

• модель точечного источника в вакууме вне низкофоновой камеры (референсная модель Р) (полагается, что при данной геометрии рассеянное излучение отсутствует).

На основании расчета моделей и последующего анализа результатов делается вывод о зависимости интенсивности рассеянного излучения от параметров коллиматора, а также определяется его оптимальная конструкция.

Оценка МД фонового излучения

Предварительная оценка МД внутри низкофоновой камеры, обусловленной внешним фоновым излучением, создаваемым в основном мюонной компонентой, была произведена путем прямых измерений [4] согласно следующей методике:

• для оценки собственного фона прибора детектор на основе блока детектирования БДКГ-05К размещался в низкофоновой лаборатории IFIN-HH в Румынии. Расположение данной лаборатории в соляной шахте и дополнительная свинцовая защита вокруг детектора позволяют пренебречь вкладом внешнего фонового излучения в показания прибора. В отсутствие других источников излучения при такой конфигурации эксперимента прибор измеряет исключительно собственный фон, обусловленный содержанием радионуклида ⁴⁰К в стекле фотоэлектронного умножителя детектора;

• далее прибор размещался внутри низкофоновой камеры, по составу и толщине защиты аналогичной камере, рассматриваемой в данной работе, но меньшего размера (внутренний объем камеры – 0,125 м³). Мощность дозы, измеряемая детектором внутри этой низкофоновой камеры, состоит из двух компонент – компоненты, обусловленной внешним фоновым излучением, и компоненты, обусловленной собственным фоновым излучением, и компоненты, обусловленной собственным фоновым излучением, и компоненты, обусловленной собственным фоновым излучением.

• МД внутри низкофоновой камеры, создаваемая внешним фоновым излучением, определялась путем вычитания МД, обусловленной собственным фоновым излучением прибора, из МД, измеренной внутри низкофоновой камеры.

Согласно результатам измерения МД, обусловленная собственным фоном прибора, составляет 1,36 ± 0,11 нЗв/ч; МД, измеренная внутри низкофоновой камеры, – 3,64 ± 0,51 нЗв/ч; МД, создаваемая внешним фоновым излучением, – 2,28 ± 0,62 нЗв/ч.

Результаты и их обсуждение

Результаты расчета приведены в табл. 2–5. В табл. 2 и 3 представлены результаты для всех моделей с указанием погрешностей, выраженных в процентном отношении к расчетным значениям. В табл. 4 и 5 приведены результаты расчета относительного отклонения МД от референсного значения в зависимости от варьируемых параметров. Для наглядности данные табл. 4 и 5 представлены графически на рис. 5 и 6.

Таблица 2

Результаты расчета для расстояния между источником и детектором 100 см

Table 2

Модель	Полная МД, Зв/ч	Референсная МД (модель Р), Зв/ч	МД рассеянного излучения, Зв/ч	Доля МД рассеянного излучения, %	Погрешность расчета, %
	·	100 кБк ¹³	³⁷ Cs		
Модель А	1,095E-08	7,926E-09	3,041E-09	38,111	0,701
Модель 1	8,153E-09	7,926E-09	2,313E-10	2,861	0,521
Модель 2	8,380E-09	7,926E-09	4,605E-10	5,721	0,541
Модель 3	8,427E-09	7,926E-09	5,083E-10	6,316	0,533
Модель 4	8,160E-09	7,926E-09	2,461E-10	2,945	0,525
Модель 5	8,120E-09	7,926E-09	2,088E-10	2,448	0,526
Модель 6	8,205E-09	7,926E-09	2,842E-10	3,516	0,525

Calculation results for distance between source and detector 100 cm

Таблица З

Результаты расчета для расстояния между источником и детектором 30 см

Table 3

Модель	Полная МД, Зв/ч	Референсная МД (модель Р), Зв/ч	МД рассеянного излучения, Зв/ч	Доля МД рассеянного излучения, %	Погрешность расчета, %
		100 кБк ¹	³⁷ Cs		
Модель А	9,022E-08	7,946E-08	1,087E-08	13,547	0,192
Модель 1	8,180E-08	7,946E-08	2,341E-09	2,947	0,162
Модель 2	8,265E-08	7,946E-08	3,207E-09	4,018	0,164
Модель 3	8,434E-08	7,946E-08	4,877E-09	6,138	0,165
Модель 4	8,178E-08	7,946E-08	2,323E-09	2,923	0,162
Модель 5	8,149E-08	7,946E-08	2,030E-09	2,555	0,163
Модель 6	8,213E-08	7,946E-08	2,673E-09	3,363	0,163

Calculation results for distance between source and detector 30 cm

Таблица 4

Зависимость количества рассеянного излучения от размера поля (параметр α) при расстоянии между источником и диафрагмой L = 1,9 см

Table 4

Scattering radiation versus field size dependence (parameter α) at a distance between source and diaphragm L = 1.9 cm

Малалт	Количество рассеянного излучения, %						
модель	$\alpha = 11,76^{\circ}$	α = 13,89°	$\alpha = 18,43^{\circ}$				
	Расстояние между источником и детектором 100 см						
Модель 1	2,861	_	_				
Модель 2	_	_	5,721				
Модель 6	_	3,516	_				
Расстояние между источником и детектором 30 см							
Модель 1	2,947	_	_				
Модель 2	_	_	4,018				
Модель 6	_	3,363	_				

Таблица 5

Зависимость количества рассеянного излучения от расстояния между источником и диафрагмой (параметр L) при угле полураствора диафрагмы $\alpha = 13,89^{\circ}$

Table 5

Scattering radiation versus distance between source and diaphragm (parameter L) at half angle of the diaphragm $\alpha = 13.89^{\circ}$

Малали	Количество рассеянного излучения, %						
модель	<i>L</i> = 0,6 см	<i>L</i> = 1,9 см	<i>L</i> = 2,6 см	<i>L</i> = 4,6 см			
	Расстояние между источником и детектором 100 см						
Модель 3	6,316	_	_	_			
Модель 4	—	_	2,945	_			
Модель 5	_	_	_	2,448			
Модель 6	—	3,516	_	_			
Расстояние между источником и детектором 30 см							
Модель 3	6,138	_	_	_			
Модель 4	_	_	2,923	_			

Окончание табл. 5 Ending table 5

Молоти	Количество рассеянного излучения, %			
модель	<i>L</i> = 0,6 см	<i>L</i> = 1,9 см	<i>L</i> = 2,6 см	<i>L</i> = 4,6 см
Модель 5	_	_	_	2,555
Модель 6	_	3,363	_	_



Puc. 5. Зависимость количества рассеянного излучения от угла полураствора диафрагмы Fig. 5. Scattering radiation versus field size dependence



Fig. 6. Scattering radiation versus distance between source and diaphragm

Исходя из результатов расчета, можно сделать вывод, что количество рассеянного излучения внутри низкофоновой камеры сильно зависит от расстояния между источником и детектором при условии измерения МД без дополнительных узлов, ограничивающих поле излучения источника. Однако добавление коллиматора в конструкцию низкофоновой камеры позволяет существенно снизить количество рассеянного излучения, приходящего на детектор. Так, в случае отсутствия коллиматора максимальное количество рассеянного излучения составляет 38 % (модель А при расстоянии между источником и детектором 100 см) и 13,5 % (модель А при расстоянии между источником и детектором 30 см) относительно референсного значения. Согласно результатам моделирования при использовании источника с активностью 100 кБк вклад рассеянного излучения внутри низкофоновой камеры сопоставим с вкладом внешнего фонового излучения (для расстояния между источником и детектором 30 см) либо же превосходит его (для расстояния между источником и детектором 100 см).

Применение коллиматора при измерениях МД позволяет снизить вклад рассеянного излучения до 2,5 % для обеих геометрий измерения и тем самым уменьшить зависимость относительного количества рассеянного излучения, попадающего в детектор, от расстояния между источником и детектором (см. табл. 2 и 3, модель 5).

Согласно результатам расчета при использовании коллиматора и источника с активностью 100 кБк вклад рассеянного излучения меньше вклада внешнего фонового излучения (для расстояния между источником и детектором 30 см) или примерно равен ему (для расстояния между источником и детектором 100 см).

При использовании коллиматора вклад рассеянного излучения в МД сильно зависит от расстояния между точечным источником и внутренней поверхностью диафрагмы (см. табл. 5). Исходя из анализа зависимости, представленной на рис. 6, можно сделать вывод, что с ростом этого расстояния интенсивность рассеянного излучения падает по экспоненте.

При увеличении угла полураствора отверстия диафрагмы вклад рассеянного излучения в МД возрастает (см. табл. 4). Это можно объяснить ростом площади внутренней поверхности защитной камеры, на которую приходит излучение прямого пучка. Как следствие, увеличивается телесный угол, занимаемый данной площадью относительно детектора. Это предположение подтверждается более крутой зависимостью вклада рассеянного излучения в МД от угла раствора для расстояния между источником и детектором, равного 100 см, по сравнению с таковой для расстояния между источником и детектором, равного 30 см. При некотором значении угла раствора диафрагмы излучение прямого пучка начинает падать на боковые стенки камеры, что приводит к еще большему увеличению количества рассеянного излучения, приходящего на детектор, поэтому при проведении измерений в низкофоновой камере рекомендуется выбирать диафрагму с минимально возможным углом раствора.

Результаты моделирования показывают, что наиболее оптимальной конструкцией с точки зрения минимизации количества рассеянного излучения обладает коллиматор с удлиненным профилем и толщиной стенок 6 см (модель 5). Дальнейшее увеличение длины коллиматора (для увеличения расстояния между источником и диафрагмой L) является сложноисполнимым ввиду значительного роста массы такой конструкции. Ограничение, накладываемое на минимальный угол полураствора диафрагмы, обусловлено требованием к минимальному размеру поля излучения в поперечнике: при калибровке приборов активная часть детектора должна полностью располагаться внутри поля прямого пучка (при расположении детектора как торцевой, так и боковой поверхностью перпендикулярно оси прямого пучка).

Библиографические ссылки

1. Hassan NM, Kim YJ, Jang J, Chang BU, Chae JS. Comparative study of precise measurements of natural radionuclides and radiation dose using *in situ* and laboratory γ -ray spectroscopy techniques. *Scientific Reports*. 2018;8(1):14115. DOI: 10.1038/s41598-018-32220-9.

2. Shahbazi-Gahrouei D, Gholami M, Setayandeh S. A review on natural background radiation. *Advanced Biomedical Research*. 2013;2(3):65. DOI: 10.4103/2277-9175.115821.

3. Cinelli G, Gruber V, De Felice L, Bossew P, Hernandez-Ceballos MA, Tollefsen T, et al. European annual cosmic-ray dose: estimation of population exposure. *Journal of Maps.* 2017;13(2):812–821. DOI: 10.1080/17445647.2017.1384934.

4. Lukashevich R, Verhusha Y, Guzov V, Kozemyakin V. Application scintillation comparators for calibration low intense gamma radiation fields by dose rate in the range of 0.03–0.1 μSv/h. In: Korzhik M, Gektin A, editors. *Engineering of scintillation materials and radiation technologies. Selected articles of ISMART2018.* Cham: Springer; 2019. p. 221–235 (Springer proceedings in physics; volume 227). DOI: 10.1007/978-3-030-21970-3_16.

5. Battistoni G, Boehlen T, Cerutti F, Chin PW, Esposito LS, Fassò A, et al. Overview of the FLUKA code. *Annals of Nuclear Energy*. 2015;82:10–18. DOI: 10.1016/j.anucene.2014.11.007.

6. Загороднюк АА, Лукашевич РВ, Сеньковский КГ, Новиченко АВ. Модифицированный метод коррекции аппаратурного спектра детектора на основе особо чистого германия. *АНРИ*. 2020;4:14–28. DOI: 10.37414/2075-1338-2020-103-4-14-28.

7. Salgado CM, Brandão LEB, Schirru R, Pereira CMNA, Conti CC. Validation of a NaI(Tl) detector's model developed with MCNP-X code. *Progress in Nuclear Energy*. 2012;59:19–25. DOI: 10.1016/j.pnucene.2012.03.006.

8. Загороднюк АА, Корнеев СВ. Разработка компьютерной модели германиевого детектора и получение модельных спектров стандартных образцов урана U₃O₈ SRM-969. Известия Национальной академии наук Беларуси. Серия физико-технических наук. 2017;3:92–100.

9. X-5 Monte Carlo Team. *MCNP – a general Monte Carlo N-particle transport code, version 5. Volume 1. Overview and theory* [Internet]. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory; 2003 April 24 [cited 2021 August 3]. Report No. LA-UR-03-1987. Available from: https://mcnp.lanl.gov/pdf_files/la-ur-03-1987.pdf.

10. Лукашевич РВ, Фоков ГА. Применение спектрометрического метода расчета мощности дозы для создания высокочувствительных образцовых средств измерения на базе сцинтилляционных блоков детектирования. *Приборы и методы измере*ний. 2017;8(3):246–253. DOI: 10.21122/2220-9506-2017-8-3-246-253.

11. Attix FH. Introduction to radiological physics and radiation dosimetry. Weinheim: Wiley-VCH; 1986. 624 p. DOI: 10.1002/ 9783527617135.

References

1. Hassan NM, Kim YJ, Jang J, Chang BU, Chae JS. Comparative study of precise measurements of natural radionuclides and radiation dose using *in situ* and laboratory γ -ray spectroscopy techniques. *Scientific Reports*. 2018;8(1):14115. DOI: 10.1038/s41598-018-32220-9.

2. Shahbazi-Gahrouei D, Gholami M, Setayandeh S. A review on natural background radiation. *Advanced Biomedical Research*. 2013;2(3):65. DOI: 10.4103/2277-9175.115821.

3. Cinelli G, Gruber V, De Felice L, Bossew P, Hernandez-Ceballos MA, Tollefsen T, et al. European annual cosmic-ray dose: estimation of population exposure. *Journal of Maps.* 2017;13(2):812–821. DOI: 10.1080/17445647.2017.1384934.

4. Lukashevich R, Verhusha Y, Guzov V, Kozemyakin V. Application scintillation comparators for calibration low intense gamma radiation fields by dose rate in the range of 0.03–0.1 μSv/h. In: Korzhik M, Gektin A, editors. *Engineering of scintillation materials and radiation technologies. Selected articles of ISMART2018.* Cham: Springer; 2019. p. 221–235 (Springer proceedings in physics; volume 227). DOI: 10.1007/978-3-030-21970-3 16.

5. Battistoni G, Boehlen T, Cerutti F, Chin PW, Esposito LS, Fassò A, et al. Overview of the FLUKA code. *Annals of Nuclear Energy*. 2015;82:10–18. DOI: 10.1016/j.anucene.2014.11.007.

6. Zaharadniuk AA, Lukashevich RV, Syankovsky KG, Novichenko AV. A modified method for correcting instrumental spectrum of high hurity germanium detector. *ANRI*. 2020;4:14–28. Russian. DOI: 10.37414/2075-1338-2020-103-4-14-28.

7. Salgado CM, Brandão LEB, Schirru R, Pereira CMNA, Conti CC. Validation of a NaI(Tl) detector's model developed with MCNP-X code. *Progress in Nuclear Energy*. 2012;59:19–25. DOI: 10.1016/j.pnucene.2012.03.006.

8. Zaharadniuk AA, Korneyev SV. Development of a germanium detector computer model and obtaining model spectra of standard uranium U_3O_8 SRM-969 samples. *Proceedings of the National Academy of Sciences of Belarus. Physical-technical series.* 2017; 3:92–100. Russian.

9. X-5 Monte Carlo Team. *MCNP – a general Monte Carlo N-particle transport code, version 5. Volume 1. Overview and theory* [Internet]. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory; 2003 April 24 [cited 2021 August 3]. Report No. LA-UR-03-1987. Available from: https://mcnp.lanl.gov/pdf files/la-ur-03-1987.pdf.

10. Lukashevich RV, Fokov GA. Application of the spectrometric method for calculating the dose rate for creating calibration highly sensitive instruments based on scintillation detection units. *Devices and Methods of Measurements*. 2017;8(3):246–253. Russian. DOI: 10.21122/2220-9506-2017-8-3-246-253.

11. Attix FH. Introduction to radiological physics and radiation dosimetry. Weinheim: Wiley-VCH; 1986. 624 p. DOI: 10.1002/9783527617135.

Получена 07.09.2021 / исправлена 20.09.2021 / принята 04.10.2021. Received 07.09.2021 / revised 20.09.2021 / accepted 04.10.2021.
АННОТАЦИИ ДЕПОНИРОВАННЫХ В БГУ РАБОТ INDICATIVE ABSTRACTS OF THE PAPERS DEPOSITED IN BSU

УДК 53.08(075.8)

Оджаев В. Б. Техника современного эксперимента [Электронный ресурс] : электрон. учеб.-метод. комплекс для спец. высш. образования второй ступени (магистратура) 1-31 80 20 «Прикладная физика» (профилизация «Функциональные наноматериалы») / В. Б. Оджаев, Ю. В. Сидоренко ; БГУ. Электрон. текстовые дан. Минск : БГУ, 2021. 149 с. : ил. Библиогр.: с. 144–145. Режим доступа: https://elib.bsu.by/ handle/123456789/269528. Загл. с экрана. Деп. в БГУ 28.09.2021, № 009828092021.

Электронный учебно-методический комплекс «Техника современного эксперимента» охватывает круг вопросов, связанных с углубленным освоением ряда методик проведения физического эксперимента, последующего анализа и обработки результатов измерений, а также представлений об оформлении отчетной документации в соответствии с государственными стандартами. Дается описание приборов, использующихся в процессе проведения измерений, представление о цифровых измерительных приборах, о построении эксперимента, об особенностях подготовки экспериментальных данных для устных и стендовых сообщений, статей и тезисов.

УДК 621.373.8(06)+621.375.8(06)

Квантовая электроника [Электронный ресурс] : материалы XIII Междунар. науч.-техн. конф. (Минск, 22–26 нояб. 2021 г.) / БГУ, НИИ прикл. физ. проблем им. А. Н. Севченко БГУ, Ин-т физики им. Б. И. Степанова НАН Беларуси, Белорус. респ. фонд фундам. исслед. ; [редкол.: М. М. Кугейко (отв. ред.), А. А. Афоненко, А. В. Баркова]. Электрон. текстовые дан. Минск : БГУ, 2021. 149 с. : ил. Библиогр.: с. 144–145. Режим доступа: https://elib.bsu.by/handle/123456789/271304. Загл. с экрана. Деп. в БГУ 03.11.2021, № 010503112021.

Сборник содержит материалы XIII Международной научно-технической конференции по следующим научным направлениям: теоретические проблемы квантовой электроники, физика лазеров, системы и методы квантовой электроники, прикладные исследования, методические аспекты преподавания соответствующих дисциплин. Предназначен для специалистов в области квантовой электроники, лазерной физики и приложений этих наук.

СОДЕРЖАНИЕ

ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ

Демеш М. П., Горбаченя К. Н., Кисель В. Э., Волкова Е. А., Мальцев В. В., Копорулина Е. В., Кор- ниенко А. А., Дунина Е. Б., Кулешов Н. В. Рост кристалла и анализ интенсивностей f – f-переходов ионов празеодима в иттрий-алюминиевом ортоборате Слюсаренко С. С., Мельникова Е. А., Толстик А. Л. Запись динамических поляризационных решеток в чистом нематическом жидком кристалле	4 14
посредством фурье-анализа диаметрального распределения интенсивности	20
ЛАЗЕРНАЯ ФИЗИКА	
<i>Никитюк Ю. В., Сердюков А. Н., Аушев И. Ю.</i> Определение параметров двухлучевого лазерного раскалывания силикатных стекол с использованием регрессионных и нейросетевых моделей	35
ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ ФИЗИКА	
Леонов А. В., Феранчук И. Д. Аналитическая диагонализация гамильтониана квантовой мо- дели Раби в кулоновской калибровке Меняйлова Д. Н., Шундалов М. Б., Хань ЮЧ. Транспортные свойства двухкомпонентных радиево-галогенных разреженных газовых сред	44 52
ФИЗИКА КОНЛЕНСИРОВАННОГО СОСТОЯНИЯ	
Жиров Г. И., Гольцова М. В. Водородофазовый наклеп в результате однократных изотерми- ческих гидридных превращений Шепелевич В. Г. Структура быстрозатвердевших фольг сплавов А1 – Ві	65 75
ФИЗИКА И ТЕХНИКА ПОЛУПРОВОДНИКОВ	
Ковальчук Н. С., Марудо Ю. А., Омельченко А. А., Пилипенко В. А., Солодуха В. А., Деми- дович С. А., Колос В. В., Анищик В. М., Филипеня В. А., Шестовский Д. В. Зарядовые свойства тонких подзатворных диэлектриков, полученных методом быстрой термообработки	80
ПРИБОРЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ	
Магонь Н. С., Королик О. В., Мазаник А. В. Методика исследования фотостабильности сол- нечных элементов на основе органо-неорганических перовскитов с помощью конфокального спектрометра	88
ФИЗИКА ДОЗИМЕТРИИ ОБЛУЧЕНИЯ	
Загороднюк А. А., Лукашевич Р. В. Оценка вклада рассеянного ионизирующего излучения в показания дозиметра при измерениях в низкофоновой камере	98
Аннотации депонированных в БГУ работ	109

CONTENTS

OPTICS AND SPECTROSCOPY

Demesh M. P., Gorbachenya K. N., Kisel V. E., Volkova E. A., Maltsev V. V., Koporulina E. V., Kornienko A. A., Dunina E. B., Kuleshov N. V. Crystal growth and f – f transition intensities analysis of praseodymium ions in yttrium-aluminum orthoborates	4
<i>Ryzhevich A. A., Balykin I. V.</i> Determination of the Bessel light beam cone parameter by Fourier analysis of the diametral distribution of the intensity	14 20
LASER PHYSICS	
Nikitjuk Y. V., Serdyukov A. N., Aushev I. Y. Determination of the parameters of two-beam laser splitting of silicate glasses using regression and neural network models	35
THEORETICAL PHYSICS	
Leonau A. U., Feranchuk I. D. Analytical diagonalisation of the Hamiltonian of the quantum Rabi model in the Coulomb gauge	44
Meniailava D. N., Shundalau M. B., Han YC. Transport properties of two-component radium – halogen dilute gas media	52
CONDENSED STATE PHYSICS	
Zhirov G. I., Goltsova M. V. Hydrogen-phase naklep as a result of single isothermal hydride trans-	(5
Shepelevich V. G. The structure of rapidly solidified foil of Al – Bi alloys	65 75
SEMICONDUCTOR PHYSICS AND ENGINEERING	
Kovalchuk N. S., Marudo Y. A., Omelchenko A. A., Pilipenka U. A., Saladukha V. A., Demido- vich S. A., Kolos V. V., Anishchik V. M., Filipenia V. A., Shestovski D. V. Charging properties of thin gate dielectrics, obtained by the method of rapid thermal processing	80
RESEARCH INSTRUMENTS AND METHODS	
Mahon N. S., Korolik O. V., Mazanik A. V. Method for studying the photostability of solar cells based on organic-inorganic perovskites using a confocal spectrometer	88
PHYSICS OF RADIATION DOSIMETRY	
Zaharadniuk A. A., Lukashevich R. V. Estimation of the contribution of scattered ionising radiation to the dosimeter readings during measurements inside a low-background chamber	98
Indicative abstracts of the papers deposited in BSU	109

Журнал включен Высшей аттестационной комиссией Республики Беларусь в Перечень научных изданий для опубликования результатов диссертационных исследований по техническим (экспериментальная и прикладная физика; микро- и наноэлектроника) и физико-математическим наукам. Журнал включен в библиографическую базу данных научных публикаций «Российский индекс научного цитирования» (РИНЦ).

Журнал Белорусского государственного университета. Физика. № 1. 2022

Учредитель: Белорусский государственный университет

Юридический адрес: пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск. Почтовый адрес: пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск. Тел. (017) 259-70-74, (017) 259-70-75. E-mail: jphys@bsu.by URL: https://journals.bsu.by/index.php/physics

«Журнал Белорусского государственного университета. Физика» издается с января 1969 г. До 2017 г. выходил под названием «Вестник БГУ. Серия 1, Физика. Математика. Информатика» (ISSN 1561-834X).

> Редакторы О. А. Семенец, М. А. Подголина Технический редактор В. В. Пишкова Корректор Л. А. Меркуль

> > Подписано в печать 31.01.2022. Тираж 110 экз. Заказ 799.

Издательско-полиграфическое частное унитарное предприятие «Донарит». Свидетельство о государственной регистрации издателя, изготовителя, распространителя печатных изданий № 1/289 от 17.04.2014. Ул. Октябрьская, 25, 220030, Минск, Республика Беларусь. Journal of the Belarusian State University. Physics. No. 1. 2022

Founder: Belarusian State University

Registered address: 4 Niezaliežnasci Ave., Minsk 220030. Correspondence address: 4 Niezaliežnasci Ave., Minsk 220030. Tel. (017) 259-70-74, (017) 259-70-75. E-mail: jphys@bsu.by URL: https://journals.bsu.by/index.php/physics

«Journal of the Belarusian State University. Physics» published since January, 1969. Until 2017 named «Vestnik BGU. Seriya 1, Fizika. Matematika. Informatika» (ISSN 1561-834X).

Editors O. A. Semenets, M. A. Podgolina Technical editor V. V. Pishkova Proofreader L. A. Merkul'

Signed print 31.01.2022. Edition 110 copies. Order number 799.

Publishing and printing private unitary enterprise «Donarit». Certificate of state registration of the publisher, manufacturer, distributor of printed publications No. 1/289 dated 17.04.2014. 25 Kastryčnickaja Str., Minsk 220030, Republic of Belarus.

© БГУ, 2022

© BSU, 2022