



БЕЛОРУССКИЙ
ГОСУДАРСТВЕННЫЙ
УНИВЕРСИТЕТ

ЖУРНАЛ
БЕЛОРУССКОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО УНИВЕРСИТЕТА

ФИЗИКА

JOURNAL
OF THE BELARUSIAN STATE UNIVERSITY

PHYSICS

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

Выходит три раза в год

2

2023

МИНСК
БГУ

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

- Главный редактор** **ВОРОПАЙ Е. С.** – доктор физико-математических наук, профессор; профессор кафедры лазерной физики и спектроскопии физического факультета Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь.
E-mail: voropay@bsu.by
- Заместитель главного редактора** **ТИВАНОВ М. С.** – кандидат физико-математических наук, доцент; декан физического факультета Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь.
E-mail: tivanov@bsu.by
- Ответственный секретарь** **КАБАНОВА О. С.** – кандидат физико-математических наук; научный сотрудник лаборатории нелинейной оптики и спектроскопии кафедры лазерной физики и спектроскопии физического факультета Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь.
E-mail: kabanovaos@bsu.by
- Анищик В. М.* Белорусский государственный университет, Минск, Беларусь.
- Бондаренко Г. Г.* Московский институт электроники и математики Национального исследовательского университета «Высшая школа экономики», Москва, Россия.
- 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 государственного университета, Минск, Беларусь.
- Максименко С. А.* НИУ «Институт ядерных проблем» Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь.
- Маскевич С. А.* Международный государственный экологический институт им. А. Д. Сахарова Белорусского государственного университета, Минск, Беларусь.
- Машлан М.* Оломоуцкий университет им. Палацкого, Оломоуц, Чехия.
- Патрин А. А.* Кошалинский технический университет, Кошалин, Польша.
- Погребняк А. Д.* Сумский государственный университет, Сумы, Украина.
- Рамакришна Редди К. Т.* Университет Шри Венкатесвара, Тирупати, Индия.
- Ремнев Г. Е.* Томский политехнический университет, Томск, Россия.
- Толстик А. Л.* Белорусский государственный университет, Минск, Беларусь.
- Туроверов К. К.* Институт цитологии Российской академии наук, Санкт-Петербург, Россия.
- Ушаков Д. В.* Белорусский государственный университет, Минск, Беларусь.
- Хайнцманн Р.* Институт физической химии Йенского университета, Йена, Германия.
- Чалов В. Н.* Имперский колледж Лондона, Лондон, Великобритания.
- Шандаров С. М.* Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, Томск, Россия.

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.* Государственное научно-производственное объединение «Оптика, оптоэлектроника и лазерная техника» 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 «Белмикродиагностика» 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.* Государственное научно-производственное объединение «Оптика, оптоэлектроника и лазерная техника» Национальной академии наук Беларуси, Минск, Беларусь.
- Федосюк В. М.* ГНПО «Научно-практический центр НАН Беларуси по материаловедению», Минск, Беларусь.
- Шкадаревич А. П.* Научно-производственное унитарное предприятие «Научно-технический центр “ЛЭМТ” БелОМО», Минск, Беларусь.

EDITORIAL BOARD

Editor-in-chief	VOROPAY E. S. , doctor of science (physics and mathematics), full professor; professor at the department of laser physics and spectroscopy, faculty of physics, Belarusian State University, Minsk, Belarus. E-mail: voropay@bsu.by
Deputy editor-in-chief	TIVANOV M. S. , PhD (physics and mathematics), docent; dean of the faculty of physics, Belarusian State University, Minsk, Belarus. E-mail: tivanov@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

- Anishchik V. M.* Belarusian State University, Minsk, Belarus.
- Bondarenko G. G.* Moscow Institute of Electronics and Mathematics of the National Research University «Higher School of Economics», Moscow, Russia.
- Chalov V. N.* Imperial College London, London, United Kingdom.
- Heintzmann R.* Institute of Physical Chemistry of the Jena University, Jena, Germany.
- Kislitsin S. B.* Institute of Nuclear Physics of the Ministry of Energy of the Republic of Kazakhstan, Almaty, Kazakhstan.
- Kozlov S. A.* Saint Petersburg National Research University of Information Technologies, Mechanics and Optics, Saint Petersburg, Russia.
- Kuchinski P. V.* A. N. Sevchenko Institute of Applied Physical Problems of the Belarusian State University, Minsk, Belarus.
- Maksimenco S. A.* Institute for Nuclear Problems of the 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.
- Pogrebnyak A. D.* Sumy State University, Sumy, Ukraine.
- Ramakrishna Reddy K. T.* Sri Venkateswara University, Tirupati, India.
- Remnev G. E.* Tomsk Polytechnic University, Tomsk, Russia.
- Shandarov S. M.* Tomsk State University of Control Systems and Radioelectronics, Tomsk, Russia.
- Tolstik A. L.* Belarusian State University, Minsk, Belarus.
- Turoverov K. K.* Institute of Cytology, Russian Academy of Sciences, Saint Petersburg, Russia.
- Ushakov D. V.* Belarusian State University, Minsk, Belarus.
- Zhukowski P. V.* Lublin University of Technology, Lublin, Poland.

EDITORIAL COUNCIL

- Anufrik S. S.* Yanka Kupala State University of Grodno, Grodno, Belarus.
- Fedosyuk V. M.* State Scientific and Production Association «Scientific and Practical Materials Research Centre of NAS of Belarus», Minsk, Belarus.
- Gusev O. K.* Belarusian National Technical University, Minsk, Belarus.
- Kazak N. S.* State Scientific and Production Association «Optics, Optoelectronics and Laser Technology» 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.* State Scientific and Production Association «Optics, Optoelectronics and Laser Technology» of the National Academy of Sciences of Belarus, Minsk, Belarus.
- Shkadarevich A. P.* Unitary Enterprise «STC “LEMT” of the BelOMO», Minsk, Belarus.

УДК 621.373.826:535.421

ОДНОЧАСТОТНЫЙ ЛАЗЕР НА БАЗЕ ЛЕГИРОВАННОГО ИОНАМИ Er – Yb ОПТИЧЕСКОГО ВОЛОКНА С ВОЛОКОННЫМИ БРЭГГОВСКИМИ РЕШЕТКАМИ

Дж. АЛЬРЕМЕИТИ^{1), 2)}, И. А. ГОНЧАРЕНКО^{2), 3)}

¹⁾Институт технологических инноваций, 9639, Масдар-Сити, Абу-Даби, Объединенные Арабские Эмираты

²⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

³⁾Университет гражданской защиты

Министерства по чрезвычайным ситуациям Республики Беларусь,
ул. Машиностроителей, 25, 220118, г. Минск, Беларусь

Рассмотрена структура компактного узкополосного волоконно-оптического лазера, генерирующего излучение в одной продольной моде (одночастотный лазер). В настоящее время одночастотные лазеры находят широкое применение в оптических системах связи с разделением каналов по длинам волн (технология WDM), оптических датчиках с высоким разрешением, спектрометрах, также они используются для распознавания оптических изображений, детектирования гравитационных волн, создания мощных киловаттных лазерных систем на основе сложения когерентных лазерных пучков и т. д. Предложенный лазер изготовлен на основе короткого отрезка оптического волокна, совместно легированного ионами Er^{3+} и Yb^{3+} . Для создания обратной связи использован резонатор Фабри – Перо,

Образец цитирования:

Альремеити Дж, Гончаренко ИА. Одночастотный лазер на базе легированного ионами Er – Yb оптического волокна с волоконными брэгговскими решетками. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика.* 2023;2:4–13 (на англ.).
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-4-13>

For citation:

Alrumeithi J, Goncharenko IA. A single-frequency laser on the base of Er – Yb co-doped optical fiber with fiber Bragg gratings. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2023;2:4–13.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-4-13>

Авторы:

Джума Альремеити – младший научный сотрудник¹⁾, магистрант кафедры лазерной физики и спектроскопии физического факультета²⁾. Научный руководитель – И. А. Гончаренко.

Игорь Андреевич Гончаренко – доктор физико-математических наук, профессор; профессор кафедры естественных наук факультета подготовки научных кадров³⁾, профессор кафедры лазерной физики и спектроскопии физического факультета²⁾.

Authors:

Juma Alrumeithi, junior researcher^a and master's degree student at the department of laser physics and spectroscopy, faculty of physics^b.

juma.alrumeithi@tii.ae

<https://orcid.org/0000-0002-5716-954X>

Igor A. Goncharenko, doctor of science (physics and mathematics), full professor; professor at the department of natural sciences, faculty of postgraduate scientific education^c, and professor at the department of laser physics and spectroscopy, faculty of physics^b.

en@ucp.by

<https://orcid.org/0000-0002-8063-8068>

сформированный волоконными брэгговскими решетками, которые записаны на концах отрезка легированного волокна. С помощью математического моделирования выполнена оптимизация параметров элементов лазера для достижения генерации на одной продольной моде на длине волны 1550 нм, соответствующей минимальным потерям стандартного телекоммуникационного волокна. Теоретическая модель основана на получении решения для стационарного состояния системы скоростных уравнений для оптических полей с учетом взаимодействия между энергетическими уровнями легированных ионами Er^{3+} – Yb^{3+} кварцевого волокна. Система уравнений решена с использованием итерационного метода в программном коде *Matlab*, что позволило провести анализ заселенности энергетических уровней ионов эрбия и иттербия. Для вычисления функции отражения брэгговских решеток применен разработанный авторами алгоритм на основе метода линий. С использованием программного пакета *Optisystem* произведен расчет динамики установления генерации предложенного лазера на основе легированного ионами Er^{3+} – Yb^{3+} оптического волокна. Показано, что при оптимальных параметрах элементов лазера можно получить одночастотную генерацию в непрерывном режиме с мощностью 0,67 Вт на длине волны 1550 нм при мощности накачки 1 Вт с дифференциальной эффективностью (т. е. эффективностью наклона кривой зависимости мощности сигнала от мощности накачки), равной 67 %.

Ключевые слова: волоконно-оптический лазер; одночастотная генерация; волоконная брэгговская решетка; легированное ионами Er – Yb оптическое волокно; резонатор Фабри – Перо.

A SINGLE-FREQUENCY LASER ON THE BASE OF Er – Yb CO-DOPED OPTICAL FIBER WITH FIBER BRAGG GRATINGS

J. ALRUMEITHI^{a, b}, I. A. GONCHARENKO^{b, c}

^a*Technology Innovation Institute, Masdar City 9639, Abu Dhabi, United Arab Emirate*

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

^c*University of Civil Protection, Ministry for Emergency Situations of the Republic of Belarus,
25 Mašynabudaŭnikoŭ Street, Minsk 220118, Belarus*

Corresponding author: J. Alrumeithi (juma.alrumeithi@tii.ae)

The structure of the compact narrow-band fiber lasers operating in a single longitudinal mode (single-frequency lasers) has been considered. The single-frequency fiber lasers are widely used in WDM telecommunication systems, high-resolution sensors, spectrometers, as well as for lightimaging detection, detection of gravitational waves and creation of multikilowatt laser systems based on coherent combining of laser beams. The proposed laser is based on the short length of optical fiber co-doped with Er^{3+} and Yb^{3+} ions. For cavity feedback a Fabry – Perot resonator is formed by using fiber Bragg gratings written on the ends of the doped fiber section. On the base of the numerical simulations the optimisation of the laser elements parameters has been carried out in order to achieve the single longitudinal mode laser generation at 1550 nm wavelength that corresponds to the minimum loss generated by the telecommunication fibers. The theoretical model is based on the steady state solutions of the rate equations resulting from the optical fields and ions interaction inside the Er^{3+} – Yb^{3+} co-doped silica fiber. The mathematical equations are solved using an iterative method by *Matlab* to provide an analysis of the energy levels of erbium and ytterbium ions doping the silica fiber. For the calculation of the fiber Bragg grating reflectivity the original algorithm based on the method of lines has been applied. A series of simulations have been performed by using the *Optisystem* software to obtain the modelling of the dynamic behaviour of the proposed Er^{3+} – Yb^{3+} co-doped fiber laser. The optimised Er^{3+} – Yb^{3+} co-doped fiber laser demonstrated a continuous wave power of 0.67 W at 1550 nm wavelength for a pump power of 1 W with a slope efficiency of 67 %.

Keywords: fiber laser; single-frequency generation; fiber Bragg grating; Er – Yb co-doped fiber; Fabry – Perot resonator.

Introduction

The single-frequency erbium-doped fiber lasers are considered as a key tool due to their high potential applications in WDM telecommunication systems operating with wavelengths around 1.55 μm , high-resolution sensors, spectrometers, for lightimaging detection, detection of gravitational waves and creation of multikilowatt laser systems based on coherent combining of laser beams [1–14]. They are attracting a great deal of interest and high demand because of their ability to provide fiber compatible laser sources with a narrow linewidth (tens of kilohertz), low level of optical noise, high output power, low threshold pump power and a high stability of output parameters. Single-frequency fiber lasers are being actively developed, primarily due to their compactness compared to solid-state counterparts and better output characteristics compared to semiconductor lasers.

Short fiber lengths and wavelength selective filters such as the fiber grating are desired to maintain the stability and provide single-frequency operation to avoid the mode hopping issue. However, a few centimeters long fiber does not provide a satisfactory pump absorption and leads to insufficient and low output power. Although, the expectation of considering high erbium concentrations contributes to increase the pump absorption and provide a high desired gain but the ion-ion interactions leads to the waste of energy by exchanging the energy between the ions of erbium and critically reducing the laser efficiency and deplete the erbium metastable level [15]. In order to provide the solution to these problems the co-doping the gain medium of the fiber with erbium (Er^{3+}) and ytterbium (Yb^{3+}) ions has been proposed [2; 11; 12; 16; 17]. By providing the optimal concentrations of the rare-earth ions, the pair induced energy transfer from Er^{3+} and Yb^{3+} provides the desired pumping requirements for the erbium and allows to rescale the concentrations of the erbium without a high reduction in the efficiency due to the cooperative up conversion. The contribution of Yb^{3+} sufficiently avoids the formation of Er^{3+} clusters and allows an effective contrasts of the energy transfer. Additionally, the Yb^{3+} allows the extension range of the acceptable pump wavelengths and the highest absorption cross section is defined at 980 nm. The pumping of Yb^{3+} at 980 nm provides the best performance and high efficiency to construct a compact fiber lasers.

In this work we propose a theoretical model for the analysis of a compact single-frequency fiber laser based on $\text{Er}^{3+} - \text{Yb}^{3+}$ co-doped fibers; the continuous wave (CW) operations of single-frequency fiber laser using the Bragg gratings as wavelength filtering components at the ends of the section of the doped fiber and considering the principle of the linear cavity configuration of the Fabry – Perot architecture to generate a high light confinement to satisfy the laser performance requirements. The theoretical work proposed are proved to have a great agreement with the published experimental results associated with compact single-frequency $\text{Er}^{3+} - \text{Yb}^{3+}$ co-doped fiber lasers.

The main objective of this work is to analyse the possible design of a compact single-frequency high power laser on the base of short length of optical fiber co-doped with Er^{3+} and Yb^{3+} ions. The laser cavity is created by Bragg gratings written on the fiber ends. Short fiber length leads to insufficient pump radiation absorption. The optimal concentrations of these ions should be established by solving propagation-rate equations. Additionally, we provided the numerical analysis of the influence of the fiber Bragg grating parameters on its transmission function. On the base of the analysis the proper selection the parameters will be done to provide the single-frequency regime of the laser generation.

Making the propagation-rate equations for Er – Yb composition

The system of rate equation resulting from the energy level system between the Er^{3+} and Yb^{3+} ions are considered as a complex and difficult to solve without any boundary conditions and estimations. Figure 1 shows a simplified energy level of the system with neglecting some transitions that exhibit the small and less influence on the characteristics of the laser.

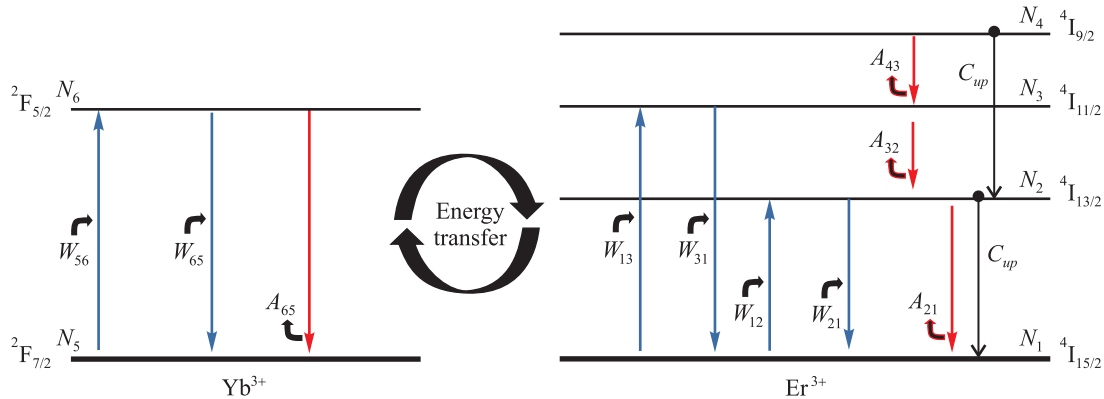


Fig. 1. Simplified energy level diagram of Yb^{3+} and Er^{3+} ions

These assumptions didn't affect significantly the overall results of the laser system performance and characteristics while maintaining the accuracy of the model. As the gain medium is pumped at 980 nm, the system of rate equations resulting can be written as [7; 18; 19]

$$\frac{\partial N_1}{\partial t} = -W_{12}N_1 - W_{13}N_1 + A_{21}N_2 + W_{21}N_2 + C_{up}N_2^2 - C_{cr14}N_1N_4 + C_{up}N_3^2 - C_{cr}N_1N_6,$$

$$\frac{\partial N_2}{\partial t} = W_{12}N_1 - A_{21}N_2 - W_{21}N_2 + A_{32}N_3 - 2C_{up}N_2^2 + 2C_{cr14}N_1N_4,$$

$$\frac{\partial N_3}{\partial t} = W_{13}N_1 - A_{32}N_3 + A_{43}N_4 - 2C_{up}N_3^2 + 2C_{cr14}N_1N_4,$$

$$N_1 + N_2 + N_3 + N_4 = N_{Er},$$

$$\frac{\partial N_5}{\partial t} = -W_{56}N_5 + A_{65}N_6 + W_{65}N_6 + C_{cr}N_1N_6,$$

$$N_5 + N_6 = N_{Yb},$$

where N_1, N_2, N_3 and N_4 are the populations of ${}^4I_{15/2}, {}^4I_{13/2}, {}^4I_{11/2}$ and ${}^4I_{9/2}$ energy levels corresponding to the Er^{3+} ions, also N_5 and N_6 are the populations of ${}^2F_{7/2}$ and ${}^2F_{5/2}$ energy levels corresponding to the Yb^{3+} ions; W_{ij} represents the stimulated transition probabilities (ij represents the transition from i to j); A_{21} and A_{65} terms relate and identify the spontaneous transition probabilities, also A_{32} and A_{43} represent the non-radiative relaxation probabilities; C_{up}, C_{cr14} and C_{cr} are the transformation of the coefficients associated with the increased frequency and cross-relaxation between the Er^{3+} and Yb^{3+} ions; N_{Er} and N_{Yb} identify and introduce the concentrations of the Er^{3+} and Yb^{3+} ions. It should be noted that for this model we neglected the diverse of mechanisms and conditions that contribute to broaden the energy levels, as well as the associated related temperature instability [7].

Inside of the laser gain medium, the optical field at pump and laser wavelengths propagates in the longitudinal z -direction. Therefore, each of these fields will be described by a differential equations governing by the spatial variation of the optical power. The variation of the pump power $P_p(z, \nu_p)$ and the power of laser radiation $P_{sj}^\pm(z, \nu_{sj})$ over the length specified for the cavity of the laser is described by the system of differential equations that identified as the propagation equations and can be written as [7; 18; 19]

$$\frac{dP_p(z, \nu_p)}{dz} = -\Gamma_p [\sigma_{Er13}\bar{N}_1 - \sigma_{Yb56}\bar{N}_5 - \sigma_{Yb65}\bar{N}_6] P_p(z, \nu_p) - l_p P_p(z, \nu_p),$$

$$\begin{aligned} \frac{dP_{sj}^\pm(z, \nu_{sj})}{dz} &= \pm \Gamma_{sj} [\sigma_{Er21}(\nu_j)\bar{N}_2 - \sigma_{Er12}(\nu_j)\bar{N}_1] P_{sj}^\pm(z, \nu_{sj}) \pm \\ &\pm 2h\nu_j \Delta\nu_j \Gamma_{sj} \sigma_{Er21}(\nu_j)\bar{N}_2 \pm l_{sj} P_{sj}^\pm(z, \nu_{sj}), \end{aligned} \quad (1)$$

$$P_p(0, \nu_p) = P_{p0},$$

$$P_{sj}(0, \nu_j) = 0,$$

$$R_2(\nu_j) P_{sj}^+(L, \nu_j) = P_{sj}^-(L, \nu_j),$$

$$R_1(\nu_j) P_{sj}^-(0, \nu_j) = P_{sj}^+(0, \nu_j),$$

where $j = 1, \dots, M$ (M represents the number of the longitudinal modes that can be produced by the laser); ν_p, ν_j and l_p, l_{sj} are the frequencies of the radiation and the losses of the pump wave and the generated wave; $R_1(\nu_j)$ and $R_2(\nu_j)$ are the reflectance of the cavity mirrors; L is the length of the laser cavity; σ_{Erj} and σ_{Ybij} are the absorption and emission cross section of the Er^{3+} and Yb^{3+} ions. The sign «plus» in the notation $P_{sj}^\pm(z, \nu_{sj})$ corresponds to the forward propagation of the optical radiation, respectively the sign «minus» represents the optical radiation propagation in the reverse direction [7]. The overlap integrals between the cross section of the radiation fields and the active region of the waveguided identified as Γ_p and Γ_{sj} based on the assumption of considering the Gaussian intensity distribution of the fields of the pump radiation and the signal radiation can be determined by the following relationship [20]:

$$\Gamma_m = 1 - \exp\left(-\frac{a_d^2}{\omega_m^2}\right),$$

where a_d is introduced as the active radius of the fiber, and ω_m is the transverse size of the radiation field, as $m = p$ for the pump wave and $m = sj$ for the corresponding signal wave. The term $2h\nu_j \Delta\nu_j \Gamma_{sj} \sigma_{Er21}(\nu_j)\bar{N}_2$ expressed in equation (1) provides the description of the input noise equivalent power [7].

Fiber Bragg grating parameters to provide the single-frequency regime of the laser generation

We start with the numerical analysis of the uniform periodic Bragg grating with the high-reflection (HR). The fiber core radius is $R_{co} = 2.88 \mu\text{m}$, the refractive index in the core of the first homogenous region is $n_{co1} = 1.4500$, and the refractive index of the cladding is $n_{cl} = 1.4125$. The number of the grating periods is $N = 22\,620$, the grating period is $\Lambda = 0.53782 \mu\text{m}$, the grating length is $L_{\text{FBG}} = 24.442 \text{ mm}$, and the relative difference between the grating core refractive indices is $\Delta n_{co} = 0.0001$. The reflectivity of the uniform periodic grating with the selected parameters was assigned in *Matlab* [21; 22] and the simulation result is shown in fig. 2.

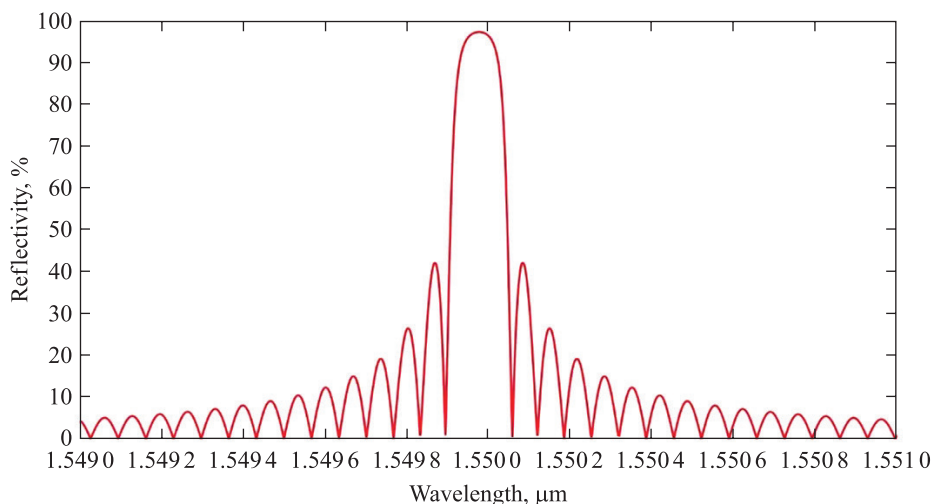


Fig. 2. Reflectivity of a uniform periodic fiber gratings with number of periods $N = 22\,620$ and $\Delta n_{co} = 0.0001$, leading to a total reflection 97 % with narrow central peak wavelength 1550 nm

The modelling results of the uniform periodic grating reflection spectra (Bragg wavelength $\lambda_B = 1550 \text{ nm}$) with a reflectivity of 97 % based on the parameters specified in the simulation, and this considered sufficient for the HR Bragg grating to be implemented and inserted as reflector for the Fabry – Perot cavity feedback.

The second numerical analysis of the uniform periodic grating was performed for the partial reflection (PR) Bragg grating [21; 22]. The fiber core radius is $R_{co} = 2.88 \mu\text{m}$, the refractive index in the core is $n_{co1} = 1.4500$, and the refractive index of the cladding is $n_{cl} = 1.4125$. The number of the grating periods is $N = 6610$, the grating period is $\Lambda = 0.53782 \mu\text{m}$, the grating length is $L_{\text{FBG}} = 7.10998 \text{ nm}$, and the relative difference between the core refractive indices is $\Delta n_{co} = 0.0001$. The modelling results of the uniform periodic grating reflection spectra (Bragg wavelength $\lambda_B = 1550 \text{ nm}$) with a reflectivity of 55 % based on the parameters specified in the simulation is shown in fig. 3.

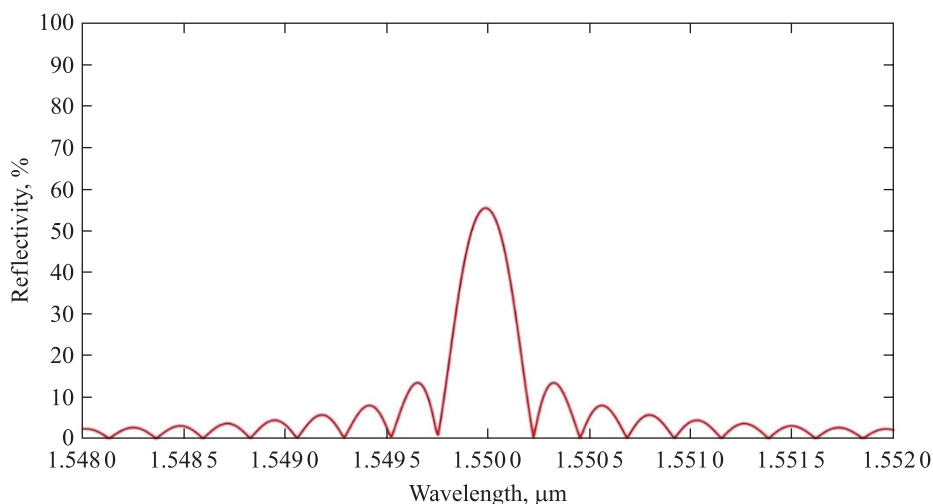


Fig. 3. Reflectivity of a uniform periodic fiber gratings with number of periods $N = 6610$ and $\Delta n_{co} = 0.0001$, leading to a total reflection 55 % with narrow central peak wavelength 1550 nm

Therefore, the results considered are reliable and convenient for the PR Bragg grating and could be implemented and inserted as the partial reflector of the Fabry – Perot cavity for the outcoupling.

Following to the calculations for the Fabry – Perot cavity, the transmittance maxima corresponding to the Fabry – Perot resonance is observed to overlap with desired reflectivity spectrum based on the physical length of the cavity [23]. Figure 4 shows the fiber cavity transmittance spectrum using the uniform Bragg grating, the length of the Fabry – Perot cavity $L = 1$ cm, and neglecting the absorption associated with the Bragg grating as reflectors for the proposed configuration. The peak wavelength of the uniform fiber Bragg grating is centered at 1550 nm. The cavity transmission spectra (see fig. 4) were obtained based on the proposed configuration of the Fabry – Perot cavity in order to produce the single mode fiber laser generation. The central resonance of the Fabry – Perot cavity is at the desired Bragg wavelength ($\lambda_B = 1550$ nm) of the uniform gratings.

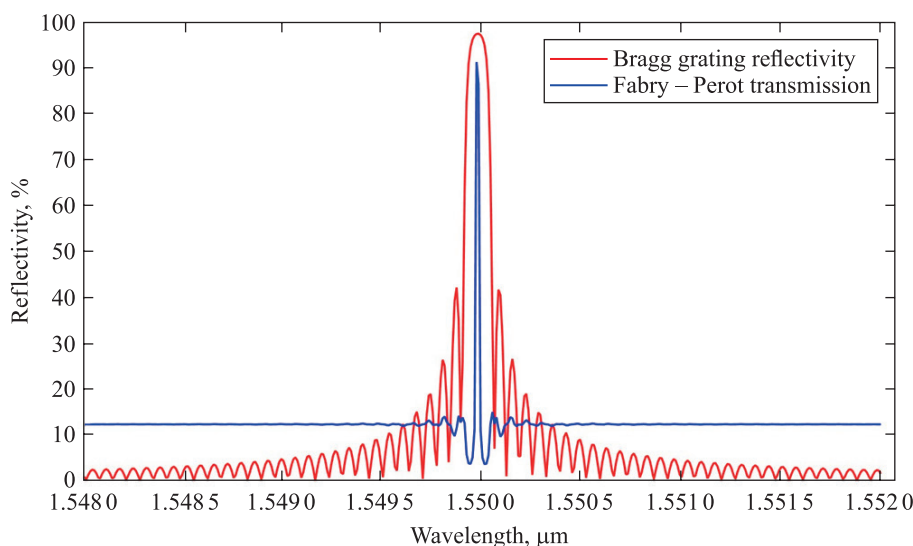


Fig. 4. Transmittance spectra of the Fabry – Perot fiber cavity formed by uniform fiber Bragg gratings

Fiber laser setup

The schematic diagram of the proposed $\text{Er}^{3+} - \text{Yb}^{3+}$ co-doped fiber laser is shown in fig. 5. The pump source is the laser diode operating at 980 nm, the beam of this fiber laser system is collimated first and then propagated through the optical isolator to secure the system from any back reflections from the fiber ends that can damage the input source identified as the diode laser for the proposed fiber laser optical system. The pump radiation is focused directly into the $\text{Er} - \text{Yb}$ fiber through the first HR fiber Bragg grating, which is 97 % reflecting at 1550 nm. The section of the 1 cm length $\text{Er} - \text{Yb}$ fiber with a numerical aperture of 0.32 and the outcoupling of the light is based on the output PR fiber Bragg grating, which has 55 % reflecting at 1550 nm.

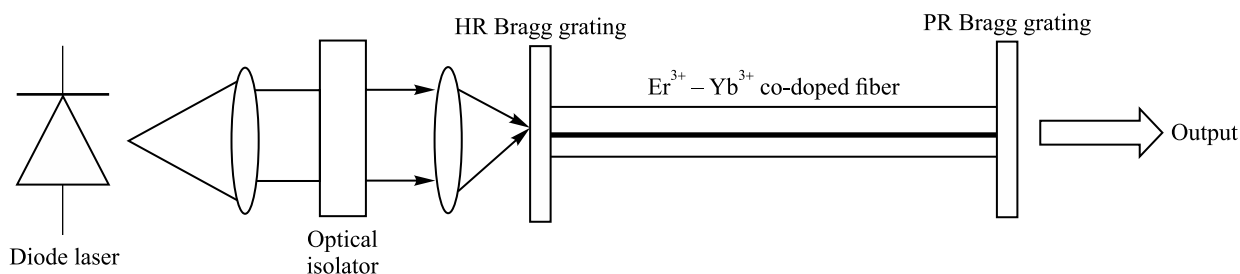


Fig. 5. Schematic diagram of the $\text{Er}^{3+} - \text{Yb}^{3+}$ co-doped fiber laser

Fiber laser simulation

The proposed fiber laser setup is modelling by using the *Optisystem* software to reach the suitable design that should be implemented. *Optisystem* software allows to establish the reliable optical design to determine the fiber laser architecture for the $\text{Er}^{3+} - \text{Yb}^{3+}$ co-doped fiber laser. Evaluate cost and performance by calculating the output power, maximum noise figure, maximum gain ripple and minimum pump power depend on

the optical system specifications such as pump wavelength range, passive component losses, component costs and so on. The results of the simulation is shown in fig. 6. $\text{Er}^{3+} - \text{Yb}^{3+}$ fiber laser is excited and pumped by the laser diode at wavelength of 980 nm. The power of the pump source was swept from 0 to 1 W by the CW diode laser. The pump radiation was focused into the $\text{Er}^{3+} - \text{Yb}^{3+}$ co-doped fiber through the HR fiber Bragg grating. This component is introduced as the bidirectional reflective filter and can be considered as the fiber Bragg grating for the *Optisystem* platform. The HR fiber Bragg grating has the 97 % reflecting at 1550 nm and 99 % transmitting at 980 nm. Two optical delays were introduced in the setup of the optical system to generate optical signal delay in order to enable the calculations of the simulation. A length of 0.01 m of $\text{Er}^{3+} - \text{Yb}^{3+}$ fiber is introduced with a numerical aperture of 0.32, Er^{3+} ions density in $5.0 \cdot 10^{25}$ ions per 1 m^3 and Yb^{3+} ions density in $6.25 \cdot 10^{26}$ ions per 1 m^3 of the $\text{Er}^{3+} - \text{Yb}^{3+}$ co-doped fiber optical components simulates the fiber laser setup when solving the numerically the rate and propagation equations for a steady-state case and considering the non-linear phase changes by propagating the signal by using the non-linear Schrödinger equation. The outcoupling of the fiber laser is based on the PR fiber Bragg grating (55 % reflecting at 1550 nm). The buffer selector is used for selecting the signal data associated with a specified iteration in a series of iterations based on the proposed fiber laser setup. Convert to sampled signals defines the input signal type to be converted to sampled signals.

Analysis of the simulation results

The CW power of 0.67 W at 1550 nm is demonstrated for a launched power of 1 W with a slope efficiency of 67 %. Figure 6 shows the optimised design of the optical system for the compact $\text{Er}^{3+} - \text{Yb}^{3+}$ co-doped fiber laser and the results indicated for the best slope efficiency with the length of 0.01 m. The performance of the proposed setup will start to degrade as we increase the length of the fiber. Figure 7 shows the results of the obtained output power. The noise power at the output of the optical system by using the built in *Optisystem* optical power meter is presented in fig. 8.

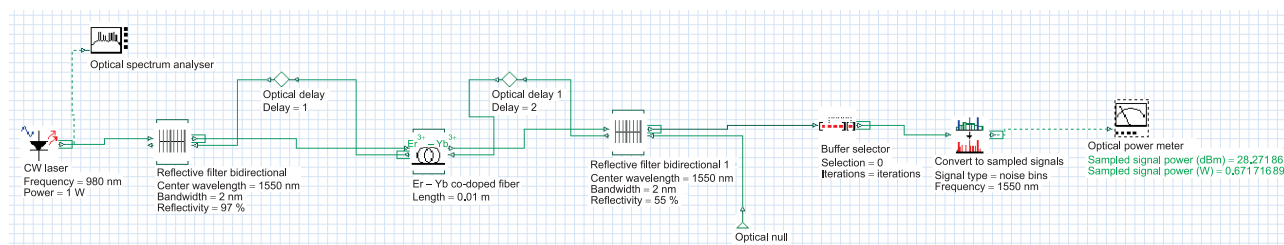


Fig. 6. *Optisystem* simulation setup for $\text{Er}^{3+} - \text{Yb}^{3+}$ co-doped fiber laser with the optimal length $L = 0.01 \text{ m}$



Fig. 7. Output power measured by the built in optical power meter (*Optisystem* software)

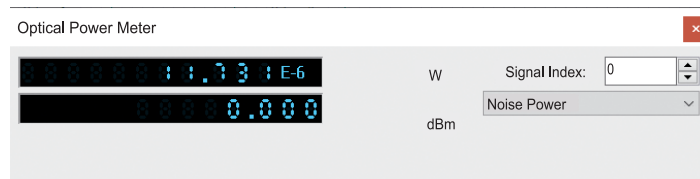


Fig. 8. Noise power at the output measured by the built in optical power meter (*Optisystem* software)

Evaluation of Er³⁺ – Yb³⁺ co-doped fiber laser

The demonstrated Er³⁺ – Yb³⁺ co-doped fiber laser for single-frequency operation can be determined as the function of grating reflectivity and resonator length. In all calculations discussed in this research, we assumed the fiber laser having pair of Bragg gratings without loss, the laser wavelength of 1550 nm based on the uniform Bragg grating reflectivity and the fiber with the core radius $R_{co} = 2.88 \mu\text{m}$, core refractive index of $n_{co} = 1.4500$ and cladding refractive index of $n_{cl} = 1.4125$. The cavity length is $L = 1 \text{ cm}$. We have considered the strong pump regime, which results in high lasing power based on the optical system components and properties. The reflectivity of the Bragg grating reflectors written in a single-mode fiber laser is selected to provide the single mode operation. The uniform Bragg reflectors are modelled using the method of lines theory. Uniform Bragg gratings reflectivity of 97 % is demonstrated for the HR fiber Bragg grating and 55 % for the PR fiber Bragg grating to couple out the light from the end of the fiber laser system. The cavity configuration for the single-mode operation based on the Fabry – Perot resonator demonstrated a dominant lasing mode at the central resonance (Bragg wavelength $\lambda_B = 1550 \text{ nm}$). Analysis of the reflection of uniform Bragg gratings is treated according to the method of lines theory approach. The proposed configuration of the uniform Bragg reflectors results in the single-frequency operation of the 1 cm section of the Er³⁺ – Yb³⁺ co-doped fiber laser. A length of 0.01 m of Er³⁺ – Yb³⁺ fiber is established with the numerical aperture of 0.32, Er³⁺ ion density is $5.0 \cdot 10^{25}$ ions per 1 m^3 and Yb³⁺ ions density is $6.25 \cdot 10^{26}$ ions per 1 m^3 . A CW power of 0.67 W at 1550 nm is demonstrated successfully for a launched power of 1 W with a slope efficiency of 67 %. The laser slope efficiency is found to be maximum at the proposed compact Er³⁺ – Yb³⁺ co-doped fiber laser based on the Bragg gratings. This configuration and design were chosen to achieve the high slope efficiency and reasonable stability with respect to the desired frequency at 1550 nm. Er³⁺ – Yb³⁺ co-doped fiber laser was designed and tested using the analysis of the *Optisystem* software to demonstrate reliable numerical results. All the modeled components and parameters for the demonstrated Er³⁺ – Yb³⁺ co-doped fiber laser are shown in the table.

Parameters of Er³⁺ – Yb³⁺ co-doped fiber laser

Parameter	Symbol	Value
Pump wavelength	λ_p	980 nm
Signal wavelength	λ_s	1550 nm
Cavity length	L	1 cm
Pump power	P_p	1 W
Core radius	R_{co}	2.88 μm
Doping radius	R_D	2.88 μm
Core refractive index	n_{co}	1.4500
Cladding refractive index	n_{cl}	1.4125
Numerical aperture	NA	0.32
HR fiber Bragg grating reflectivity	FBG _{HR}	97 %
PR fiber Bragg grating reflectivity	FBG _{PR}	55 %
HR fiber Bragg grating length	FBG _{HR_L}	24.44 mm
PR fiber Bragg grating length	FBG _{PR_L}	7.11 mm
Fiber laser total length	FLaser _L	4.155 cm
Temperature	T	300 K
Bandwidth	B_w	2 nm
Emission lifetime of Er ³⁺	Er τ	10 ms
Emission lifetime of Yb ³⁺	Yb τ	1.5 ms
Energy transfer coefficient	K_{1242}	$5.283 \cdot 10^{24} \text{ m}^3/\text{s}$
	K_{3134}	$5.283 \cdot 10^{24} \text{ m}^3/\text{s}$
	K_{1365}	$0.344 \cdot 10^{24} \text{ m}^3/\text{s}$

Ending table

Parameter	Symbol	Value
Non-radiative transitions	Anr_{43}	$1 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$
	Anr_{32}	$1 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$
Total population of Er^{3+}	N_{Er}	$5.0 \cdot 10^{25}$ ions per 1 m^3
Total population of Yb^{3+}	N_{Yb}	$6.25 \cdot 10^{26}$ ions per 1 m^3
Sampled signal power	S_p	0.67 W
Noise threshold	N_T	-100 dB
Noise dynamic	N_D	3 dB
Total power losses	S_L	0.33 W
Efficiency	FLaser $_{\eta}$	67 %

Conclusions

A theoretical model of the $Er^{3+} - Yb^{3+}$ co-doped fiber laser device was established and developed. The model was based on the steady state solutions of the rate equations resulting from the optical fields and ions interaction inside the $Er^{3+} - Yb^{3+}$ co-doped silica fiber. Initially the steady state rate equations were solved by *Matlab* program based on the method of rate equation pair solver. The numerical analysis of the fiber Bragg gratings configuration to establish a single-frequency fiber laser were computed by applying the method of lines. The optical resonator considered as a Fabry – Perot resonator configuration bases on the $Er^{3+} - Yb^{3+}$ doped silica fiber to obtain a single longitudinal mode. The simulations and modelling results of the Fabry – Perot transmission spectrum of the uniform periodic Bragg grating and apodised fiber grating were obtained with *Matlab* software. The optimised $Er^{3+} - Yb^{3+}$ co-doped fiber laser demonstrated the CW generation with the power of 0.67 W at 1550 nm for a launched power of 1 W with a slope efficiency of 67 %.

The theoretical model presented and developed in this research neglects the Bragg gratings reflector losses. However, as expected there is a very small slight difference between the proposed results and experimental data discussed in this work. The difference is due to the computing different software and programs that consider different algorithms and parameters associated with the optical system components of executing and evaluating the performance of $Er^{3+} - Yb^{3+}$ co-doped fiber laser.

In conclusion a sufficient solid theoretical model of $Er^{3+} - Yb^{3+}$ co-doped fiber laser was successfully established and developed. The performance of the laser in terms of the obtained sampled power demonstrated an increase of approximately 16 % efficiency over the previously published and discussed experimental data presented in this research work.

References

1. Kringlebotn JT, Morkel PR, Reekie L, Archambault J-L, Payne DN. Efficient diode-pumped single-frequency erbium : ytterbium fiber laser. *IEEE Photonics Technology Letters*. 1993;5(10):1162–1164. DOI: 10.1109/68.248414.
2. Di Pasquale F. Modeling of highly-efficient grating-feedback and Fabry – Perot $Er^{3+} - Yb^{3+}$ co-doped fiber lasers. *IEEE Journal of Quantum Electronics*. 1996;32(2):326–332. DOI: 10.1109/3.481880.
3. Bonfrate G, Vaninetti F, Negrisolto F. Single-frequency MOPA Er^{3+} DBR fiber laser for WDM digital telecommunication systems. *IEEE Photonics Technology Letters*. 1998;10(8):1109–1111. DOI: 10.1109/68.701518.
4. Yamashita S, Hsu K. Single-frequency, single-polarization operation of tunable miniature erbium : ytterbium fiber Fabry – Perot lasers by use of self-injection locking. *Optics Letters*. 1998;23(15):1200–1202. DOI: 10.1364/OL.23.001200.
5. Nielsen TG, Hodel W, Weber HP, Iocco A, Costantini DM, Limberger HG, et al. Stable and widely tunable all-fiber Pr^{3+} -doped CW laser system using fiber Bragg gratings. *Optics Letters*. 1999;24(9):614–616. DOI: 10.1364/OL.24.000614.
6. Pilipovich VA, Esman AK, Goncharenko IA, Kuleshov VK. High-speed continuous tuneable fibre and waveguide lasers with controllable Bragg grating. *Optics Communications*. 2002;203(3–6):289–294. DOI: 10.1016/S0030-4018(01)01597-8.
7. Pilipovich VA, Esman AK, Goncharenko IA, Kuleshov VK. Lasing dynamics of tunable single-frequency fiber-optic and waveguide lasers. *Journal of Optical Technology*. 2003;70(3):173–176. DOI: 10.1364/JOT.70.000173.
8. Abbott BP, Abbott R, Adhikari R, Ajith P, Allen B, Allen G, et al. LIGO: the laser interferometer gravitational-wave observatory. *Reports on Progress in Physics*. 2009;72(7):076901. DOI: 10.1088/0034-4885/72/7/076901.
9. Ma Yanxing, Wang Xiaolin, Leng Jinyong, Xiao Hu, Dong Xiaolin, Zhu Jiajian, et al. Coherent beam combination of 1.08 kW fiber amplifier array using single frequency dithering technique. *Optics Letters*. 2011;36(6):951–953. DOI: 10.1364/OL.36.000951.
10. Bai Xiaolei, Sheng Quan, Zhang Haiwei, Fu Shijie, Shi Wei, Yao Jianquan. High-power all-fiber single-frequency erbium – ytterbium co-doped fiber master oscillator power amplifier. *IEEE Photonics Journal*. 2015;7(6):7103106. DOI: 10.1109/JPHOT.2015.2490484.

11. Fu Shijie, Shi Wei, Feng Yan, Zhang Lei, Yang Zhongmin, Xu Shanhuai, et al. Review of recent progress on single-frequency fiber lasers [Invited]. *Journal of the Optical Society of America B*. 2017;34(3):A49–A62. DOI: 10.1364/JOSAB.34.000A49.
12. Sompo JM, Grobler M, Kaboko JJM. Influence of upconversion and excited state absorption on the performance of an erbium-ytterbium doped DFB fiber laser. In: *2019 IEEE Africon; 2019 September 25–27; Accra, Ghana*. [S. l.]: IEEE; 2019. p. 1–5. DOI: 10.1109/AFRICON46755.2019.9134018.
13. Koptev MYu, Egorova ON, Medvedkov OI, Semjonov SL, Galagan BI, Sverchkov SE, et al. Narrow-linewidth single-frequency ytterbium laser based on a new composite Yb³⁺-doped fiber. *Photonics*. 2022;9(10):760. DOI: 10.3390/photonics9100760.
14. Tao Yue, Jiang Man, Liu Liu, Li Can, Zhou Pu, Jiang Zongfu. More than 20 W, high signal-to-noise ratio single-frequency all-polarization-maintaining hybrid brillouin/ytterbium fiber laser. *Journal of Lightwave Technology*. 2023;41(2):678–683. DOI: 10.1109/JLT.2022.3215655.
15. Wagener JL, Wysocki PF, Digonnet MJF, Shaw HJ, Di Giovanni DJ. Effects of concentration and clusters in erbium-doped fiber lasers. *Optics Letters*. 1993;18(23):2014–2016. DOI: 10.1364/OL.18.002014.
16. Karasek M. Optimum design of Er³⁺ – Yb³⁺ co-doped fibers for large-signal high-pump-power applications. *IEEE Journal of Quantum Electronics*. 1997;33(10):1699–1705. DOI: 10.1109/3.631268.
17. Kringlebotn JT, Archambault J-L, Reekie L, Townsend JE, Vienne GG, Payne DN. Highly-efficient, low-noise grating-feedback Er³⁺ : Yb³⁺ co-doped fibre laser. *Electronics Letters*. 1994;30(12):972–973. DOI: 10.1049/el:19940628.
18. Hsu K, Miller CM, Kringlebotn JT, Taylor EM, Townsend J, Payne DN. Single-mode tunable erbium : ytterbium fiber Fabry – Perot microlaser. *Optics Letters*. 1994;19(12):886–888. DOI: 10.1364/OL.19.000886.
19. Cucinotta A, Selleri S, Vincetti L, Zoboli M. Numerical and experimental analysis of erbium-doped fiber linear cavity lasers. *Optics Communications*. 1998;156(4–6):264–270. DOI: 10.1016/S0030-4018(98)00432-5.
20. Desurvire E, Simpson JR. Amplification of spontaneous emission in erbium-doped single-mode fibers. *Journal of Lightwave Technology*. 1989;7(5):835–845. DOI: 10.1109/50.19124.
21. Goncharenko IA, Helfert SF, Pregla R. General analysis of fibre grating structures. *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*. 1999;1(1):25–31. DOI: 10.1088/1464-4258/1/1/003.
22. Goncharenko IA, Helfert SF, Pregla R. Analysis of nonlinear properties of fibre grating structures. *AEÜ – International Journal of Electronics and Communications*. 1999;53(1):25–31.
23. Born M, Wolf E. *Principles of optics: electromagnetic theory of propagation interference and diffraction of light*. 6th edition. Oxford: Pergamon Press; 1980. Chapter 7, Elements of the theory of interference and interferometers; p. 256–260.

Received 10.02.2023 / revised 26.02.2023 / accepted 02.03.2023.

УДК 535.42+537.86

СВЕТОВЫЕ ПУЧКИ, ГЕНЕРИРУЕМЫЕ АКЦИКОНОМ С ЗАКРУГЛЕННОЙ ВЕРШИНОЙ

С. Н. КУРИЛКИНА^{1),2)}, Р. Ё. А. А. АЛБЛООШИ²⁾,
П. И. РОПОТ¹⁾, А. М. ВАРАНЕЦКИЙ¹⁾

¹⁾Институт физики им. Б. И. Степанова НАН Беларуси,
пр. Независимости, 68, 220072, г. Минск, Беларусь

²⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

Внимание сфокусировано на реальной форме аксикона, не острой, а закругленной. Рассмотрен несовершенный аксикон с закругленной вершиной, форма которого аппроксимирована гиперболоидом, и проведен теоретический и экспериментальный анализ свойств пучка, генерируемого в дальней зоне за таким аксиконом. Продемонстрировано, что если в вершине форма аксикона отклоняется от конической в пределах десятков микрометров, то поперечное распределение интенсивности формируемого светового поля имеет сильно осциллирующий характер.

Образец цитирования:

Курилкина СН, Алблооши РЁАА, Ропот ПИ, Варанецкий АМ. Световые пучки, генерируемые аксиконом с закругленной вершиной. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика*. 2023;2:14–21 (на англ.).
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-14-21>

For citation:

Kurilkina SN, Alblooshi RYAA, Ropot PI, Varanetski AM. Light beams generated by oblate-tip axicon. *Journal of the Belarusian State University. Physics*. 2023;2:14–21.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-14-21>

Авторы:

Светлана Николаевна Курилкина – доктор физико-математических наук, профессор; главный научный сотрудник центра «Диагностические системы»¹⁾, профессор кафедры физической оптики и прикладной информатики физического факультета²⁾.

Рашед Ёусеф Абдулла Алхаяяс Алблооши – магистрант кафедры лазерной физики и спектроскопии физического факультета. Научный руководитель – С. Н. Курилкина.

Петр Иосифович Ропот – кандидат физико-математических наук, доцент; заместитель заведующего центром «Диагностические системы».

Алексей Михайлович Варанецкий – научный сотрудник центра «Диагностические системы».

Authors:

Svetlana N. Kurilkina, doctor of science (physics and mathematics), full professor; chief researcher at the center «Diagnostic systems»^a and professor at the department of physical optics and applied computer science, faculty of physics^b.

s.kurilkina@ifanbel.bas-net.by

<https://orcid.org/0000-0002-1866-4791>

Rashed Yousef Abdulla Alhayaas Alblooshi, master's degree student at the department of laser physics and spectroscopy, faculty of physics.

rashed.alblooshi@tii.ae

Piotr I. Ropot, PhD (physics and mathematics), docent; deputy head of the center «Diagnostic systems».

p.ropot@dragon.bas-net.by

<https://orcid.org/0009-0005-6132-8952>

Aliaksei M. Varanetski, researcher at the center «Diagnostic systems».

a.varanecki@ifanbel.bas-net.by

<https://orcid.org/0009-0005-3466-5902>

При этом ширина кольца (область, в которой нормированная на максимальное значение интенсивность превышает величину 0,5) меньше таковой в случае идеального аксикона. Эти колебания возникают в результате интерференции частей падающего пучка, проходящего через круглый линзообразный наконечник аксикона и окружающую его коническую поверхность. Показано, что периодичность колебаний зависит от параметра закругления: при увеличении данного параметра периодичность колебаний (а также радиус центрального максимума) уменьшается, а их амплитуда увеличивается. Предложен и апробирован метод определения закругления реального аксикона. Полученные результаты могут быть полезны для уточнения характеристик изготавливаемых аксиконов.

Ключевые слова: аксикон; бесселевы пучки; дифракция; интерференция; интенсивность света.

LIGHT BEAMS GENERATED BY OBLATE-TIP AXICON

S. N. KURILKINA^{a, b}, R. Y. A. A. ALBLOOSHI^b,
P. I. ROPOT^a, A. M. VARANETSKI^a

^a*B. I. Stepanov Institute of Physics, National Academy of Sciences of Belarus,
68 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220072, Belarus*

^b*Belarusian State University, 4 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220030, Belarus*
Corresponding author: S. N. Kurilkina (s.kurilkina@ifanbel.bas-net.by)

The attention is focused on the real shape of the tip of the axicon, which is not sharp but rather oblate. The imperfect axicon with rounded tip approximated by a hyperboloid is considered, and the properties of the beam generated in far field behind such an axicon are analysed theoretically and experimentally. It has been demonstrated that if the axicon tip deviates in its apex from the ideal sharp tip in the range of tens of micrometers, the transversal intensity distribution is strongly oscillatory. Meanwhile, the ring width (area, within which normalised intensity is larger than 0.5) is smaller as compared with the case of ideal axicon. These oscillations result from the interference of parts of the incoming beam propagating through the round, lens-like axicon tip and the conical surface surrounding the tip. It is shown that the periodicity of oscillations depends on the parameter of bluntness: if this parameter increases the periodicity of oscillations (as well as the radius of the center of the light ring) decreases, and their amplitude increases. The method for determination of the bluntness of real axicon is proposed and tested. Obtained results can be useful for correction of characteristics of conventional axicons.

Keywords: axicon; Bessel beams; diffraction; interference; intensity of light.

Introduction

Axicons are a family of cylindrical symmetrical optical elements that produce a line focus rather than a point focus from incident collimated beam [1]. There are several types of axicons, working either by reflection or by transmission, and being either converging or diverging, but the most common one is probably the conical lens. Recently, new types of axicons are created using metasurfaces [2; 3]. Axicons are widely used in many applications, ranging from optical coherence tomography [4] and multi-photon imaging [5; 6] to manipulation and sorting of micro objects like biological cells [7–9] and generation of non-linear optical interactions (including plasma formation) in solids [10–12], liquids [13–15] and gases [16–19]. This interest is mainly due to the ability of axicons to form the light beams whose transversal intensity distribution is described by the zeroth-order Bessel function of the first kind. Meanwhile, this distribution is invariant along the beam propagation. Such beams are called as «quasi-non-diffracting» ones.

As a rule, considering the features of the field behind the axicon authors ignore diffraction effects on the axicon edges and assume an ideally sharp tip (see, for example, [20–25]). However, in most of the experimental realisations, the obtained pattern is more complicated than predicted such a way. Recently, it is shown that the diffraction from the axicon edges causes noticeable modulation of the on-axis optical intensity along the beam propagation [26–28]. Moreover, due to manufacturing constraints [29], the tip of the axicon deviates from the ideal cone shape and becomes rather round, causing significant aberrations in the intensity profile [30–32] (introducing modulations in the on-axis intensity). These oscillations result from the interference of parts of the incoming beam propagating through the round, lens-like axicon tip and the conical surface surrounding the tip [30]. Meanwhile, for narrow beams the axicon acts similarly as a conventional lens. Axicons with smaller base angles (longer zones of diffraction-less) are more prone to such aberrations. Results, obtained in works [30–32], demonstrated that axicon blunt profile should be taken into account for most applications,

especially those requiring high, smooth and continuous on-axis intensities. But determination of the bluntness value stays important problem because it needs a complex and expensive equipment.

In the present paper, we study the modifications induced by the bluntness of the conical lens vertex on the transverse intensity distribution of the beam. We show in particular that the round-tip axicon causes the oscillations in transversal intensity distribution. The periodicity of them can be used for estimation of bluntness and, as a consequence, optimisation of the transverse size of the incident beam.

Theory: the beam behind axicon

Axicons – conical lenses – are optical elements that have rotational symmetry about the z -axis (fig. 1, *a*). They generate a quasi-Bessel beam throughout their depth of focus (DOF) region. It is known that beyond the DOF, the beam gradually transforms into a ring of constant width and increasing the radius as it propagates. The important parameters that characterise an axicon are its front face radius R , the base angle α and the refractive index n (see fig. 1, *a*). These parameters together determine the length of the DOF of the axicon.

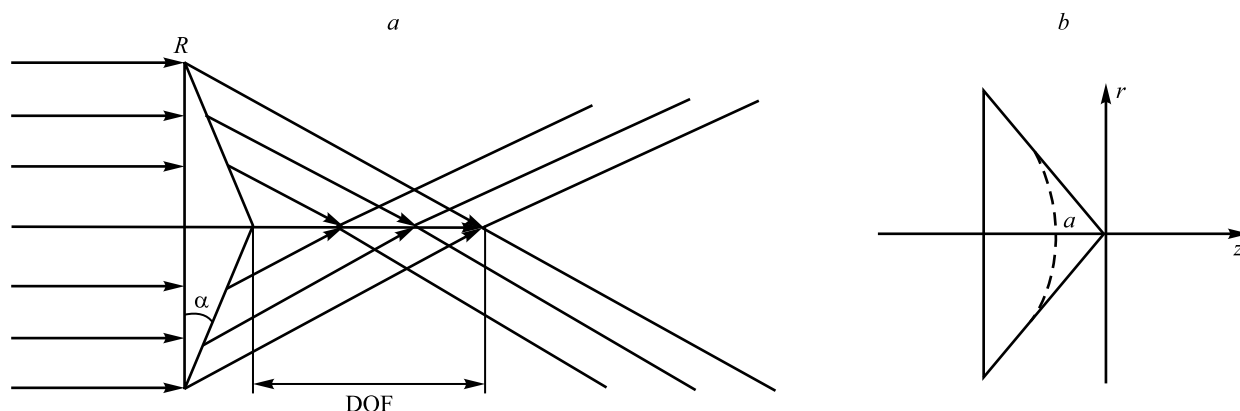


Fig. 1. Ideal refractive axicon ray tracing for the Gaussian input (*a*), DOF and approximation of its the rounded tip by hyperbola (*b*)

Let us consider now the input light beam to be a collection of rays traveling parallel to the z -axis. All these rays refract at the conical surface of the axicon towards the axis with the same angle θ . All the rays at one radial distance, come to focus at one point on the axis. The rays incident at the extreme of the axicon (i. e. the furthest radial distance) determine the DOF of the axicon, as shown in fig. 1, *a*. As follows from Snell's law, $\sin \theta = n \sin \alpha$. Thus, for the small angle α , the DOF is calculated by the formula

$$\text{DOF} = \frac{R}{(n-1)\alpha}.$$

But when the incident beam waist and the axicon radius are approximately equal, the contribution of diffraction on the edges becomes significant. It displays in oscillatory axial intensity [28]. Owing to this, as a rule, the beam waist is chosen smaller than axicon diameter $D = 2R$, and the length of focal line becomes less:

$$F = \frac{w_1}{(n-1)\alpha},$$

where w_1 is the half-width of incident beam on the front face of axicon.

Consider now the field formed by axicon with rounded tip (fig. 1, *b*). It was found that the latter can be correctly approximated by hyperbola [31] that yields a very good match between the calculations and experiments. The center of used coordinate system is combined with the tip of the perfect axicon, and z -axis is directed from the input surface.

The axicon surface is approximated by the hyperbola

$$\frac{z^2}{a^2} - \frac{r^2}{b^2} = 1, \quad (1)$$

where a and b are parameters characterised the curve. From equation (1) it follows

$$z = -\frac{a}{b} \sqrt{b^2 + r^2}. \quad (2)$$

Here $\frac{b}{a} = \operatorname{tg} \frac{\tau}{2}$, τ is the apex angle (the angle between asymptotes of hyperbola). Then we can rewrite equation (2):

$$z = -\sqrt{a^2 + r^2 \operatorname{ctg}^2 \frac{\tau}{2}} = -\sqrt{a^2 + r^2 \operatorname{tg}^2 \alpha}.$$

Parameter a (below – parameter of bluntness) characterises the shape of axicon, namely, the smaller the parameter a the closer the axicon shape to the ideal.

The transmission function of the axicon with rounded tip is determined by following relation:

$$t(r) = \exp\left(-ik_0(n-1)\sqrt{a^2 + r^2 \operatorname{tg}^2 \alpha}\right), \quad (3)$$

where k_0 denotes the free-space wavenumber associated with frequency ω . It should be noted that for $a \rightarrow 0$ and small angles α equation (3) transfers to well-known formula for transmission function of ideal axicon:

$$t_{\text{perf}}(r) = \exp[-ik_0(n-1)r \operatorname{tg} \alpha].$$

Let the field in the front face of axicon is the Gaussian beam:

$$E_{in}(r_1) = \frac{1}{\sqrt{W_g}} \exp\left(-\frac{r_1^2}{w_1^2}\right),$$

where $W_g = \frac{\pi w_1^2}{2}$. Here (as well as above) w_1 is the half-width of the beam. According to scalar wave optics, the field on distance z from the axicon is described by the integral

$$E_1(r_1, z) = \frac{-ik_0}{z\sqrt{W_g}} \int_0^R \exp\left(-\frac{r^2}{w_1^2} - ik_0(n-1)\sqrt{a^2 + r^2 \operatorname{tg}^2 \alpha} + ik_0 \frac{r_1^2 + r^2}{2z}\right) J_0\left(\frac{k_0 r r_1}{z}\right) r dr. \quad (4)$$

Let $z > F$. For this case the forming field is the conical beam. Let use equation (4) for calculation of its transversal intensity distribution. For definiteness we suppose below that $\lambda = 532$ nm (λ is the wavelength); $R = 1.77$ cm; $n = 1.4657$; $\alpha = 2^\circ$; $w_1 = 2$ mm. Thus, $F = 12$ cm. In fig. 2 the transversal intensity distribution in the plane $z = 45$ cm is represented for the case when we ignore the bluntness of the axicon tip ($a = 0$) and take it into account. It is seen that if $a = 0$ the ring field is characterised by negligible oscillations. For axicon with blunt profile the transversal intensity distribution is strongly oscillatory. Meanwhile, the ring width d (area, within which normalised intensity is larger than 0.5) is smaller as compared with the case of ideal axicon. These oscillations result from the interference of parts of the incoming beam propagating through the round, lens-like axicon tip and the conical surface surrounding the tip.

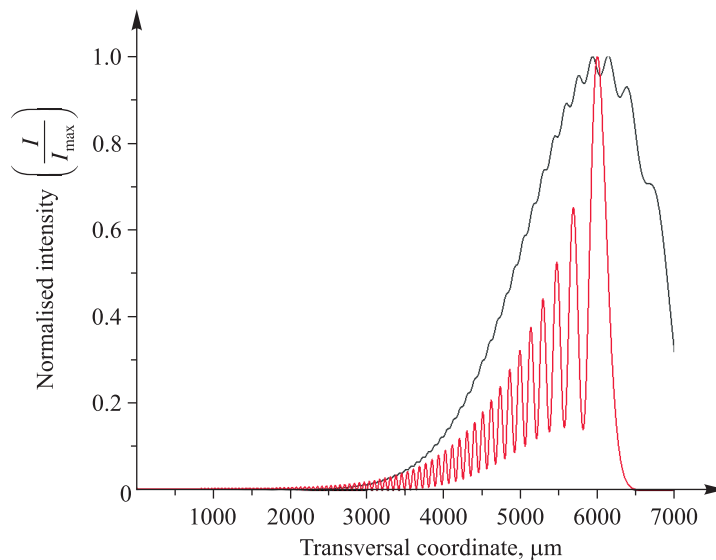


Fig. 2. Transversal intensity distribution of the field formed by ideal axicon (black curve) and axicon with blunt profile with $a = 8$ μm (red curve).
Parameters: $\lambda = 532$ nm; $R = 1.77$ cm; $n = 1.4657$; $\alpha = 2^\circ$; $w_1 = 2$ mm; $z = 45$ cm

The periodicity of oscillations depends on the parameter of bluntness a . As illustrated in fig. 3, if parameter a increases the periodicity of oscillation (as well as the radius of the center of the light ring) decreases, and their amplitude increases.

It should be noted that diffraction pattern behind axicon is strongly dependent on the base angle α . For example, as seen from fig. 4, the change of angle α on 0.1° causes the shift of intensity maximum in the plane $z = 45$ cm on approximately $380 \mu\text{m}$. But variation of the base angle does not cause the change of the periodicity or amplitude of intensity oscillation.

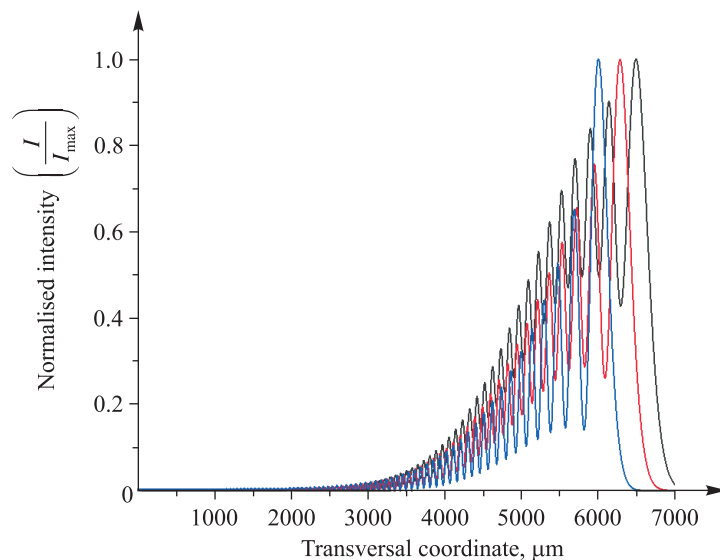


Fig. 3. Transversal intensity distribution of the field formed by axicon with blunt profile with $a = 3 \mu\text{m}$ (black curve), $a = 5 \mu\text{m}$ (red curve), $a = 8 \mu\text{m}$ (blue curve). Parameters: $\lambda = 532 \text{ nm}$; $R = 1.77 \text{ cm}$; $n = 1.4657$; $\alpha = 2^\circ$; $w_1 = 2 \text{ mm}$; $z = 45 \text{ cm}$

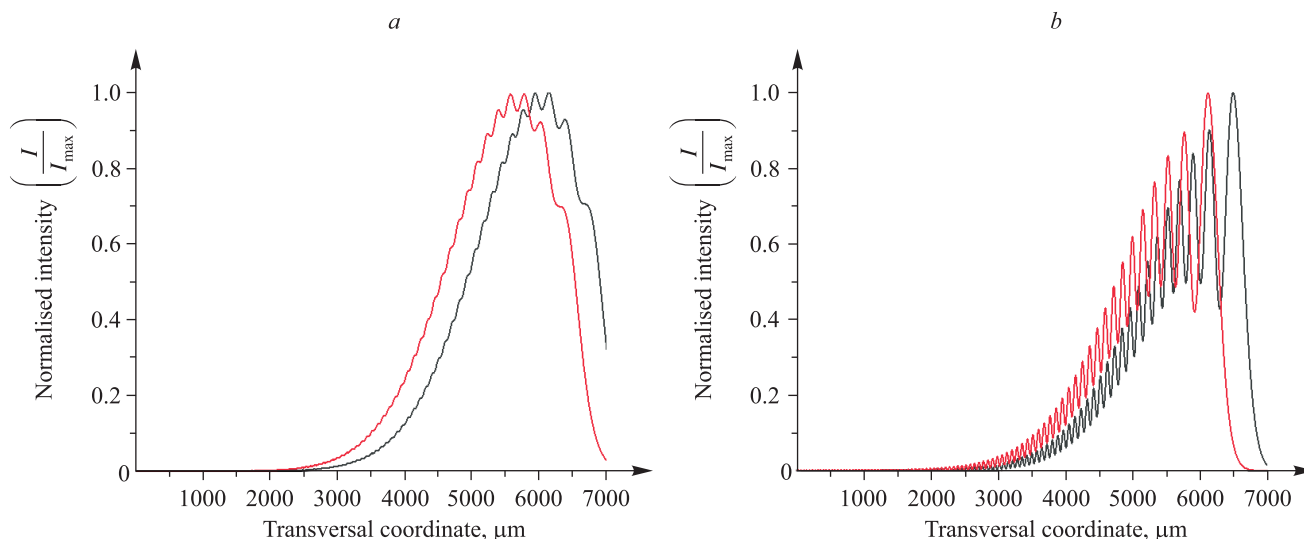


Fig. 4. Transversal intensity distribution of the field formed by ideal axicon (a) and axicon with blunt profile with $a = 3 \mu\text{m}$ (b) at base angle $\alpha = 2^\circ$ (black curve) and $\alpha = 1.9^\circ$ (red curve). Other parameters: $\lambda = 532 \text{ nm}$; $R = 1.77 \text{ cm}$; $n = 1.4657$; $w_1 = 2 \text{ mm}$; $z = 45 \text{ cm}$

Thus, position of maximum of transversal intensity distribution is the function of two parameters (parameter of bluntness a and value of the base angle α), which are determined in manufactory specification, as a rule, very roughly. Using the features of diffraction patterns in far field behind the axicon one can estimate these characteristics. In detail this problem will be consider in next section.

Experiment

In experiment the incident Gaussian beam was transformed by a commercially available axicon Thorlabs with the front face radius $R = 1.27$ cm and the base angle $\alpha = 2^\circ$ (according to manufactory specification). Transversal intensity distribution was registered by CCD camera. Measured beam waist is equal $246 \mu\text{m}$. Axicon was placed on the distance of 2.94 m from the laser. The diffraction patterns from two axicons with the same «nominal» parameters, experimentally observed in the plane $z = 45$ cm, is represented in fig. 5. As seen from fig. 5, despite equal «nominal» base angles of axicons diffraction patterns, formed by them, strongly differ as in position of the maximum of transversal intensity distribution (for the first axicon – $5265 \mu\text{m}$, and for the second axicon – $5648 \mu\text{m}$) as the amplitude of oscillation. It indicates the bluntness of their tips and difference in characteristics of axicons.

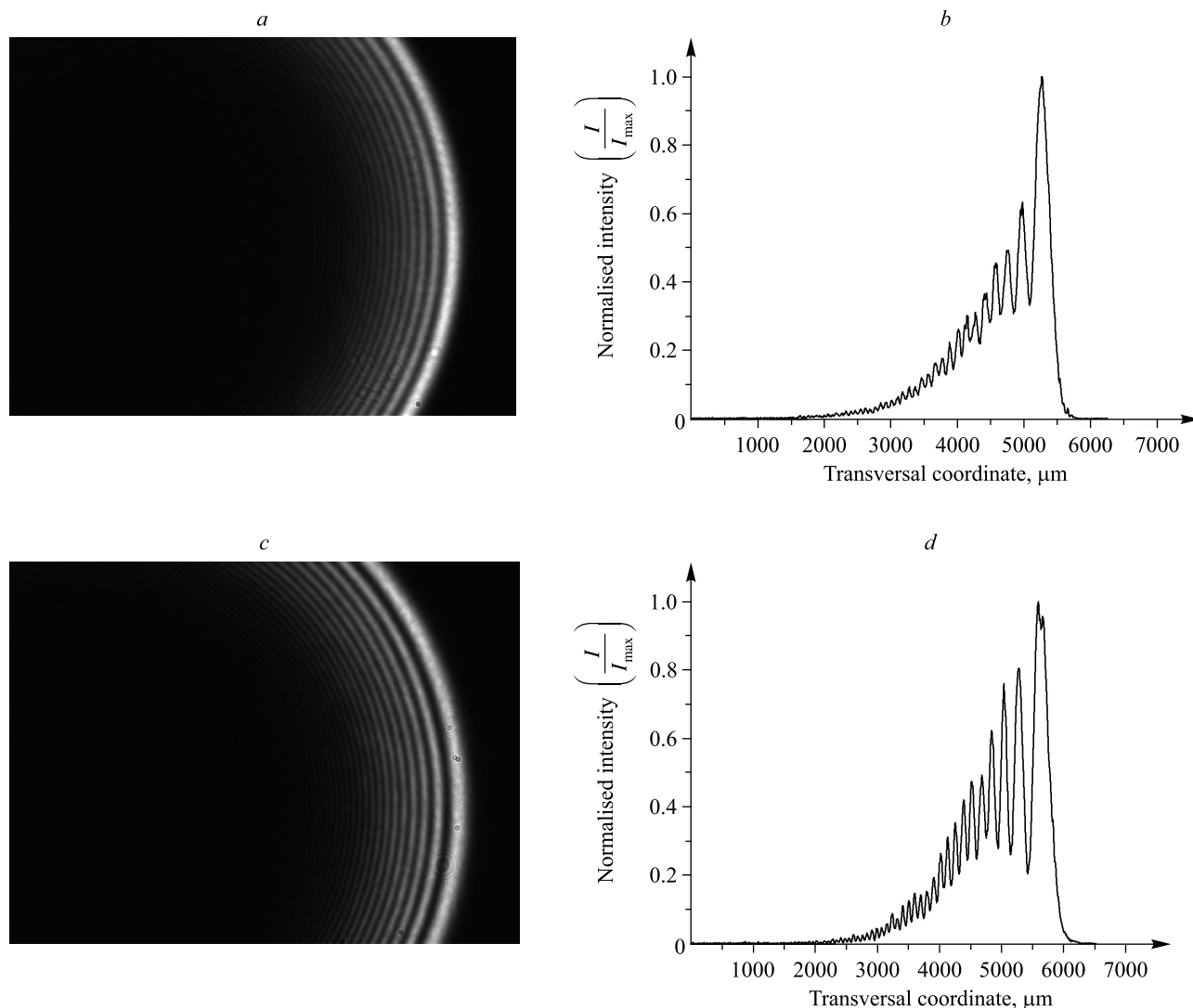


Fig. 5. Diffraction pattern and transversal intensity distribution for the case of the first (a, b) and the second (c, d) axicons

For determination of these characteristics we measure diffraction patterns from the axicon in some planes ($z = 45$ cm, $z = 60$ cm and $z = 80$ cm). Results of measurements for definite z (for example, $z = 45$ cm) are compared with the transversal intensity distributions calculated according to equation (4) for every possible pair of values α and a (value α changes from 1.8 up to 2.2° with the step 0.1° , and value a changes from 3 up to $30 \mu\text{m}$ with the step $1 \mu\text{m}$). Thus, the pair of values α_c and a_c is determined, for which coincidence of measured and calculated transversal intensity distributions takes place. Further, we verify the correlation between measured and calculated (for α_c and a_c) transversal intensity distributions for another z (for example, $z = 60$ cm and $z = 80$ cm). Satisfactory fit between curves for fixed z testifies that the pair of parameters α_c and a_c is chosen rightly.

In fig. 6, there are presented measured and calculated transversal intensity distributions for the first and the second axicons. As a result of technique described above we obtained that for the first axicon $\alpha = 1.85^\circ$ and $a = 10 \mu\text{m}$, for the second axicon $\alpha = 1.9^\circ$ and $a = 8 \mu\text{m}$.

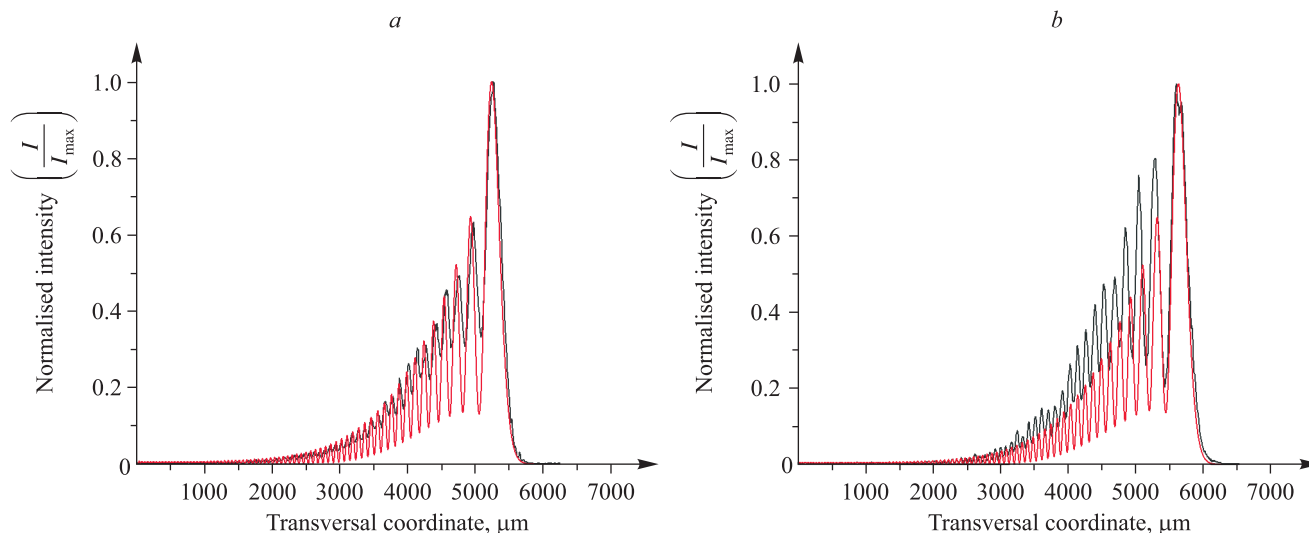


Fig. 6. Experimentally (black curve) and theoretically (red curve) obtained transversal intensity distribution of the field behind the first (a) and the second (b) axicons. Parameters: $\lambda = 532 \text{ nm}$; $R = 1.77 \text{ cm}$; $n = 1.4657$; $\alpha = 2^\circ$; $w_1 = 2 \text{ mm}$; $z = 45 \text{ cm}$

Conclusions

We considered an imperfect axicon with rounded tip approximated by a hyperboloid, and we analysed theoretically and experimentally the properties of the beam generated in far field behind such an axicon. In the course of the study we have established that if the axicon tip deviates in its apex from the ideal sharp tip in the range of tens of micrometers, the transversal intensity distribution is strongly oscillatory. Meanwhile, the ring width d (area, within which normalised intensity does not exceed 0.5) is smaller than in the case of ideal axicon. These oscillations are caused by the interference of parts of the incoming beam propagating through the round, lens-like axicon tip and the conical surface surrounding the tip. It is shown that the periodicity of oscillation depends on the parameter of bluntness a : when it increases the periodicity of oscillations (as well as the radius of the center of the light ring) decreases, and their amplitude increases. We have proposed and tested the method for determining the bluntness of real axicon.

Obtained results can be used to correcting the characteristics of conventional axicons.

References

1. McLeod JH. The axicon: a new type of optical element. *Journal of the Optical Society of America*. 1954;44(8):592–597. DOI: 10.1364/JOSA.44.000592.
2. Khonina SN, Kazanskiy NL, Khorin PA, Butt MA. Modern types of axicons: new functions and applications. *Sensors*. 2021; 21(19):6690. DOI: 10.3390/s21196690.
3. Fan Y, Cluzel B, Petit M, Le Roux X, Lupu A, de Lustrac A. 2D waveguided Bessel beam generated using integrated metasurface-based plasmonic axicon. *ACS Applied Materials & Interfaces*. 2020;12(18):21114–21119. DOI: 10.1021/acsami.0c03420.
4. Ding Z, Ren H, Zhao Y, Nelson JS, Chen Z. High-resolution optical coherence tomography over a large depth range with an axicon lens. *Optics Letters*. 2002;27(4):243–245. DOI: 10.1364/OL.27.000243.
5. Tsampoula X, Garcés-Chávez V, Comrie M, Stevenson DJ, Agate B, Brown CTA, et al. Femtosecond cellular transfection using a nondiffracting light beam. *Applied Physics Letters*. 2007;91(5):053902. DOI: 10.1063/1.2766835.
6. Dufour P, Piché M, Koninck YD, McCarthy N. Two-photon excitation fluorescence microscopy with a high depth of field using an axicon. *Applied Optics*. 2006;45(36):9246–9252. DOI: 10.1364/AO.45.009246.
7. Čižmár T, Garcés-Chávez V, Dholakia K, Zemánek P. Optical conveyor belt for delivery of submicron objects. *Applied Physics Letters*. 2005;86(17):174101. DOI: 10.1063/1.1915543.
8. Shao B, Esener SC, Nascimento JM, Botvinick EL, Berns MW. Dynamically adjustable annular laser trapping based on axicons. *Applied Optics*. 2006;45(25):6421–6428. DOI: 10.1364/AO.45.006421.
9. Garcés-Chávez V, McGloin D, Melville H, Sibbett W, Dholakia K. Simultaneous micromanipulation in multiple planes using a self-reconstructing light beam. *Nature*. 2002;419(6903):145–147. DOI: 10.1038/nature01007.
10. Polesana P, Dubietis A, Porras MA, Kučinskas E, Faccio D, Couairon A, et al. Near-field dynamics of ultrashort pulsed Bessel beams in media with Kerr nonlinearity. *Physical Review E*. 2006;73(5):056612. DOI: 10.1103/PhysRevE.73.056612.

11. Pyragaitė V, Regelskis K, Smilgevičius V, Stabinis A. Self-action of Bessel light beams in medium with large nonlinearity. *Optics Communications*. 2006;257(1):139–145. DOI: 10.1016/j.optcom.2005.07.012.
12. Arlt J, Dholakia K, Allen L, Padgett MJ. Efficiency of second-harmonic generation with Bessel beams. *Physical Review A*. 1999;60(3):2438. DOI: 10.1103/PhysRevA.60.2438.
13. Polesana P, Franco M, Couairon A, Faccio D, Di Trapani P. Filamentation in Kerr media from pulsed Bessel beams. *Physical Review A*. 2008;77(4):043814. DOI: 10.1103/PhysRevA.77.043814.
14. Dubietis A, Polesana P, Valiulis G, Stabinis A, Di Trapani P, Piskarskas A. Axial emission and spectral broadening in self-focusing of femtosecond Bessel beams. *Optics Express*. 2007;15(7):4168–4175. DOI: 10.1364/OE.15.004168.
15. Polesana P, Couairon A, Faccio D, Parola A, Porras MA, Dubietis A, et al. Observation of conical waves in focusing, dispersive, and dissipative Kerr media. *Physical Review Letters*. 2007;99(22):223902. DOI: 10.1103/PhysRevLett.99.223902.
16. Durfee CG, Milchberg HM. Light pipe for high intensity laser pulses. *Physical Review Letters*. 1993;71(15):2409. DOI: 10.1103/PhysRevLett.71.2409.
17. Akturk S, Zhou B, Franco M, Couairon A, Mysyrowicz A. Generation of long plasma channels in air by focusing ultrashort laser pulses with an axicon. *Optics Communications*. 2009;282(1):129–134. DOI: 10.1016/j.optcom.2008.09.048.
18. Polynkin P, Kolesik M, Roberts A, Faccio D, Di Trapani P, Moloney J. Generation of extended plasma channels in air using femtosecond Bessel beams. *Optics Express*. 2008;16(20):15733–15740. DOI: 10.1364/OE.16.015733.
19. Roy G, Blanchard M, Tremblay R. High-pressure amplified stimulated emission effect in a N₂ laser produced plasma with axicon lenses. *Optics Communications*. 1980;33(1):65–68. DOI: 10.1016/0030-4018(80)90094-2.
20. Sochacki J, Kołodziejczyk A, Jaroszewicz Z, Bará S. Nonparaxial design of generalized axicons. *Applied Optics*. 1992;31(25):5326–5330. DOI: 10.1364/AO.31.005326.
21. Soroko LM. Axicons and meso-optical imaging devices. In: Patorski K, Soroko LM, Bassett IM, Welford WT, Winston R, Mihalache D, et al. *Progress in optics. Volume 27*. Wolf E, editor. Amsterdam: North-Holland; 1989. p. 109–160. DOI: 10.1016/S0079-6638(08)70085-4.
22. Dutta R, Saastamoinen K, Turunen J, Friberg AT. Broadband spatiotemporal axicon fields. *Optics Express*. 2014;22(21):25015–25026. DOI: 10.1364/OE.22.025015.
23. Jaroszewicz Z, Burvall A, Friberg AT. Axicon – the most important optical element. *Optics & Photonics News*. 2005;16(4):34–39.
24. Wang Y, Yan S, Friberg AT, Kuebel D, Visser TD. Electromagnetic diffraction theory of refractive axicon lenses. *Journal of the Optical Society of America A*. 2017;34(7):1201–1211. DOI: 10.1364/JOSAA.34.001201.
25. Ren O, Birngruber R. Axicon: a new laser beam delivery system for corneal surgery. *IEEE Journal of Quantum Electronics*. 1990;26(12):2305–2308. DOI: 10.1109/3.64369.
26. Liu Xiaoqing, Xue Changxi. Intensity distribution of diffractive axicon with the optical angular spectrum theory. *Optik*. 2018; 163:91–98. DOI: 10.1016/j.ijleo.2018.02.089.
27. Durmin J, Miceli JJ Jr, Eberly JH. Diffraction-free beams. *Physical Review Letters*. 1987;58(15):1499. DOI: 10.1103/PhysRevLett.58.1499.
28. Schwarz S, Rung S, Esen C, Hellmann R. Fabrication of a high-quality axicon by femtosecond laser ablation and CO₂ laser polishing for quasi-Bessel beam generation. *Optics Express*. 2018;26(18):23287–23294. DOI: 10.1364/OE.26.023287.
29. Horváth ZL, Bor Z. Diffraction of short pulses with boundary diffraction wave theory. *Physical Review E*. 2001;63(2):026601. DOI: 10.1103/PhysRevE.63.026601.
30. 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.
31. Dépret B, Verkerk P, Hennequin D. Characterization and modelling of the hollow beam produced by a real conical lens. *Optics Communications*. 2002;211(1–6):31–38. DOI: 10.1016/S0030-4018(02)01900-4.
32. Brzobohatý O, Čižmár 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.

Received 09.03.2023 / revised 12.04.2023 / accepted 13.04.2023.

УДК 535.37

РАСЧЕТ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ЧИСЛА ФОТООТСЧЕТОВ В СИСТЕМАХ РЕГИСТРАЦИИ ФЛУКТУАЦИЙ ИНТЕНСИВНОСТИ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ

В. В. СКАКУН¹⁾, В. В. АПАНАСОВИЧ¹⁾

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

Исследование молекулярного состава вещества на основе расчета распределения числа фотоотсчетов является эффективным методом анализа экспериментальных данных во флуоресцентной флукуационной спектроскопии. Этот метод относится к числу неинвазивных и позволяет изучать процессы димеризации молекулярных комплексов в живых клетках, что востребовано в биологии, медицине и фармацевтике. Получение теоретического распределения числа фотоотсчетов сопряжено с рядом трудностей как алгоритмического, так и вычислительного характера. Проведен сравнительный анализ трех основных методов расчета распределения числа фотоотсчетов и предложена методика, гарантирующая его корректное вычисление во всем диапазоне изменения параметров модели и ширины канала регистрации. Вывод аналитических выражений представлен для случая гауссовской аппроксимации профиля засветки с коррекцией на внефокусное излучение и нормировки на первые два момента профиля. Другие способы аппроксимации профиля засветки и нормировки оцениваемых параметров можно осуществить аналогично. Предложенная методика программно реализована в пакете *FFS Data Processor*, который используется для глобального анализа потоков фотоотсчетов во флуоресцентной флукуационной спектроскопии и обеспечивает эффективный расчет распределения числа фотоотсчетов в широком диапазоне оцениваемых параметров.

Ключевые слова: флуоресцентная флукуационная спектроскопия; распределение числа фотоотсчетов; РФФ; FIDA; РСН; производящая функция числа фотоотсчетов.

CALCULATION OF PHOTON COUNTING DISTRIBUTION IN FLUORESCENCE INTENSITY FLUCTUATIONS REGISTRATION SYSTEMS

V. V. SKAKUN^a, V. V. APANASOVICH^a

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

Corresponding author: V. V. Skakun (skakun.victor@gmail.com)

The study of the molecular composition of a substance based on the calculation of photon counting distribution is an effective method for analysing experimental data in fluorescence fluctuation spectroscopy. This method is non-invasive and makes it possible to resolve the processes of dimerisation of molecular complexes in living cells, which is in demand

Образец цитирования:

Скакун ВВ, Апанасович ВВ. Расчет распределения числа фотоотсчетов в системах регистрации флукуаций интенсивности флуоресценции. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика.* 2023;2:22–38.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-22-38>

For citation:

Skakun VV, Apanasovich VV. Calculation of photon counting distribution in fluorescence intensity fluctuations registration systems. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2023;2:22–38. Russian.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-22-38>

Авторы:

Виктор Васильевич Скакун – кандидат физико-математических наук, доцент; докторант кафедры системного анализа и компьютерного моделирования факультета радиопизики и компьютерных технологий.

Владимир Владимирович Апанасович – доктор физико-математических наук, профессор; профессор кафедры системного анализа и компьютерного моделирования факультета радиопизики и компьютерных технологий.

Authors:

Viktor V. Skakun, PhD (physics and mathematics), docent; doctoral student at the department of system analysis and computer simulation, faculty of radiophysics and computer technologies.
skakun.victor@gmail.com

<https://orcid.org/0000-0003-0880-4188>

Vladimir V. Apanasovich, doctor of science (physics and mathematics), full professor; professor at the department of system analysis and computer simulation, faculty of radiophysics and computer technologies.
apanasovich@bsu.by

<https://orcid.org/0000-0003-4525-4234>

in biology, medicine and pharmaceuticals. Obtaining a theoretical photon counting distribution is a complicated task in both algorithmic and computational sense. In this paper, a comparative analysis of the three main methods for calculating photon counting distribution is carried out and an effective method for its calculating is proposed, which guarantees the correct calculation of photon counting distribution over the entire range of variation of the model parameters and the width of the counting time interval. The derivation of all expressions is given for the case of a Gaussian approximation of the brightness profile with correction for out-of-focus emission and normalisation to the first two moments of the profile. Other ways of approximating the brightness profile and normalising the estimated parameters can be made similarly. The proposed technique is implemented in *FFS Data Processor* software package, which is designed for a global analysis of photocounts in fluorescence fluctuation spectroscopy and allows efficient calculation of photon counting distribution in a wide range of estimated parameters.

Keywords: fluorescence fluctuation spectroscopy; photon counting distribution; PCD; FIDA; PCH; generating function of the number of photocounts.

Введение

Флуоресцентная флукуационная спектроскопия (ФФС) позволяет исследовать вещество как *in vitro*, так и *in vivo* на одномолекулярном уровне без нарушения термодинамического равновесия [1]. Все методы ФФС объединяет общий принцип проведения измерений: регистрация флуоресценции производится из предельно малого открытого объема, который определяется лучом лазера, сфокусированного конфокальной оптической системой с высокой числовой апертурой и однофотонной чувствительностью [2]. Оценки параметров исследуемого вещества являются результатом статистического анализа флукуаций интенсивности флуоресценции, которые могут происходить вследствие изменения как количества и местоположения молекул или молекулярных комплексов в малом неоднородно освещенном объеме, так и их характеристической яркости (т. е. среднего количества фотонов, излученных одной молекулой или молекулярным комплексом в единицу времени). Предполагается, что молекулярный комплекс обладает естественной флуоресценцией либо несет на себе одну или несколько флуоресцентных меток и регистрируется в эксперименте как единое целое. Сочетание высокой чувствительности и неинвазивности приводит к интенсивному применению этих методов для измерения коэффициента диффузии белков, а также индекса стехиометрии белковых комплексов, анализа динамики быстрых молекулярных процессов и фотохимических реакций в живых клетках, исследования процессов димеризации и изомеризации [1; 3; 4].

Наиболее известным методом ФФС является метод флуоресцентной корреляционной спектроскопии (*fluorescence correlation spectroscopy*, FCS), позволяющий на основе анализа автокорреляционной функции (АКФ) потока фотоотсчетов разрешать смесь веществ, различающихся диффузионным коэффициентом [2; 5]. Для разрешения смеси веществ, различающихся характеристической яркостью или индексом стехиометрии (например, смеси мономер – димер), широко применяются анализ распределения интенсивности флуоресценции (*fluorescence intensity distribution analysis*, FIDA) [6; 7], анализ гистограмм счета фотонов (*photon counting histogram*, PCH) [8–10] и кумулянтный анализ фотоотсчетов (*fluorescence cumulants analysis*, FCA) [11–13]. Методы FIDA, PCH и FCA используют распределение числа фотоотсчетов (РЧФ) (методы FIDA и PCH – напрямую, а метод FCA – через промежуточное вычисление факториальных кумулянтов числа фотоотсчетов). Следует отметить, что методы FIDA и PCH отличаются способом их алгоритмической реализации, выбором функции, аппроксимирующей профиль засветки, и нормировкой, определяющей абсолютные значения оцениваемых параметров. Основными оцениваемыми параметрами являются концентрация вещества (среднее количество молекул в объеме наблюдения) и молекулярная (характеристическая) яркость. Известно, что методы FIDA, PCH и FCA математически эквивалентны, т. е. они могут быть выведены в общем виде из единой производящей функции (ПФ) числа фотоотсчетов [13; 14].

В настоящее время актуальным является применение техники так называемого глобального (иначе совместного) анализа АКФ и РЧФ, комбинирующего методы FCS и PCH (или FIDA) [4]. В этом случае обычно выполняется анализ множества РЧФ, вычисленных с разной шириной канала (интервала) регистрации [4]. Поскольку во всех рассмотренных методах ФФС оценки параметров получаются с помощью итерационного анализа экспериментальных данных по методу наименьших квадратов, то объем вычислений может быть очень велик. Также типичным для ФФС является анализ большого количества либо простых повторений измерений, либо измерений при мало отличающихся условиях, что еще значительно увеличивает время вычислений. Если модель FCS представлена относительно простым аналитическим выражением, то в методах FIDA и PCH для расчета применяется сложный алгоритм, требующий численного интегрирования и (в зависимости от метода) либо преобразования Фурье, либо

вычисления множества последовательных конволюций. Если алгоритм, реализующий расчет РЧФ, не является эффективным, то это может привести к недопустимо большим затратам времени на выполнение анализа.

Решением проблемы стал метод быстрого расчета РЧФ на основе разложения в ряд Тейлора (обозначим его как FGFC), при котором удается избавиться от численного интегрирования сложной функции [14; 15]. Но, к сожалению, данный метод имеет существенные ограничения на область изменения параметров модели. С увеличением значения яркости либо ширины канала регистрации (эти два параметра всегда неразрывно присутствуют в модели в виде произведения), а также числа молекул в объеме наблюдения в рассчитываемом РЧФ начинают появляться искажения (рис. 1, б). Даже при незначительном дальнейшем увеличении значений параметров вид РЧФ может полностью исказиться (рис. 1, в), и весь расчет закончится вычислительной ошибкой. На рис. 1, а, представлен пример расчета РЧФ непосредственно вблизи границы его корректного вычисления. При дальнейшем увеличении ширины канала регистрации в пределах менее 1 % вычисление РЧФ становится невозможным.

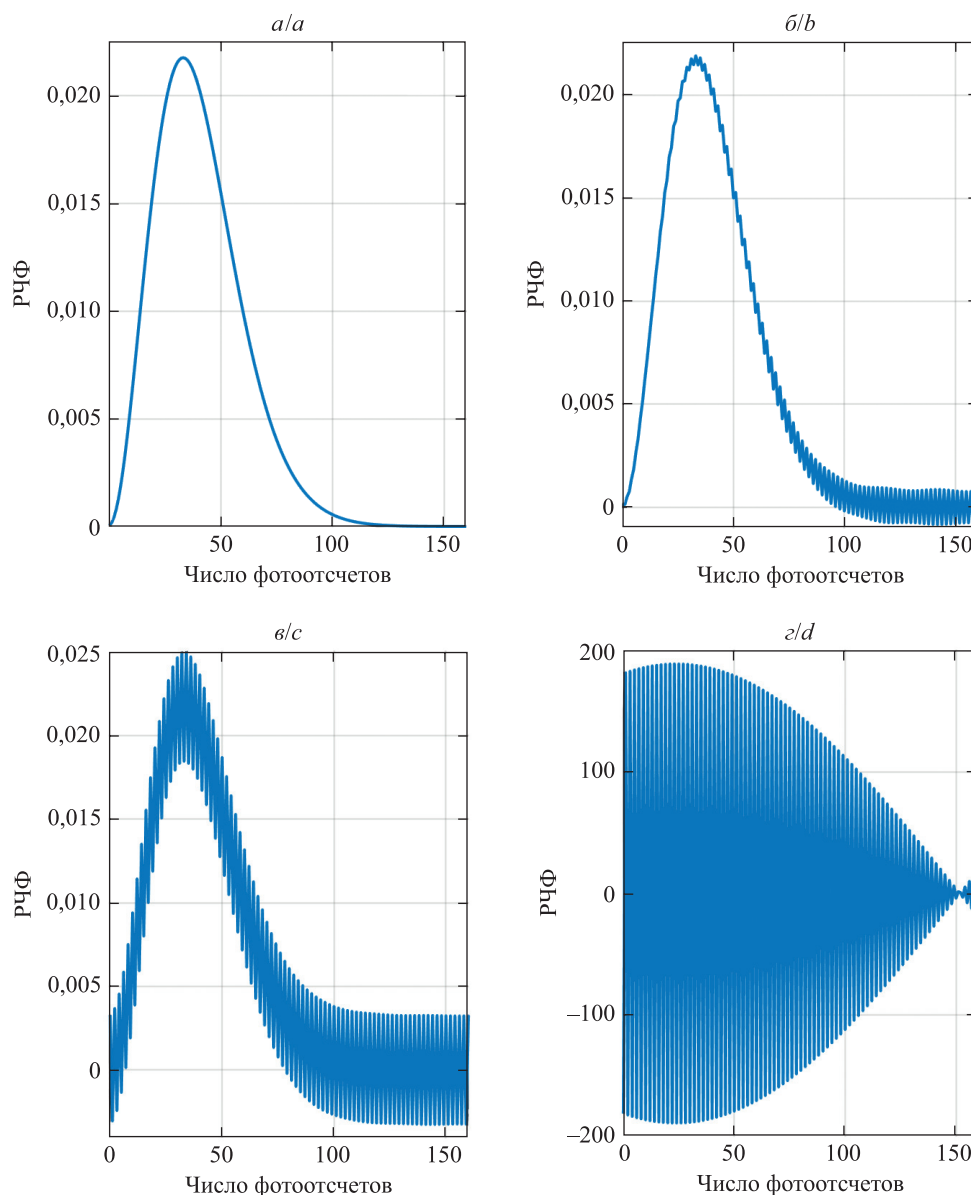


Рис. 1. Вид РЧФ: а – корректное вычисление; б – в – искажения формы РЧФ, наблюдаемые при увеличении ширины канала регистрации в пределах менее 1 %

Fig. 1. Photon counting distribution (PCD) shape:
а – correct calculation; б – в – distortion of PCD shape, observed
with an increase in the counting time interval within less than 1 %

Способ расчета РЧФ, используемый в методе FIDA, также не лишен недостатков (принятые в нем вид аппроксимации профиля засветки и способ нормировки приводят к появлению ошибок [16] и нестабильности анализа данных), а наиболее вычислительно-устойчивый метод РСН является очень медленным. Поскольку метод FGFC не работает во всей области определения параметров, встает вопрос о выборе метода расчета РЧФ в зависимости от значений оцениваемых параметров и создании методики, а для целей программной реализации – алгоритма, обеспечивающих вычисление РЧФ в большом диапазоне изменения параметров модели и ширины канала регистрации.

Целью настоящей работы является исследование методов вычисления РЧФ в системах регистрации флуктуаций интенсивности флуоресценции, а также разработка эффективной методики расчета РЧФ, устойчивой к ошибкам в широкой области допустимого изменения параметров модели.

Теоретические основы исследования

Анализ РЧФ в ФФС. Как известно, анализ РЧФ в ФФС производится по методу наименьших квадратов с использованием итерационных методов оптимизации. Чаще всего применяется хорошо зарекомендовавший себя в данной области метод Левенберга – Марквардта [17]. Экспериментальное распределение $\tilde{P}(n)$ рассчитывается как гистограмма числа фотоотсчетов n , полученных в ходе эксперимента с шириной канала регистрации T , при этом n меняется от нуля до максимально выпавшего числа фотоотсчетов m . В качестве критерия качества при анализе одной кривой используется взвешенный критерий χ^2 , задаваемый формулой

$$\chi^2 = \frac{1}{m-l} \sum_{n=0}^m \frac{(\tilde{P}(n) - P(n))^2}{\sigma_n^2},$$

где l – число оцениваемых при анализе параметров; $P(n)$ – теоретическое (модельное) РЧФ, вычисленное при заданных параметрах исследуемой молекулярной системы и экспериментальной установки; σ_n – стандартные отклонения значений экспериментального РЧФ. Выражение для расчета критерия χ^2 при глобальном анализе нескольких кривых РЧФ приведено в работе [18]. Стандартные отклонения вычисляются в предположении биномиальной статистики [8].

Метод FIDA. Удобным инструментом для изучения свойств потока зарегистрированных фотоотсчетов, несущих информацию об исследуемом веществе, является ПФ числа точек потока, определяемая как $G(\xi) = \langle \xi^n \rangle_n = \sum_{n=0}^{\infty} P(n) \xi^n$, где ξ – некоторая вспомогательная переменная ($0 \leq \xi < 1$). Распределение $P(n)$ легко найти через обратное преобразование Фурье от характеристической функции, получаемой из ПФ путем замены формальной переменной ξ на комплексную экспоненту $e^{i\varphi}$:

$$P(n) = \text{БПФ}^{-1} \left(G(e^{i\varphi}) \right), \quad n = 0, 1, \dots, m-1, \quad \varphi = \frac{2\pi n}{m}, \quad (1)$$

где БПФ – быстрое преобразование Фурье.

Производящая функция $G(\xi)$ распределения $P(n)$ числа фотонов, излученных флуоресцентными молекулами, находящимися в равновесном состоянии в открытом объеме наблюдения V в течение короткого интервала регистрации T , может быть записана в следующем виде [6]:

$$G(\xi) = \exp \left(\sum_i C_i \int_V \left(e^{(\xi-1)q_i T B(\mathbf{r})} - 1 \right) d\mathbf{r} \right), \quad (2)$$

где $B(\mathbf{r})$ – функция профиля засветки, описывающего пространственное распределение зарегистрированной интенсивности флуоресценции; C_i – концентрация молекул i -й компоненты; q_i – характеристическая яркость молекул i -й компоненты, определяемая количеством фотонов, испущенных одной молекулой в единицу времени, и равная произведению интенсивности засветки в фокусе, коэффициента поглощения лазерного излучения молекулами вещества, квантового выхода флуоресценции и эффективности системы регистрации. Выражение (2) получено в предположении, что вклад каждой молекулы в зарегистрированный поток фотонов независим, интенсивность флуоресценции постоянна в пределах ширины канала (интервала) регистрации T , а процессами фоторазрушения и насыщения можно пренебречь.

Ключевой особенностью метода FIDA является аппроксимация профиля засветки экспоненциальной функцией одного аргумента с преобразованием дифференциала этого аргумента в виде полинома [6; 7]:

$$\frac{d\mathbf{r}}{dx} = A_0(x + ax^2 + bx^3), \quad x = \ln \left[\frac{B_0}{B(\mathbf{r})} \right],$$

где a и b – параметры, зависящие от используемой в эксперименте аппаратуры (далее – инструментальные параметры). Такое приближение позволяет учесть разброс значений, вызванный различием оптических параметров измерительной системы и возникновением систематических ошибок в результате ее разбалансировки. Значения A_0 и B_0 предлагается вычислять из системы уравнений нормировки вида [6]

$$\int_V B(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = 1, \quad \int_V B^2(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = 1. \quad (3)$$

Метод РСН. В методе РСН для нахождения распределения $P(n)$, зарегистрированного от двух и более молекул, используется последовательное вычисление конволюций одномолекулярного РЧФ $p^{(1)}(n, q, V_0)$ [8] по формуле

$$p^{(1)}(n, q, V_0) = \frac{1}{V_0} \int_{V_0} \text{Poi}(n, qTB(\mathbf{r})) d\mathbf{r}, \quad (4)$$

где $\text{Poi}(n, \eta)$ обозначает распределение Пуассона с параметром η , а измерения производятся в объеме наблюдения V_0 . Распределение $P(n)$, зарегистрированное от N молекул с концентрацией C в открытом объеме наблюдения V_0 ($N = CV_0$), есть сумма одномолекулярных распределений $p^{(1)}(n, q, V_0)$, свернутых между собой $j - 1$ раз и взвешенных на вероятность нахождения $j = 0, 1, \dots$ молекул в объеме наблюдения (по распределению Пуассона с параметром CV_0) [8]:

$$P(n, N, q) = \sum_{j=0}^{\infty} p^{(j)}(n, q) \text{Poi}(j, CV_0), \quad (5)$$

$$p^{(j)}(n, q) = \underbrace{p^{(1)} \otimes \dots \otimes p^{(1)}}_{j-1 \text{ раз}}(n, q), \quad p^{(0)}(n, q) = \begin{cases} 1, & n = 0, \\ 0, & n \neq 0. \end{cases}$$

При однофотонном возбуждении функция профиля засветки $B(\mathbf{r})$ аппроксимируется трехмерным асимметричным гауссовским распределением, вытянутым по оси z [19]:

$$B_G(\mathbf{r}) = B_G(x, y, z) = B_0 \exp \left(\frac{-2(x^2 + y^2)}{\omega_0^2} - \frac{2z^2}{z_0^2} \right), \quad (6)$$

где ω_0 и z_0 характеризуют падение интенсивности флуоресценции в поперечном и аксиальном направлении соответственно, $B_0 = B(\mathbf{0})$ полагается равным единице (профиль нормирован на единицу в максимуме). В ФФС объем наблюдения V_0 является открытым (молекулы могут беспрепятственно покидать этот объем и, наоборот, входить в него вследствие свободной диффузии) и не имеет четко очерченных физических границ. Для определения количества молекул, участвующих в процессе излучения фотонов, используют величину приведенного объема $V_{PSF} = \int_V B(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$ или чаще всего так называемого эффективного объема [9; 20]

$$V_{\text{eff}} = \frac{\left(\int_V B(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \right)^2}{\int_V B^2(\mathbf{r}) d\mathbf{r}}. \quad (7)$$

Поскольку интенсивность флуоресценции быстро падает по мере удаления от фокуса и размер кюветы с веществом намного больше, чем размер освещенной области, интегрирование в выражении (7) производится в бесконечных пределах. При однофотонном возбуждении и нормализации к эффективному объему ($N_{\text{eff}} = CV_{\text{eff}}$) одномолекулярное РЧФ имеет вид [9; 10]

$$p_{3DG}^{(1)}(n, q) = \frac{1}{Q\sqrt{\pi n}} \int_0^{\infty} \gamma(n, qTe^{-2x^2}) dx, \quad n = 1, 2, \dots, \quad (8)$$

$$p_{3DG}^{(1)}(0, q) = 1 - \sum_{n=1}^m p_{3DG}^{(1)}(n, q),$$

где $\gamma(n, x)$ – неполная гамма-функция; $Q = \frac{V_0}{V_{\text{eff}}}$ – константа, взятая такой, что произведение QV_{eff} будет достаточно велико, чтобы полностью включать объем наблюдения V_0 . Соответственно [9; 10],

$$P(n, N_{\text{eff}}, q) = \sum_{j=0}^{\infty} p^{(j)}(n, q) \text{Poi}(j, CV_0) = \sum_{j=0}^{\infty} p^{(j)}(n, q) \text{Poi}(j, QN_{\text{eff}}). \quad (9)$$

В конечном счете РЧФ смеси M независимых флуоресцирующих компонент будет сверткой РЧФ каждого вида [8]:

$$P(n) = P(n, N_{\text{eff},1}, q_1) \otimes \dots \otimes P(n, N_{\text{eff},M}, q_M). \quad (10)$$

Применение уравнений (8) и (9) для аппроксимации экспериментальных данных, полученных по методу однофотонного возбуждения, в большинстве случаев не представляется возможным из-за значительного отклонения фактического профиля засветки от предполагаемого трехмерного асимметричного гауссовского приближения [9]. Для улучшения модели в работе [9] были введены дополнительные параметры аппроксимации F_k , определяемые как относительная разность между интегралом k -й степени фактической функции профиля засветки $\chi_k = \int_V B^k(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$ (нормированной на единицу в максимуме ($B_0 = 1$)) и интегралом ее трехмерной гауссовской аппроксимации $\chi_{3DG,k}$:

$$F_k = \frac{\chi_k - \chi_{3DG,k}}{\chi_{3DG,k}}. \quad (11)$$

Использование F_k в виде формулы (11) приводит к следующему выражению одномолекулярного РЧФ [9]:

$$p_{3DGC}^{(i)}(n, q_C) = \frac{1 + F_2}{(1 + F_1)^2} \left[p_{3DG}^{(i)}(n, q_C) + \frac{1}{n!Q} \sum_{k=n}^{\infty} \frac{(-1)^{k-n} (q_C T)^k F_k}{(k-n)!(2k)^{\frac{3}{2}}} \right],$$

где q_C – характеристическая яркость с учетом введенной коррекции. В большинстве случаев только поправка первого порядка (все F_k равны нулю, кроме F_1) достаточна для достижения хорошего соответствия экспериментальным данным.

Метод FGFC. Метод быстрого вычисления РЧФ через разложение экспоненты под интегралом в выражении (2) в ряд Тейлора был независимо и почти одновременно разработан двумя авторскими коллективами¹ [14; 15].

Разложим экспоненту под интегралом в выражении (2) в ряд Тейлора:

$$\begin{aligned} G(\xi) &= \exp \left\{ \sum_i C_i \sum_{k=0}^{\infty} \left[\frac{(\xi - 1)^k q_i^k T^k \int_V B^k(\mathbf{r}) d\mathbf{r}}{k!} - 1 \right] \right\} = \\ &= \exp \left\{ \sum_i C_i \sum_{k=1}^{\infty} \frac{(\xi - 1)^k (B_0 q_i T)^k \chi_k}{k!} \right\}. \end{aligned}$$

Принимая во внимание формулу (11), получаем

$$G(\xi) = \exp \left\{ \sum_i C_i \sum_{k=1}^{\infty} \frac{(\xi - 1)^k (B_0 q_i T)^k (1 + F_k) \chi_{3DG,k}}{k!} \right\}. \quad (12)$$

Ряд в выражении (12) быстро сходится при типичных для ФФС значениях параметров. Достоинством применения выражения (12) является то, что в этом случае не требуется численного нахождения интеграла от сложной функции. Все $\chi_{3DG,k}$ могут быть найдены аналитически [14; 15]:

¹Correction for out-of-focus emission in fluorescence fluctuation spectroscopy; generalization of the algorithms [Electronic resource] : [poster on conf. «The 9th Carl Zeiss sponsored workshop on FCS and related methods» (Stockholm, 2006 Dec. 4–6)] / V. V. Skakun, E. G. Novikov, O. A. Mayboroda. URL: <http://elib.bsu.by/handle/123456789/48832> (date of access: 15.11.2022).

$$\chi_{3DG, k} = \int_{-\infty}^{+\infty} B_{3DG}^k(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = B_0^k k^{\frac{-3}{2}} \left(\frac{\pi}{2}\right)^{\frac{3}{2}} \omega_0^2 z_0. \quad (13)$$

Как и в методе FIDA, результирующее распределение $P(n)$ получается через обратное преобразование Фурье (1).

Результаты и их обсуждение

Как уже отмечалось во введении, метод FGFC, не требующий расчета определенных интегралов от сложной функции, является вычислительно-эффективным, но имеет существенные ограничения на область изменения параметров модели и ширины канала регистрации. Для определения источника указанной проблемы найдем ПФ для случая нормировки на первые два момента профиля засветки и сформулируем алгоритм ее расчета. Выбор нормировки на первые два момента профиля засветки, впервые предложенный в методе FIDA [6], является очень перспективным, так как наряду с геометрическими параметрами профиля ω_0 и z_0 позволяет оценить неизвестное значение профиля засветки в фокусе B_0 , что обеспечивает получение независимых от способа коррекции профиля оценок числа молекул и яркости [13; 15].

При разработке алгоритма расчета РЧФ сделаем следующие упрощения: коррекция на свободную диффузию и переходы в триплетное состояние не учитываются, мертвым временем и вероятностью появления послеимпульсов детектора можно пренебречь. Данные упрощения практически не сужают область применения полученных результатов. Коррекция на вышеупомянутые динамические процессы фактически производится путем пересчета оцениваемых параметров в самом начале вычисления РЧФ, а коррекция на неидеальность регистрирующей аппаратуры – уже на финальной стадии. Алгоритм расчета РЧФ по методу РСН с коррекцией на динамические процессы и неидеальность детектора изложен в работах [4; 18]. Коррекция того же вида для метода FIDA представлена в публикациях [7; 21].

Введем обозначение $A_0 = \omega_0^2 z_0$ в выражении (13) и, соответственно, в выражении (3). Для определения неизвестных параметров A_0 и B_0 будем использовать систему нормировочных уравнений

$$\int_V B(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = \chi_1, \quad \int_V B^2(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = \chi_2. \quad (14)$$

Подставим выражение (13) в формулу (11), и из решения системы уравнений (14) получим

$$A_0 = \frac{(1+F_2)\chi_1^2}{\pi^{\frac{3}{2}}(1+F_1)^2 \chi_2}, \quad B_0 = \frac{2\sqrt{2}(1+F_1)\chi_2}{(1+F_2)\chi_1}. \quad (15)$$

Тогда ПФ числа фотоотсчетов (12) примет вид

$$G_{2MN}(\xi) = \exp \left\{ \sum_i \pi^{\frac{3}{2}} A_0 C_i \sum_{k=1}^{\infty} \frac{((\xi-1)B_0 q_i T)^k (1+F_k)}{k!(2k)^{\frac{3}{2}}} \right\} = \\ = \exp \left\{ \frac{1+F_2}{(1+F_1)^2} \sum_i N_{2MN,i} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{((\xi-1)2\sqrt{2}(1+F_1)q_{2MN,i} T)^k (1+F_k)}{(1+F_2)^k k!(2k)^{\frac{3}{2}}} \right\}, \quad (16)$$

где введены параметры $N_{2MN} = \frac{C\chi_1^2}{\chi_2}$ и $q_{2MN} = \frac{q\chi_2}{\chi_1}$ (индекс $2MN$ обозначает нормировку вида (3) или (14)).

В работе [13] было показано, что при данном виде нормировки наблюдаемое значение яркости q_{2MN} отличается от истинной яркости q фактором $\gamma_2 = \frac{\chi_2}{\chi_1} = \frac{1}{2\sqrt{2}}$. Подставим последнее выражение в формулу (16):

$$G_{2MN}(\xi) = \exp \left\{ \frac{1+F_2}{(1+F_1)^2} \sum_i N_{2MN,i} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{((\xi-1)(1+F_1)q_i T)^k (1+F_k)}{(1+F_2)^k k!(2k)^{\frac{3}{2}}} \right\}. \quad (17)$$

Достоинством выражения (17) является возможность получения оценки яркости q непосредственно в процессе анализа. В противном случае значение яркости приходилось бы пересчитывать каждый раз при необходимости сравнения с результатами анализа, полученными при другом виде нормировки. Без коррекции на внефокусное излучение выражение (17) примет вид

$$G_{2,MN}(\xi) = \exp \left\{ \sum_i N_{2,MN,i} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{((\xi-1)q_i T)^k}{k!(2k)^{\frac{3}{2}}} \right\}. \quad (18)$$

Ввиду симметрии ПФ относительно частоты Найквиста расчет ПФ можно производить только при $n = 0, 1, \dots, \frac{m}{2}$, $\varphi = \frac{2\pi n}{m}$, $\xi = e^{i\varphi}$. Оставшиеся значения при $n = \frac{m}{2} + 1, \dots, m - 1$ вычисляются по формулам

$$\begin{aligned} G_{\text{real}}(n) &= G_{\text{real}}(m-n), \\ G_{\text{imag}}(n) &= -G_{\text{imag}}(m-n), \end{aligned} \quad (19)$$

где $G_{\text{real}}(n)$ и $G_{\text{imag}}(n)$ – действительная и мнимая части ПФ соответственно.

Таким образом, алгоритм расчета РЧФ по методу FGFC (обозначим его как AL1) имеет следующий вид.

1. Инициализация параметров: $m = 2^l$ (при этом l выбирается таким, чтобы m превышало максимально выпавшее число фотоотсчетов или было равно ему и результирующее РЧФ полностью обращалось в нуль), $\varphi = \frac{2\pi n}{m}$.

2. Расчет РЧФ по формуле (18) для $n = 0, 1, \dots, \frac{m}{2}$. Суммирование по k производится до тех пор, пока сумма абсолютных значений действительной и мнимой частей очередного значения под знаком суммы не станет меньше некоторого заранее заданного малого числа eps (например, $eps = 10^{-9}$), определяющего точность расчета. Вычисления выполняются в рекуррентном виде: при $k = 1$ создаются переменные

$$z = (e^{i\varphi} - 1)q_i T \text{ и } s = \frac{z}{2^2}, \text{ затем в цикле для } k = 2, 3, \dots \text{ последовательно рассчитываются } z = \frac{z(e^{i\varphi} - 1)q_i T}{k}$$

$$\text{и } s = s + \frac{z}{(2k)^{\frac{3}{2}}}.$$

3. Расчет оставшихся $\frac{m}{2} - 2$ значений РЧФ по формуле (19).

Алгоритм вычисления РЧФ для других видов нормировки и аппроксимации профиля засветки отличается от изложенного только выбором параметров A_0 и B_0 и формулой расчета χ_k .

Имея алгоритм расчета РЧФ, реализуем его на языке М в среде исполнения *Matlab* и проанализируем причины появления проблем с вычислением РЧФ и их следствие. Вначале рассмотрим случай корректного вычисления ПФ. Параметры модели: $q = 2 \cdot 10^5$ фотоотсчетов в секунду от одной молекулы; $T = 1 \cdot 10^{-5}$ с; $N_{2,MN} = 10$. Коррекция на внефокусную засветку не учитывается. Число точек, в которых рассчитывается ПФ, составляет величину $m = 128$. На рис. 2, а, представлен график действительных значений выражения под экспонентой в ПФ (18), а на рис. 2, б, показано РЧФ, являющееся результатом обратного преобразования Фурье (1) от ПФ.

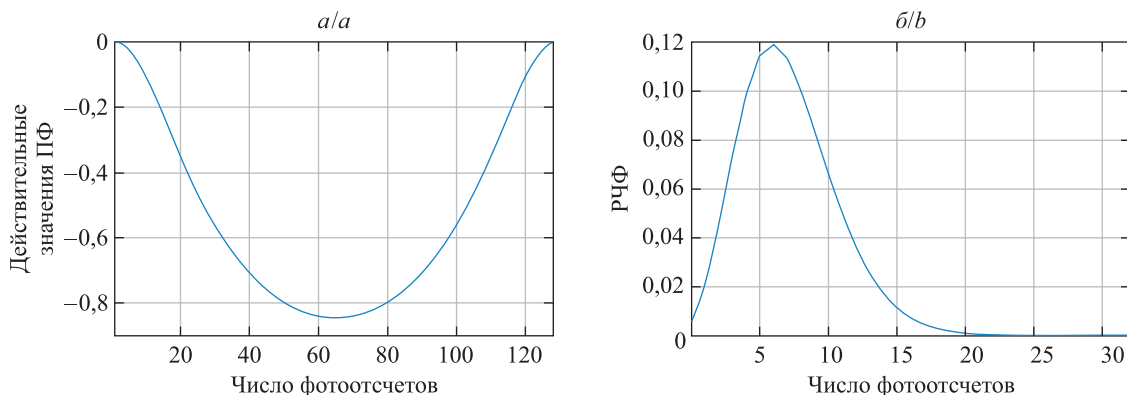


Рис. 2. График действительных значений выражения под экспонентой в ПФ (18) (а) и результирующее РЧФ (б)

Fig. 2. Graph of the real values of the expression under the exponent in generating function (18) (a) and the resulting PCD (b)

При увеличении ширины канала регистрации до $1,1 \cdot 10^{-4}$ с на графике действительных значений выражения под экспонентой (рис. 3, *a*), а также на графике мнимых значений (данные не представлены) появляются осцилляции, хотя само распределение по-прежнему рассчитывается достаточно корректно (оценки параметров N_{2MN} и q , полученные по методу моментов [13] на основе вычисленных распределений, совпадают с исходными значениями). Но проблема с вычислениями остается. Например, при уменьшении числа молекул с 10 до 1 в РЧФ с хорошо заметными периодами наблюдаются небольшие осцилляции (рис. 3, *б*).

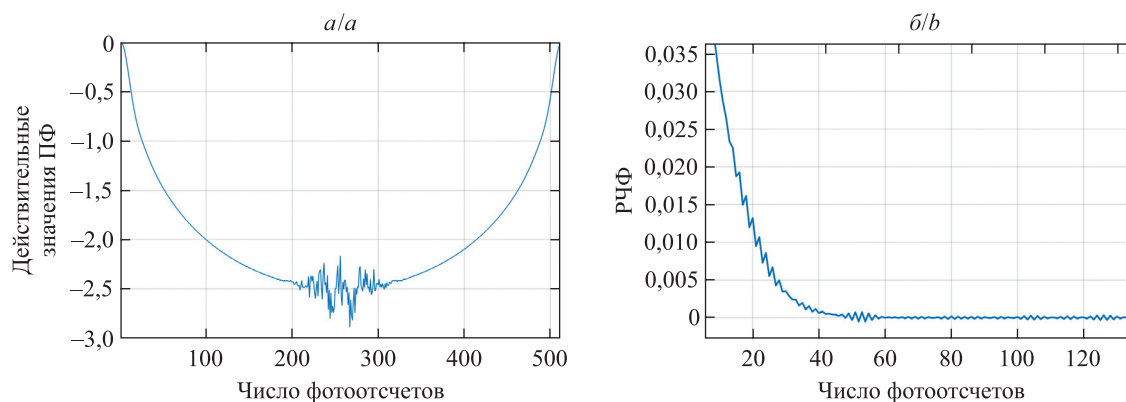


Рис. 3. График действительных значений выражения под экспонентой в ПФ (18) при $T = 1,1 \cdot 10^{-4}$ с (*a*) и результирующее РЧФ при $N_{2MN} = 1$ (*б*)

Fig. 3. Graph of the real values of the expression under the exponent in generating function (18) at $T = 1.1 \cdot 10^{-4}$ s (*a*) and the resulting PCD at $N_{2MN} = 1$ (*b*)

При дальнейшем увеличении ширины канала регистрации величина осцилляций начинает сильно возрастать, и уже при ширине $1,2 \cdot 10^{-4}$ с вид РЧФ меняется с суперпуассоновского распределения на набор осцилляций, при нечетных значениях числа фотоотсчетов принимающих физически неприемлемые отрицательные значения (рис. 4, *б*).

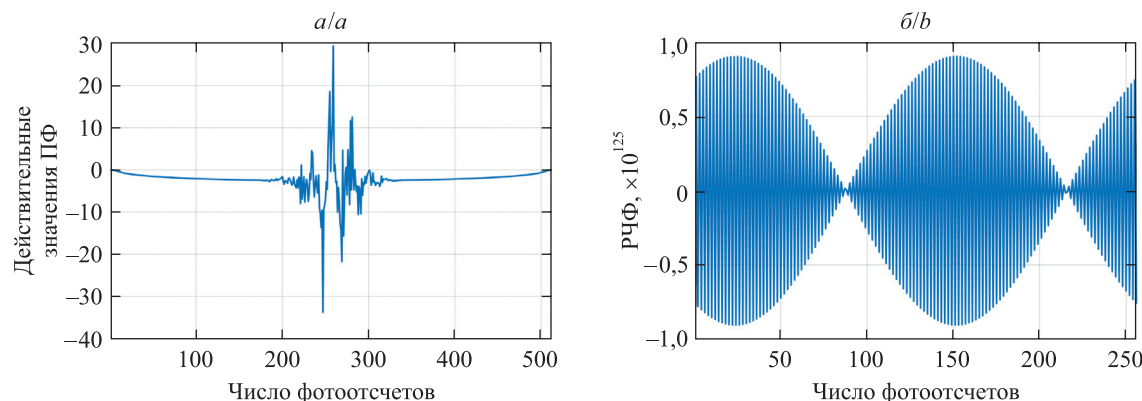


Рис. 4. График действительных значений выражения под экспонентой в ПФ (18) при $T = 1,2 \cdot 10^{-4}$ с (*a*) и результирующее РЧФ (*б*)

Fig. 4. Graph of the real values of the expression under the exponent in generating function (18) at $T = 1.2 \cdot 10^{-4}$ s (*a*) and the resulting PCD (*b*)

Отметим, что появление даже незаметных глазу искажений формы РЧФ в отсутствие экспериментального шума приводит к существенным ошибкам в оценках параметров. Для выяснения причины возникновения осцилляций рассмотрим, что представляют собой значения под знаком суммы от единицы до бесконечности в формуле (18) на частоте Найквиста (для нашего случая равной $\frac{m}{2}$), где размах осцилляций максимален. Исходя из вида разложения экспоненты в ряд Тейлора и того факта, что $\xi - 1 = e^{i\varphi} - 1$ принимает отрицательные значения, следует ожидать знакопеременный ряд с быстро затухающими значениями как для действительной, так и для мнимой компоненты (положительные значения для четных k , отрицательные значения для нечетных k). Вид действительной компоненты для первых двух рассмотренных случаев представлен на рис. 5 (мнимая компонента имеет похожий вид). С увеличением произведения qT размах значений знакопеременного ряда стремительно возрастает (см. рис. 5, *a*) и быстро достигает

величин, когда вследствие ограниченности количества разрядов для представления десятичных чисел в вычисление знакопеременного ряда начинается вноситься существенная ошибка (см. рис. 5, б).

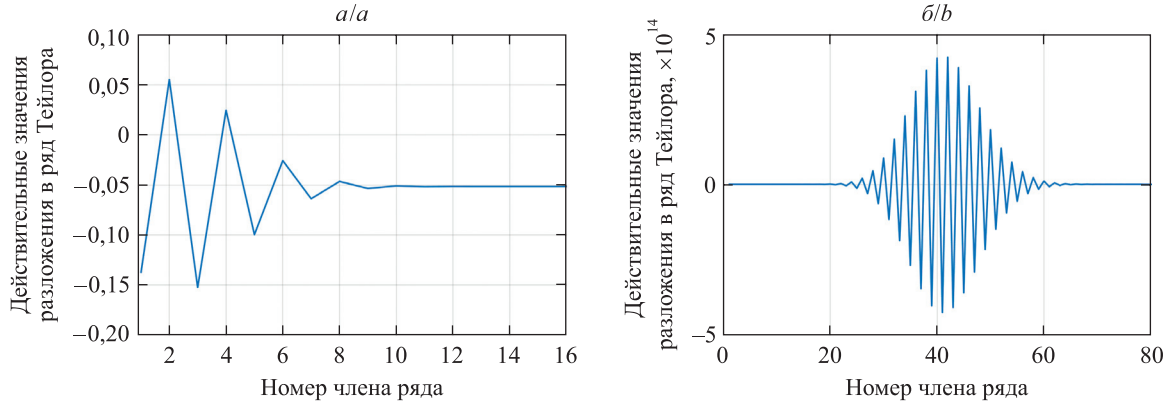


Рис. 5. Вид действительной компоненты в разложении в ряд Тейлора для случаев, рассмотренных на рис. 2 (корректное вычисление РЧФ) (а) и рис. 4 (проблемы с вычислением РЧФ) (б)

Fig. 5. The form of the real component in the expansion in a Taylor series for the cases considered in fig. 2 (correct calculation of PCD) (a) and fig. 4 (problems in calculation of PCD) (b)

Следующим по эффективности расчета РЧФ является метод FIDA, в котором отсутствует разложение экспоненты в ряд Тейлора. Можно сразу же прогнозировать решение проблем, выявленных для метода FGFC. Поскольку в методе FIDA используется полиномиальная аппроксимация профиля засветки, для разработки алгоритма расчета РЧФ необходимо вначале произвести замену профиля на гауссовский. В работе [16] было показано, что применение полиномиальной аппроксимации приводит к потере однозначной идентифицируемости модели (имеется до трех решений, обеспечивающих получение идентичных результатов) и появлению плоскости разрыва в области определения параметров коррекции, где значения ПФ устремляются в бесконечность. Использование трехмерного асимметричного гауссовского распределения с коррекцией на внефокусное излучение является простым, понятным и эффективным решением для анализа данных ФФС [4; 9; 20].

В декартовой системе координат выражение (2) можно представить в виде

$$G(\xi) = \exp \left\{ \sum_i C_i \iiint (e^{(\xi-1)q_i TB(x,y,z)} - 1) dx dy dz \right\}. \quad (20)$$

Для сведения трехмерного интеграла в выражении (20) к одномерному предлагаем использовать специальное преобразование из декартовой системы координат в модифицированную сферическую систему координат:

$$\begin{cases} x = r\omega_0 \cos \varphi \sin \alpha, \\ y = r\omega_0 \sin \varphi \sin \alpha, \\ z = z_0 r \cos \alpha. \end{cases} \quad (21)$$

Якобиан такого преобразования равен величине $\sqrt{g} = \omega_0^2 z_0 r^2 \sin \alpha$, и выражение для $B(\mathbf{r})$ в виде формулы (6) упрощается до $B(r) = B_0 e^{-2r^2}$. После интегрирования по φ и α выражение (20) примет вид

$$G(\xi) = \exp \left\{ \sum_i 4\pi\omega_0^2 z_0 C_i \int_0^\infty (e^{(\xi-1)q_i TB_0 e^{-2r^2}} - 1) r^2 dr \right\}. \quad (22)$$

Для более тесного сравнения с формулой (2) сделаем замену переменных $2r^2 = x$. Тогда $r = \sqrt{\frac{x}{2}}$ и $dr = \frac{\sqrt{2}dx}{4\sqrt{x}}$, и ПФ примет вид

$$G(\xi) = \exp \left\{ \sum_i \sqrt{2}\pi\omega_0^2 z_0 C_i \int_0^\infty (e^{(\xi-1)q_i TB_0 e^{-x}} - 1) \sqrt{x} dx \right\}.$$

Соответственно, имеем $B(r) = B_0 e^{-x}$ и $dr = \sqrt{x} dx$. С учетом данных выражений становится понятным выбор полиномиальной аппроксимации профиля засветки.

Как и ранее, введем обозначение $A_0 = \omega_0^2 z_0$ в выражении (22) и для определения неизвестных параметров A_0 и B_0 будем использовать систему нормировочных уравнений (14). Аналогично, из решения системы уравнений (14) получим выражение (15). В этом случае ПФ числа фотоотсчетов примет вид

$$G_{2MN}(\xi) = \exp \left\{ \sum_i 4\pi A_0 C_i \int_0^\infty \left(e^{(\xi-1)q_i T B_0 e^{-2r^2}} - 1 \right) r^2 dr \right\} = \\ = \exp \left\{ \sum_i \frac{4(1+F_2)N_{2MN,i}}{\sqrt{\pi}(1+F_1)^2} \int_0^\infty e^{(\xi-1)\frac{2\sqrt{2}(1+F_1)}{1+F_2} q_{2MN,i} T e^{-2r^2}} - 1 \right\} r^2 dr \right\},$$

где введены обозначения $N_{2MN} = \frac{C\chi_1^2}{\chi_2}$ и $q_{2MN} = \frac{q\chi_2}{\chi_1}$. Произведя обратную замену $q = \frac{q_{2MN}\chi_1}{\chi_2} = \frac{q_{2MN}}{2\sqrt{2}}$, аналогично выражению (17) получим

$$G_{2MN}(\xi) = \exp \left\{ \sum_i \frac{4(1+F_2)N_{2MN,i}}{\sqrt{\pi}(1+F_1)^2} \int_0^\infty \left(e^{(\xi-1)\frac{1+F_1}{1+F_2} q_i T e^{-2r^2}} - 1 \right) r^2 dr \right\}. \quad (23)$$

Без коррекции на внефокусное излучение формула (23) упрощается:

$$G_{2MN}(\xi) = \exp \left\{ \sum_i \frac{4N_{2MN,i}}{\sqrt{\pi}} \int_0^\infty \left(e^{(\xi-1)q_i T e^{-2r^2}} - 1 \right) r^2 dr \right\}. \quad (24)$$

Таким образом, алгоритм расчета РЧФ по методу FIDA (обозначим его как AL2) имеет следующий вид.

1. Инициализация параметров: $m = 2^l$ (при этом l выбирается таким, чтобы m превышало максимально выпавшее число фотоотсчетов и результирующее РЧФ полностью обращалось в нуль), $\varphi = \frac{2\pi n}{m}$.

2. Расчет РЧФ по формуле (23) или (24) для $n = 0, 1, \dots, \frac{m}{2}$. Если используемый алгоритм расчета определенного интеграла не поддерживает задание бесконечных пределов, то вычисление интеграла для случая гауссовской аппроксимации профиля засветки можно проводить в пределах от 0 до 2,6. Если требуется более высокая точность расчетов, то вычисляемый интеграл можно представить в виде суммы двух определенных интегралов (от 0 до 2,4 и от 2,4 до 5).

3. Расчет оставшихся $\frac{m}{2} - 2$ значений РЧФ по формуле (19).

Вычисление РЧФ по формулам (23), (24) и (1) не имеет недостатка, выявленного для метода FGFC. Графики значений как подэкспоненциального выражения в ПФ, так и самого РЧФ для случаев, рассмотренных на рис. 2 и 4, не имеют никаких осцилляций (рис. 6).

Вычисления остаются корректными фактически для всего диапазона параметров, применяемого на практике в ФФС. Для случая гауссовской аппроксимации профиля засветки подынтегральная функция практически во всей области изменения параметров модели не имеет разрывов, выбросов, большого градиента и других проблем, затрудняющих взятие определенного интеграла (рис. 7). Можно заменить интеграл в бесконечных пределах интегралом в конечных пределах (от 0 до 2,6) (установлено эмпирически путем анализа подынтегральной функции, вычисленной с разными параметрами).

Несмотря на то что в данном способе расчета РЧФ на первый взгляд все хорошо, проблемы вычислительного характера все же присутствуют. Иногда расчет заканчивается численной ошибкой, чаще всего связанной с вычислением экспоненты. Проблемы с использованием данного алгоритма также характерны для полиномиального профиля. При приближении инструментальных параметров a и b к области разрыва (см. [16, fig. 3]) вычисление интеграла обычно заканчивается численной ошибкой.

Наиболее стабильным и свободным от проблем вычислительного характера является алгоритм, основанный на использовании одномолекулярного РЧФ с последующим взятием от него конволюций [8; 18]. Но этот алгоритм является и наиболее медленным, особенно для случая, когда максимальное число фотоотсчетов, наблюдаемое в эксперименте, либо количество молекул в объеме наблюдения становится большим. Выражения (5) и (8) получены для нормализации к эффективному объему и не позволяют сделать вывод о выборе значения искусственно введенного параметра Q . Значение яркости q_C является функцией введенных параметров коррекции профиля [13].

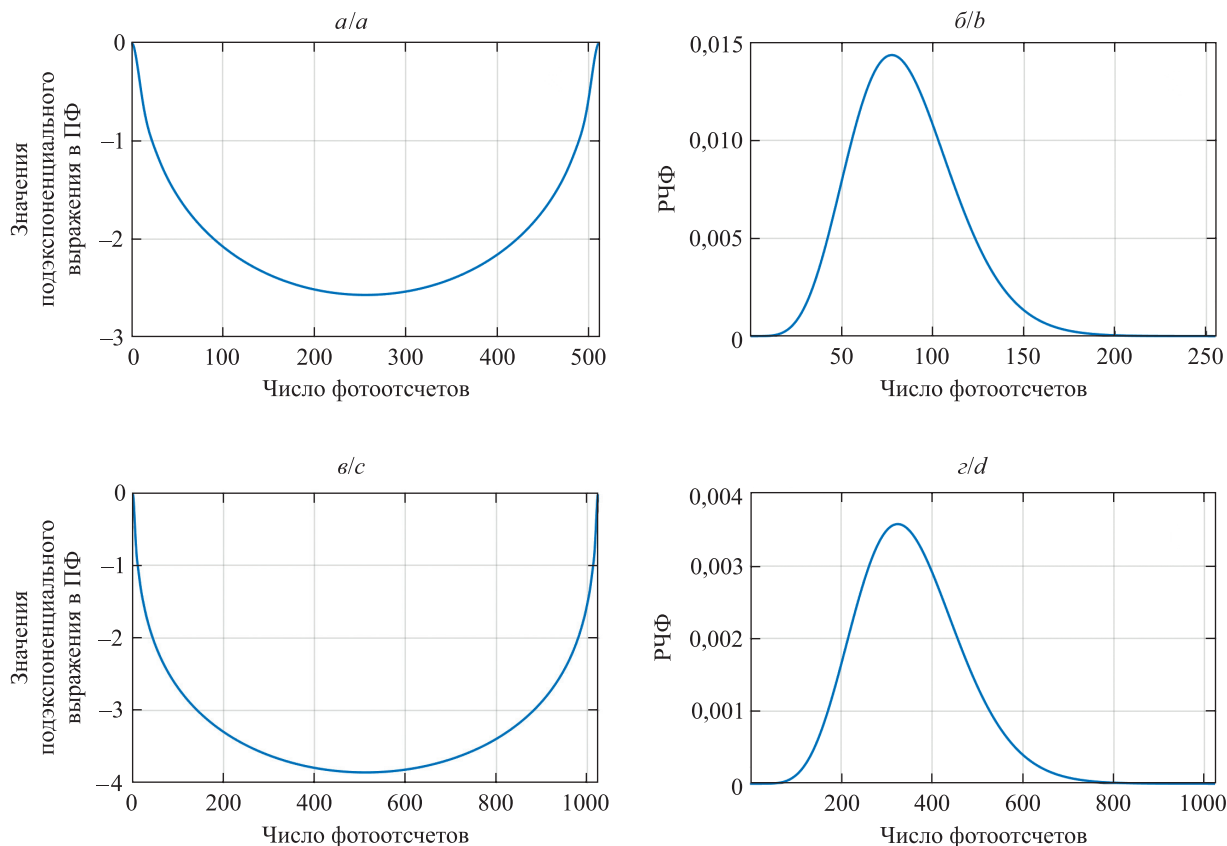


Рис. 6. Графики значений подэкспоненциального выражения в ПФ (а, в) и результирующего рЧФ (б, г) для случаев, рассмотренных на рис. 2 (а, б) и рис. 4 (в, г)
Fig. 6. Graphs of the values of the expression under the exponent in generating function (a, c) and the resulting PCD (b, d) for the cases considered in fig. 2 (a, b) and fig. 4 (c, d)

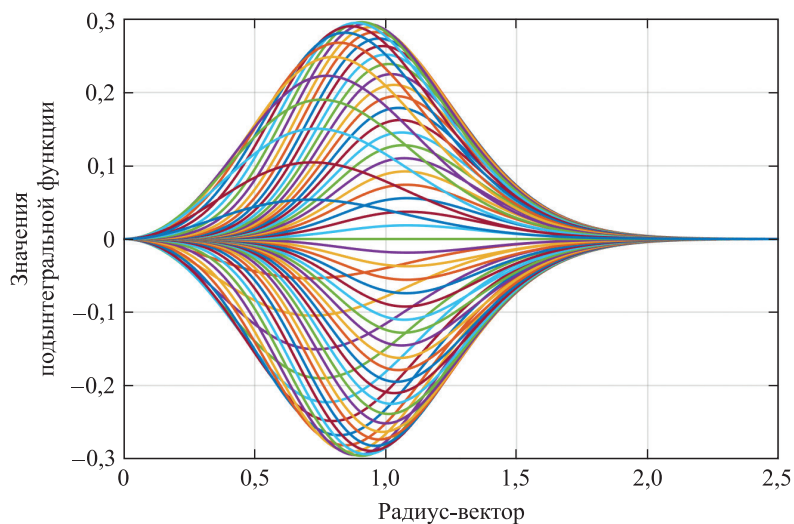


Рис. 7. График значений подынтегральной функции в выражении (24).

Параметры: $q = 6 \cdot 10^4$ фотоотсчетов в секунду от одной молекулы;
 $T = 5 \cdot 10^{-5}$ с; $N_{2MN} = 5$; $m = 64$

Fig. 7. Graph of the values of the integrand in expression (24).
Parameters: $q = 6 \cdot 10^4$ counts per second per molecule; $T = 5 \cdot 10^{-5}$ s; $N_{2MN} = 5$; $m = 64$

Осуществим вывод аналитических выражений для расчета РЧФ в случае гауссовской аппроксимации профиля засветки (6) с $B_0 \neq 0$ и нормировки вида $2MN$.

Для сведения трехмерного интеграла в уравнении (4) к одномерному применим преобразование системы координат (21). Выражение (6) сводится к следующему виду: $B(r) = B_0 e^{-2r^2}$, $r = \sqrt{\frac{x^2}{\omega_0^2} + \frac{y^2}{\omega_0^2} + \frac{z^2}{z_0^2}}$.

В данном преобразовании координат размер объема наблюдения V_0 при заданном радиусе r_0 зависит от параметров ω_0 и z_0 :

$$V_0 = \int_0^{r_0} \int_0^{2\pi} \int_0^\pi r^2 \omega_0^2 z_0 \sin \alpha \, dr \, d\phi \, d\alpha = \frac{4\pi}{3} r_0^3 \omega_0^2 z_0.$$

После интегрирования по ϕ и α выражение (4) примет вид

$$\begin{aligned} p_{3DG}^{(1)}(n, q) &= \frac{4\pi \omega_0^2 z_0}{V_0 n!} \int_0^{r_0} \left(qTB_0 e^{-2r^2} \right)^n e^{-qTB_0 e^{-2r^2}} r^2 \, dr = \\ &= \frac{3}{r_0^3 n!} \int_0^{r_0} \left(qTB_0 e^{-2r^2} \right)^n e^{-qTB_0 e^{-2r^2}} r^2 \, dr. \end{aligned} \quad (25)$$

Обратим внимание, что полученное распределение вероятностей нормировано: $\sum_n p_{3DG}^{(1)}(n, q) = 1$ для любого r_0 . В ФФС объем наблюдения является открытым. Когда объем наблюдения открыт, выбор радиуса r_0 имеет решающее значение: V_0 растет пропорционально r_0^3 , поэтому количество молекул в этом объеме и, следовательно, количество сверток, необходимых для расчета РЧФ, увеличивается очень быстро, что делает алгоритм неэффективным. Длину радиуса нужно брать как можно меньше, но так, чтобы она полностью перекрывала область возбуждения молекул. Приемлемым критерием может быть $p_{3DG}^{(1)}(0, q) > 0$. Подынтегральная функция в выражении (25) быстро обращается в нуль с ростом r_0 для любого $k > 0$. Это позволяет установить бесконечный верхний предел интегрирования в выражении (25) и проводить вычисления в более эффективном виде [9] через неполную гамма-функцию $\gamma(a, x) = \int_0^x e^{-t} t^{a-1} dt$:

$$\begin{aligned} p_{3DG}^{(1)}(n, q) &= \frac{3}{4r_0^3 n!} \int_0^\infty \gamma(n, qTB_0 e^{-2x^2}) \, dx, \quad n = 1, 2, \dots, \\ p^{(1)}(0, q) &= 1 - \sum_{n=1}^m p^{(1)}(n, q). \end{aligned} \quad (26)$$

Выражение (26) зависит от r_0 , а выражение (5) – от неизвестных ω_0 и z_0 . Для устранения неизвестных введем понятие ссылочного объема V_{ref} , обозначение $A_0 = \omega_0^2 z_0$ и константу $Q = \frac{V_0}{V_{\text{ref}}}$ аналогично тому, как это было сделано в работе [9]:

$$p_{3DG}^{(1)}(n, q) = \frac{\pi A_0}{Q V_{\text{ref}} n!} \int_0^\infty \gamma(n, qTB_0 e^{-2x^2}) \, dx, \quad n = 1, 2, \dots,$$

$$P(n, N_{\text{ref}}, q) = \sum_{j=0}^\infty p_{3DG}^{(j)}(n, q) \text{Poi}(j, CQV_{\text{ref}}) = \sum_{j=0}^\infty p_{3DG}^{(j)}(n, q) \text{Poi}(j, N_{\text{ref}}Q),$$

где $N_{\text{ref}} = CV_{\text{ref}}$. При нормировке вида (14) получим выражение (15), а также

$$\begin{aligned} p_{3DG}^{(1)}(n, q_{2MN}) &= \frac{\chi_1^2(1+F_2)\chi_2}{Q\sqrt{\pi}\chi_2(1+F_1)^2\chi_1^2 n!} \int_0^\infty \gamma\left(n, \frac{2\sqrt{2}(1+F_1)\chi_2}{(1+F_2)\chi_1} q_{2MN} T e^{-2x^2}\right) \, dx = \\ &= \frac{1+F_2}{Q\sqrt{\pi}(1+F_1)^2 n!} \int_0^\infty \gamma\left(n, \frac{2\sqrt{2}(1+F_1)}{1+F_2} q_{2MN} T e^{-2x^2}\right) \, dx, \quad n = 1, 2, \dots, \end{aligned}$$

$$P(n, N_{2MN}, q_{2MN}) = \sum_{j=0}^\infty p_{3DG}^{(j)}(n, q_{2MN}) \text{Poi}(j, QN_{2MN}),$$

где $V_{\text{ref}} = V_{\text{eff}} = \frac{\chi_1^2}{\chi_2}$ и введены обозначения $N_{2MN} = \frac{C\chi_1^2}{\chi_2}$ и $q_{2MN} = \frac{q\chi_2}{\chi_1}$. Общее выражение для одномолекулярного РЧФ с учетом коррекции на внефокусную засветку примет вид (вывод исходного выражения показан в работе [9])

$$\begin{aligned} p_{3DGC}^{(1)}(n, q_{2MN}) &= p_{3DG}^{(1)}(n, q_{2MN}) + \frac{1+F_2}{(1+F_1)^2 Q \pi^{\frac{3}{2}} A_0 n!} \sum_{k=n}^{\infty} \frac{(-1)^{k-n} (B_0 q T)^k F_k}{(k-n)!} \frac{\pi^{\frac{3}{2}} A_0}{2^2 k^2} = \\ &= p_{3DG}^{(1)}(n, q_{2MN}) + \frac{1+F_2}{(1+F_1)^2 Q n!} \sum_{k=n}^{\infty} \frac{(-1)^{k-n} (2\sqrt{2}(1+F_1)q_{2MN}T)^k F_k}{(1+F_2)^k (k-n)! (2k)^{\frac{3}{2}}}. \end{aligned} \quad (27)$$

Если применяется коррекция только до второго порядка ($F_1 \neq 0$ и $F_2 \neq 0$), то выражение (27) упрощается:

$$\begin{aligned} p_{3DGC}^{(1)}(n, q_{2MN}) &= p_{3DG}^{(1)}(n, q_{2MN}) + \frac{F_1}{1+F_1} \frac{q_{2MN}T}{Q} - \frac{F_2}{1+F_2} \frac{(q_{2MN}T)^2}{Q}, \quad n=1, \\ p_{3DGC}^{(1)}(n, q_{2MN}) &= p_{3DG}^{(1)}(n, q_{2MN}) + \frac{F_2}{1+F_2} \frac{(q_{2MN}T)^2}{2Q}, \quad n=2. \end{aligned}$$

После замены переменных $q = \frac{q_{2MN}\chi_1}{\chi_2} = \frac{q_{2MN}}{2\sqrt{2}}$ получим финальные выражения:

$$\begin{aligned} p_{3DG}^{(1)}(n, q) &= \frac{1+F_2}{Q\sqrt{\pi}(1+F_1)^2 n_0} \int_0^{\infty} \gamma \left(n, \frac{1+F_1}{1+F_2} q T e^{-2x^2} \right) dx, \quad n=1, 2, \dots, \\ p_{3DGC}^{(1)}(n, q) &= p_{3DG}^{(1)}(n, q) + \frac{F_1}{1+F_1} \frac{qT}{2\sqrt{2}Q} - \frac{F_2}{1+F_2} \frac{(qT)^2}{8Q}, \quad n=1, \\ p_{3DGC}^{(1)}(n, q) &= p_{3DG}^{(1)}(n, q) + \frac{F_2}{1+F_2} \frac{(qT)^2}{16Q}, \quad n=2. \end{aligned} \quad (28)$$

При значении $r_0 = 2,4$ подынтегральная функция практически полностью обращается в нуль, $Q = \frac{V_0}{V_{\text{ref}}} = \frac{4r_0^3}{3\sqrt{\pi}} = 10,4$. При больших значениях Q приходится делать больше конволюций одномолекулярного РЧФ, что значительно снижает скорость вычислений. Эмпирически установлено [18], что значение Q , необходимое для приемлемо точного расчета распределения $P(n)$, зависит от произведения qT . При $qT < 10$ его можно безопасно установить равным единице, тогда как для $qT > 10$ значение Q должно быть достаточно большим, чтобы полностью охватить объем наблюдения. Это необходимо для сохранения нормированного распределения вероятностей $p_{3DGC}^{(1)}(n, q_{2MN})$ при любых q и T .

В целях упрощения приведем здесь алгоритм без коррекции на внефокусное излучение ($F_1 = 0$ и $F_2 = 0$) (обозначим его как AL3) (полный алгоритм для случая нормализации к эффективному объему подробно рассмотрен в работе [18]).

1. Вычисление РЧФ для молекул первой компоненты. Значения параметров q и N полагаются равными q_1 и $N_{2MN,1}$ соответственно. Параметр Q рассчитывается следующим образом: если произведение яркости молекул q и ширины канала регистрации T не превышает 10, то $Q = 1$, если оно меньше 50, то $Q = 6$, если меньше 100, то $Q = 12$, в противном случае $Q = 20$. Создается результирующий вектор значений $P(n)$ размера $m + 1$ и инициализируется нулями.

2. Вычисление значения распределения Пуассона при $n = 0$ ($P_{\text{Poiss}0} = P_{\text{Poiss}}(0, NQ) = e^{-NQ}$) и значения $n_{p_{\text{max}}}$, при котором это распределение близко к своему максимальному значению. Распределение Пуассона (мода распределения) принимает максимальное значение при n , равном самому параметру распределения. Соответственно, $n_{p_{\text{max}}} = \lfloor NQ \rfloor$, где $\lfloor \quad \rfloor$ означает округление к ближайшему целому.

3. Расчет одномолекулярного РЧФ по формуле (28). Поскольку интеграл в выражении (28) расходуется при $n = 0$, то вычисление осуществляется по следующей схеме: вначале рассчитываются все значения $p^{(1)}(n, q)$ при $n = 1, 2, \dots, m$, затем вычисляется значение $p^{(1)}(0, q) = 1 - \sum_{n=1}^m p^{(1)}(n, q)$. Полезно сразу же проверить условие $p^{(1)}(0, q) \geq 0$. Если оно не выполняется, следует увеличить значение параметра Q . Интеграл в бесконечных пределах можно заменить интегралом в конечных пределах (от 0 до 2,6) или суммой двух определенных интегралов (от 0 до 2,4 и от 2,4 до 5), если требуется высокая точность вычислений и произведение qT принимает большое значение.

4. Вычисление взвешенной суммы (5) при $j = 0$. Рассчитывается значение $P(0) = P_{\text{Poiss}0}$.

5. Вычисление взвешенной суммы (5) при $j = 1$. Значения $p^{(1)}(n, q)$ копируются во вспомогательный массив для расчета конволюций $P^{(j)}$. Находятся значения $P_{\text{Poiss}0} = P_{\text{Poiss}0}NQ$ и $P(n) = P(n) + P^{(j)}(n)P_{\text{Poiss}0}$, $n = 0, 1, \dots, m$.

6. Вычисление взвешенной суммы (5) при $j = 2, \dots, n_{p_{\max}}$. Пересчитывается значение $P_{\text{Poiss}0} = P_{\text{Poiss}0} \frac{NQ}{j}$, и выполняется свертка $P^{(j)}(n) = P^{(j-1)}(n) \otimes p^{(1)}(n, q)$. Если $P_{\text{Poiss}0} > eps$, вычисляется значение $P(n) = P(n) + P^{(j)}(n)P_{\text{Poiss}0}$, $n = 0, 1, \dots, m$, где eps – некоторое малое число (например, 10^{-9}), определяющее точность расчета взвешенной суммы.

7. Вычисление взвешенной суммы (5) при $j = n_{p_{\max}} + 1, \dots$. Пересчитывается значение $P_{\text{Poiss}0} = P_{\text{Poiss}0} \frac{NQ}{j}$. Если $P_{\text{Poiss}0} > eps$, выполняется свертка $P^{(j)}(n) = P^{(j-1)}(n) \otimes p^{(1)}(n, q)$ и вычисляется значение $P(n) = P(n) + P^{(j)}(n)P_{\text{Poiss}0}$, $n = 0, 1, \dots, m$. Если $P_{\text{Poiss}0} < eps$, вычисления прекращаются.

8. Расчет РЧФ для второй и последующих компонент. Повторяются п. 1–7 данного алгоритма.

9. Расчет результирующего РЧФ по формуле (10).

Для оценки времени расчета РЧФ по всем трем рассмотренным в работе алгоритмам был проведен следующий вычислительный эксперимент. Время расчета определялось для 100 повторений расчета в цикле. Алгоритмы были запрограммированы на языке М и выполнены в среде *Matlab 2021a*. Эксперимент проводился на компьютере с процессором Intel Core i5-10400 (максимальная тактовая частота 4,3 ГГц), оперативной памятью DDR4 объемом 16 Гб (2666 МГц) и SSD-диском Samsung 970 Evo типа NV2.

Время расчета РЧФ по алгоритмам AL1, AL2 и AL3
PCD calculation time using AL1, AL2 and AL3 algorithms

Алгоритм	Время вычислений, мс, при параметрах	
	$q = 6 \cdot 10^4$ фотоотсчетов в секунду от одной молекулы; $T = 5 \cdot 10^{-5}$ с; $N_{2MN} = 5$; $m = 64$	$q = 2 \cdot 10^5$ фотоотсчетов в секунду от одной молекулы; $T = 5 \cdot 10^{-5}$ с; $N_{2MN} = 10$; $m = 512$
AL1 (по методу FGFC)	23	408
AL2 (по методу FIDA)	482	4006
AL3 (по методу PCH)	809	10 720

Из значений, представленных в таблице, очевидно, что применять наиболее стабильный метод расчета РЧФ с вычислением последовательных конволюций неэффективно. Учитывая, что в глобальном анализе приходится рассчитывать РЧФ сотни, тысячи и десятки тысяч раз при самых разных параметрах, разработка эффективной методики расчета становится крайне востребованной задачей.

На основании проведенных исследований предлагается следующая методика расчета РЧФ. Если значение произведения суммы яркостей молекул всех анализируемых компонент на ширину канала регистрации не превышает некоторого заранее определенного значения qT_{\max} , то расчет РЧФ осуществляется через промежуточное вычисление ПФ числа фотоотсчетов с последующим применением обратного преобразования Фурье, при этом ПФ рассчитывается по методу FGFC (алгоритм AL1).

При достижении произведением суммы яркостей молекул всех анализируемых компонент на ширину канала регистрации значения qT_{\max} , а также в случае возникновения ошибки вычислительного характера при использовании метода FGFC расчет РЧФ выполняется через промежуточное вычисление ПФ числа фотоотсчетов с последующим применением обратного преобразования Фурье, но уже по алгоритму, предложенному в методе FIDA (алгоритм AL2).

При возникновении ошибок вычислительного характера расчет РЧФ проводится по методу PCH (с помощью последовательных конволюций одномолекулярного РЧФ) (алгоритм AL3).

Алгоритм вычисления РЧФ, реализующий предложенную методику, имеет следующий вид.

1. Инициализация параметров. Для гауссовского профиля засветки значение qT_{\max} можно положить равным 20 (установлено эмпирически).

2. Вычисление произведения суммы яркостей молекул всех анализируемых компонент на ширину канала регистрации (обозначим его как qTs).

3. Расчет РЧФ:

- если $qTs \leq qT_{\max}$, используется алгоритм AL1;
- если возникает ошибка вычислительного характера (ее можно обработать в конструкции try... catch) или $qTs > qT_{\max}$, реализуется алгоритм AL2;
- если возникает ошибка вычислительного характера, то применяется алгоритм AL3.

Разработанный алгоритм реализован в программном обеспечении *FFS Data Processor*. Он показал свою эффективность при анализе процессов димеризации зеленого флуоресцирующего белка в живых клетках диктиостелиума [4]. Корректность вычислений РЧФ проверялась путем быстрой оценки параметров модели по методу моментов [13]. Полученные оценки яркости и количества молекул в объеме наблюдения сравнивались с истинными значениями, используемыми при вычислении РЧФ. Во всем диапазоне изменения параметров модели относительная ошибка не превышала 10^{-7} (при наиболее характерных для ФФС параметрах ошибка находилась в пределах 10^{-9} – 10^{-12}), что свидетельствует о высокой точности вычислений.

Заключение

Выявленные ограничения на допустимый диапазон оцениваемых параметров существенно сужают сферу применения быстрого алгоритма расчета РЧФ по методу FGFC. Если для разового вычисления РЧФ с контролем области определения параметров его использование оправданно и даже рекомендовано, то для глобального анализа данный алгоритм неприемлем. Применение быстрого алгоритма расчета РЧФ в итерационном анализе также чревато возникновением проблем вычислительного характера, так как значения оцениваемых параметров могут выйти за пределы, при которых обеспечивается корректный расчет РЧФ. Следующим по вычислительной эффективности является алгоритм, используемый в методе FIDA. Несмотря на отсутствие сложностей, связанных с вычислением экспоненты путем разложения ее в ряд Тейлора (что в нашем случае приводит к появлению знакопеременного ряда), проблемы вычислительного характера все же присутствуют. Так, несколько экспонент, вложенных друг в друга, способны быстро вызвать переполнение разрядной сетки или же привести к потере точности. Еще одной проблемой является необходимость использования обратного преобразования Фурье, в свою очередь накладывающего ограничения на вычисляемую ПФ. Число точек в ПФ должно быть кратно степени двойки, что при больших значениях t часто приводит к множеству ненужных вычислений, если максимально выпавшее число фотоотчетов лишь ненамного превосходит предыдущую степень двойки. Если же, наоборот, ПФ не полностью обращается в нуль при выбранном количестве точек, то это приводит к появлению артефакта на РЧФ после применения обратного преобразования Фурье. Наиболее стабильным и свободным от проблем вычислительного характера является алгоритм, основанный на вычислении одномолекулярного РЧФ с последующим применением последовательных конволюций. Но, к сожалению, данный алгоритм очень медленный.

Все вышесказанное потребовало разработки методики вычисления РЧФ, основанной на использовании положений сразу всех трех методов, рассмотренных в данной статье. Для обоснования этой методики получены аналитические выражения и алгоритмы расчета РЧФ, которые могут применяться в глобальном анализе характеристик зарегистрированного потока фотоотчетов и отличаются вычислительной эффективностью и устойчивостью результатов. Вывод аналитических выражений можно повторить и для других видов аппроксимации профиля засветки и нормировки параметров. Особенностью разработанной методики является нахождение истинного значения яркости непосредственно в процессе анализа. В противном случае требовался бы пересчет полученных оценок для сравнения результатов анализа.

Представленные методика и алгоритмы расчета РЧФ могут применяться при разработке программного обеспечения для анализа данных в ФФС, а также при проведении исследований, требующих вычисления множества анализируемых характеристик в большом диапазоне оцениваемых параметров.

Библиографические ссылки / References

1. Kitamura A, Kinjo M. State-of-the-art fluorescence fluctuation-based spectroscopic techniques for the study of protein aggregation. *International Journal of Molecular Sciences*. 2018;19(4):964. DOI: 10.3390/IJMS19040964.
2. Elson EL, Magde D. Fluorescence correlation spectroscopy. I. Conceptual basis and theory. *Biopolymers*. 1974;13(1):1–27. DOI: 10.1002/BIP.1974.360130102.

3. Yu Lan, Lei Yunze, Ma Ying, Liu Min, Zheng Juanjuan, Dan Dan, et al. A comprehensive review of fluorescence correlation spectroscopy. *Frontiers of Physics*. 2021;9:644450. DOI: 10.3389/FPHY.2021.644450.
4. Nederveen-Schippers LM, Pathak P, Keizer-Gunnink I, Westphal AH, van Haastert PJM, Borst JW, et al. Combined FCS and PCH analysis to quantify protein dimerization in living cells. *International Journal of Molecular Sciences*. 2021;22(14):7300. DOI: 10.3390/IJMS22147300.
5. Elson EL. Fluorescence correlation spectroscopy: past, present, future. *Biophysical Journal*. 2011;101(12):2855–2870. DOI: 10.1016/j.bpj.2011.11.012.
6. Kask P, Palo K, Ullmann D, Gall K. Fluorescence-intensity distribution analysis and its application in biomolecular detection technology. *PNAS*. 1999;96(24):13756–13761. DOI: 10.1073/pnas.96.24.13756.
7. Palo K, Mets Ü, Jäger S, Kask P, Gall K. Fluorescence intensity multiple distributions analysis: concurrent determination of diffusion times and molecular brightness. *Biophysical Journal*. 2000;79(6):2858–2866. DOI: 10.1016/S0006-3495(00)76523-4.
8. Chen Y, Müller JD, So PTC, Gratton E. The photon counting histogram in fluorescence fluctuation spectroscopy. *Biophysical Journal*. 1999;77(1):553–567. DOI: 10.1016/S0006-3495(99)76912-2.
9. Huang B, Perroud TD, Zare RN. Photon counting histogram: one-photon excitation. *ChemPhysChem*. 2004;5(10):1523–1531. DOI: 10.1002/cphc.200400176.
10. Perroud TD, Huang B, Zare RN. Effect of bin time on the photon counting histogram for one-photon excitation. *ChemPhysChem*. 2005;6(5):905–912. DOI: 10.1002/cphc.200400547.
11. Müller JD. Cumulant analysis in fluorescence fluctuation spectroscopy. *Biophysical Journal*. 2004;86(6):3981–3992. DOI: 10.1529/biophysj.103.037887.
12. Wu B, Singer RH, Mueller JD. Time-integrated fluorescence cumulant analysis and its application in living cells. In: Tetin SY, editor. *Fluorescence fluctuation spectroscopy (FFS). Part A*. [S. l.]: Academic Press; 2013. p. 99–119 (Methods in enzymology; volume 518). DOI: 10.1016/B978-0-12-388422-0.00005-4.
13. Skakun VV, Novikov EG, Apanasovich TV, Apanasovich VV. Fluorescence cumulants analysis with non-ideal observation profiles. *Methods and Applications in Fluorescence*. 2015;3(4):045003. DOI: 10.1088/2050-6120/3/4/045003.
14. Meng F, Ma H. A comparison between photon counting histogram and fluorescence intensity distribution analysis. *The Journal of Physical Chemistry B*. 2006;110(51):25716–25720. DOI: 10.1021/jp063845r.
15. Skakun VV, Apanasovich VV. [Photon counting distribution analysis with brightness profile correction in single molecule fluctuation spectroscopy]. *Vestnik Belorusskogo gosudarstvennogo universiteta. Seriya 1, Fizika. Matematika. Informatika*. 2008;2:31–35. Russian.
16. Skakun VV, Novikov EG, Apanasovich VV, Tanke HJ, Deelder AM, Mayboroda OA. Initial guesses generation for fluorescence intensity distribution analysis. *European Biophysics Journal*. 2006;35(5):410–423. DOI: 10.1007/s00249-006-0048-8.
17. Marquardt DW. An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters. *Journal of the Society for Industrial and Applied Mathematics*. 1963;11(2):431–441. DOI: 10.1137/0111030.
18. Skakun VV, Digris AV, Apanasovich VV. Global analysis of autocorrelation functions and photon counting distributions in fluorescence fluctuation spectroscopy. In: Engelborghs Y, Visser AJWG, editors. *Fluorescence spectroscopy and microscopy: methods and protocols*. [S. l.]: Humana Press; 2014. p. 719–741 (Methods in molecular biology; volume 1076). DOI: 10.1007/978-1-62703-649-8_33.
19. Rigler R, Mets Ü, Widengren J, Kask P. Fluorescence correlation spectroscopy with high count rate and low background: analysis of translational diffusion. *European Biophysics Journal*. 1993;22(3):169–175. DOI: 10.1007/BF00185777.
20. Hess ST, Webb WW. Focal volume optics and experimental artifacts in confocal fluorescence correlation spectroscopy. *Biophysical Journal*. 2002;83(4):2300–2317. DOI: 10.1016/S0006-3495(02)73990-8.
21. Palo K, Mets Ü, Loooris V, Kask P. Calculation of photon-count number distributions via master equations. *Biophysical Journal*. 2006;90(6):2179–2191. DOI: 10.1529/biophysj.105.066084.

Получена 03.02.2023 / исправлена 18.02.2023 / принята 20.02.2023.
Received 03.02.2023 / revised 18.02.2023 / accepted 20.02.2023.

**ФОРМИРОВАНИЕ ПЕРЕКЛЮЧАЕМЫХ
ДИФРАКЦИОННЫХ РЕШЕТОК В СЛОЕ ЖИДКОГО КРИСТАЛЛА
МЕТОДОМ ПОЛЯРИЗАЦИОННОЙ ГОЛОГРАФИИ****Е. П. ПАНТЕЛЕЕВА¹⁾, О. С. КАБАНОВА¹⁾, Е. А. МЕЛЬНИКОВА¹⁾**¹⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

Представлены результаты экспериментов по реализации и оптимизации условий голографической и поляризационно-голографической записи поверхностной анизотропии в тонких пленках светочувствительного азокрасителя AtA-2 в целях формирования электрически управляемых дифракционных структур в слое нематического жидкого кристалла. Установлена оптимальная длительность экспозиции пленок азокрасителя AtA-2 интерференционной картиной двух когерентных световых пучков, обеспечивающая максимальное значение дифракционной эффективности для порядков дифракции $m = -1$ и $m = +1$. Продемонстрирована возможность создания переключаемых дифракционных решеток с пространственным периодом 1–7 мкм, а также решеток с вилочной дислокацией, формирующих сингулярные световые пучки (оптические вихри) с заданной величиной топологического заряда. Приведены экспериментальные зависимости дифракционной эффективности порядков дифракции $m = -1$ и $m = +1$ от величины управляющего напряжения. С использованием метода оптической интерферометрии исследовано пространственное распределение светового поля формируемых сингулярных световых пучков, а также проанализирована их стабильность в диапазоне рабочих напряжений на ячейке 0–10 В. Результаты исследования представляют интерес с точки зрения создания устройств и систем управления пространственной, фазовой и поляризационной структурой лазерного излучения.

Ключевые слова: оптические вихри; поляризационная голография; дифракция; фазовые пластинки; азокраситель; жидкие кристаллы; фотоориентация.

Благодарность. Работа выполнена при финансовой поддержке государственной программы научных исследований «Конвергенция-2025».

Образец цитирования:

Пантелеева ЕП, Кабанова ОС, Мельникова ЕА. Формирование переключаемых дифракционных решеток в слое жидкого кристалла методом поляризационной голографии. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика.* 2023;2:39–50.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-39-50>

For citation:

Pantsialejeva YeP, Kabanova OS, Melnikova EA. Formation of switchable liquid crystal diffraction gratings by polarisation holography. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2023;2:39–50. Russian.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-39-50>

Авторы:

Екатерина Петровна Пантелеева – магистрант кафедры лазерной физики и спектроскопии физического факультета. Научный руководитель – Е. А. Мельникова.

Ольга Сергеевна Кабанова – кандидат физико-математических наук; доцент кафедры высшей математики и математической физики физического факультета.

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

Authors:

Yekatsiaryna P. Pantsialejeva, master's degree student at the department of laser physics and spectroscopy, faculty of physics.
pantsialejevakate@gmail.com

<https://orcid.org/0000-0001-9364-7724>

Olga S. Kabanova, PhD (physics and mathematics); associate professor at the department of higher mathematics and mathematical physics, faculty of physics.

kabanovaos@bsu.by

<https://orcid.org/0000-0001-5100-9708>

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

melnikova@bsu.by

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

FORMATION OF SWITCHABLE LIQUID CRYSTAL DIFFRACTION GRATINGS BY POLARISATION HOLOGRAPHY

Ye. P. PANTSIALEYEVA^a, O. S. KABANOVA^a, E. A. MELNIKOVA^a

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

Corresponding author: Ye. P. Pantsialejeva (pantsialejevakate@gmail.com)

Experimental results on realisation and optimisation of conditions for holographic and polarisation-holographic recording of surface anisotropy in thin films of light-sensitive azo dye AtA-2 in order to form electrically switchable diffraction structures in a layer of nematic liquid crystal are presented. The optimum duration of exposure of films of azo dye AtA-2 by an interference pattern of two coherent light beams that provides a maximum value of diffraction efficiency for diffraction orders $m = -1$ and $m = +1$ has been found. A possibility of creating switchable diffraction gratings with a spatial period of 1–7 μm and gratings with fork dislocation forming singular light beams (optical vortices) with a specified value of a topological charge is demonstrated. Experimental dependences of diffraction efficiency of diffraction orders $m = -1$ and $m = +1$ on the value of applied voltage are presented. The spatial distribution of light field of generated singular light beams has been investigated by optical interferometry technique, and their stability in the range of applied voltages on the cell of 0–10 V has been analysed. The results of the study are of interest in point of view of fabricating devices and systems for controlling the spatial, phase and polarisation structure of laser radiation.

Keywords: optical vortices; polarisation holography; diffraction; phase plates; azo dye; liquid crystals; photoalignment.

Acknowledgements. The work was financially supported by the state program of scientific research «Convergence-2025».

Введение

В настоящее время большое внимание уделяется разработке переключаемых дифракционных элементов, реализующих управление пространственными, фазовыми и поляризационными характеристиками света. В частности, оптические структуры на основе бинарной или непрерывно изменяющейся в пространстве азимутальной ориентации молекул жидкого кристалла (ЖК) успешно применяются в качестве дифракционных решеток, осуществляющих преобразование амплитудного и фазового профиля световых пучков [1–3]. Высокая оптическая анизотропия ЖК-среды в совокупности со способностью ЖК-молекул изменять ориентацию во внешнем электрическом поле открыла новые перспективы в области производства дифракционных решеток с управляемыми оптическими свойствами [4–6]. Характеризуясь высокой эффективностью в широком диапазоне длин волн, дифракционные ЖК-структуры обладают рядом преимуществ, среди которых – простота технологии изготовления, компактные размеры, доступная цена, поляризационно управляемое распределение энергии, а также низкие рабочие напряжения [7; 8].

На практике широко применяют два способа создания управляемой пространственно модулированной ориентации директора ЖК:

- использование системы периодически расположенных электродов в ячейке с однородно ориентированным ЖК-слоем [7];
- использование текстурированных подложек для ориентации ЖК-слоя в ячейке с однородными электродами [9].

Второй способ предполагает применение технологии микронатирания, фотолитографии или текстурированной фотоориентации поверхностно-ориентирующих пленок.

Бесконтактный метод фотоориентации [10] обеспечивает возможность точного управления распределением директора ЖК на двумерной поверхности, что позволяет изготавливать локально-неоднородные дифракционные оптические структуры. Среди светочувствительных материалов, применяемых для фотоориентации ЖК, лидирующие позиции занимают азокрасители и азополимеры. Использование в качестве ориентирующей среды светочувствительных азокрасителей, характеризующихся уникальными фотохимическими свойствами и обеспечивающих эффективную оптическую запись с пространственным разрешением ~ 1 мкм, способствовало развитию современной технологической платформы для создания оптических микро- и наноструктур [11; 12]. Для формирования поверхностно-ориентирующих структур в пленке азокрасителей могут применяться различные методы облучения, среди которых выделяются экспонирование через амплитудную фотомаску, лазерное сканирование, а также голографическая запись.

ЖК-структуры на основе фотоориентируемых азокрасителей широко используются для формирования оптических вихрей, которые находят новые применения в различных областях фотоники, таких как оптическое манипулирование микрочастицами, визуализация биообъектов с высоким пространственным разрешением, лазерная обработка материалов, кодирование и передача информации по оптоволоконным линиям связи, детектирование в астрофизике и др. [6]. Повышенный интерес к оптическим вихрям обусловлен их необычными свойствами – существованием винтовых дислокаций (фазовых сингулярностей) волнового фронта в особых точках. В данных точках амплитуда световых колебаний обращается в нуль, а фаза является неопределенной.

Цель настоящей работы – оптимизация условий поляризационной и поляризационно-голографической записи поверхностной анизотропии в пленках светочувствительного азокрасителя AtA-2 и изготовление на этой основе переключаемых дифракционных ЖК-структур с вилочной дислокацией для формирования сингулярных световых пучков (оптических вихрей) с заданной величиной топологического заряда.

Материалы и методы исследования

В ходе выполнения работы были изготовлены экспериментальные образцы – три ЖК-ячейки типа «сэндвич» (далее – ячейка № 1, ячейка № 2 и ячейка № 3) для отработки методики создания дифракционных микроструктур. Корпус ячейки № 1 составляли стеклянные подложки, не содержащие электродов. Внутренние поверхности стеклянных подложек ячейки № 2 и ячейки № 3 были покрыты однородным прозрачным токопроводящим слоем оксида индия – олова.

Для формирования периодических поверхностно-ориентирующих микроструктур на подложках ячеек использовался метод текстурированной фотоориентации пленок азокрасителя AtA-2 [13]. На тщательно очищенные поверхности стеклянных подложек методом род-коутинга наносились тонкие пленки (толщина ~30 нм) светочувствительного азокрасителя AtA-2 [14], разработанного и синтезированного в Институте химии новых материалов НАН Беларуси. Важно отметить, что ориентирующие свойства пленок азокрасителя AtA-2 формируются при облучении их линейно-поляризованным светом, причем направление наведенной ориентации молекул красителя перпендикулярно направлению поляризации активирующего излучения и впоследствии может быть легко изменено путем дополнительного облучения фотоориентанта активирующим излучением с отличным направлением поляризации. Далее подготовленные подложки склеивались эпоксидным клеем. Величина воздушного зазора в данных ячейках задавалась с помощью калиброванных микросфер и составляла 7 мкм. При последующем экспонировании подготовленных ячеек интерференционной картиной, являющейся результатом когерентного сложения двух лазерных пучков, на поверхностях пленок азокрасителя создавались условия для микроструктурированной периодической ориентации директора ЖК. После заполнения облученных ячеек нематическим ЖК созданные оптические элементы приобретали свойства анизотропных дифракционных структур. В работе использовался положительный нематический кристалл типа ЖК-1289 ($n_e = 1,67$, $n_o = 1,49$) (АО «НИОПИК», Россия).

Метод голографической записи отлично подходит для формирования поверхностной анизотропии в пленках светочувствительного азокрасителя AtA-2, имеющего полосу поглощения 450–520 нм, поскольку для данного диапазона длин волн легко подобрать когерентный лазерный источник излучения. Для облучения пленок азокрасителя интерференционной картиной двух световых пучков применялись методы голографической записи и поляризационной (векторной) голографии. На рис. 1 приведена соответствующая схема экспериментальной установки. В качестве источника когерентного излучения использовался аргоновый лазер 1 с длиной волны 488 нм и вертикальной поляризацией. Линейно-поляризованное излучение с помощью светоделительного кубика 2 амплитудно разделялось на два световых пучка, которые зеркалами 3 и 4 сводились в плоскости ячейки 8 и интерферировали на поверхности азополимерной пленки. Суммарная мощность интерферирующих световых пучков в процессе записи составляла 12 мВт при площади интерференционной картины $S = 0,04 \text{ см}^2$. Для управления состоянием поляризации интерферирующих световых пучков использовались фазовые пластинки 5 и 6 – полуволновая $\left(\frac{\lambda}{2}\right)$ для метода голографической записи (ячейка № 1 и ячейка № 2) и четвертьволновая $\left(\frac{\lambda}{4}\right)$ для метода поляризационной голографии (ячейка № 3) соответственно. В ячейке № 3 для записи дифракционного ЖК-элемента, формирующего сингулярные световые пучки (оптические вихри) с заданной величиной топологического заряда $|l| = 1$, в одно из плеч интерферометра устанавливалась спиральная фазовая пластинка 7. Мониторинг формирования решетки в процессе записи реализовывался с использованием считывающего гелий-неонового лазера 9 с длиной волны 632,8 нм, мощностью 0,5 мВт и вертикальной поляризацией, излучение которого направлялось в область интерференционной картины, а интенсивность дифрагированного света регистрировалась с помощью фотоприемника 10.

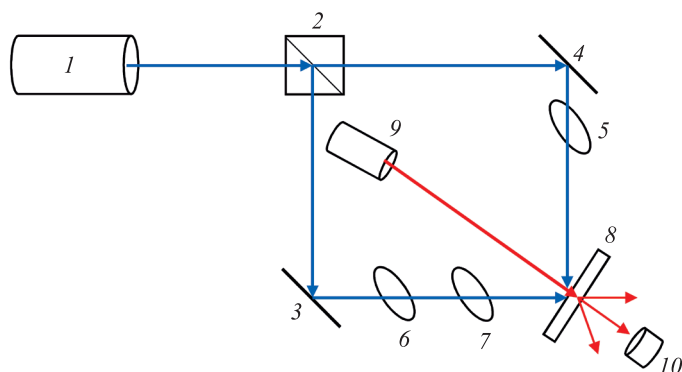


Рис. 1. Схема экспериментальной установки для голографической записи дифракционных решеток в тонких азополимерных пленках:
 1 – аргонный лазер (длина волны 488 нм); 2 – светоделительный кубик;
 3, 4 – зеркала; 5, 6 – полуволновая (для голографической записи) и четвертьволновая (для поляризационной голографической записи) фазовые пластинки;
 7 – фазовая пластинка для записи оптического вихря; 8 – ячейка;
 9 – гелий-неоновый лазер (длина волны 632,8 нм); 10 – фотоприемник

Fig. 1. The scheme of the experimental setup for holographic recording of diffraction gratings in thin azo polymer films:
 1 – argon laser (wavelength 488 nm); 2 – beam splitter cube; 3, 4 – mirrors;
 5, 6 – half wave phase plate (for holographic recording) and quarter wave phase plate (for polarisation holographic recording); 7 – phase plate for optical vortex recording;
 8 – cell; 9 – helium-neon laser (wavelength 632.8 nm); 10 – photoreceiver

Оптимизация условий голографической и поляризационно-голографической записи поверхностной анизотропии в пленках азокрасителя AtA-2

В целях оптимизации параметров голографической записи дифракционных структур была проведена серия экспериментов с разным временем экспонирования t пленок азокрасителя интерференционной картиной двух записывающих световых пучков. С использованием плотно прилегающей амплитудной фотомаски на поверхности ячейки № 1 были выделены шесть областей круглой формы, в пределах которых реализовывалась запись дифракционных структур с разным временем экспонирования.

С помощью полуволновых фазовых пластинок была реализована геометрия голографической записи дифракционной решетки с периодом $\Lambda = 6,5$ мкм с использованием когерентных вертикально поляризованных световых пучков (рис. 2). Время экспонирования t подготовленных областей азополимерных пленок интерференционной картиной с суммарной оптической мощностью 12 мВт варьировалось в диапазоне 5–120 с.

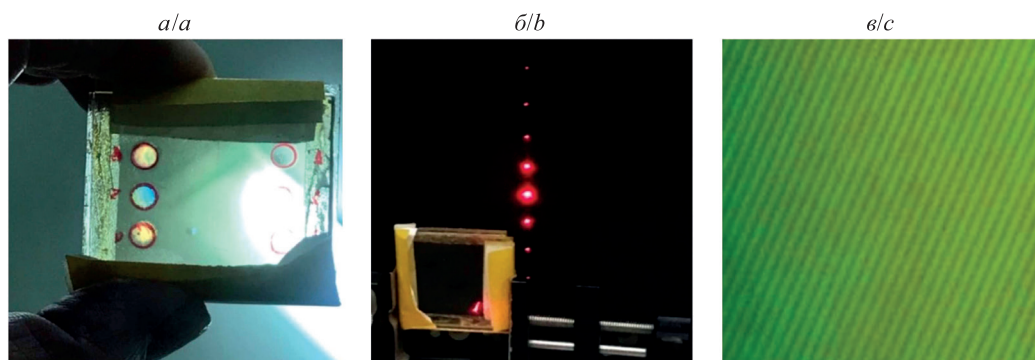


Рис. 2. Экспериментальные фотографии:
 а – дифракционный ЖК-элемент (ячейка № 1);
 б – общая картина дифракции излучения гелий-неонового лазера;
 в – анизотропная дифракционная ЖК-структура с периодом $\Lambda = 6,5$ мкм

Fig. 2. Experimental photos:
 а – the diffraction liquid crystal (LC) element (cell No. 1);
 б – the general diffraction pattern of a helium-neon laser radiation;
 в – the anisotropic diffraction LC structure with a period of $\Lambda = 6.5$ μm

После завершения процесса голографической записи ячейка заправлялась нематическим ЖК-материалом в условиях изотропной фазы. Для изучения дифракционных свойств изготовленных ЖК-структур использовалась экспериментальная установка, включающая гелий-неоновый лазер, генерирующий узконаправленный луч света с длиной волны 632,8 нм и вертикальной поляризацией, ирисовую диафрагму, генератор переменных сигналов прямоугольной формы (с частотой 1 кГц) и фотодетектор, регистрирующий интенсивность излучения, дифрагированного в m -й порядок. Значения дифракционной эффективности η_m (в %), характеризующей распределение энергии прошедшего света по порядкам дифракции m , рассчитывались по формуле

$$\eta_m = \frac{I_m}{I_0} \cdot 100,$$

где I_m – интенсивность света в m -м порядке дифракции; I_0 – интенсивность светового пучка, падающего на решетку.

В табл. 1 приведены экспериментальные результаты измерений дифракционной эффективности порядков дифракции $m = 0$, $m = 1$ и $m = 2$ для изготовленных ЖК-решеток, отличающихся временем экспонирования пленок азокрасителя. В соответствии с данными эксперимента можно заключить, что для достижения максимального значения дифракционной эффективности $\eta_1 = 6,3\%$ в порядке дифракции $m = 1$ время экспонирования пленок азокрасителя должно составлять 60 с. Методом поляризационной микроскопии установлено, что период сформированных ЖК-решеток равен 6,5 мкм. Это полностью соответствует геометрии используемой схемы голографической записи дифракционных структур.

Таблица 1

Дифракционные эффективности порядков дифракции $m = 0$, $m = 1$ и $m = 2$ при разном времени экспонирования, %

Table 1

Diffraction efficiencies of diffraction orders $m = 0$, $m = 1$ and $m = 2$ for different exposure times, %

Время экспонирования, с	Порядок дифракции		
	$m = 0$	$m = 1$	$m = 2$
5	89,5	4,4	0,8
10	93,7	2,6	0,5
20	95,7	1,6	0,5
30	90,3	4,3	0,5
60	85,3	6,3	1,0
120	92,9	2,9	0,6

Одним из способов повышения дифракционной эффективности ЖК-элемента является увеличение толщины ЖК-слоя, однако с точки зрения эффективного формирования анизотропной структуры толщина мезогенного слоя накладывает ограничения на величину минимального периода ЖК-решетки.

Электрическое управление дифракционной эффективностью ЖК-решетки

Для реализации функции электрического управления дифракционной эффективностью ЖК-решетки использовалась ячейка № 2. Методом голографической записи вертикально поляризованными световыми пучками в ней была сформирована дифракционная ЖК-решетка (рис. 3) с пространственным периодом $\Lambda = 1$ мкм. Уменьшение периода дифракционной структуры по сравнению с периодом дифракционной структуры, сформированной в ячейке № 1 ($\Lambda = 6,5$ мкм), обусловлено проведением экспериментальной оценки пространственного разрешения регистрирующей среды – азокрасителя AtA-2. Условия когерентного сложения пучков обеспечивались с помощью полуволновых фазовых пластинок.

Далее проводилось экспериментальное изучение зависимости дифракционной эффективности ЖК-решетки от амплитуды управляющего напряжения на ячейке № 2 для различных состояний поляризации считывающего излучения, а именно линейной (вертикальной и горизонтальной) и круговой (правой и левой) поляризации. На рис. 4 и 5 приведены зависимости дифракционной эффективности излучения, дифрагированного в порядки $m = -1$ и $m = 0$, от величины напряжения на ячейке (дифракционные эффективности порядков дифракции $m = -1$ и $m = +1$ совпадают (табл. 2)).

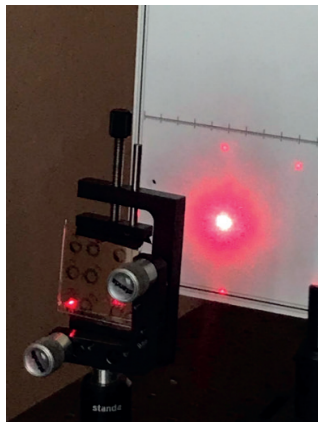
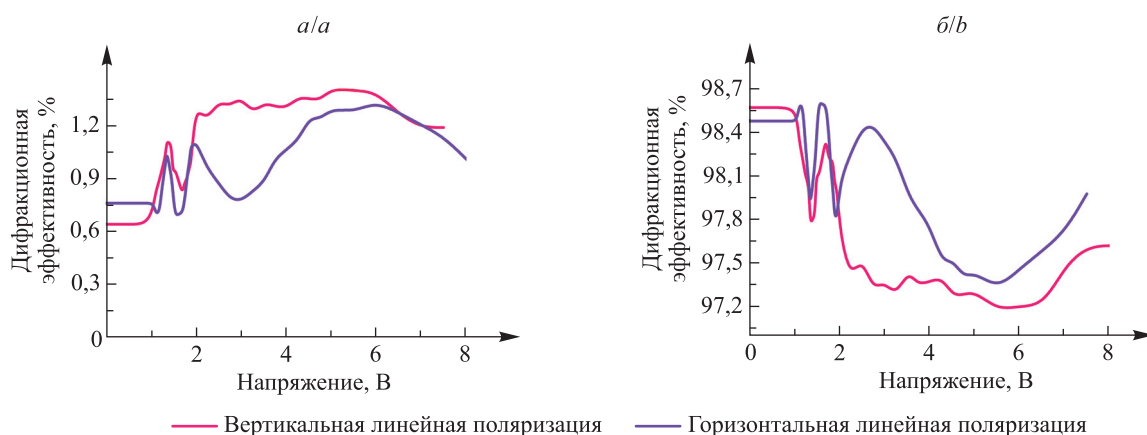


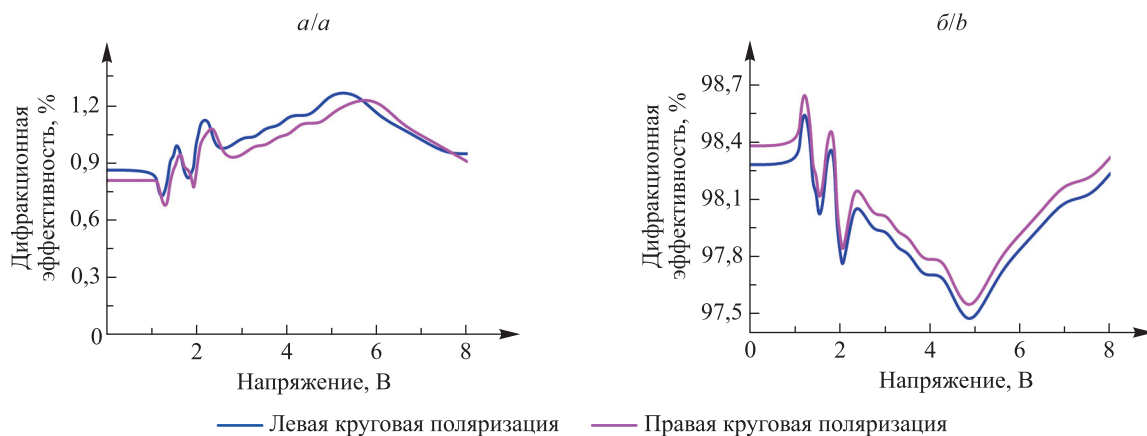
Рис. 3. Экспериментальная фотография
 общей картины дифракции излучения гелий-неонового лазера на ячейке № 2
 Fig. 3. Experimental photograph
 of the general diffraction pattern of a helium-neon laser radiation on the cell No. 2



— Вертикальная линейная поляризация — Горизонтальная линейная поляризация

Рис. 4. Зависимости дифракционной эффективности от управляющего напряжения
 при линейной (вертикальной и горизонтальной) поляризации считывающего излучения:
 а – для порядка дифракции $m = -1$; б – для порядка дифракции $m = 0$

Fig. 4. Dependences of the diffraction efficiency on the control voltage
 for linear (vertical and horizontal) polarisation of reading radiation:
 а – for diffraction order $m = -1$; б – for diffraction order $m = 0$



— Левая круговая поляризация — Правая круговая поляризация

Рис. 5. Зависимости дифракционной эффективности от управляющего напряжения
 при круговой (левой и правой) поляризации считывающего излучения:
 а – для порядка дифракции $m = -1$; б – для порядка дифракции $m = 0$

Fig. 5. Dependences of the diffraction efficiency on the control voltage
 for circular (left and right) polarisation of reading radiation:
 а – for diffraction order $m = -1$; б – for diffraction order $m = 0$

Снижение максимального значения дифракционной эффективности в порядках дифракции $m = -1$ и $m = +1$ для ячейки № 2 по сравнению с таковым для ячейки № 1 ($\eta_1 = 6,3\%$) связано с уменьшением периода голографической записи, который в случае ячейки № 2 был в 5 раз меньше толщины ЖК-слоя, что не позволило создать качественную модуляцию оптической анизотропии в объеме нематического ЖК.

Таблица 2

**Дифракционные эффективности
порядков дифракции $m = -1$, $m = 0$ и $m = +1$
при разной поляризации считывающего излучения, %**

Table 2

**Diffraction efficiencies
of diffraction orders $m = -1$, $m = 0$ and $m = +1$
for different polarisation of reading radiation, %**

Поляризация	Порядок дифракции		
	$m = -1$	$m = 0$	$m = +1$
Вертикальная линейная	1,4	97,1	1,4
Горизонтальная линейная	1,3	97,3	1,3
Левая круговая	1,2	97,5	1,2
Правая круговая	1,2	97,5	1,2

Формирование оптического вихря с помощью электрически управляемого дифракционного ЖК-элемента

Для изготовления электрически переключаемого дифракционного ЖК-элемента, формирующего оптические вихри, применялся метод поляризационной голографии [3; 5; 15], основанный на наведении поверхностной анизотропии в фоточувствительном слое азокрасителя AtA-2 при когерентном сложении сингулярного пучка с плоской волной. В используемой оптической схеме на пути каждого из интерферирующих световых пучков помещались четвертьволновые фазовые пластинки (см. рис. 1), что позволило сформировать ортогональные циркулярные пучки с левой и правой поляризацией. С помощью спиральной фазовой пластинки VPP-m633 (RPC Photonics, США) опорный гауссов пучок был преобразован в сингулярную световую волну (оптический вихрь) с топологическим зарядом $|l| = 1$. Схождение световых пучков на экспериментальном образце – ячейке № 3 – обеспечило формирование дифракционной структуры с периодом $\Lambda = 2,5$ мкм.

Далее был проведен анализ светового поля в области перекрытия сигнального и опорного пучков (рис. 6). Отсутствие картины интерференции (см. рис. 6, а) и ее появление при использовании линейного анализатора перед камерой (см. рис. 6, б) свидетельствуют о реализации записи периодически модулированного поляризационного состояния суммарного светового поля.

При отсутствии управляющего напряжения на ячейке № 3 период сформированной поляризационно-голографическим методом дифракционной ЖК-структуры составил величину $\Lambda = 2,5$ мкм.

Для управления дифракционной эффективностью изготовленной ЖК-структуры к электродам ячейки № 3 прикладывалось управляющее напряжение в диапазоне 0–10 В. На рис. 7 приведены соответствующие зависимости дифракционной эффективности порядков дифракции $m = -1$, $m = 0$ и $m = +1$ при круговой поляризации считывающего излучения. Максимальное значение дифракционной эффективности в порядках дифракции $m = -1$ и $m = +1$ достигается при величине управляющего напряжения на ячейке $\sim 2,5$ – $3,0$ В, что обусловлено частичной переориентацией директора ЖК во внешнем электрическом поле (переход Фредерикса [16]). Дальнейшее увеличение управляющего напряжения (в 5–6 раз по сравнению с пороговым напряжением перехода Фредерикса $U_t = 1,1$ В) приводит к переориентации ЖК-молекул из планарного положения (вдоль поверхности подложек) в гомеотропное (перпендикулярно поверхности подложек), что сопровождается исчезновением дифракционных свойств ЖК-слоя. Согласно полученным экспериментальным данным асимметричные значения максимальной дифракционной эффективности для ортогональных циркулярных поляризаций (табл. 3) свидетельствуют о формировании поляризационной решетки в слое азокрасителя в процессе поляризационно-голографической записи [17].

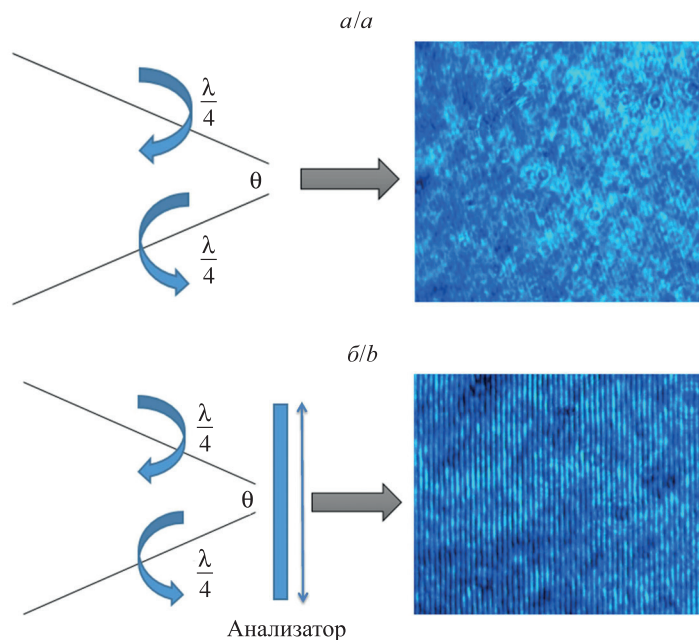


Рис. 6. Схемы сложения ортогональных поляризованных лазерных пучков и соответствующие микрофотографии результирующего светового поля: а – без использования анализатора; б – с использованием анализатора

Fig. 6. Schemes of addition of orthogonal polarised laser beams and the corresponding microphotographs of the resulting light field: а – without an analyser; б – with the analyser

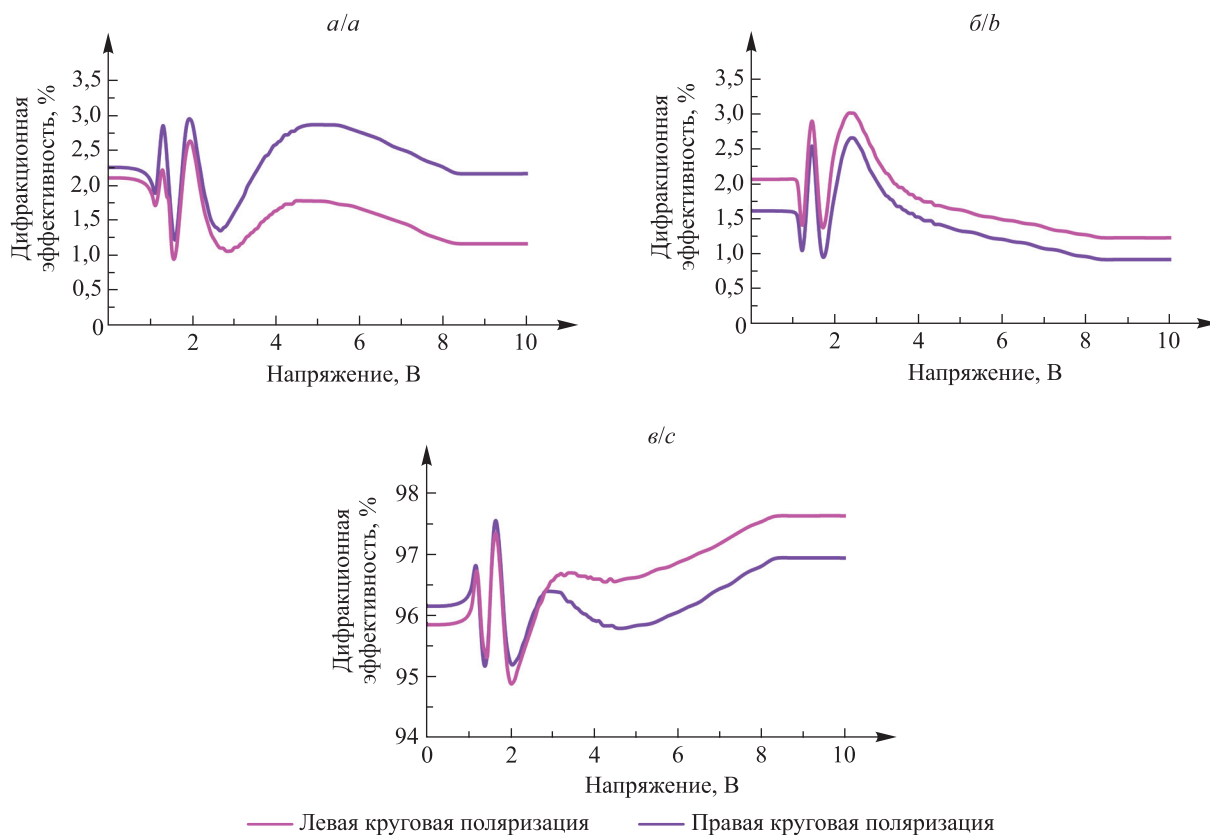


Рис. 7. Зависимости дифракционной эффективности от управляющего напряжения при круговой (левой и правой) поляризации считывающего излучения: а – для порядка дифракции $m = -1$; б – для порядка дифракции $m = +1$; в – для порядка дифракции $m = 0$

Fig. 7. Dependences of the diffraction efficiency on the control voltage for circular (left and right) polarisation of reading radiation: а – for diffraction order $m = -1$; б – for diffraction order $m = +1$; в – for diffraction order $m = 0$

Таблица 3

Максимальные значения
дифракционных эффективностей
для порядков дифракции $m = -1$ и $m = +1$ ячейки № 3, %

Table 3

The maximum values of diffraction efficiencies
for diffraction orders $m = -1$ and $m = +1$ of the cell No. 3, %

Поляризация	Порядок дифракции	
	$m = -1$	$m = +1$
Левая круговая	2,6	3,0
Правая круговая	2,9	2,6

Анализ фазовой структуры оптического вихря, формируемого дифракционным ЖК-элементом (ячейка № 3), проводился методом когерентного сложения сингулярного светового пучка с плоской когерентной волной с помощью интерферометра Маха – Цендера (рис. 8). Особенностью получаемой интерференционной картины (сингулярного пучка с плоской волной) является образование характерной вилки, количество разветвлений которой позволяет определить абсолютную величину топологического заряда $|l|$.

Восстановление поляризационной голограммы проводилось с помощью гелий-неонового лазера. На рис. 9 представлена микрофотография зарегистрированной интерференционной картины плоской когерентной волны и оптического вихря с топологическим зарядом $|l| = 1$ (порядок дифракции $m = 1$).

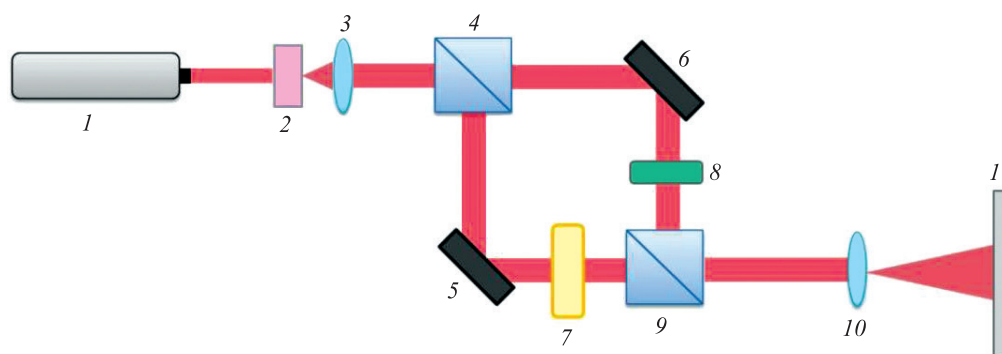


Рис. 8. Принципиальная схема интерферометра Маха – Цендера:
1 – гелий-неоновый лазер (длина волны 632,8 нм); 2 – пространственный фильтр; 3, 10 – линзы;
4, 9 – светоделительные кубики; 5, 6 – зеркала; 7 – топологический дифракционный элемент;
8 – четвертьволновая фазовая пластинка; 11 – экран

Fig. 8. The schematic diagram of the Mach – Zehnder interferometer:
1 – helium-neon laser (wavelength 632.8 nm); 2 – spatial filter; 3, 10 – lenses;
4, 9 – beam splitter cubes; 5, 6 – mirrors; 7 – topological diffractive element;
8 – quarter wave phase plate; 11 – screen

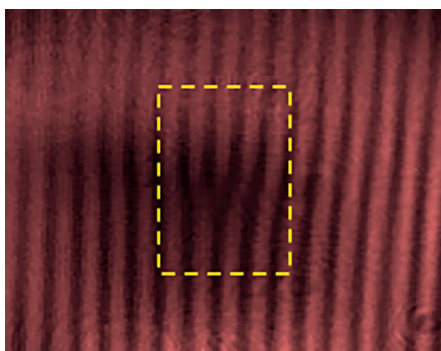


Рис. 9. Микрофотография картины интерференции
плоской волны и оптического вихря с топологическим зарядом $|l| = 1$.
Пунктиром выделена область вилочной дислокации

Fig. 9. The microphotograph of the interference pattern
of a plane wave and an optical vortex with a topological charge $|l| = 1$.
The forked dislocation region is highlighted with a dotted line

На рис. 10 приведены профили распределения интенсивности световых пучков в направлении порядка дифракции $m = +1$ при разных значениях управляющего напряжения на ячейке № 3. Характерное пространственное распределение интенсивности светового поля с провалом в центральной области подтверждает вихревую природу дифрагированных световых пучков.

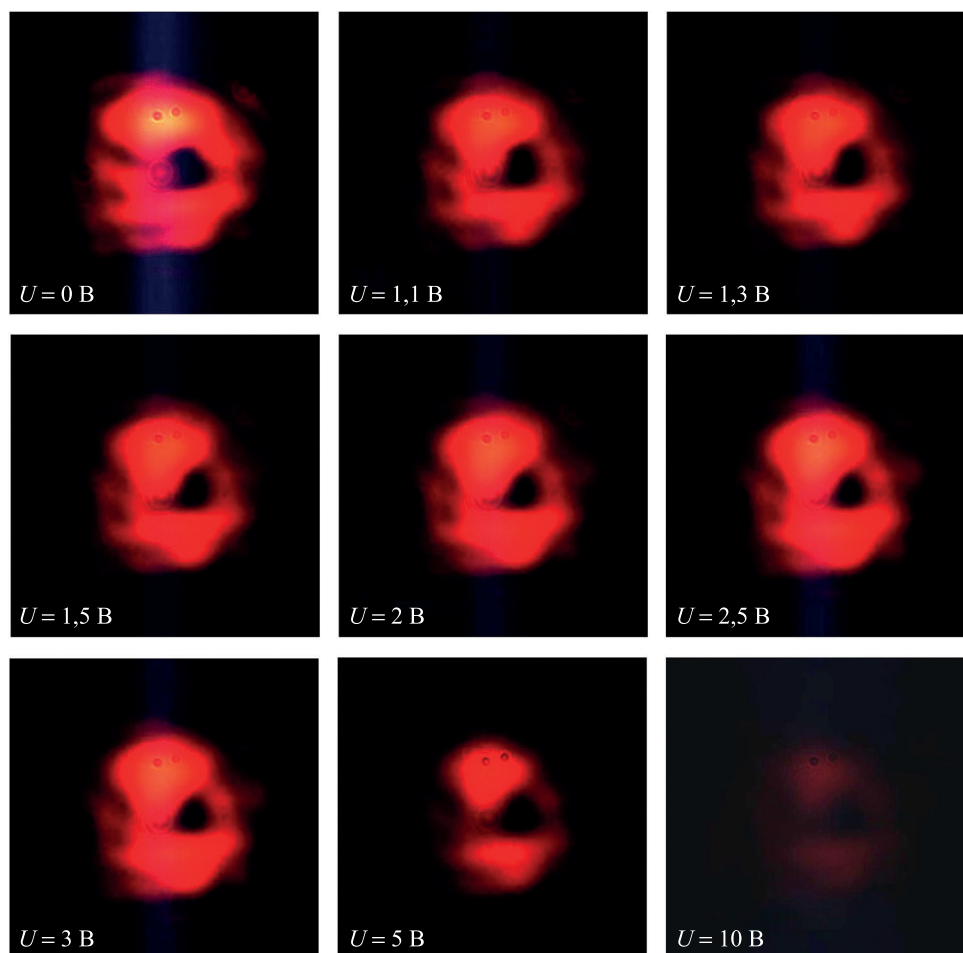


Рис. 10. Микрофотографии профилей распределения интенсивности восстановленного в порядок дифракции $m = +1$ оптического вихря при изменении внешнего управляющего напряжения (U)

Fig. 10. Microphotographs of the intensity distribution profiles of the reconstructed in diffraction order $m = +1$ optical vortex when the external control voltage (U) changes

Согласно полученным экспериментальным данным формируемые оптические вихри являются стабильными и сохраняют свою пространственную структуру при изменении управляющего напряжения на ячейке в диапазоне 0–10 В. Уменьшение интенсивности дифрагированных сингулярных пучков с ростом управляющего напряжения обусловлено переориентацией ЖК-молекул, приводящей к изменению фазовой задержки в ЖК-слое и, соответственно, к снижению дифракционной эффективности ЖК-структуры.

Таким образом, разработанный электрически переключаемый дифракционный ЖК-элемент на основе фоточувствительного ориентирующего слоя азокрасителя AtA-2 позволяет формировать устойчивые сингулярные световые пучки (оптические вихри) с заданной величиной топологического заряда, что представляет практический интерес с точки зрения разработки и создания систем оптического захвата микрочастиц, высокоразрешающей микроскопии, вортекс-коронарографии и др.

Заключение

Метод поляризационной голографической записи в тонких пленках азокрасителя AtA-2 позволяет формировать переключаемые дифракционные ЖК-структуры, в том числе характеризующиеся вилочной дислокацией. Для повышения эффективности голографической записи дифракционных решеток выполнен экспериментальный анализ оптимальных условий экспонирования светочувствительных пленок азокрасителя AtA-2 интерференционной картиной когерентных световых пучков. Установлено, что при

использовании световых пучков мощностью 3–5 мВт максимальное значение дифракционной эффективности в порядке дифракции $m = 1$ достигается при времени экспонирования 60 с. Это соответствует величине экспозиционной дозы $\sim 0,72$ Дж.

Высокое пространственное разрешение фоточувствительной среды – азокрасителя AtA-2 – позволило сформировать дифракционную решетку с периодом $\Lambda = 1$ мкм. Показано, что уменьшение периода записывающей интерференционной картины с 6,5 до 1 мкм в ЖК-слое толщиной 7 мкм сопровождается уменьшением модуляции оптической анизотропии и, как следствие, снижением дифракционной эффективности ЖК-решетки. Применение в процессе поляризационно-голографической записи спиральной фазовой пластинки позволяет формировать дифракционные ЖК-структуры с вилочной дислокацией для генерации сингулярных световых пучков. Экспериментально установлено, что структура пространственного распределения интенсивности в поперечном сечении вихревого поля дифрагированных световых пучков сохраняется стабильной при подаче управляющего напряжения на ячейку.

Область применения полученных результатов включает разработку и создание систем управления фазово-поляризационной структурой световых пучков, оптический захват и манипулирование микро-частицами, визуализацию биообъектов с высоким пространственным разрешением, лазерную обработку материалов, кодирование и передачу информации по оптоволоконным линиям связи.

Библиографические ссылки

1. Zuo Kai, Shi Yue, Luo Dan. A review of two-dimensional liquid crystal polarization gratings. *Crystals*. 2021;11(9):1015. DOI: 10.3390/cryst11091015.
2. Huang Bing-Yau, Lin Tsung-Hsien, Jhuang Tian-Yi, Kuo Chie-Tong. Electrically tunable Fresnel lens in twisted-nematic liquid crystals fabricated by a Sagnac interferometer. *Polymers*. 2019;11(9):1448. DOI: 10.3390/polym11091448.
3. Kawai K, Sasaki T, Noda K, Sakamoto M, Kawatsuki N, Ono H. Holographic binary grating liquid crystal cells fabricated by one-step exposure of photocrosslinkable polymer liquid crystalline alignment substrates to a polarization interference ultraviolet beam. *Applied Optics*. 2015;54(19):6010–6018. DOI: 10.1364/AO.54.006010.
4. Nieborek M, Rutkowska K, Woliński TR, Bartosewicz B, Jankiewicz B, Szmigiel D, et al. Tunable polarization gratings based on nematic liquid crystal mixtures photoaligned with azo polymer-coated substrates. *Crystals*. 2020;10(9):768. DOI: 10.3390/cryst10090768.
5. Rutkowska KA, Kozanecka-Szmigiel A. Design of tunable holographic liquid crystalline diffraction gratings. *Sensors*. 2020; 20(23):6789. DOI: 10.3390/s20236789.
6. Lee D, Lee H, Migara LK, Kwak K, Panov VP, Song J-K. Widely tunable optical vortex array generator based on grid patterned liquid crystal cell. *Advanced Optical Materials*. 2021;9(2):2001604. DOI: 10.1002/adom.202001604.
7. Huang Shuan-Yu, Huang Bing-Yau, Kang Chi-Chung, Kuo Chie-Tong. Diffraction and polarization properties of electrically-tunable nematic liquid crystal grating. *Polymers*. 2020;12(9):1929. DOI: 10.3390/polym12091929.
8. Казак АА, Казак ЛА, Мельникова ЕА, Толстик АЛ. Дифракционные жидкокристаллические элементы для формирования вихревых световых полей. *Вестник Белорусского государственного университета. Серия 1, Физика. Математика. Информатика*. 2011;1:3–6.
9. Chen Peng, Lu Yan-Qing, Hu Wei. Beam shaping via photopatterned liquid crystals. *Liquid Crystals*. 2016;43(13–15):2051–2061. DOI: 10.1080/02678292.2016.1191685.
10. Chigrinov VG, Kozenkov VM, Kwok H-S. *Photoalignment of liquid crystalline materials: physics and applications*. Chichester: John Wiley & Sons; 2008. XV, 231 p. DOI: 10.1002/9780470751800.
11. Chigrinov V, Kudreyko A, Guo Q. Patterned photoalignment in thin films: physics and applications. *Crystals*. 2021;11(2):84. DOI: 10.3390/cryst11020084.
12. Chigrinov V, Sun J, Wang X. Photoaligning and photopatterning: new LC technology. *Crystals*. 2020;10(4):323. DOI: 10.3390/cryst10040323.
13. Кабанова ОС, Рушнова ИИ, Мельникова ЕА, Толстик АЛ, Муравский АЛА, Муравский АНА и др. Двумерная дифракционная оптическая структура на основе текстурированной фотоориентации полимеризуемого жидкого кристалла. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика*. 2019;3:4–11. DOI: 10.33581/2520-2243-2019-3-4-11.
14. Mikulich VS, Murawski AnA, Muravsky AIA, Agabekov VE. Influence of methyl substituents on azo-dye photoalignment in thin films. *Journal of Applied Spectroscopy*. 2016;83(1):115–120. DOI: 10.1007/s10812-016-0252-y.
15. Crawford GP, Eakin JN, Radcliffe MD, Callan-Jones A, Pelcovits RA. Liquid-crystal diffraction gratings using polarization holography alignment techniques. *Journal of Applied Physics*. 2005;98(12):123102. DOI: 10.1063/1.2146075.
16. Блинов ЛМ. *Электро- и магнитооптика жидких кристаллов*. Москва: Наука; 1978. 384 с.
17. Палто СП, Блинов ЛМ, Барник МИ, Лазарев ВВ, Уманский БА, Штыков НМ. Фотоника жидкокристаллических структур. Обзор. *Кристаллография*. 2011;56(4):667–697.

References

1. Zuo Kai, Shi Yue, Luo Dan. A review of two-dimensional liquid crystal polarization gratings. *Crystals*. 2021;11(9):1015. DOI: 10.3390/cryst11091015.
2. Huang Bing-Yau, Lin Tsung-Hsien, Jhuang Tian-Yi, Kuo Chie-Tong. Electrically tunable Fresnel lens in twisted-nematic liquid crystals fabricated by a Sagnac interferometer. *Polymers*. 2019;11(9):1448. DOI: 10.3390/polym11091448.
3. Kawai K, Sasaki T, Noda K, Sakamoto M, Kawatsuki N, Ono H. Holographic binary grating liquid crystal cells fabricated by one-step exposure of photocrosslinkable polymer liquid crystalline alignment substrates to a polarization interference ultraviolet beam. *Applied Optics*. 2015;54(19):6010–6018. DOI: 10.1364/AO.54.006010.

4. Nieborek M, Rutkowska K, Woliński TR, Bartosewicz B, Jankiewicz B, Szmigiel D, et al. Tunable polarization gratings based on nematic liquid crystal mixtures photoaligned with azo polymer-coated substrates. *Crystals*. 2020;10(9):768. DOI: 10.3390/cryst10090768.
5. Rutkowska KA, Kozanecka-Szmigiel A. Design of tunable holographic liquid crystalline diffraction gratings. *Sensors*. 2020;20(23):6789. DOI: 10.3390/s20236789.
6. Lee D, Lee H, Migara LK, Kwak K, Panov VP, Song J-K. Widely tunable optical vortex array generator based on grid patterned liquid crystal cell. *Advanced Optical Materials*. 2021;9(2):2001604. DOI: 10.1002/adom.202001604.
7. Huang Shuan-Yu, Huang Bing-Yau, Kang Chi-Chung, Kuo Chie-Tong. Diffraction and polarization properties of electrically-tunable nematic liquid crystal grating. *Polymers*. 2020;12(9):1929. DOI: 10.3390/polym12091929.
8. Kazak AA, Kazak LA, Melnikova EA, Tolstic AL. [Diffraction liquid crystal elements for the formation of vortex light fields]. *Vestnik Belorusskogo gosudarstvennogo universiteta. Seriya 1, Fizika. Matematika. Informatika*. 2011;1:3–6. Russian.
9. Chen Peng, Lu Yan-Qing, Hu Wei. Beam shaping via photopatterned liquid crystals. *Liquid Crystals*. 2016;43(13–15):2051–2061. DOI: 10.1080/02678292.2016.1191685.
10. Chigrinov VG, Kozenkov VM, Kwok H-S. *Photoalignment of liquid crystalline materials: physics and applications*. Chichester: John Wiley & Sons; 2008. XV, 231 p. DOI: 10.1002/9780470751800.
11. Chigrinov V, Kudreyko A, Guo Q. Patterned photoalignment in thin films: physics and applications. *Crystals*. 2021;11(2):84. DOI: 10.3390/cryst11020084.
12. Chigrinov V, Sun J, Wang X. Photoaligning and photopatterning: new LC technology. *Crystals*. 2020;10(4):323. DOI: 10.3390/cryst10040323.
13. Kabanova OS, Rushnova II, Melnikova EA, Tolstic AL, Muravsky AIA, Murauski AnA, et al. Two-dimensional diffractive optical structure based on patterned photoalignment of polymerizable liquid crystal. *Journal of the Belarusian State University. Physics*. 2019;3:4–11. Russian. DOI: 10.33581/2520-2243-2019-3-4-11.
14. Mikulich VS, Murawski AnA, Muravsky AIA, Agabekov VE. Influence of methyl substituents on azo-dye photoalignment in thin films. *Journal of Applied Spectroscopy*. 2016;83(1):115–120. DOI: 10.1007/s10812-016-0252-y.
15. Crawford GP, Eakin JN, Radcliffe MD, Callan-Jones A, Pelcovits RA. Liquid-crystal diffraction gratings using polarization holography alignment techniques. *Journal of Applied Physics*. 2005;98(12):123102. DOI: 10.1063/1.2146075.
16. Blinov LM. *Elektro- i magnitooptika zhidkikh kristallov* [Electro- and magneto-optics of liquid crystals]. Moscow: Nauka; 1978. 384 p. Russian.
17. Palto SP, Blinov LM, Barnik MI, Lazarev VV, Umanskii BA, Shtykov NM. [Photonics of liquid-crystal structures. A review]. *Kristallografiya*. 2011;56(4):667–697. Russian.

Получена 04.05.2023 / исправлена 09.05.2023 / принята 13.05.2023.
Received 04.05.2023 / revised 09.05.2023 / accepted 13.05.2023.

УДК 621.382

ВЛИЯНИЕ ДЛИТЕЛЬНОЙ И БЫСТРОЙ ТЕРМООБРАБОТОК
НА ФОРМИРОВАНИЕ ГРАНИЦЫ РАЗДЕЛА
АЛЮМИНИЙ – ПОЛИКРЕМНИЙ

В. А. ПИЛИПЕНКО^{1),2)}, Н. С. КОВАЛЬЧУК¹⁾, Д. В. ЖИГУЛИН¹⁾,
Д. В. ШЕСТОВСКИЙ¹⁾, В. М. АНИЩИК²⁾, В. В. ПОНАРЯДОВ²⁾

¹⁾«Интеграл» – управляющая компания холдинга «Интеграл»,
ул. Казинца, 121а, 220108, г. Минск, Беларусь

²⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

Исследовано влияние длительной и быстрой термообработок на формирование границы раздела алюминий – поликремний на структурах алюминий – поликремний – двуокись кремния в целях изучения омических контактов в элементной базе интегральных микросхем. Полученные структуры были подвергнуты различным видам термообработки: стандартному (длительному) термическому отжигу (450 °С, 20 мин, среда N₂), используемому для создания омических контактов на этапе производства интегральных микросхем, и быстрому термическому отжигу (450 °С, 7 с, среда Ar). Установлено, что при длительной термообработке происходит полное растворение поликремния в алюминии с последующей сегрегацией в виде отдельных остроугольных конгломератов поликремния на поверхности двуокиси кремния, что может привести к полному отказу работоспособности интегральной микросхемы. При быстрой термообработке подобного эффекта не наблюдается. Таким образом, при формировании омического контакта алюминий – поликремний на этапе производства интегральных микросхем целесообразно использовать быструю термообработку, которая существенно уменьшает растворение поликремния в алюминии и тем самым способствует формированию омического контакта.

Ключевые слова: граница раздела алюминий – поликремний; омический контакт; быстрая термообработка; интегральная микросхема; растровая электронная микроскопия; энергодисперсионный микроанализ.

Образец цитирования:

Пилипенко ВА, Ковальчук НС, Жигулин ДВ, Шестовский ДВ, Анищик ВМ, Понарядов ВВ. Влияние длительной и быстрой термообработок на формирование границы раздела алюминий – поликремний. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика.* 2023;2:51–57. <https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-51-57>

For citation:

Pilipenka UA, Kovalchuk NS, Zhyhulin DV, Shestovski DV, Anishchik VM, Ponariadov VV. Effect of long-term and rapid thermal treatments on the formation of the aluminum – polysilicon interface. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2023;2:51–57. Russian. <https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-51-57>

Сведения об авторах см. на с. 57.

Information about the authors see p. 57.

EFFECT OF LONG-TERM AND RAPID THERMAL TREATMENTS ON THE FORMATION OF THE ALUMINUM – POLYSILICON INTERFACE

*U. A. PILIPENKA^{a, b}, N. S. KOVALCHUK^a, D. V. ZHYHULIN^a,
D. V. SHESTOVSKI^a, V. M. ANISHCHIK^b, V. V. PONARIADOV^b*

^a«Integral» – Holding Management Company, 121a Kazinca Street, Minsk 220108, Belarus

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

Corresponding author: D. V. Zhyhulin (zhyhulin@mail.ru)

The influence of long-term and rapid thermal treatments on the formation of the aluminum – polysilicon interface on aluminum – polysilicon – silicon dioxide structures in order to study the ohmic contacts in the element base of integrated circuits are considered. The obtained structures were subjected to various thermal treatments: standard (long-term) thermal annealing (450 °C, 20 min, N₂ environment) used to create ohmic contacts at the stage of integrated circuit manufacturing and rapid thermal annealing (450 °C, 7 s, Ar environment). It is established, that during long-term thermal treatment, polysilicon is completely dissolved in aluminum, followed by segregation in the form of separate acute-angled polysilicon conglomerates on the surface of silicon dioxide, which can lead to a complete failure of the integrated circuit. With rapid thermal treatment, this effect is not observed. Thus, when forming an ohmic aluminum – polysilicon contact at the stage of integrated circuit manufacturing, it is advisable to use rapid thermal treatment, which significantly reduces the dissolution of polysilicon in aluminum and thereby contributes to the formation of an ohmic contact.

Keywords: aluminum – polysilicon interface; ohmic contact; rapid thermal treatment; integrated circuit; scanning electron microscopy; energy dispersive microanalysis.

Введение

При усиливающейся тенденции к повышению плотности компоновки современных интегральных микросхем (ИМС), а значит, к уменьшению проектных норм все большее значение приобретает снижение тепловой нагрузки, оказываемой на полупроводниковую пластину в процессе формирования на ней элементной базы ИМС. Это требует разработки новых технологических процессов, использующих либо более низкую температуру, либо более короткое время их проведения. Данная тенденция обусловлена необходимостью значительно уменьшить длительность диффузионных процессов, имеющих место при высокотемпературных обработках, а также практически исключить загрязнение полупроводникового материала неконтролируемыми примесями. Особенно остро этот вопрос стоит при формировании омических контактов к кремнию и поликремнию. Процесс создания таких контактов представляет собой осаждение алюминия на кремний и поликремний с последующим применением длительной термообработки (510 °C, 10 мин или 450 °C, 20 мин [1]). Простейшее представление о взаимодействии алюминия с полупроводником заключается в том, что при диффузии металла в кристаллическую решетку кремния происходит ослабление и разрыв ковалентных связей Si—Si с образованием подвижных атомов кремния [2]. Поток атомов кремния в направлении межфазной границы алюминий – кремний сопровождается потоком атомов алюминия, ориентированным в противоположном направлении. Таким образом, возникает процесс взаимного диффузионного перераспределения как металла в кремнии, так и кремния в металле, который усиливается при длительной термообработке, что приводит к значительному ухудшению параметров создаваемых ИМС, а следовательно, к снижению процента выхода годных изделий [3].

Одним из методов, уменьшающих диффузионные процессы при высокотемпературных обработках, в том числе при формировании омических контактов, является применение быстрой термообработки (БТО) [4–20]. Однако в публикациях [4–20] описывается лишь взаимодействие алюминиевой металлизации с монокристаллическим кремнием при создании омических контактов. При этом не затрагиваются вопросы формирования омического контакта алюминий – поликремний, его поведения при различных температурных нагрузках в процессе создания элементной базы ИМС. Проведение таких исследований позволит установить особенности формирования омических контактов не только к поликремниевым резисторам и конденсаторам, но и к поликремниевым затворам полевых транзисторов, что непременно скажется на их выходных характеристиках, а значит, и на работоспособности всей ИМС.

Материалы и методы исследования

На кремниевых пластинах марки КДБ-10 диаметром 100 мм и ориентацией $\langle 111 \rangle$ пироженным окислением при температуре 850 °С формировался оксид кремния толщиной 70 нм. Затем на оксид кремния методом газофазного осаждения наносился слой поликремния толщиной 0,25 мкм, на поверхность которого магнетронным методом напылялась пленка алюминия толщиной 1,5 мкм. Для напыления пленки использовалась алюминиевая мишень с 1 % примеси кремния. Часть полученных структур алюминий – поликремний – двуокись кремния подвергались различным видам термообработки: стандартной (длительной) термообработке (450 °С, 20 мин, среда N₂) и БТО (450 °С, 7 с, среда Ar). Другая часть структур не подвергались воздействию температуры. Процесс БТО пластин выполнялся в среде Ar при атмосферном давлении системой УБТО ПИТ-1801 (ООО «Перспективные инновационные технологии», Беларусь). Атмосфера Ar была выбрана в целях исключения процессов окисления алюминия при термообработке. Пластины облучались с непланарной стороны потоками фотонов 20 галогенных ламп импульсами постоянной мощности длительностью 7 с. Мощность излучения ламп обеспечивала достижение температуры нагрева пластины 450 °С в течение 7 с.

Исследование границы раздела алюминий – поликремний и определение элементного состава осуществлялись на сколе пластины с помощью растрового электронного микроскопа (РЭМ) S-4800 (Hitachi, Япония) с энергодисперсионным спектрометром Quantax-200 (Bruker, Германия).

Результаты и их обсуждение

Влияние длительной термообработки и БТО на формирование границы раздела алюминий – поликремний показано на рис. 1–3.

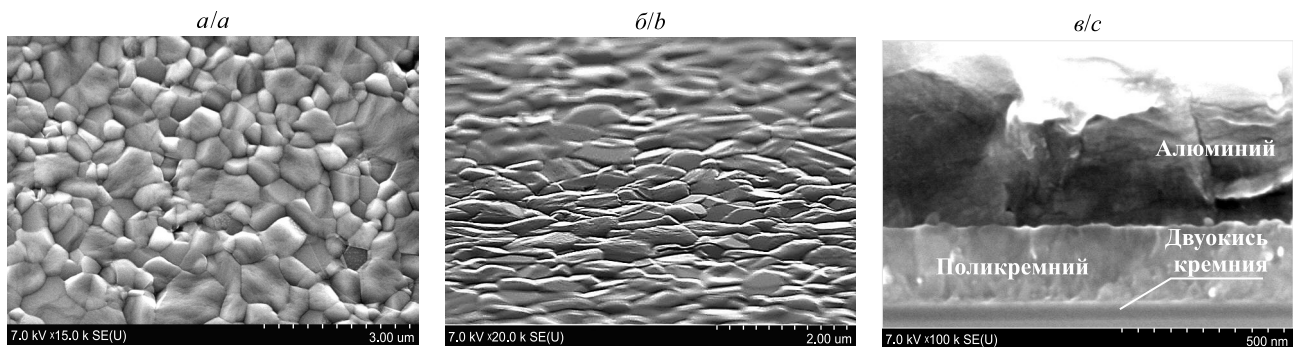


Рис. 1. РЭМ-изображения структуры алюминий – поликремний – двуокись кремния без термообработки: *a* – поверхность алюминия без наклона; *b* – поверхность алюминия под наклоном; *в* – скол структуры
Fig. 1. SEM images of the aluminum – polysilicon – silicon dioxide structure without thermal treatment: *a* – aluminum surface without tilt; *b* – tilted aluminum surface; *c* – structure cross section

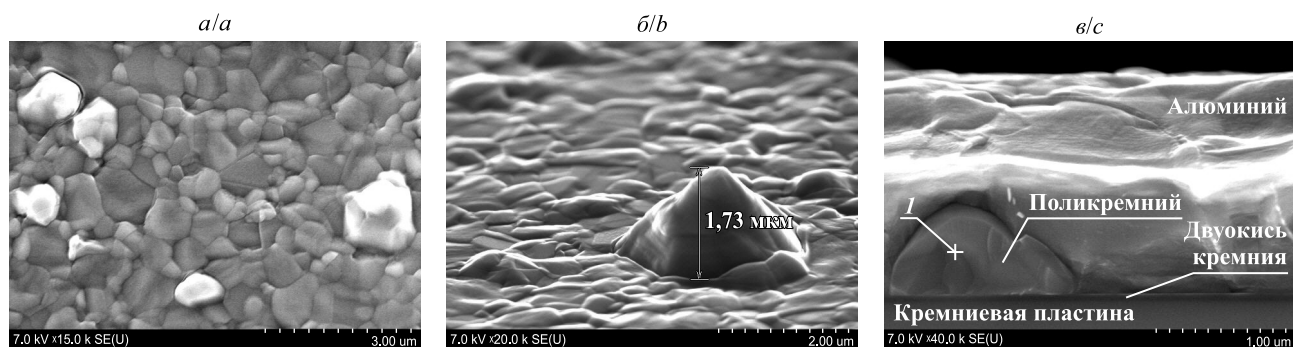


Рис. 2. РЭМ-изображения структуры алюминий – поликремний – двуокись кремния после длительной термообработки (450 °С, 20 мин, среда N₂): *a* – поверхность алюминия без наклона; *b* – поверхность алюминия под наклоном; *в* – скол структуры
Fig. 2. SEM images of the aluminum – polysilicon – silicon dioxide structure after long-term treatment (450 °C, 20 min, N₂ environment): *a* – aluminum surface without tilt; *b* – tilted aluminum surface; *c* – structure cross section

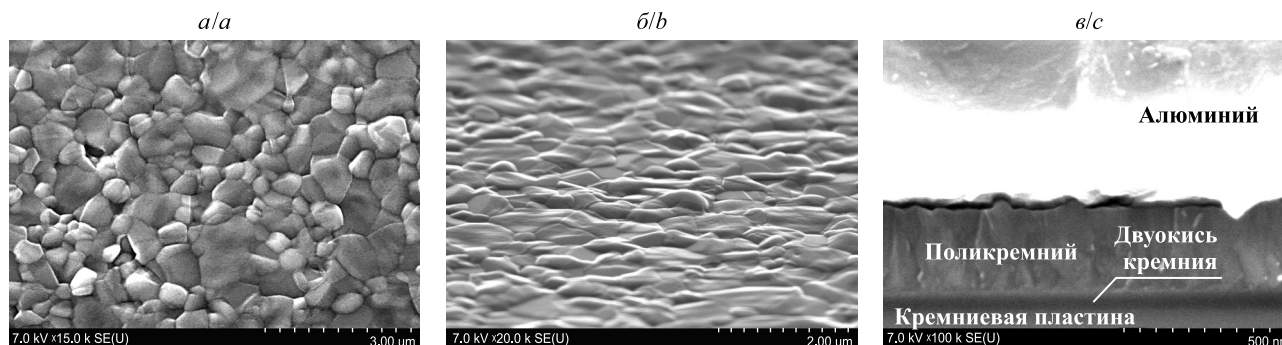


Рис. 3. РЭМ-изображения структуры алюминий – поликремний – двуокись кремния после БТО (450 °С, 7 с, среда Ar): а – поверхность алюминия без наклона; б – поверхность алюминия под наклоном; в – скол структуры

Fig. 3. SEM images of the aluminum – polysilicon – silicon dioxide structure after rapid thermal treatment (450 °C, 7 s, Ar environment):

a – aluminum surface without tilt; b – tilted aluminum surface; c – structure cross section

Анализ полученных данных показал, что имеется значительная разница между длительной термообработкой (450 °С, 20 мин, среда N₂) и БТО (450 °С, 7 с, среда Ar). При длительной термообработке происходит полное растворение поликремния в алюминии с последующей сегрегацией в виде отдельных конгломератов поликремния на поверхности двуокиси кремния. Элементный состав данных конгломератов приведен на рис. 4.

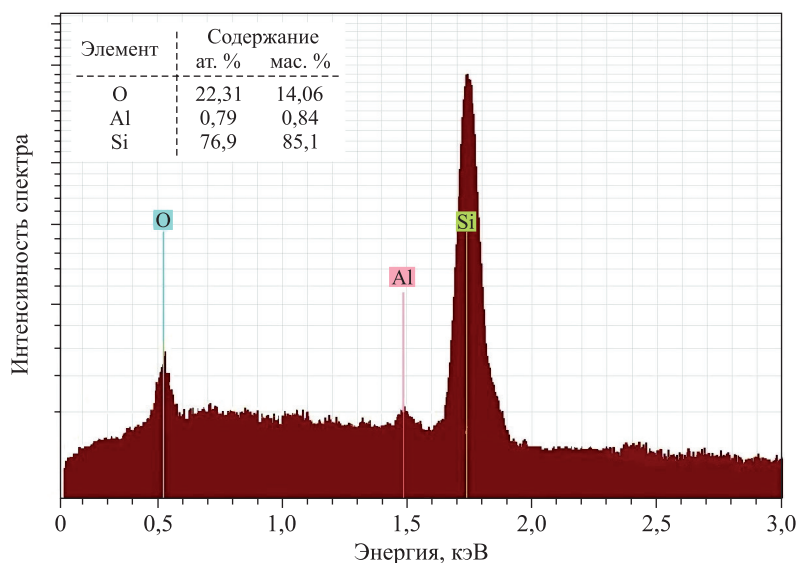


Рис. 4. Энергодисперсионный спектр конгломерата поликремния (см. рис. 2, в, точка 1)

Fig. 4. EDX spectrum of the polysilicon conglomerate (see fig. 2, c, point 1)

Высота конгломератов поликремния может значительно превышать толщину напыленной пленки алюминия. Поскольку алюминий гораздо более мягкий материал, чем поликремний, то своими острыми углами поликремний легко протыкает пленку алюминия насквозь (см. рис. 2, а и б), что может привести к замыканию соседних топологических слоев ИМС, а значит, и к полному отказу микросхемы.

Для оценки размеров образовавшихся конгломератов поликремния пленка алюминия была стравлена в растворе на основе фосфорной и азотной кислот, в котором поликремний не травится. На рис. 5 представлены РЭМ-изображения конгломератов поликремния после стравливания слоя алюминия и их элементный состав.

Из рис. 5, а и б, видно, что пленка поликремния превращается в крупные конгломераты поликремния с остроугольными краями на поверхности двуокиси кремния, что может сказаться на работоспособности ИМС, при создании которых используются слои поликремния, имеющие контакты с алюминием.

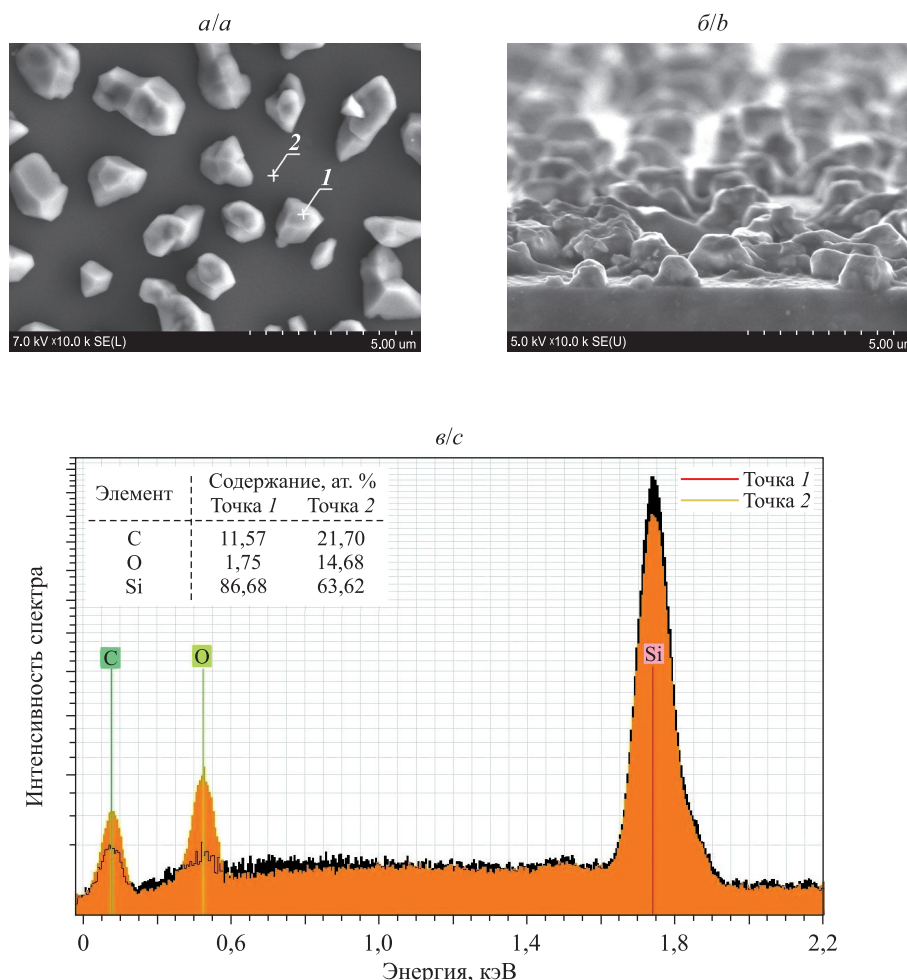


Рис. 5. РЭМ-изображения конгломератов поликремния на поверхности двуоксида кремния без наклона (а) и под наклоном (б), а также их энергодисперсионный спектр (в)

Fig. 5. SEM images of the polysilicon conglomerates on the silicon dioxide surface without tilt (a) and tilted surface (b), as well as EDX spectrum (c)

Заключение

Применение длительных термообработок (450 °С, 20 мин) при производстве современных ИМС с постоянно уменьшающимися проектными нормами приводит к ухудшению параметров ИМС и, как следствие, низкому проценту выхода годных изделий. Данное обстоятельство обусловлено тем, что с уменьшением проектных норм изготовления ИМС все большее значение приобретают диффузионные процессы на границах раздела топологических слоев. Так, в месте соприкосновения омического алюминиевого контакта к поликремниевым затворам МОП-транзисторов, резисторов, конденсаторов происходит растворение поликремния в алюминии с последующей сегрегацией в виде отдельных остроугольных конгломератов поликремния, которые не только ухудшают выходные характеристики ИМС, но и приводят к их полному отказу в результате замыкания топологических слоев. Одним из способов уменьшения диффузионных процессов в микроэлектронике является замена стандартного термического отжига на БТО, позволяющую избежать разрушения омических алюминиевых контактов к поликремниевым топологическим элементам, а значит, увеличить процент выхода годных ИМС.

Библиографические ссылки

1. Пилипенко ВА. Быстрые обработки в технологии СБИС. Минск: Издательский центр БГУ; 2004. 531 с.
2. Поут Дж, Ту К, Мейер Дж, редакторы. Тонкие пленки: взаимная диффузия и реакции. Москва: Мир; 1982. 576 с.
3. Могэб К, Фрейзер Д, Фичтнер У, Паррильо Л, Маркус Р, Стейдел К и др. Технология СБИС. Книга 2. Зи С, редактор. Москва: Мир; 1986. 453 с.
4. Солодуха ВА, Пилипенко ВА, Горущко ВА. Режимы быстрой термообработки системы Pt – Si для формирования силицида платины. Доклады БГУИР. 2018;8:88–92.

5. Солодуха ВА, Пилипенко ВА, Горушко ВА, Филипеня ВА. Влияние режимов формирования силицида платины методом быстрой термообработки на параметры диодов Шоттки. *Доклады БГУИР*. 2019;1:62–67.
6. Анищик ВМ, Горушко ВА, Пилипенко ВА, Понарядов ВВ, Солодуха ВА. Электропроводность пленок силицида платины, сформированных с применением быстрой термообработки. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика*. 2019;1:27–31.
7. Беляев АЕ, Болтовец НС, Кладько ВП, Сафрук-Романенко НВ, Любченко АИ, Шеремет ВН и др. Особенности температурной зависимости удельного контактного сопротивления диффузионных кремниевых структур Au – Ti – Pd – n⁺ – n-Si. *Физика и техника полупроводников*. 2019;53(4):485–492. DOI: 10.21883/FTP.2019.04.47445.9012.
8. Solodukha VA, Pilipenko VA, Gorushko VA, Komarov FF, Milchanin OV. Formation of platinum silicide layers during the rapid thermal processing of the platinum – silicon system: structural-phase changes. *High Temperature Material Processes*. 2019;23(3):195–208. DOI: 10.1615/HighTempMatProc.v23.i3.10.
9. Solodukha VA, Pilipenko VA, Gorushko VA, Kupchishin AN, Komarov FF, Milchanin OV. Formation of platinum silicide during rapid thermal processing of the platinum – silicon system: microstructure and electrophysical characteristics. *High Temperature Material Processes*. 2019;23(3):255–273. DOI: 10.1615/HighTempMatProc.2019031214.
10. Соловьёв ЯА, Пилипенко ВА. Влияние условий быстрой термической обработки на электрофизические свойства тонких пленок хрома на кремнии. *Доклады БГУИР*. 2019;7–8:157–164. DOI: 10.35596/1729-7648-2019-126-8-157-164.
11. Соловьёв ЯА, Пилипенко ВА. Влияние температуры быстрой термической обработки на электрофизические свойства пленок никеля на кремнии. *Доклады БГУИР*. 2020;18(1):81–88. DOI: 10.35596/1729-7648-2020-18-1-81-88.
12. Солодуха ВА, Пилипенко ВА, Комаров ФФ, Горушко ВА. Влияние временных режимов термообработки на микроструктуру системы Pt – Si. *Доклады БГУИР*. 2020;18(2):105–111. DOI: 10.35596/1729-7648-2020-18-2-105-111.
13. Пилипенко ВА, Комаров ФФ, Солодуха ВА, Горушко ВА. Структурно-фазовые переходы в системе Pt – Si при быстрой термообработке. *Доклады Национальной академии наук Беларуси*. 2020;64(2):238–244. DOI: 10.29235/1561-8323-2020-64-2-238-244.
14. Солодуха ВА, Пилипенко ВА, Комаров ФФ, Горушко ВА. Электронно-микроскопические исследования системы Pt – Si при ее быстрой термообработке. *Доклады БГУИР*. 2020;18(3):88–96. DOI: 10.35596/1729-7648-2020-18-3-88-96.
15. Соловьёв ЯА, Пилипенко ВА, Гайдук ПИ. Структура и морфология слоев CrSi₂, сформированных при быстрой термообработке. *Доклады БГУИР*. 2020;18(4):71–79. DOI: 10.35596/1729-7648-2020-18-4-71-79.
16. Соловьёв ЯА, Пилипенко ВА, Гайдук ПИ. Формирование дисилицида хрома при быстрой термической обработке в режиме теплового баланса. *Известия Гомельского государственного университета имени Ф. Скорины*. 2020;3:179–185.
17. Пилипенко ВА, Соловьёв ЯА, Гайдук ПИ. Формирование силицида никеля быстрой термообработкой в режиме теплового баланса. *Доклады Национальной академии наук Беларуси*. 2021;65(1):111–118. DOI: 0.29235/1561-8323-2021-65-1-111-118.
18. Kuznetsova T, Lapitskaya V, Solovjov Ja, Chizhik S, Pilipenko V, Aizikovich S. Properties of CrSi₂ layers obtained by rapid heat treatment of Cr film on silicon. *Nanomaterials*. 2021;11(7):1734. DOI: 10.3390/nano11071734.
19. Достанко АП, Аваков СМ, Голосов ДА, Емельянов ВВ, Завадский СМ, Колос ВВ и др. *Инновационные технологии и оборудование субмикронной электроники*. Достанко АП, редактор. Минск: Беларуская навука; 2020. 260 с.
20. Пилипенко ВА, Солодуха ВА, Ковальчук НС, Соловьёв ЯА, Шестовский ДВ, Жигулин ДВ. Влияние термической нагрузки при формировании контактов Al – Al на электрические параметры интегральных микросхем с контактами Al – поликремний. *Доклады БГУИР*. 2022;20(7):20–27. DOI: 10.35596/1729-7648-2022-20-7-20-27.

References

1. Pilipenko VA. *Bystrye obrabotki v tekhnologii SBIS* [Rapid thermal treatments in VLSI technology]. Minsk: Publishing Center of the Belarusian State University; 2004. 531 p. Russian.
2. Poate JM, Tu KN, Mayer JW, editors. *Thin films: interdiffusion and reactions*. New York: John Wiley and Sons; 1978. X, 578 p. Russian edition: Poate J, Tu K, Mayer J, editors. *Tonkie plenki: vzaimnaya diffuziya i reaktsii*. Moscow: Mir; 1982. 576 p.
3. Mogab C, Frazer D, Fichtner W, Parrillo L, Marcus R, Steidel C, et al. *Tekhnologiya SBIS. Kniga 2* [VLSI technology. Book 2]. Sze C, editor. Moscow: Mir; 1986. 453 p. Russian.
4. Solodukha VA, Pilipenko VA, Gorushko VA. Rapid thermal treatment modes of the Pt – Si system for formation of platinum silicide. *Doklady BGUIR*. 2018;8:88–92. Russian.
5. Solodukha VA, Pilipenko VA, Gorushko VA, Filipenyva VA. The impact of formation modes of platinum silicide by the quick heat treatment on Schottky diodes parameters. *Doklady BGUIR*. 2019;1:62–67. Russian.
6. Anishchik VM, Harushka VA, Pilipenko UA, Poniariadov VV, Saladukha VA. Conductivity of platinum silicide films formed with application of rapid thermal treatment. *Journal of the Belarusian State University. Physics*. 2019;1:27–31. Russian.
7. Belyaev AE, Boltovets NS, Klad'ko VP, Safryuk-Romanenko NV, Lubchenko AI, Sheremet VN, et al. Features of the temperature dependence of the specific contact resistance of diffusion silicon structures Au – Ti – Pd – n⁺ – n-Si. *Fizika i tekhnika poluprovodnikov*. 2019;53(4):485–492. Russian. DOI: 10.21883/FTP.2019.04.47445.9012.
8. Solodukha VA, Pilipenko VA, Gorushko VA, Komarov FF, Milchanin OV. Formation of platinum silicide layers during the rapid thermal processing of the platinum – silicon system: structural-phase changes. *High Temperature Material Processes*. 2019;23(3):195–208. DOI: 10.1615/HighTempMatProc.v23.i3.10.
9. Solodukha VA, Pilipenko VA, Gorushko VA, Kupchishin AN, Komarov FF, Milchanin OV. Formation of platinum silicide during rapid thermal processing of the platinum – silicon system: microstructure and electrophysical characteristics. *High Temperature Material Processes*. 2019;23(3):255–273. DOI: 10.1615/HighTempMatProc.2019031214.
10. Solovjov JaA, Pilipenko VA. Effect of rapid thermal treatment conditions on electrophysical properties of chromium thin films on silicon. *Doklady BGUIR*. 2019;7–8:157–164. Russian. DOI: 10.35596/1729-7648-2019-126-8-157-164.
11. Solovjov JaA, Pilipenko VA. Effect of rapid thermal treatment temperature on electrophysical properties of nickel films on silicon. *Doklady BGUIR*. 2020;18(1):81–88. Russian. DOI: 10.35596/1729-7648-2020-18-1-81-88.
12. Saladukha VA, Pilipenko VA, Komarov FF, Gorushko VA. Influence of time modes of thermal treatment on Pt – Si system microstructure. *Doklady BGUIR*. 2020;18(2):105–111. Russian. DOI: 10.35596/1729-7648-2020-18-2-105-111.

13. Pilipenka UA, Komarov FF, Saladukha VA, Harushka VA. Structural-phase junctions in the system of Pt – Si during rapid thermal treatment. *Doklady of the National Academy of Sciences of Belarus*. 2020;64(2):238–244. Russian. DOI: 10.29235/1561-8323-2020-64-2-238-244.
14. Saladukha VA, Pilipenko VA, Komarov FF, Gorushko VA. Electron-microscope investigations of the Pt – Si system during its rapid thermal treatment. *Doklady BGUIR*. 2020;18(3):88–96. Russian. DOI: 10.35596/1729-7648-2020-18-3-88-96.
15. Solovjov JaA, Pilipenko VA, Gaiduk PI. Structure and morphology of CrSi₂ layers formed by rapid thermal treatment. *Doklady BGUIR*. 2020;18(4):71–79. Russian. DOI: 10.35596/1729-7648-2020-18-4-71-79.
16. Solovjov JaA, Pilipenko VA, Gaiduk PI. Chromium disilicide formation during rapid thermal treatment in thermal balance regime. *Proceedings of Francisk Skorina Gomel State University*. 2020;3:179–185. Russian.
17. Pilipenko VA, Solovjov JaA, Gaiduk PI. Nickel silicide formation with rapid thermal treatment in the heat balance mode. *Doklady of the National Academy of Sciences of Belarus*. 2021;65(1):111–118. Russian. DOI: 0.29235/1561-8323-2021-65-1-111-118.
18. Kuznetsova T, Lapitskaya V, Solovjov Ja, Chizhik S, Pilipenko V, Aizikovich S. Properties of CrSi₂ layers obtained by rapid heat treatment of Cr film on silicon. *Nanomaterials*. 2021;11(7):1734. DOI: 10.3390/nano11071734.
19. Dostanko AP, Avakov SM, Golosov DA, Emel'yanov VV, Zavadskii SM, Kolos VV, et al. *Innovatsionnye tekhnologii i oborudovanie submikronnoi elektroniki* [Innovative technologies and equipment of submicron electronics]. Dostanko AP, editor. Minsk: Belaruskaja navuka; 2020. 260 p. Russian.
20. Pilipenko VA, Solodukha VA, Kovalchuk NS, Solovjov JaA, Shestovski DV, Zhyhulin DV. Thermal load influence during the formation of Al – Al contacts on the electrical parameters of the integrated circuits with aluminum – polysilicon contacts. *Doklady BGUIR*. 2022;20(7):20–27. Russian. DOI: 10.35596/1729-7648-2022-20-7-20-27.

Получена 19.04.2023 / исправлена 10.05.2023 / принята 11.05.2023.
Received 19.04.2023 / revised 10.05.2023 / accepted 11.05.2023.

Авторы:

Владимир Александрович Пилипенко – член-корреспондент НАН Беларуси, доктор технических наук, профессор; заместитель директора по научному развитию государственного центра «Белмикроанализ» филиала НТЦ «Белмикросистемы»¹⁾, профессор кафедры физики полупроводников и нанoeлектроники физического факультета²⁾.

Наталья Станиславовна Ковальчук – кандидат технических наук, доцент; заместитель генерального директора, главный инженер.

Дмитрий Владимирович Жигулин – начальник сектора физико-технического анализа государственного центра «Белмикроанализ» филиала НТЦ «Белмикросистемы».

Дмитрий Викторович Шестовский – инженер-технолог отдела перспективных технологических процессов.

Виктор Михайлович Анищик – доктор физико-математических наук, профессор; профессор кафедры физики твердого тела и нанотехнологий физического факультета.

Владимир Васильевич Понарядов – кандидат физико-математических наук, доцент; заведующий учебной лабораторией кафедры физики твердого тела и нанотехнологий физического факультета.

Authors:

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»^a, and professor at the department of semiconductor physics and nanoelectronics, faculty of physics^b.

office@bms.by

Natalya S. Kovalchuk, PhD (engineering), docent; deputy general director and chief engineer.

Dmitry V. Zhyhulin, head of the sector of physical and technical analysis, state center «Belmicroanalysis», branch STC «Belmicrosystems».

zhygulin@mail.ru

Dmitry V. Shestovski, engineer-technologist at the department of advanced technological processes.

dshestovski@integral.by

<https://orcid.org/0000-0002-4259-3276>

Victor M. Anishchik, doctor of science (physics and mathematics), full professor; professor at the department of solid state physics and nanotechnologies, faculty of physics.

Vladimir V. Poniariadov, PhD (physics and mathematics), docent; head of the training laboratory, department of solid state physics and nanotechnologies, faculty of physics.

ponariadov@bsu.by

УДК 54.057+542.973+544.526.2+535.243.2

ОДНОСТАДИЙНЫЙ ТЕМПЛАТНЫЙ ЗОЛЬ-ГЕЛЬ СИНТЕЗ ТОНКОПЛЕНОЧНЫХ ФОТОКАТАЛИЗАТОРОВ НА ОСНОВЕ TiO_2

М. А. ЕВСЕЙЧИК¹⁾, С. Е. МАКСИМОВ¹⁾,
Л. С. ХОРОШКО^{1), 2)}, А. В. БАГЛОВ^{1), 2)}, О. В. КОРОЛИК²⁾,
Д. В. ЯКИМЧУК³⁾, О. Н. РУЗИМУРАДОВ⁴⁾, Ш. И. МАМАТКУЛОВ⁵⁾

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

²⁾Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

³⁾Научно-практический центр НАН Беларуси по материаловедению,
ул. П. Бровки, 19, 220072, г. Минск, Беларусь

⁴⁾Туринский политехнический университет в городе Ташкенте,
ул. Кичик Халка Йули, 17, 100095, г. Ташкент, Узбекистан

⁵⁾Институт материаловедения НПО «Физика-Солнце»
Академии наук Республики Узбекистан,
ул. Бодомзор Йули, 2б, 100084, г. Ташкент, Узбекистан

Из суспензий на основе бескислотного золя, образующего диоксид титана (TiO_2), и тиокарбамида в различной концентрации получены тонкопленочные покрытия TiO_2 на монокристаллическом кремнии. Исследованы морфология, фазовый состав и фотокаталитические свойства сформированных пленок. Методом спектроскопии

Образец цитирования:

Евсейчик МА, Максимов СЕ, Хорошко ЛС, Баглов АВ, Королик ОВ, Якимчук ДВ, Рuzимуратов ОН, Маматкулов ШИ. Одностадийный темплатный золь-гель синтез тонкопленочных фотокатализаторов на основе TiO_2 . Журнал Белорусского государственного университета. Физика. 2023;2:58–65. <https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-58-65>

For citation:

Yauseichyk MA, Maksimov SE, Khoroshko LS, Baglov AV, Korolik OV, Yakimchuk DV, Ruzimuradov ON, Mamatkulov ShI. One-step template sol-gel synthesis of TiO_2 -based thin-film photocatalysts. Journal of the Belarusian State University. Physics. 2023;2:58–65. Russian. <https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-58-65>

Авторы:

Мария Александровна Евсейчик – ассистент кафедры физики факультета компьютерных систем и сетей.

Сергей Евгеньевич Максимов – техник Центра наноэлектроники и новых материалов.

Людмила Сергеевна Хорошко – кандидат физико-математических наук, доцент; доцент кафедры микро- и наноэлектроники факультета радиотехники и электроники¹⁾, ведущий научный сотрудник научно-исследовательской лаборатории энергоэффективных материалов и технологий физического факультета²⁾.

Алексей Викторович Баглов – научный сотрудник Центра наноэлектроники и новых материалов¹⁾, научный сотрудник научно-исследовательской лаборатории энергоэффективных материалов и технологий физического факультета²⁾.

Ольга Васильевна Королик – кандидат физико-математических наук; заведующий научно-исследовательской лабораторией энергоэффективных материалов и технологий физического факультета.

Дмитрий Владимирович Якимчук – кандидат физико-математических наук, доцент; старший научный сотрудник отдела криогенных исследований.

Олим Нарбекович Рuzимуратов – доктор химических наук; профессор кафедры естественно-математических наук.

Шавкат Исраилович Маматкулов – кандидат физико-математических наук; заведующий лабораторией многофункциональных материалов.

Authors:

Maryia A. Yauseichyk, assistant at the department of physics, faculty of computer systems and networks.

m.yauseichyk@gmail.com

Sergey E. Maksimov, technician at the Center of nanoelectronics and advanced materials.

maksimov914@gmail.com

Liudmila S. Khoroshko, PhD (physics and mathematics), docent; associate professor at the department of micro- and nanoelectronics, faculty of radioengineering and electronics^a, and leading researcher at the laboratory of energy efficient materials and technologies, faculty of physics^b.

l.s.khoroshko@yandex.by

Aleksey V. Baglov, researcher at the Center of nanoelectronics and advanced materials^a and researcher at the laboratory of energy efficient materials and technologies, faculty of physics^b.

baglov@bsu.by

Olga V. Korolik, PhD (physics and mathematics); head of the laboratory of energy efficient materials and technologies, faculty of physics.

olga_zinchuk@tut.by

Dmitry V. Yakimchuk, PhD (physics and mathematics), docent; senior researcher at the department of cryogenic research.

dim2yakim@gmail.com

Olim N. Ruzimuradov, doctor of science (chemistry); professor at the department of natural-mathematical science.

o.ruzimuradov@new.polito.uz

Shavkat I. Mamatkulov, PhD (physics and mathematics); head of the laboratory of multifunctional materials.

sh.mamatkulov@imssolar.uz

комбинационного рассеяния света установлено формирование смеси фаз анатаза и рутила в пленке TiO_2 , причем при повышении температуры отжига структур $\text{TiO}_2 - \text{Si}$ с 550 до 850 °С доля рутила увеличивается. Зарегистрирована фотокаталитическая активность полученных структур в отношении тестового органического загрязнителя – красителя родамина Б. Отмечено, что при облучении водных растворов родамина Б УФ-излучением (длина волны 365 нм) в присутствии созданных пленочных структур на протяжении 60 мин наблюдается обесцвечивание до 48 % красителя относительно его исходной концентрации. Наилучший результат показывает пленка TiO_2 , сформированная из суспензии с максимальной концентрацией тиокарбамида (96 мг/мл) при температуре отжига 850 °С. Обсуждены перспективы использования полученных тонкопленочных покрытий в системах очистки воды от органических загрязнений.

Ключевые слова: золь-гель синтез; темплатный метод; диоксид титана; фотокатализ; рутил; анатаз; тиокарбамид.

Благодарность. Работа выполнена при финансовой поддержке Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований (проект Ф21УЗБГ-002).

ONE-STEP TEMPLATE SOL-GEL SYNTHESIS OF TiO_2 -BASED THIN-FILM PHOTOCATALYSTS

M. A. YAUSEICHYK^a, S. E. MAKSIMOV^a,
L. S. KHOROSHKO^{a,b}, A. V. BAGLOV^{a,b}, O. V. KOROLIK^b,
D. V. YAKIMCHUK^c, O. N. RUZIMURADOV^d, Sh. I. MAMATKULOV^e

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

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

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

^dTurin Polytechnic University in Tashkent, 17 Kichik Halqa Yo'li Street, Tashkent 100095, Uzbekistan

^eInstitute of Material Science, SPA «Physics-Sun», Academy of Sciences of the Republic of Uzbekistan,
2b Bodomzor Yo'li Street, Tashkent 100084, Uzbekistan

Corresponding author: A. V. Baglov (baglov@bsu.by)

Thin-film coatings of TiO_2 on monocrystalline silicon wafers were obtained from suspensions based on acid-free titanium dioxide producing sol and thiocarbamide in various concentrations. The morphology, phase composition and photocatalytic properties of the fabricated films have been investigated. Formation of a mixture of anatase and rutile phases in a TiO_2 film was revealed by the Raman spectroscopy, with the proportion of rutile increasing with an increase in the annealing temperature of the $\text{TiO}_2 - \text{Si}$ structures from 550 to 850 °C. The photocatalytic activity of the obtained structures with respect to the test organic pollutant, the Rhodamine B dye, was established. When aqueous solutions of Rhodamine B are irradiated with UV light (wavelength 365 nm) in the presence of fabricated film structures for 60 min, up to 48 % destruction of the dye is observed relative to its initial concentration. Moreover, the best result is shown by the TiO_2 film formed from a suspension with the maximum concentration of thiocarbamide (96 mg/mL) at annealing temperature of 850 °C. Prospects of the obtained thin-film coatings for the purification of water from organic pollutants are discussed.

Keywords: sol-gel synthesis; template method; titanium dioxide; photocatalysis; rutile; anatase; thiocarbamide.

Acknowledgements. The work was carried with financial support by the Belarusian Republican Foundation for Fundamental Research (project F21UZBG-002).

Введение

Очистка воды от органических загрязнений путем их разложения на безопасные соединения в течение многих лет удерживает интерес исследователей по всему миру. Использование фотокатализаторов (особенно при активации их УФ-излучением) для решения данной задачи имеет ряд преимуществ перед другими методами, среди которых – отсутствие расхода реагентов, высокая эффективность разложения широкого ряда органических соединений, одновременная антибактериальная обработка растворов в отношении санитарно значимых микроорганизмов и т. д. [1–3]. В химической технологии при работе с жидкими и газообразными реагентами обычно используют катализаторы в дисперсном виде, так как

в этом случае в большей степени задействуется поверхность каталитических частиц, что повышает эффективность технологического процесса. Для очистки воды также применяются фотокатализаторы в мелкодисперсной фазе, однако их использование предполагает интенсивное перемешивание (встряхивание) реакционной смеси для обеспечения эффективного контакта поверхности фотокатализатора с молекулами загрязнителя и временные затраты на фильтрацию, центрифугирование и отстаивание очищенной жидкости для последующего удаления частиц. При использовании ультрадисперсных порошков фотокатализаторов, состоящих из наночастиц различного размера, присутствие фотокатализатора обнаруживается в уже очищенной с его помощью воде, что негативно сказывается на ее качестве и отрицательно влияет на состояние окружающей среды [4]. Применение дисперсных материалов для фотокаталитической очистки воздуха также является сложной, а в некоторых случаях и невозможной задачей, требующей дополнительных мер по обеспечению очистки воздуха от частиц фотокатализатора. Данная проблема может быть решена при использовании иммобилизованных на определенной подложке фотокатализаторов, которые позволяют значительно упростить цикл фотокаталитической очистки воды за счет исключения процедуры фильтрации реакционной смеси.

Получение фотокатализаторов в виде объемных (керамических) материалов открывает возможности синтеза сложных композитов, например, твердофазным методом, золь-гель методом, методом спрей-пиролиза и др. В то же время практически все современные методы синтеза, в частности золь-гель метод, делают возможным формирование наноструктурированных композитных пленок с развитой поверхностью. Преимуществами пленочных фотокаталитически активных покрытий на подложках являются их мобильность, простота использования и восстановления (очистки при необходимости) и возможность контроля свойств пленки, в том числе путем выбора материалов для ее синтеза и конфигурации поверхности подложки.

Многообразие физико-химических методов синтеза, использование микро- и наноструктурированных подложек и комбинирование различных материалов в едином цикле синтеза позволяют получать пленочные фотокатализаторы, эффективность разложения тестовых загрязнителей для которых сопоставима с таковой для порошковых материалов [5; 6]. Еще одно важное преимущество иммобилизованных фотокатализаторов – возможность организации как проточной системы очистки воды или воздуха, так и системы с замкнутым циклом [7–9].

Одним из самых активно исследуемых в течение многих десятилетий нетоксичных фотокатализаторов, активируемых УФ-излучением, является диоксид титана (TiO_2). Синтезируемый золь-гель методом на различных подложках, включая кремний, пористый анодный оксид алюминия, стекла и металлические фольги, он демонстрирует высокую фотокаталитическую активность во всех случаях [10; 11]. Преимуществами золь-гель синтеза диоксида титана являются относительная простота лабораторной технологии с возможностью масштабирования, контроль состава конечного материала на этапе синтеза золь, формирование как сплошных, так и островковых покрытий на различных подложках, а также возможность одностадийного синтеза гетероструктур и материалов с высокими значениями удельной поверхности за счет добавления темплатного агента (полимера, органического соединения), который ввиду более низких, чем температура формирования основной фазы, температур горения и испарения формирует в готовых пленках пустоты, полости и макроскопическую зернистую структуру [12–14].

Целью данной работы являются синтез, исследование и анализ фазового состава и фотокаталитических свойств пленок TiO_2 , полученных на подложках монокристаллического кремния из суспензий на основе бескислотного золя, образующего диоксид титана, и тиокарбамида в различной концентрации.

Материалы и методы исследования

Для получения фотокаталитически активных пленок TiO_2 применяли модификацию классического золь-гель синтеза – темплатный золь-гель синтез. В этом варианте предполагается возможность полного термического разложения так называемого жертвенного темплата. В качестве темплатного материала использовали тиокарбамид ($\text{CS}(\text{NH}_2)_2$) чистотой 97,5 % (ГОСТ 6344–73), который растворяли в бескислотном золе – предшественнике диоксида титана, полученном на основе этанола, бутанола-1, ацетилацетона, тетраизопропоксида титана ($\text{Ti}\{\text{OCH}(\text{CH}_3)_2\}_4$) чистотой 99,99 % (*Sigma Aldrich*, США) и воды, как подробно описано в работе [6]. Вследствие умеренной растворимости тиокарбамида в воде и спиртах, образующих дисперсионную среду золя-основы, наблюдалась его перекристаллизация при растворении, что в конечном итоге приводило к формированию суспензии. Ее гомогенность обеспечивали путем перемешивания в течение 150 мин со скоростью 850 об/мин на лабораторном встряхивателе ИКА Vortex 4 digital (*IKA-Werke*, Германия) с орбитальной траекторией встряхивания (диаметр орбиты 4,5 мм). Суспензии содержали различное количество темплата (см. таблицу). Пленки формировали на подложках размером 20×20 мм, вырезанных из пластин монокристаллического кремния

марки 100 ЭКЭС 0,01(100)-460 (ТУ РБ 200181967.026–2002), окунанием в 1 мл суспензии. После извлечения образец сушили на воздухе при температуре 60 °С. Затем процедуру повторяли еще один раз, формируя таким образом двухслойное покрытие ксерогеля с включением темплата. Далее подложки с нанесенными пленками отжигали на воздухе при температуре 550 и 850 °С в течение 60 мин (см. таблицу).

Маркировка и описание образцов
Marking and description of samples

Маркировка образца	Содержание тиокарбамида в суспензии, г/мл	Температура отжига, °С
1	0,012	550
2	0,048	
3	0,096	
4	0,012	850
5	0,048	
6	0,096	

Исследование фазового состава пленок TiO_2 проводили методом спектроскопии комбинационного рассеяния света (КРС), что обусловлено малой толщиной формируемого покрытия и ожидаемым интенсивным сигналом от монокристаллического кремния при исследовании стандартным методом дифракции рентгеновских лучей. Спектры КРС регистрировали при комнатной температуре с помощью конфокального спектрометра Nanofinder High End (*LOTIS III*, Беларусь – Япония). Для возбуждения сигнала использовали твердотельный лазер (длина волны 532 нм, мощность 20 мВт). Излучение лазера фокусировали на поверхности образца объективом с увеличением $\times 100$ (числовая апертура 0,95), что определяло размер области возбуждения ~ 1 мкм в диаметре. Мощность лазерного излучения, как правило, ослабляли до 2 мВт во избежание теплового повреждения образца. Отраженный свет диспергировался дифракционной решеткой, содержащей 600 штрихов на 1 мм, что позволяло получать спектральное разрешение не хуже 3 см^{-1} . Поляризатор в канале регистрации не устанавливали. Спектральную калибровку осуществляли по линиям излучения газоразрядной лампы, обеспечиваемая точность была не хуже 3 см^{-1} . Время накопления сигнала составляло 10 с. В качестве фотоприемника использовали охлаждаемую кремниевую ССD-матрицу. Режим возбуждения выбирали исходя из необходимости нивелирования люминесцентного сигнала присутствующих в пленках углеродных остатков, обусловленных разложением темплата.

Исследование фотокаталитической активности сформированных пленок TiO_2 проводили в отношении тестового органического загрязнителя – красителя родамина Б (в водном растворе с исходной концентрацией 10 мг/л). Экспонирование раствора с образцами TiO_2 – Si осуществляли излучением ртутной УФ-лампы (длина волны 365 нм, мощность 8 Вт). Перед экспонированием образцы 30 мин выдерживали в темноте до установления адсорбционного равновесия. Процент разложения красителя оценивали по изменению интенсивности максимума поглощения красителя в растворе по сравнению с таковой в исходном растворе. Спектры пропускания регистрировали при комнатной температуре в диапазоне длин волн 400–700 нм с шагом сканирования 1 нм на спектрофотометре Proscan MC 122 (*SOL Instruments*, Беларусь).

Результаты и их обсуждение

Пленки TiO_2 , сформированные на монокристаллическом кремнии, характеризуются развитой текстурой поверхности с квазиравномерной макрозернистостью и типичным размером однородных областей (до 50 мкм) (рис. 1). Такой островковый характер покрытия является отличительной чертой темплатного синтеза, он особенно актуален для фотокаталитических покрытий, так как значительно влияет на микроциркуляцию жидкости и повышает эффективность очистки [15]. Формирование подобной морфологии пленок может быть связано со слабой растворимостью прекурсора – тиокарбамида – в растворителях, используемых в золе, а также его стабильностью, что тем не менее не препятствует хорошей смачиваемости и получению визуально однородных пленкообразующих дисперсий.

Спектры КРС синтезированных пленок TiO_2 , нормированные по самому интенсивному пику, приведены на рис. 2 (маркировка образцов соответствует таблице). Для всех образцов наблюдается характерный набор пиков, подтверждающих формирование фаз анатаза и рутила в пленках (обозначены как А и R соответственно), однако ввиду близкого расположения основных линий анатаза и рутила ($145,6$ и $143,9 \text{ см}^{-1}$ соответственно) идентификация основного пика (обозначен как А/Р*) представляется затруднительной из-за недостаточной разрешающей способности прибора в выбранной для исследования

конфигурации [16]. Тем не менее наличие пиков 446,1 и 610,1 см^{-1} позволяет надежно идентифицировать образование фазы рутила, а рост интенсивности указанных пиков свидетельствует об ожидаемом увеличении процента его содержания в пленке TiO_2 после отжига при температуре 850 °С. Косвенно это подтверждается уменьшением интенсивности пика $\sim 145 \text{ см}^{-1}$, так как эта линия ярко выражена для анатаза и в значительно меньшей степени – для рутила [16].

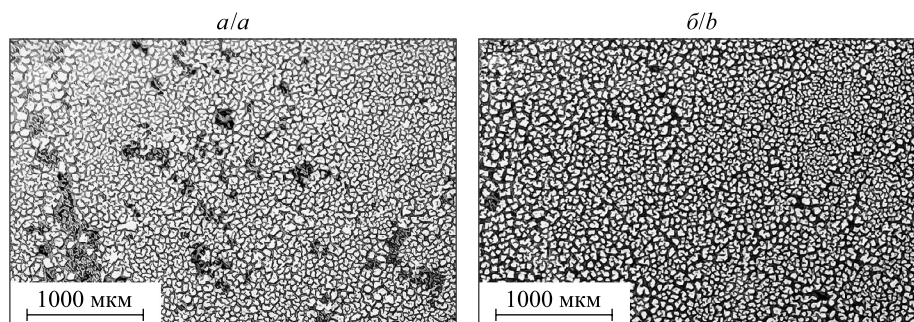


Рис. 1. Поверхности пленок на образцах 3 и 6, сформированных из суспензий с максимальной концентрацией тиокарбамида

Fig. 1. Images of the surfaces of samples 3 and 6 formed from suspensions with a highest concentration of thioicarbamide

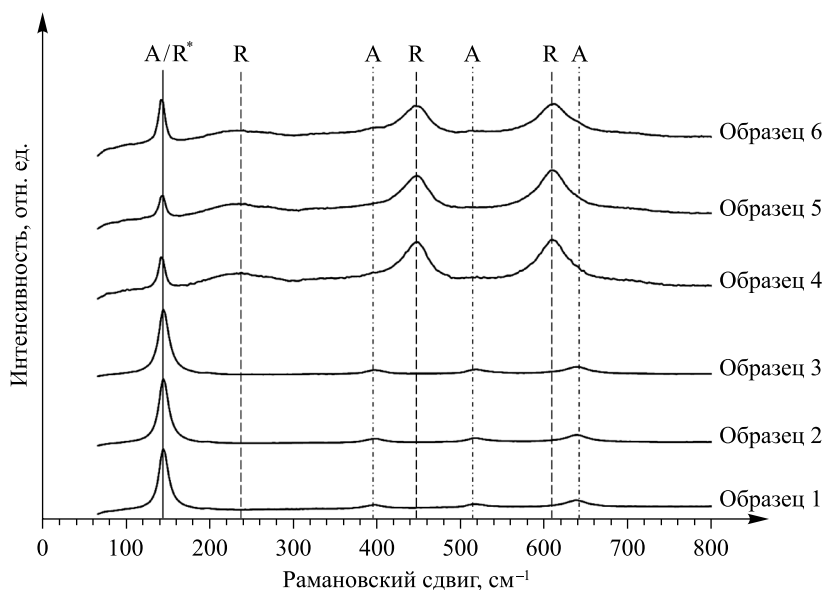


Рис. 2. Спектры КРС пленок TiO_2 на монокристаллическом кремнии после отжига при температуре 550 °С (образцы 1–3) и 850 °С (образцы 4–6)

Fig. 2. Raman spectra of TiO_2 films on monocrystalline silicon after annealing at temperature of 550 °С (samples 1–3) and 850 °С (samples 4–6)

Обобщая анализ спектров КРС, можно утверждать, что при температуре отжига 550 °С вне зависимости от концентрации темплата формируется покрытие, состоящее преимущественно из анатаза с небольшой примесью рутила, а повышение температуры отжига до 850 °С приводит к значительному росту концентрации рутила в пленке.

Идентификацию углеродной фазы в рамках данного эксперимента не проводили, поскольку физико-химические процессы термического разложения тиокарбамида предполагают его полное разрушение, а получаемый из него пиролизическим разложением графитоподобный нитрид углерода ($g\text{-C}_3\text{N}_4$) начинает ускоренно разлагаться уже при температуре 560 °С вплоть до полной деструкции при температуре 750–760 °С [17]. Во всех зарегистрированных спектрах КРС для отожженных при температуре 550 °С образцов характерные для $g\text{-C}_3\text{N}_4$ (включая разупорядоченный $g\text{-C}_3\text{N}_4$) линии не выявлены [18]. Отсутствие сигнала графитоподобного нитрида углерода требует дополнительных исследований химических превращений в системе $\text{CS}(\text{NH}_2)_2 - \text{TiO}_2$ для установления возможного катализирующего влияния фазы анатаза на разрушение $g\text{-C}_3\text{N}_4$ при температуре выше 450 °С.

Исследование фотокаталитической деструкции органического красителя родамина Б в водном растворе при экспонировании УФ-излучением в присутствии образцов $\text{TiO}_2 - \text{Si}$ показывает эффективность разложения, сопоставимую с таковой для тонкопленочных образцов, полученных из тех же золей без модификации, а также гетероструктур $\text{TiO}_2 - g\text{-C}_3\text{N}_4$ [19].

Для пленок TiO_2 , синтезированных при температуре отжига 550°C , характерна более активная темновая адсорбция (рис. 3, а), при этом после деструкции сорбированного красителя разложение замедляется. Для пленок TiO_2 , синтезированных при температуре отжига 850°C , темновая адсорбция выражена меньше, но разложение идет лучше благодаря образованию смеси фаз, в том числе за счет более активной абсорбции УФ-излучения рутилом. Дополнительным фактором повышения эффективности разложения красителя является выраженная гидрофобность рутила, которая придает поверхности материала свойства самоочистки, что для водных растворов выражается в повышении процента разложения красителя и наблюдаемом изменении характера кривой фотокаталитической деструкции [20; 21]. Стоит отметить, что для всех пленок зафиксировано повышение фотокаталитической активности при увеличении концентрации тиокарбамида, причем для пленок, синтезированных при температуре 850°C , данная зависимость выражена сильнее. Авторы полагают, что это может быть связано с формированием развитой поверхности пленки TiO_2 в процессе удаления газообразных продуктов термической декомпозиции тиокарбамида из ксерогеля в процессе отжига. Косвенно это подтверждает анализ темновой адсорбции: увеличение концентрации тиокарбамида в ксерогелях с последующим отжигом при температуре 850°C приводит к увеличению темновой адсорбции красителя. В случае отжига при температуре 550°C наблюдается обратная ситуация, которая может быть объяснена меньшей скоростью газоотделения и, соответственно, менее развитой поверхностью.

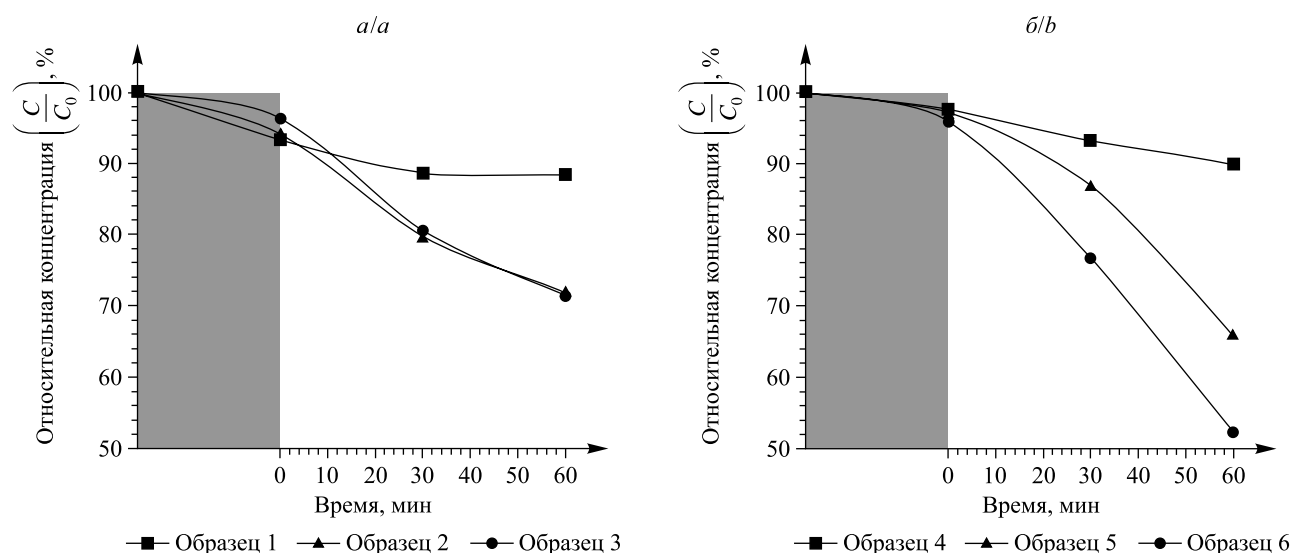


Рис. 3. Кинетика разложения родамина Б в водном растворе при экспонировании УФ-излучением (длина волны 365 нм) в присутствии образцов $\text{TiO}_2 - \text{Si}$, сформированных отжигом при температуре 550°C (а) и 850°C (б).

Область темновой выдержки (30 мин) отмечена серой заливкой

Fig. 3. Kinetic of photocatalytic destruction of Rhodamine B in the aqueous solution under the UV irradiation (wavelength 365 nm) in the presence of the $\text{TiO}_2 - \text{Si}$ samples fabricated by annealing at temperature of 550°C (a) and 850°C (b). The dark exposure area (30 min) is marked with a gray fill

Заклучение

Из суспензий на основе бескислотного золя – предшественника TiO_2 и тиокарбамида, используемого в качестве агента для темплатного синтеза, получены пленочные фотокатализаторы на монокристаллическом кремнии, обладающие развитым макроскопическим рельефом поверхности. Как показал анализ спектров КРС, повышение температуры отжига ксерогелей TiO_2 с 550 до 850°C способствует увеличению содержания фазы рутила в готовых пленках, а также понижению температуры деструкции образующегося в системе $\text{CS}(\text{NH}_2)_2 - \text{TiO}_2$ графитоподобного нитрида углерода, что может быть связано с каталитическим эффектом присутствующего анатаза. Все полученные структуры $\text{TiO}_2 - \text{Si}$ демонстрируют фотокаталитическую активность в отношении тестового органического загрязнителя – красителя

родамина Б (в водном растворе при активации УФ-излучением). При увеличении количества тиокарбамида в суспензии для пленок, отожженных при температуре 550 °С, наблюдается рост фотокаталитической активности, однако дальнейшее повышение эффективности разложения тестового загрязнителя достигается с увеличением температуры отжига до 850 °С. При этом высокотемпературная обработка также снижает на 5 % темновую адсорбцию для пленок, полученных из суспензий с одинаковым содержанием тиокарбамида. Максимальная деструкция красителя (48 %) отмечена в присутствии пленки, полученной из суспензии с содержанием тиокарбамида 0,096 г/мл, после отжига при температуре 850 °С, что обусловлено как формированием развитого рельефа за счет сжигания темплата, так и оптимальным для данных условий соотношением фаз анатаза и рутила в пленке TiO₂. Представленные результаты показывают перспективность развития технологий темплатного синтеза для получения эффективных тонкопленочных фотокатализаторов. Использование исследованных тонких пленок перспективно в системах фотокаталитической очистки воды и воздуха от органических загрязнений и патогенных микроорганизмов.

Библиографические ссылки

1. Tekin D, Birhan D, Kiziltas H. Thermal, photocatalytic, and antibacterial properties of calcinated nano-TiO₂/polymer composites. *Materials Chemistry and Physics*. 2020;251:123067. DOI: 10.1016/j.matchemphys.2020.123067.
2. Pant B, Park M, Park S-J. Recent advances in TiO₂ films prepared by sol-gel methods for photocatalytic degradation of organic pollutants and antibacterial activities. *Coatings*. 2019;9(10):613. DOI: 10.3390/coatings9100613.
3. Qi Kezhen, Cheng Bei, Yu Jianguo, Ho Wingkei. Review on the improvement of the photocatalytic and antibacterial activities of ZnO. *Journal of Alloys and Compounds*. 2017;727:792–820. DOI: 10.1016/j.jallcom.2017.08.142.
4. Oliveira HA, Azevedo A, Rubio J. Removal of flocculated TiO₂ nanoparticles by settling or dissolved air flotation. *Environmental Technology*. 2021;42(7):1001–1012. DOI: 10.1080/09593330.2019.1650123.
5. Khoroshko L, Borisenko V, Baltrukovich P, Nurmonov S, Ruzimuradov O. One-step sol-gel fabrication of TiO₂/(CuO + Cu₂O) photocatalysts. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*. 2022:1–5. DOI: 10.1007/s10971-022-05906-w.
6. Баглов АВ, Шевцова ТА, Хорошко ЛС, Дудчик НВ, Дроздова ЕВ, Борисенко ВЕ. Формирование иммобилизованного наноструктурированного диоксида титана, обладающего антибактериальными свойствами. *Доклады Национальной академии наук Беларуси*. 2019;63(2):157–163. DOI: 10.29235/1561-8323-2019-63-2-157-163.
7. Kang Wenda, Chen Shuo, Yu Hongtao, Xu Tengyao, Wu Shuai, Wang Xiaoting, et al. Photocatalytic ozonation of organic pollutants in wastewater using a flowing through reactor. *Journal of Hazardous Materials*. 2021;405:124277. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2020.124277.
8. Баглов АВ, Радионов АА, Чубенко ЕБ, Зайцев ВА, Борисенко ВЕ. Установка для фотокаталитической очистки воды от органических загрязнений в проточном реакторе. *Доклады БГУИР*. 2018;4:45–50.
9. Ray AK. Photocatalytic reactor configurations for water purification: experimentation and modeling. *Advances in Chemical Engineering*. 2009;36:145–184. DOI: 10.1016/S0065-2377(09)00405-0.
10. Linnik O, Smirnova N, Zhukovskiy M, Orekhovskaya T, Asharif A, Borisenko V, et al. Influence of support nature on photocatalytic activity of TiO₂ film. *Advanced Science, Engineering and Medicine*. 2013;5(4):371–376. DOI: 10.1166/asem.2013.1289.
11. Gaponenko NV, Kortov VS, Smirnova NP, Orekhovskaya TI, Nikolaenko IA, Pustovarov VA, et al. Sol-gel derived structures for optical design and photocatalytic application. *Microelectronic Engineering*. 2012;90:131–137. DOI: 10.1016/j.mee.2011.04.002.
12. Linnik OP, Zhukovskiy MA, Starukh GN, Smirnova NP, Gaponenko NV, Asharif AM, et al. Photocatalytic destruction of tetracycline hydrochloride on the surface of titanium dioxide films modified by gold nanoparticles. *Journal of Applied Spectroscopy*. 2015;81(6):990–995. DOI: 10.1007/s10812-015-0040-0.
13. Ovodok E, Maltanova H, Poznyak S, Ivanovskaya M, Kudlash A, Scharnagl N, et al. Sol-gel template synthesis of mesoporous carbon-doped TiO₂ with photocatalytic activity under visible light. *Materials Today: Proceedings*. 2018;5(9, part 2):17422–17430. DOI: 10.1016/j.matpr.2018.06.044.
14. Lalliansanga, Tiwari D, Lee S-M, Kim D-J. Photocatalytic degradation of amoxicillin and tetracycline by template synthesized nano-structured Ce³⁺@TiO₂ thin film catalyst. *Environmental Research*. 2022;210:112914. DOI: 10.1016/j.envres.2022.112914.
15. Баглов АВ, Хорошко ЛС, Яцкевич ПА. Оптимизация конфигурации двухмасштабных оксидных структур для фотокаталитических приложений. *Доклады БГУИР*. 2020;18(3):42–48. DOI: 10.35596/1729-7648-2020-18-3-42-48.
16. Li J-G, Ishigaki T, Sun X. Anatase, brookite, and rutile nanocrystals via redox reactions under mild hydrothermal conditions: phase-selective synthesis and physicochemical properties. *The Journal of Physical Chemistry C*. 2007;111(13):4969–4976. DOI: 10.1021/jp0673258.
17. Chubenko EB, Baglov AV, Gnit'ko AA, Maksimov SE, Borisenko VE, Kulak AI, et al. Structural and phase transformations in the thiourea/zinc acetate system. *Inorganic Materials*. 2022;58(2):117–123. DOI: 10.1134/S0020168522020054.
18. Wang Hui, Zhang Xiaodong, Xie Junfeng, Zhang Jiajia, Ma Piao, Pan Bica, et al. Structural distortion in graphitic-C₃N₄ realizing an efficient photoreactivity. *Nanoscale*. 2015;7(12):5152–5156. DOI: 10.1039/C4NR07645A.
19. Евсейчик МА, Максимов СЕ, Хорошко ЛС, Королик ОВ, Якимчук ДВ. Синтез и свойства тонкопленочных гетероструктур TiO₂/g-C₃N₄ [CD-ROM]. Федосюк ВМ, редактор. *Актуальные проблемы физики твердого тела. Сборник докладов X Международной научной конференции; 22–26 мая 2023 г.; Минск, Беларусь = Actual problems of solid state physics. Proceedings book of the X International scientific conference; 2023 May 22–26; Minsk, Belarus*. Минск: А. Н. Варахсин; 2023. с. 638–641. 1 CD-ROM: 4 3/4 in.
20. Banerjee S, Dionysiou DD, Pillai SC. Self-cleaning applications of TiO₂ by photo-induced hydrophilicity and photocatalysis. *Applied Catalysis B: Environmental*. 2015;176–177:396–428. DOI: 10.1016/j.apcatb.2015.03.058.
21. Shamsudin S, Ahmad MK, Aziz AN, Fakhriah R, Mohamad F, Ahmad N, et al. Hydrophobic rutile phase TiO₂ nanostructure and its properties for self-cleaning application. *AIP Conference Proceedings*. 2017;1883:020030. DOI: 10.1063/1.5002048.

References

1. Tekin D, Birhan D, Kiziltas H. Thermal, photocatalytic, and antibacterial properties of calcinated nano-TiO₂/polymer composites. *Materials Chemistry and Physics*. 2020;251:123067. DOI: 10.1016/j.matchemphys.2020.123067.
2. Pant B, Park M, Park S-J. Recent advances in TiO₂ films prepared by sol-gel methods for photocatalytic degradation of organic pollutants and antibacterial activities. *Coatings*. 2019;9(10):613. DOI: 10.3390/coatings9100613.
3. Qi Kezhen, Cheng Bei, Yu Jianguo, Ho Wingkei. Review on the improvement of the photocatalytic and antibacterial activities of ZnO. *Journal of Alloys and Compounds*. 2017;727:792–820. DOI: 10.1016/j.jallcom.2017.08.142.
4. Oliveira HA, Azevedo A, Rubio J. Removal of flocculated TiO₂ nanoparticles by settling or dissolved air flotation. *Environmental Technology*. 2021;42(7):1001–1012. DOI: 10.1080/09593330.2019.1650123.
5. Khoroshko L, Borisenko V, Baltrukovich P, Nurmonov S, Ruzimuradov O. One-step sol-gel fabrication of TiO₂/(CuO + Cu₂O) photocatalysts. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*. 2022:1–5. DOI: 10.1007/s10971-022-05906-w.
6. Baglov AV, Shevtsova TA, Khoroshko LS, Dudchik NV, Drozdova AV, Borisenko VE. Forming immobilized nanostructured titanium dioxide having antibacterial properties. *Doklady of the National Academy of Sciences of Belarus*. 2019;63(2):157–163. Russian. DOI: 10.29235/1561-8323-2019-63-2-157-163.
7. Kang Wenda, Chen Shuo, Yu Hongtao, Xu Tengyao, Wu Shuai, Wang Xiaoting, et al. Photocatalytic ozonation of organic pollutants in wastewater using a flowing through reactor. *Journal of Hazardous Materials*. 2021;405:124277. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2020.124277.
8. Baglov AV, Radionov AA, Chubenko EB, Zaycev VA, Borisenko VE. Installation for photocatalytic water purification from organic pollution in the flow reactor. *Doklady BGUIR*. 2018;4:45–50. Russian.
9. Ray AK. Photocatalytic reactor configurations for water purification: experimentation and modeling. *Advances in Chemical Engineering*. 2009;36:145–184. DOI: 10.1016/S0065-2377(09)00405-0.
10. Linnik O, Smirnova N, Zhukovskiy M, Orekhovskaya T, Asharif A, Borisenko V, et al. Influence of support nature on photocatalytic activity of TiO₂ film. *Advanced Science, Engineering and Medicine*. 2013;5(4):371–376. DOI: 10.1166/asem.2013.1289.
11. Gaponenko NV, Kortov VS, Smirnova NP, Orekhovskaya TI, Nikolaenko IA, Pustovarov VA, et al. Sol-gel derived structures for optical design and photocatalytic application. *Microelectronic Engineering*. 2012;90:131–137. DOI: 10.1016/j.mee.2011.04.002.
12. Linnik OP, Zhukovskiy MA, Starukh GN, Smirnova NP, Gaponenko NV, Asharif AM, et al. Photocatalytic destruction of tetracycline hydrochloride on the surface of titanium dioxide films modified by gold nanoparticles. *Journal of Applied Spectroscopy*. 2015;81(6):990–995. DOI: 10.1007/s10812-015-0040-0.
13. Ovodok E, Maltanova H, Poznyak S, Ivanovskaya M, Kudlash A, Scharnagl N, et al. Sol-gel template synthesis of mesoporous carbon-doped TiO₂ with photocatalytic activity under visible light. *Materials Today: Proceedings*. 2018;5(9, part 2):17422–17430. DOI: 10.1016/j.matpr.2018.06.044.
14. Lalliansanga, Tiwari D, Lee S-M, Kim D-J. Photocatalytic degradation of amoxicillin and tetracycline by template synthesized nano-structured Ce³⁺@TiO₂ thin film catalyst. *Environmental Research*. 2022;210:112914. DOI: 10.1016/j.envres.2022.112914.
15. Baglov AV, Khoroshko LS, Yatskevich PA. Optimization of two-scale oxide structure configuration for photocatalytic applications. *Doklady BGUIR*. 2020;18(3):42–48. Russian. DOI: 10.35596/1729-7648-2020-18-3-42-48.
16. Li J-G, Ishigaki T, Sun X. Anatase, brookite, and rutile nanocrystals via redox reactions under mild hydrothermal conditions: phase-selective synthesis and physicochemical properties. *The Journal of Physical Chemistry C*. 2007;111(13):4969–4976. DOI: 10.1021/jp0673258.
17. Chubenko EB, Baglov AV, Gnit'ko AA, Maksimov SE, Borisenko VE, Kulak AI, et al. Structural and phase transformations in the thiourea/zinc acetate system. *Inorganic Materials*. 2022;58(2):117–123. DOI: 10.1134/S0020168522020054.
18. Wang Hui, Zhang Xiaodong, Xie Junfeng, Zhang Jiajia, Ma Piao, Pan Bica, et al. Structural distortion in graphitic-C₃N₄ realizing an efficient photoreactivity. *Nanoscale*. 2015;7(12):5152–5156. DOI: 10.1039/C4NR07645A.
19. Yauseichyk MA, Maksimov SE, Khoroshko LS, Korolik OV, Yakimchuk DV. Synthesis and properties of thin-film TiO₂/g-C₃N₄ heterostructures [CD-ROM]. Fedosyuk VM, editor. *Actual problems of solid state physics. Proceedings book of the X International scientific conference; 2023 May 22–26; Minsk, Belarus*. Minsk: A. N. Varaksin; 2023. p. 638–641. 1 CD-ROM: 4 3/4 in. Russian.
20. Banerjee S, Dionysiou DD, Pillai SC. Self-cleaning applications of TiO₂ by photo-induced hydrophilicity and photocatalysis. *Applied Catalysis B: Environmental*. 2015;176–177:396–428. DOI: 10.1016/j.apcatb.2015.03.058.
21. Shamsudin S, Ahmad MK, Aziz AN, Fakhriah R, Mohamad F, Ahmad N, et al. Hydrophobic rutile phase TiO₂ nanostructure and its properties for self-cleaning application. *AIP Conference Proceedings*. 2017;1883:020030. DOI: 10.1063/1.5002048.

Получена 13.05.2023 / исправлена 14.05.2023 / принята 15.05.2023.
Received 13.05.2023 / revised 14.05.2023 / accepted 15.05.2023.

УДК 539.213.2

ЭЛЕКТРОФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ТОНКИХ ПЛЕНОК ОКСИДА ИНДИЯ

В. С. ВОЛОБУЕВ¹⁾, В. К. ДОЛГИЙ²⁾, А. Е. ПОЧТЕННЫЙ³⁾

¹⁾Белорусский государственный технологический университет,
ул. Свердлова, 13а, 220006, г. Минск, Беларусь

²⁾Белорусский государственный аграрный технический университет,
пр. Независимости, 99, 220012, г. Минск, Беларусь

³⁾Независимый исследователь, г. Минск, Беларусь

Исследованы электрофизические свойства тонких пленок оксида индия. Структура и химический состав пленок изучены методами электронной дифракции, сканирующей электронной микроскопии, рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии. Температурная зависимость проводимости пленок измерена при постоянной концентрации кислорода методом циклической термодесорбции. Показано, что взаимодействие адсорбированных частиц с пленкой приводит к образованию различных адсорбционных состояний, влияющих на электрофизические свойства пленки. На основе результатов исследования предложен механизм проводимости. Рост проводимости, связанный с уменьшением концентрации адсорбированного кислорода, обусловлен тем, что адсорбированный кислород играет роль центров рассеяния носителей заряда, и снижение его концентрации приводит к увеличению подвижности носителей заряда. Полученные результаты могут быть использованы в микроэлектронных датчиках и сенсорах, поскольку они обладают более высоким быстродействием и значительно меньшим дрейфом показаний, чем резистивные сенсоры.

Ключевые слова: сенсоры; механизм проводимости; тонкая пленка; прыжковая проводимость; термодесорбция.

Благодарность. Работа выполнена при поддержке Министерства образования Республики Беларусь (грант № 20211250).

Образец цитирования:

Волобуев ВС, Долгий ВК, Почтенный АЕ. Электрофизические свойства тонких пленок оксида индия. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика.* 2023;2: 66–73.

<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-66-73>

For citation:

Volobuev VS, Dolgiy VK, Pochtenny AE. Electrophysical properties of thin films of indium oxide. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2023;2:66–73. Russian. <https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-66-73>

Авторы:

Влас Сергеевич Волобуев – кандидат физико-математических наук, доцент; старший преподаватель кафедры физико-химических методов и обеспечения качества факультета технологии органических веществ.

Валерий Казимирович Долгий – кандидат физико-математических наук, доцент; доцент кафедры естественно-научных дисциплин факультета технического сервиса в АПК.

Артем Евгеньевич Почтенный – кандидат физико-математических наук, доцент; независимый исследователь.

Authors:

Vlas S. Volobuev, PhD (physics and mathematics), docent; senior lecturer at the department of physical-chemical methods and quality assurance, faculty of organic substances technology. vlasname@mail.ru

Valeriy K. Dolgiy, PhD (physics and mathematics), docent; associate professor at the department of natural sciences disciplines, faculty of farm machinery service.

vsnaa@tut.by

Artyom E. Pochtenny, PhD (physics and mathematics), docent; independent researcher.

pae@tut.by

ELECTROPHYSICAL PROPERTIES OF THIN FILMS OF INDIUM OXIDE

V. S. VOLOBUEV^a, V. K. DOLGIY^b, A. E. POCHTENNY^c

^aBelarusian State Technological University, 13a Sviardlova Street, Minsk 220006, Belarus

^bBelarusian State Agrarian Technical University, 99 Niezaliežnasci Avenue, Minsk 220012, Belarus

^cIndependent researcher, Minsk, Belarus

Corresponding author: V. S. Volobuev (vlasname@mail.ru)

The electrophysical properties of thin films of indium oxide have been researched. The structure and chemical composition of the films were studied by electron diffraction, scanning electron microscopy and X-ray photoelectron spectroscopy. The temperature dependence of the conductivity of these films was measured at a constant oxygen concentration by cyclic thermal desorption. It is shown that the interaction of adsorbed particles with the film leads to the formation of various adsorption states that affect the electrophysical properties of the film. Based on the results of the study, a mechanism of conduction is proposed. The increase in conductivity associated with a decrease in the concentration of adsorbed oxygen is due to the fact that adsorbed oxygen is the centers of scattering of charge carriers, and a decrease in its concentration leads to an increase in the mobility of charge carriers. The results can be used in microelectronic sensors and sensors, since they have a higher response speed and significantly less reading drift compared to resistive sensors.

Keywords: sensors; conduction mechanism; thin film; hopping conductivity; thermal desorption.

Acknowledgements. The work was supported by the Ministry of Education of the Republic of Belarus (grant No. 20211250).

Введение

Уровень развития технологий и требования научно-технического прогресса на современном этапе обуславливают необходимость повышения эффективности контроля окружающей среды и управления технологическими процессами. Это предполагает использование газовых сенсоров, меняющих свою проводимость в результате окислительных реакций с кислородом и восстанавливающими реагентами, к которым относятся многие газы, а также пары большого числа органических веществ. В настоящее время активно разрабатываются структуры для таких элементов органической электроники, как химические сенсоры [1], биологические сенсоры [2] и солнечные батареи с улучшенными характеристиками [3].

Одной из нерешенных проблем химической сенсорики является создание высокочувствительных и селективных датчиков газового анализа. Среди них перспективными считаются полупроводниковые газовые сенсоры (ППГС) адсорбционного типа, выполненные по микроэлектронной групповой технологии. Перспективность ППГС обусловлена низкой материалоемкостью и энергоемкостью, хорошей воспроизводимостью параметров, миниатюрностью и исключительным удобством обработки считываемой информации. Кроме того, существует возможность их изготовления в виде интегральных микросхем.

Из множества различных конструкций и принципов работы ППГС адсорбционного типа широкое применение на практике получили хеморезистивные сенсоры, действие которых основано на изменении сопротивления сенсорного элемента при взаимодействии с конкретным газом. При этом зависимость проводимости конденсированных пленок от концентрации адсорбированных примесей определяется механизмом электропереноса. Так, например, в тонких конденсированных пленках органических полупроводников с прыжковым механизмом проводимости адсорбированные примеси влияют на энергию активации проводимости и концентрацию центров локализации, которые обеспечивают электроперенос [4; 5]. В пленках полупроводников с зонным механизмом проводимости адсорбированные примеси, как правило, изменяют концентрацию носителей заряда, не влияя при этом на величину энергии активации проводимости. В металлических пленках адсорбированные примеси практически не оказывают действия на проводимость.

С учетом того что газовые сенсоры функционируют в присутствии адсорбированного кислорода, молекулы которого влияют на электропроводность, для оптимизации сенсорных свойств подобных устройств принципиально важно знать механизм такого влияния, включая вклад собственных электронных состояний и состояний адсорбированного кислорода в процессы электропереноса.

Использование пленок оксида индия (In_2O_3) в качестве газочувствительных материалов сдерживается высокой квазиметаллической электропроводностью и низкой селективностью. Повысить чувствительность и селективность таких пленок можно путем модификации их химического состава и структуры, что делает актуальными исследования в этой области. Целью настоящей работы является изучение влияния адсорбированного кислорода на электрофизические свойства сенсорных пленок In_2O_3 .

Материалы и методы исследования

Объектом исследования выступали тонкие пленки In_2O_3 (толщина 30–80 нм), которые были получены термическим окислением пленок индия, осажденных методом магнетронного напыления при постоянном токе. Выбор данной пленочной технологии обусловлен тем, что она позволяет формировать оксидные слои толщиной от нескольких нанометров до нескольких сотен нанометров. Напыление пленок индия осуществлялось на вакуумном универсальном посту ВУП-5М (*Selmi*, Украина) при ускоряющем напряжении 0,5 кВ и токе разряда 0,15 А. Давление в процессе напыления составляло 0,1–1,0 Па. В качестве газа для травления использовался аргон, катодом выступал индиевый наконечник. Пленки индия осаждались на монокристаллические кремниевые пластины, покрытые диэлектрическим слоем эпитаксиального оксида кремния (SiO_2), оксидом алюминия (Al_2O_3) и слюдой. После осаждения пленки индия подвергались окислению в муфельной электрической печи в неизотермическом режиме: в течение 40–60 мин производился нагрев до температуры 500–600 °С, а затем на протяжении 60 мин осуществлялся изотермический отжиг при температуре 500 и 600 °С (температура и время окисления подобраны экспериментально).

Для измерения электрофизических свойств использовались либо электроды из проводящей контактной пасты, нанесенные на поверхность пленки, либо встречно-штыревая система никелевых электродов, расположенная под пленкой. В качестве подложки применялась слюда (мусковит) толщиной 10 мкм, низкая теплопроводность которой позволяет реализовывать большие градиенты температур, а высокое удельное сопротивление обеспечивает хорошую электроизоляцию.

Проводимость пленок при постоянном токе определялась с помощью электрометра В7-57/1 (ПО «Белвар», Беларусь). Температурные зависимости проводимости в интервале температур от 370 до 450 К измерялись в вакууме (давление 10^{-2} Па) методом циклической термодесорбции [6–8]. Суть данного метода состоит в нагревании образца до некоторой температуры T_0 и его последующем охлаждении, в процессе которого и измеряется зависимость проводимости от абсолютной температуры, имеющая вид

$$G = G_0 \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right), \quad (1)$$

где G_0 – предэкспоненциальный множитель; E_a – энергия активации проводимости; k – постоянная Больцмана; T – абсолютная температура.

Концентрация адсорбированного кислорода при охлаждении не увеличивалась, так как измерения проводились в вакууме. Образец последовательно нагревался до все более высоких температур, которым соответствовали все более низкие концентрации адсорбированного кислорода. Измерение температурных зависимостей проводимости при охлаждении позволяет получить набор температурных зависимостей проводимости, отвечающих различным концентрациям адсорбированного кислорода в одном и том же образце. На основе этого набора можно определить значения проводимости (при температуре 300 К), предэкспоненциального множителя и энергии активации проводимости, соответствующие разным концентрациям адсорбированного кислорода.

Фазовая структура и морфология поверхности исследовались методом сканирующей электронной микроскопии с использованием микроскопов Н-800 и S-806 (*Hitachi*, Япония).

Результаты и их обсуждение

Анализ электронных дифрактограмм показал, что единственной идентифицируемой кристаллической фазой в оксидных пленках в процессе окисления является кубическая фаза с поликристаллической структурой In_2O_3 . Для пленок In_2O_3 характерна зернистая структура (рис. 1, *a*) с размером частиц от 10 до 70 нм. Основная доля частиц (около 80 %) приходится на интервал от 15 до 50 нм, максимум находится в диапазоне 25–30 нм (рис. 1, *б*).

Рентгеновский фотоэлектронный спектр индия характеризуется наличием двух спектральных линий с энергиями связи (E) 444,4 и 452,0 эВ за счет мультиплетного расщепления $3d$ -уровня. Химический сдвиг линии $\text{In } 3d_{5/2}$ в оксидной пленке относительно линии In^0 (исходное значение средней энергии связи 443,5 эВ) составляет 0,9 эВ, что можно объяснить состоянием In^{3+} (по имеющимся справочным данным, изменение энергии связи колеблется в пределах 0,8–1,2 эВ). Рентгеновский фотоэлектронный спектр кислорода представлен на рис. 2. Пиковая линия имеет ярко выраженную асимметрию, что указывает на наличие перекрывающихся пиков, различающихся по энергии, форме и интенсивности, с энергиями связи 529,95 и 531,9 эВ.

Фотоэлектронная линия с энергией связи 529,95 эВ имеет большую интенсивность и соответствует состоянию решетки кислорода (согласно справочным данным средняя энергия связи O_2 в соединении In_2O_3

составляет 530 эВ и варьируется от 529,1 до 530,9 эВ). Широкая оболочка фотоэлектронных линий O 1s в области 531,0–534,5 эВ связана с достаточно большим числом форм кислорода и его соединений, адсорбированных на поверхности. Фотоэлектронная линия с энергией связи 531,9 эВ может соответствовать различным формам адсорбированного на поверхности кислорода, а также кислорода, включенного в гидроксильную группу.

Полученные температурные зависимости проводимости, представленные на рис. 3, показывают, что по мере десорбции кислорода проводимость пленок In_2O_3 возрастает, а сами температурные зависимости подчиняются уравнению (1). Тот факт, что в процессе термодесорбции кислорода энергия активации проводимости пленок In_2O_3 существенно изменялась, подтверждает прыжковый механизм проводимости [4; 5] в этом материале, когда перенос электронов может осуществляться как по собственным состояниям с радиусом локализации a_1 , так и по примесным состояниям с радиусом локализации a_2 . В соответствии с формулой (1) все измеренные температурные зависимости являются линейными по координатам $\ln G - \frac{1}{kT}$ (см. рис. 3). Это доказывает, что один из каналов переноса электронов (собственный или примесный) является, по сути, преобладающим.

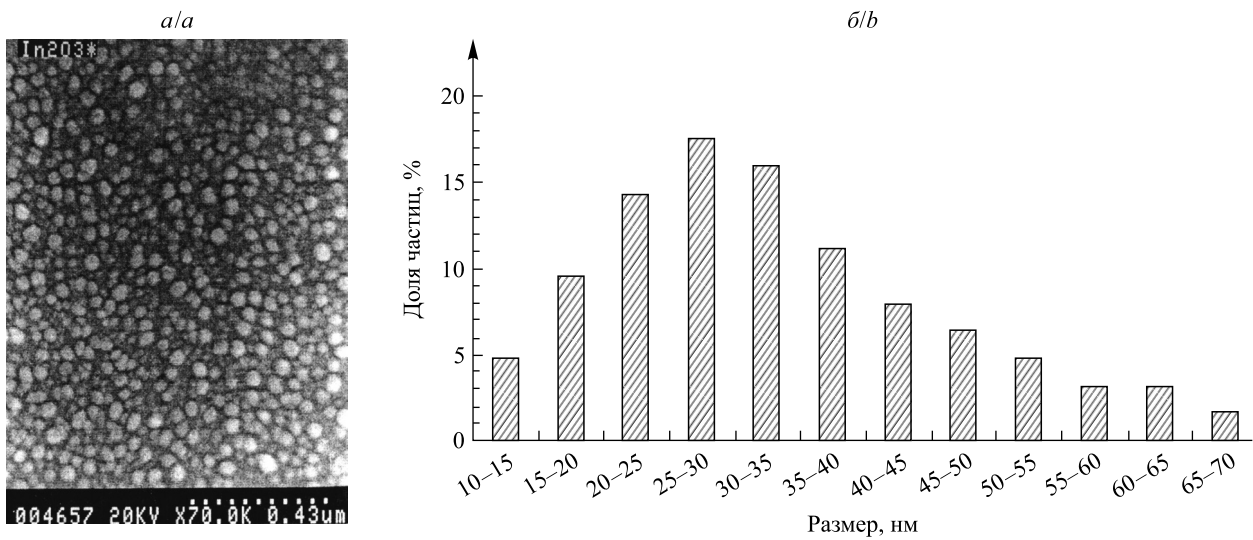


Рис. 1. СЭМ-изображение пленок In_2O_3 на слюде (а) и распределение их частиц по размерам (б)

Fig. 1. SEM images of In_2O_3 films on mica (a) and size distribution of their particles (b)

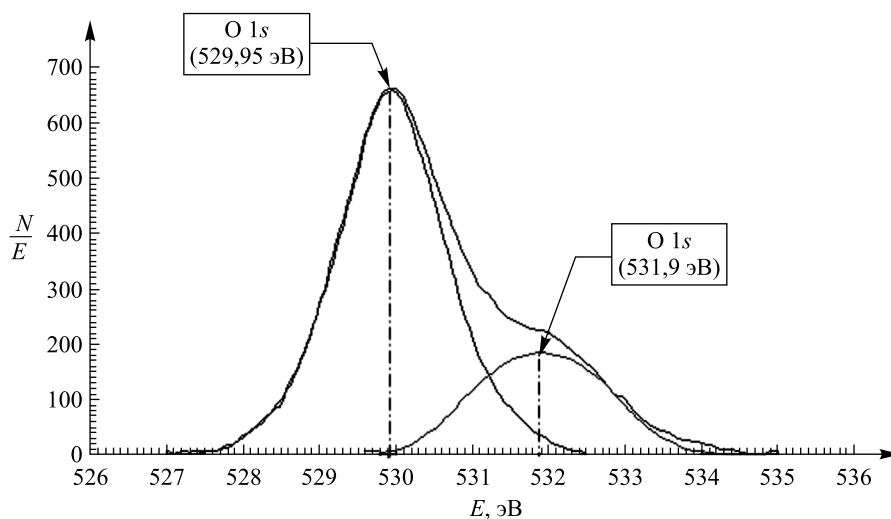


Рис. 2. Рентгеновский фотоэлектронный спектр кислорода на поверхностных пленках In_2O_3

Fig. 2. X-ray photoelectron spectra of oxygen on In_2O_3 surface films

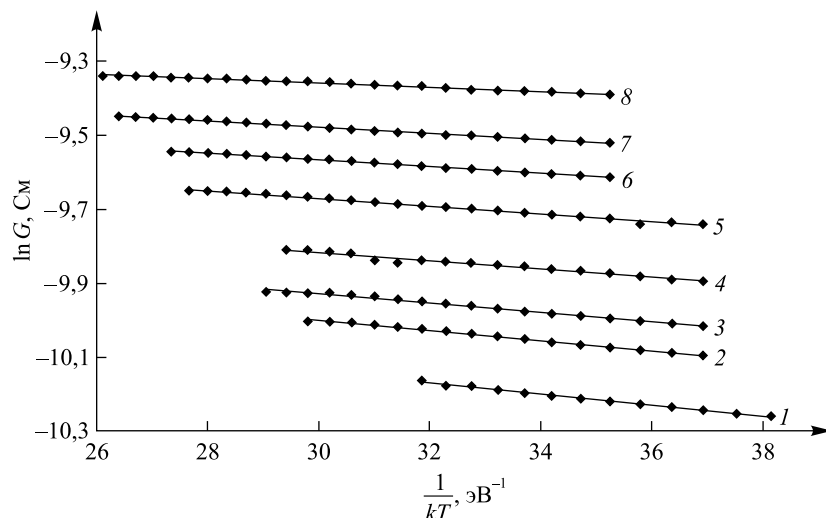


Рис. 3. Температурные зависимости проводимости пленок In_2O_3 , измеренные в вакууме при температуре начала охлаждения: 1 – 100 °C; 2 – 110 °C; 3 – 120 °C; 4 – 130 °C; 5 – 140 °C; 6 – 150 °C; 7 – 160 °C; 8 – 170 °C

Fig. 3. Temperature dependences of the conductivity of In_2O_3 films measured in vacuum at the temperature of the beginning of cooling: 1 – 100 °C; 2 – 110 °C; 3 – 120 °C; 4 – 130 °C; 5 – 140 °C; 6 – 150 °C; 7 – 160 °C; 8 – 170 °C

Рост проводимости (см. рис. 3) и предэкспоненциального множителя (рис. 4) пленок In_2O_3 при десорбции кислорода свидетельствует о том, что уменьшение концентрации адсорбированного кислорода приводит к увеличению подвижности носителей заряда. Из этого следует, что адсорбированный кислород играет роль центров рассеяния.

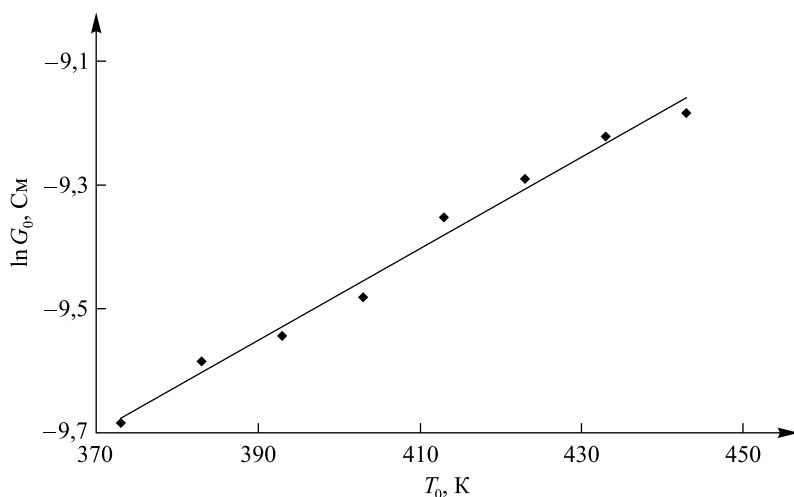


Рис. 4. Зависимость предэкспоненциального множителя пленок In_2O_3 от температуры начала охлаждения

Fig. 4. Dependence of the pre-exponential multiplier of In_2O_3 films on the temperature of the beginning of cooling

В то же время энергия активации проводимости пленок при десорбции кислорода уменьшается (рис. 5). Следовательно, снижение концентрации адсорбированного кислорода вызывает смещение уровня Ферми ближе ко дну зоны проводимости. Это показывает, что уровни адсорбированного кислорода располагаются ниже середины запрещенной зоны.

Для определения канала переноса электронов значения предэкспоненциального множителя и энергии активации проводимости пленок In_2O_3 графически представлены в координатах $\ln G_0 - E_a$ (рис. 6).

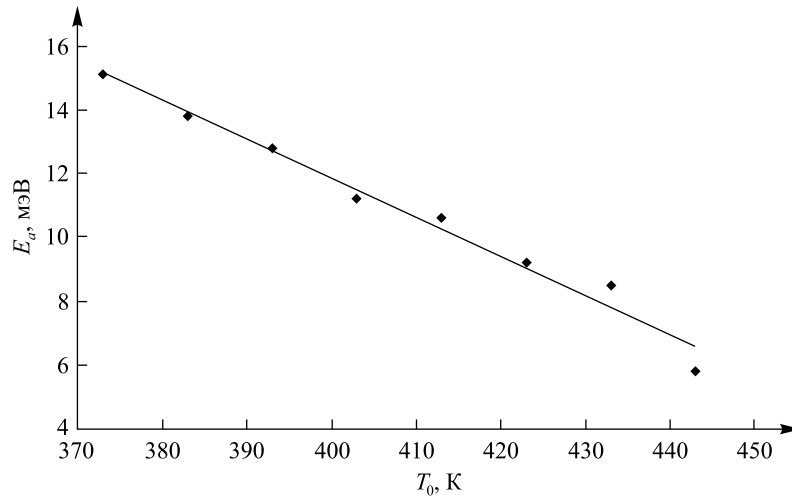


Рис. 5. Зависимость энергии активации проводимости пленок In_2O_3 от температуры начала охлаждения

Fig. 5. Dependence of the activation energy of the conductivity of In_2O_3 films on the temperature of the beginning of cooling

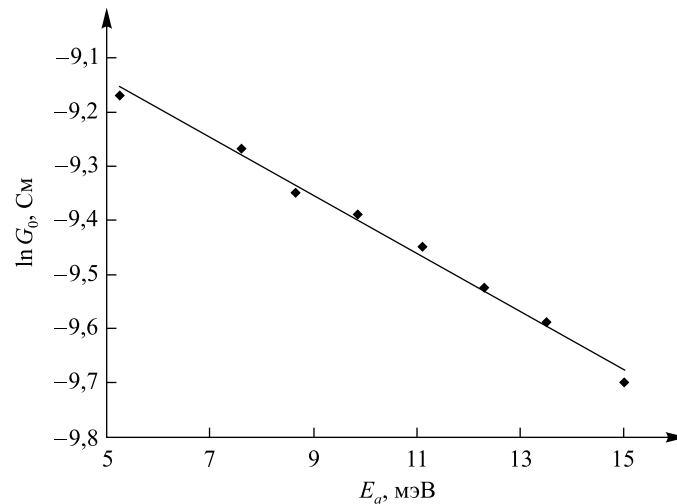


Рис. 6. Зависимость энергии активации проводимости от предэкспоненциального множителя пленок In_2O_3 в температурной зависимости проводимости

Fig. 6. Dependence of the activation energy of conductivity on the pre-exponential multiplier of In_2O_3 films in the temperature dependence of conductivity

Энергия активации проводимости и предэкспоненциальный множитель могут быть записаны в виде соотношений [4; 5]

$$E_a = \frac{0,99e^2 n^{\frac{1}{3}}}{4\pi\epsilon_0\epsilon}, \quad (2)$$

$$G_0 = G_{03} \exp\left(-\frac{\alpha}{an^{\frac{1}{3}}}\right), \quad (3)$$

где e – заряд электрона; n – концентрация центров локализации; ϵ_0 – электрическая постоянная (диэлектрическая проницаемость вакуума); ϵ – относительная диэлектрическая проницаемость; G_{03} – постоянная, зависящая от радиуса локализации электронов; $\alpha = 1,73$ – перколяционная константа; a – радиус локализации электронов.

Исключив n из выражений (2) и (3), можно получить следующее соотношение:

$$\ln G_0 = \ln G_{03} - \frac{0,99\alpha e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_a E_a}. \quad (4)$$

В соответствии с соотношением (4) зависимость энергии активации проводимости от предэкспоненциального множителя является линейной, что подтверждается результатами эксперимента (см. рис. 6).

Формула (3) – отличительное соотношение для прыжкового электропереноса, поэтому линейная зависимость, представленная на рис. 6, однозначно подтверждает прыжковый механизм проводимости в тонких пленках In_2O_3 .

Таким образом, обнаруженный рост проводимости, связанный с уменьшением концентрации адсорбированного кислорода, обусловлен тем, что адсорбированный кислород представляет собой центры рассеяния носителей заряда, поэтому снижение его концентрации приводит как к увеличению подвижности носителей заряда, так и к смещению уровня Ферми в пленках In_2O_3 , уменьшая тем самым энергию активации проводимости.

Отметим также, что обнаруженный эффект может иметь практическое применение при создании адсорбционно-резистивных сенсоров кислорода.

Заключение

Результаты исследования показывают, что взаимодействие адсорбированных частиц с пленкой In_2O_3 приводит к образованию различных адсорбционных состояний, влияющих на электрофизические свойства пленки. Основным видом несобственных поверхностных состояний, оказывающих сильное влияние на электрофизические параметры пленок, являются состояния, обусловленные хемосорбцией кислорода. На данных поверхностных состояниях происходит локализация свободных электронов, что непосредственно сказывается на параметрах электропереноса и термоэлектрических свойствах пленок. Кислород, будучи акцептором электронов, хемосорбируется на поверхности оксидов в большинстве случаев в заряженной форме, т. е. создает в запрещенной зоне локальные уровни. Исходя из этого, одним из механизмов воздействия адсорбции газовых частиц на термоэлектрические свойства пленок может быть изменение концентрации или зарядовой формы адсорбированного кислорода. Обнаруженный рост проводимости, связанный с уменьшением концентрации адсорбированного кислорода, обусловлен тем, что адсорбированный кислород представляет собой центры рассеяния носителей заряда, и снижение его концентрации приводит к увеличению подвижности носителей заряда.

Библиографические ссылки

1. Rahim A, Santos LSS, Barros SBA, Kubota LT, Gushikem Y. Dissolved O_2 sensor based on cobalt(II) phthalocyanine immobilized *in situ* on electrically conducting carbon ceramic mesoporous SiO_2/C material. *Sensors and Actuators B: Chemical*. 2013;177:231–238. DOI: 10.1016/j.snb.2012.10.110.
2. Apetrei IM, Rodriguez-Mendez ML, Apetrei C, de Saja JA. Enzyme sensor based on carbon nanotubes / cobalt(II) phthalocyanine and tyrosinase used in pharmaceutical analysis. *Sensors and Actuators B: Chemical*. 2013;177:138–144. DOI: 10.1016/j.snb.2012.10.131.
3. Takeda A, Oku T, Suzuki A, Akiyama T, Yamasaki Y. Fabrication and characterization of fullerene-based solar cells containing phthalocyanine and naphthalocyanine dimers. *Synthetic Metals*. 2013;177:48–51. DOI: 10.1016/j.synthmet.2013.06.011.
4. Почтенный АЕ, Мисевич АВ. Влияние адсорбированного кислорода на проводимость пленок фталоцианина свинца. *Письма в Журнал технической физики*. 2003;29(1):56–61.
5. Мисевич АВ, Почтенный АЕ, Лаппо АН. Адсорбционно-резистивные свойства композитных пленок на основе периленовых пигментов. *Труды Белорусского государственного технологического университета. Серия 6, Физико-математические науки и информатика*. 2007;15:75–78.
6. Почтенный АЕ. *Прыжковая проводимость на постоянном токе в собственных и примесных органических полупроводниках*. Минск: БГТУ; 2016. 171 с.
7. Почтенный АЕ, Сагайдак ДИ, Федорук ГГ, Мисевич АВ. Прыжковая проводимость во фталоцианине меди и композиционных структурах на его основе. *Физика твердого тела*. 1996;38(8):2592–2601.
8. Misevich AV, Pochtenny AE. The effect of gas adsorption on hopping conduction of metallophthalocyanines. *Electron Technology*. 2000;33(1–2):167–170.

References

1. Rahim A, Santos LSS, Barros SBA, Kubota LT, Gushikem Y. Dissolved O_2 sensor based on cobalt(II) phthalocyanine immobilized *in situ* on electrically conducting carbon ceramic mesoporous SiO_2/C material. *Sensors and Actuators B: Chemical*. 2013;177:231–238. DOI: 10.1016/j.snb.2012.10.110.
2. Apetrei IM, Rodriguez-Mendez ML, Apetrei C, de Saja JA. Enzyme sensor based on carbon nanotubes / cobalt(II) phthalocyanine and tyrosinase used in pharmaceutical analysis. *Sensors and Actuators B: Chemical*. 2013;177:138–144. DOI: 10.1016/j.snb.2012.10.131.

3. Takeda A, Oku T, Suzuki A, Akiyama T, Yamasaki Y. Fabrication and characterization of fullerene-based solar cells containing phthalocyanine and naphthalocyanine dimers. *Synthetic Metals*. 2013;177:48–51. DOI: 10.1016/j.synthmet.2013.06.011.
4. Pochtenny AE, Misevich AV. [Influence of adsorbed oxygen on the conductivity of lead phthalocyanine films]. *Pis'ma v Zhurnal tekhnicheskoi fiziki*. 2003;29(1):56–61. Russian.
5. Misevich AV, Pochtenny AE, Lappo AN. [Adsorption-resistive properties of composite films based on perylene pigments]. *Trudy Belorusskogo gosudarstvennogo tekhnologicheskogo universiteta. Seriya 6, Fiziko-matematicheskie nauki i informatika*. 2007;15:75–78. Russian.
6. Pochtenny AE. *Pryzhkovaya provodimost' na postoyannom toke v sobstvennykh i primesnykh organicheskikh poluprovodnikakh* [Hopping conductivity at direct current in intrinsic and impurity organic semiconductors]. Minsk: Belarusian State Technological University; 2016. 171 p. Russian.
7. Pochtenny AE, Sagaidak DI, Fedoruk GG, Misevich AV. [Hopping conductivity in copper phthalocyanine and composite structures based on it]. *Solid State Physics*. 1996;38(8):2592–2601. Russian.
8. Misevich AV, Pochtenny AE. The effect of gas adsorption on hopping conduction of metallophthalocyanines. *Electron Technology*. 2000;33(1–2):167–170.

Получена 30.01.2023 / исправлена 24.02.2023 / принята 24.02.2023.
Received 30.01.2023 / revised 24.02.2023 / accepted 24.02.2023.

УДК 530.1

НЕКОТОРЫЕ АСПЕКТЫ ПЕРВИЧНЫХ ЧЕРНЫХ ДЫР В РАННЕЙ ВСЕЛЕННОЙ И ИНФЛЯЦИОННАЯ КОСМОЛОГИЯ

А. Э. ШАЛЫТ-МАРГОЛИН¹⁾

¹⁾Институт ядерных проблем БГУ, ул. Бобруйская, 11, 220006, г. Минск, Беларусь

Первичные черные дыры могут возникнуть в ранней Вселенной независимо от того, какой космологический сценарий ее расширения (инфляционный, циклический или другой) реализуется. Однако само существование данных объектов может изменить основные параметры вышеуказанного сценария, если они возникают до начала его осуществления, т. е. в первые мгновения после Большого взрыва. В связи с этим исследование формирования и испарения первичных черных дыр является эффективным инструментом для изучения процессов в ранней Вселенной, в частности гравитационного коллапса, различных космологических моделей, а также физики высоких энергий. В настоящее время такие черные дыры обычно исследуются в рамках полуклассической аппроксимации, т. е. когда вторично квантованные поля материи рассматриваются на фоне классического пространства-времени. Но так как энергии, при которых образуются первичные черные дыры, часто близки к планковским энергиям, подобное рассмотрение не может считаться удовлетворительным, поскольку в этом случае становятся существенными квантово-гравитационные эффекты. В работе показано, как порожденные данными эффектами квантово-гравитационные поправки учитываются в инфляционных космологических моделях, если в доинфляционную эпоху возникают первичные черные дыры. Продемонстрировано, что в рамках справедливости обобщенного принципа неопределенности эти поправки могут быть вычислены для всех основных инфляционных параметров, таких как масштабный фактор, параметр Хаббла, параметры медленного скатывания и др.

Ключевые слова: первичные черные дыры; инфляционная космология; квантово-гравитационные поправки.

Благодарность. Автор выражает благодарность рецензенту за важные замечания по тексту статьи.

Образец цитирования:

Шалыт-Марголин АЭ. Некоторые аспекты первичных черных дыр в ранней Вселенной и инфляционная космология. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика.* 2023;2:74–81.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-74-81>

For citation:

Shalyt-Margolin AE. Some aspects of primary black holes in the early Universe and inflationary cosmology. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2023;2:74–81. Russian.
<https://doi.org/10.33581/2520-2243-2023-2-74-81>

Автор:

Александр Эммануилович Шалыт-Марголин – доктор физико-математических наук; главный научный сотрудник лаборатории фундаментальных взаимодействий.

Author:

Alexander E. Shalyt-Margolin, doctor of science (physics and mathematics); chief researcher at the laboratory of fundamental interactions.
a.shalyt@mail.ru
<https://orcid.org/0000-0003-4177-3563>

SOME ASPECTS OF PRIMARY BLACK HOLES
IN THE EARLY UNIVERSE AND INFLATIONARY COSMOLOGYA. E. SHALYT-MARGOLIN^a^a*Institute for Nuclear Problems, Belarusian State University,
11 Babrujskaja Street, Minsk 220006, Belarus*

Primary black holes can arise in the early Universe irrespective of what cosmological scenario of its expansion (inflationary, cyclic or other) is realised. However, the very existence of these objects can change the basic parameters of the above scenario if they arise before the beginning of its realisation, i. e. in first moments after the Big Bang. Therefore, the investigation of the formation and evaporation of primary black holes is a powerful tool to study the processes in the early Universe, in particular, the gravitational collapse, various cosmological models, and also high energy physics. At present these black holes are studied most often within the semiclassical approximation, i. e. in the case when the secondary quantised fields of matter are considered against the classical space-time background. But since energies at which primary black holes arise often are close to Planckian energies, such consideration cannot be considered satisfactory, since in this case quantum-gravitational effects become essential. This paper demonstrates the ways to include the quantum-gravitational corrections generated by these effects in inflationary cosmological models if primary black holes arise in the preinflationary epoch. It is shown that, due to the validity of the generalised uncertainty principle, these corrections may be calculated for all the fundamental inflationary parameters, specifically, for the scale factor, Hubble parameter, slow roll parameters, etc.

Keywords: primary black holes; inflationary cosmology; quantum-gravitational corrections.

Acknowledgements. The author would like to thank the reviewer for his important comments on the text of the article.

Введение

В соответствии с современными представлениями наиболее высокие энергии, при которых должны проявляться физические законы, определяются планковскими энергиями $E_p \approx 10^{19}$ ГэВ. Именно при этих энергиях существенную роль начинают играть квантово-гравитационные эффекты. Так, в работе [1] сформулирована гипотеза о том, что граница применимости известной квантовой теории поля [2] намного ниже планковской энергии E_p . В публикациях [3; 4] эта гипотеза доказана в предположении, что пространственно-временная (иначе квантовая) пена [5–10] при планковских масштабах состоит из микроскопических черных дыр (или квантовых черных дыр (КЧД)) с радиусом Шварцшильда, близким к планковской длине l_p (см., например, [9; 10]). Всюду далее предполагается, что пространственно-временная пена состоит из КЧД.

Следует отметить, что для черной дыры большого размера квантово-гравитационные эффекты исчезающе малы и поэтому, как правило, не учитываются при вычислении температуры, энтропии и других параметров. Напротив, для КЧД указанные эффекты являются весьма существенными, ввиду чего обязательно должны учитываться в расчетах.

Ясно, что в космологии, по крайней мере при очень высоких энергиях (близких к планковским), т. е. в ранней Вселенной, квантово-гравитационные эффекты также должны быть учтены в любом случае, независимо от того, осуществляется инфляционный сценарий или нет. Тогда эти эффекты могут породиться черными дырами малых размеров, и в частности КЧД.

В данном случае можно считать эти черные дыры малых размеров первичными черными дырами (ПЧД) [11] и исследовать вопрос о том, как последние влияют на известные космологические параметры в ранней Вселенной. В настоящей работе начато такое исследование в рамках инфляционной парадигмы. Показано, как учет квантово-гравитационных поправок для вышеуказанных черных дыр, возникающих в доинфляционную эпоху, может изменять основные параметры инфляции – масштабный фактор, параметр Хаббла, параметры медленного скатывания.

Первичные черные дыры

Черные дыры, образующиеся в ранней Вселенной, называют первичными. Наиболее общим механизмом формирования ПЧД является гравитационный коллапс материи высокой плотности, порожденный космологическими возмущениями, которые возникают, например, в процессе инфляции (но необязательно) в ранней Вселенной [11]. Однако идея формирования ПЧД появилась намного раньше, чем первые инфляционные модели, в частности в работе [12] и независимо в статьях [13; 14].

К настоящему времени в исследовании ПЧД получен ряд важных результатов, среди которых – достаточно точная оценка массы ПЧД $M_H(t)$, образующейся в течение времени t после Большого взрыва [15–17]:

$$M_H(t) \approx \frac{c^3 t}{G} \approx 10^{15} \left(\frac{t}{10^{-23}} \right). \quad (1)$$

Из выражения (1) непосредственно следует, что ПЧД обладают широким спектром масс. В частности, для планковского времени $t_p \approx 10^{-43}$ с ПЧД имеет планковскую массу $M_H(t) \approx 10^{-5}$ г, т. е. в этом случае квантово-гравитационные эффекты будут существенными.

Установлено, что исследование формирования и испарения ПЧД является эффективным инструментом для изучения процессов в ранней Вселенной, в частности гравитационного коллапса, различных космологических моделей, а также физики высоких энергий и квантовой гравитации. В последнем случае в квантово-гравитационной области образование устойчивых планковских остатков после испарения черных дыр может наложить важные ограничения на значения известных космологических параметров.

Под КЧД понимаются шварцшильдовы черные дыры с радиусом горизонта событий и массой, близкими к планковским: $r = r_{qbh} \propto l_p$, $m = m_{qbh} \propto M_p$ [18]. Здесь и далее для обозначения параметров КЧД используется нижний индекс qbh (*quantum black hole*).

Возникает естественный вопрос: «Как могут образовываться КЧД»? Первый и наиболее очевидный путь формирования таких объектов – испарение большой (классической) черной дыры вследствие установленного С. Хокингом теплового излучения [19] и образования на финальном этапе этого испарения устойчивого планковского остатка. Следует отметить, что все представленные в работе [19] вычисления справедливы лишь в рамках полуклассической аппроксимации, т. е. когда вторично квантованные поля материи рассматриваются на фоне классического пространства-времени. Но финальная часть данного излучения осуществляется только при планковских масштабах, т. е. в области, где квантово-гравитационные эффекты являются существенными и полуклассическая аппроксимация теряет силу. Как показано во многих работах, в этом случае может образоваться устойчивый планковский остаток [20; 31].

Однако в силу формулы (1) КЧД могут возникать в ранней Вселенной в качестве ПЧД в течение планковского времени $t_p \approx 10^{-43}$ с. Независимо от способа образования КЧД квантово-гравитационные эффекты для них являются существенными.

Во всех случаях можно найти квантово-гравитационные поправки для основных характеристик черных дыр, которые для КЧД будут значительными.

В частности, если при переходе к высоким (планковским) энергиям справедлив обобщенный принцип неопределенности [21–23]

$$(\delta X)(\delta P) \geq \frac{\hbar}{2} \left(1 + \frac{\alpha^2 l_p^2}{\hbar^2} (\delta P)^2 \right), \quad (2)$$

то существуют нижние пределы для радиуса горизонта событий $r = r_{\min}$ и массы $M = M_0$ черной дыры [23, formula (20)]:

$$r_{\min} = (\delta X)_0 = \sqrt{\frac{e}{2}} \alpha l_p, \quad M_0 = \frac{\alpha \sqrt{e}}{2\sqrt{2}} M_p, \quad (3)$$

где α , e – модельно-зависимые параметры первого порядка; $r_{\min} \propto l_p$, $M_0 \propto M_p$.

В рамках обобщенного принципа неопределенности (2) квантовые (точнее, квантово-гравитационные) коррекции температуры излучения Хокинга черной дыры массой M имеют вид [23]

$$T_{H,q} \approx \frac{1}{8\pi M l_p^2} \left(1 + \frac{1}{2e} \left(\frac{M_0}{M} \right)^2 + \frac{5}{8e^2} \left(\frac{M_0}{M} \right)^4 + \frac{49}{48e^3} \left(\frac{M_0}{M} \right)^6 + \dots \right), \quad (4)$$

где первый член является лидирующим.

Здесь и далее для скорости света c используется нормировка $c = 1$.

В случае применения этой нормировки для шварцшильдовых черных дыр имеет место формула [24]

$$r_{BH} = 2MG, \quad (5)$$

где $r_{BH} = r_M$ – радиус горизонта событий шварцшильдовой черной дыры. Тогда формула (4) может быть переписана в виде

$$T_{H,q} \approx \frac{1}{8\pi M l_p^2} \left(1 + \frac{1}{2e} \left(\frac{r_{\min}}{r_M} \right)^2 + \frac{5}{8e^2} \left(\frac{r_{\min}}{r_M} \right)^4 + \frac{49}{48e^3} \left(\frac{r_{\min}}{r_M} \right)^6 + \dots \right). \quad (6)$$

Из формул (5) и (6) непосредственно следует, что для черных дыр с массой и радиусом горизонта событий, близкими к минимальным ($M \approx M_0$, $r_M \approx r_{\min}$), в частности для КЧД, следующие после лидирующего члены в суммах (4) и (6) также вносят существенный вклад в температуру $T_{H,q}$ и должны учитываться.

Очевидно, что формулы (4) и (6) можно рассматривать как (квантово-гравитационную) деформацию температуры излучения Хокинга черной дыры $T_H = \frac{1}{8\pi M l_p^2}$ в полуклассической аппроксимации [24] с параметром деформации

$$\frac{r_{\min}^2}{R^2(A)} \doteq \alpha_{R(A)}, \quad (7)$$

где $R(A) = r_M$ – радиус горизонта событий черной дыры.

Следует отметить, что этот параметр деформации был введен ранее в работах [25; 26], когда изучалась высокоэнергетическая (при планковских масштабах) деформация квантовой механики в терминах деформированной квантово-механической матрицы плотности. Достоинством данного параметра является то, что он малый, безразмерный, и поэтому по нему удобно разлагать в ряд.

Аналогичные результаты справедливы и при вычислении других величин, в частности энтропии черных дыр.

Инфляционная модель и ПЧД, возникающие в доинфляционную эпоху

Метрика шварцшильдовой черной дыры имеет вид [27]

$$ds^2 = \left(1 - \frac{2MG}{r}\right) dt^2 - \left(1 - \frac{2MG}{r}\right)^{-1} dr^2 - r^2 d\Omega^2. \quad (8)$$

При исследовании ранней Вселенной для ПЧД метрика Шварцшильда (8) заменяется метрикой Шварцшильда – де Ситтера [30], которой наделяются шварцшильдовы черные дыры с малым радиусом горизонта событий, возникающие в доинфляционную эпоху:

$$ds^2 = -f(\tilde{r}) dt^2 + \frac{d\tilde{r}^2}{f(\tilde{r})} + \tilde{r}^2 d\Omega^2, \quad (9)$$

где $f(\tilde{r}) = 1 - \frac{2MG}{\tilde{r}} - \frac{\Lambda \tilde{r}^2}{3}$, \tilde{r} – малая величина, а Λ – космологическая постоянная.

Такая черная дыра в общем случае может иметь два горизонта, соответствующих двум разным нулям функции $f(\tilde{r})$, – горизонт событий черной дыры и космологический горизонт. В частности, так будет, когда величина M является малой [28; 29], и это как раз рассматриваемый случай в силу формулы (1).

Метрика (9) отличается от метрики (8) только членом $\frac{\Lambda \tilde{r}^2}{3}$ в функции $f(\tilde{r})$. Но согласно современным данным космологическая константа Λ исчезающе мала. Кроме того, мал радиус ПЧД \tilde{r} , следовательно, число $\frac{\Lambda \tilde{r}^2}{3}$ также мало. Таким образом, в этом случае метрики (8) и (9) с высокой точностью совпадают и из двух нулей функции $f(\tilde{r})$ выбирается тот, который соответствует горизонту событий черной дыры.

В общем случае в космологии, в частности инфляционной, метрика (9) записывается в терминах конформного времени η [30]:

$$ds^2 = a^2(\eta) \left\{ -d\eta^2 + \left(1 + \frac{\mu^3 \eta^3}{r^3}\right)^{\frac{4}{3}} \left[\left(\left(1 - \frac{\mu^3 \eta^3}{r^3}\right) / \left(1 + \frac{\mu^3 \eta^3}{r^3}\right) \right)^2 dr^2 + r^2 d\Omega^2 \right] \right\}, \quad (10)$$

где $\mu = \left(\frac{MGH_0}{2}\right)^{\frac{1}{3}}$ (H_0 – параметр де Ситтера – Хаббла), масштабный фактор a есть функция конформного времени η вида

$$a(\eta) = \frac{-1}{H(t_0)\eta}, \quad \eta < 0, \quad (11)$$

r удовлетворяет условию $r_0 < r < \infty$, а значение $r_0 = -\mu\eta$ в системе координат (10) соответствует сингулярности черной дыры.

В силу формулы (5) μ может быть записано следующим образом:

$$\mu = \left(\frac{r_M H_0}{4} \right)^{\frac{1}{3}}, \quad (12)$$

где $\tilde{r} = r_M$ – радиус черной дыры с метрикой Шварцшильда – де Ситтера (9), который, как указано в начале раздела, с высокой точностью удовлетворяет условию (5) для шварцшильдовой черной дыры. Кроме того, предполагается, что исходная черная дыра, метрика которой удовлетворяет формуле (9), по размеру строго превосходит «минимальную» черную дыру (3) и находится в ее поле:

$$r_M > r_{\min}, M > M_0.$$

Однако μ из формулы (12) имеет такой вид только без учета квантово-гравитационных поправок. В работе [23] эти поправки были учтены для произвольной шварцшильдовой черной дыры в рамках справедливости обобщенного принципа неопределенности (2). В статьях [33; 34] оценено минимальное приращение площади горизонта событий черной дыры, поглощающей частицу размером R с энергией E : $(\Delta A)_0 \approx 4l_p^2 (\ln 2) ER$. В квантовом рассмотрении $R \sim 2\delta X$ и $E \sim \delta P$ из формулы (2).

На основании этого результата в работе [23] было получено явное выражение для квантово-гравитационной поправки (обозначенной через $(\Delta A)_0$) к площади горизонта событий любой шварцшильдовой черной дыры, если имеет место формула (2) [23, formula (27)]:

$$(\Delta A)_0 \approx 4l_p^2 \ln 2 \exp \left(-\frac{1}{2} W \left(-\frac{1}{e} \frac{A_0}{A} \right) \right), \quad (13)$$

где A – площадь горизонта событий данной шварцшильдовой черной дыры; $A_0 = 4\pi(\delta X)_0^2$ – площадь горизонта событий «минимальной» КЧД (3). Тогда, учитывая выражение (7), формулу (13) можно переписать в виде

$$(\Delta A)_0 \approx 4l_p^2 \ln 2 \exp \left(-\frac{1}{2} W \left(-\frac{1}{e} \alpha_{R(A)} \right) \right). \quad (14)$$

Выражение $W \left(-\frac{1}{e} \alpha_{R(A)} \right)$ в правой части формулы (14) представляет значение в точке $-\frac{1}{e} \alpha_{R(A)}$ функции Ламберта $W(u)$, удовлетворяющей уравнению [23, formula (9); 35, formula (1.5)]

$$W(u)e^W(u) = u. \quad (15)$$

Ясно, что для черной дыры большого размера с площадью горизонта событий A величина параметра деформации $\alpha_{R(A)}$ исчезающе мала и близка к нулю. В этом случае значение $W \left(-\frac{1}{e} \alpha_{R(A)} \right)$ тоже находится вблизи $W(0)$. Легко видеть, что $W(0) = 0$ является явным решением уравнения (15). Тогда в правой части формулы (13) имеем

$$\exp \left(-\frac{1}{2} W \left(-\frac{1}{e} \alpha_{R(A)} \right) \right) \approx 1,$$

и, следовательно, с высокой точностью

$$(\Delta A)_0 = 4l_p^2 \ln 2.$$

Таким образом, для черных дыр большого размера, т. е. когда $A \gg A_0$, величина поправки (14) будет очень мала, и ее можно не учитывать.

Однако для шварцшильдовой черной дыры с малой площадью горизонта событий A величина $\alpha_{R(A)}$ является достаточно большой и приближается к единице, когда радиус горизонта событий r мал и близок к «минимальному» радиусу r_{\min} из формулы (3). В этом случае учет поправки к площади горизонта событий (14) будет необходим. Он может играть существенную роль в вычислении скорректированных космологических параметров в ранней Вселенной. Очевидно, что квантово-гравитационная поправка вида (13) и (14) является квантовой деформацией полуклассической теории черных дыр в рамках определения, данного в работе [36], с параметром деформации $\frac{A_0}{A} = \alpha_{R(A)}$.

Стоит отметить, что в указанном случае предполагается справедливость обобщенного принципа неопределенности (2), который устанавливает нижние пределы для радиуса горизонта событий и массы черной дыры (3). Но из этого условия не следует, что «минимальная» черная дыра с параметрами (3) обязательно существует.

В силу того что шварцшильдова черная дыра с учетом квантово-гравитационной коррекции площади горизонта событий остается шварцшильдовой, т. е.

$$A + (\Delta A)_0 = 4\pi R^2(A, q), \quad (16)$$

с использованием вышеприведенных формул можно найти $R(A, q)$ – значение радиуса горизонта событий с учетом квантово-гравитационной поправки (13).

Из формулы (16) получаем

$$R(A, q) = \sqrt{(4\pi)^{-1}(A + (\Delta A)_0)} = \sqrt{(4\pi)^{-1} \left(4\pi R^2(A) + 4l_p^2 \ln 2 \exp \left(-\frac{1}{2} W \left(-\frac{1}{e} \alpha_{R(A)} \right) \right) \right)}. \quad (17)$$

Ясно, что малые черные дыры, для которых поправка (13) будет существенной, не обязательно являются КЧД, и их радиус горизонта событий r_M может удовлетворять условию

$$r_M > r_{qbh}.$$

Если, как в работе [30], предположить, что в формуле (12) $\mu = \text{const}$, то замена ($r_M = R(A)$) \rightarrow ($r_{M_q} \doteq R(A, q)$) приводит к замене $H_0 \rightarrow H_{0,q}$, удовлетворяющей условию

$$\mu = \left(\frac{r_M H_0}{4} \right)^{\frac{1}{3}} = \left(\frac{r_{M_q} H_{0,q}}{4} \right)^{\frac{1}{3}}. \quad (18)$$

Так как потенциальная энергия инфляции $V(\varphi_0)$ связана с начальным параметром Хаббла H_0 уравнением Фридмана $H_0^2 = \frac{V(\varphi_0)}{3M_P^2}$, то из формулы (18) получаем квантово-гравитационные поправки для $V(\varphi_0)$:

$$V(\varphi_0) \rightarrow V(\varphi_0)_q = 3M_P^2 H_{0,q}^2 = \frac{3\mu^6}{16r_{M_q}^2} M_P^2.$$

Аналогично в этом случае могут быть найдены квантово-гравитационные поправки ко всем остальным инфляционным параметрам. Так, поправка к масштабному фактору $a(\eta)$ (11) определяется по формуле

$$a(\eta) \rightarrow a(\eta)_q \doteq \frac{-1}{H_{0,q} \eta}, \quad \eta < 0,$$

поправка к параметру Хаббла $H(\eta) = \frac{a'(\eta)}{a^2(\eta)}$ задается выражением

$$H \rightarrow H_q = \frac{a'(\eta)_q}{a^2(\eta)_q}, \quad (19)$$

а поправка к параметрам медленного скатывания, например, к ϵ имеет вид [32]

$$\left(\epsilon = -\frac{\dot{H}}{H^2} \right) \mapsto \left(\epsilon_q = -\frac{\dot{H}_q}{H_q^2} \right). \quad (20)$$

Штрих в формуле (19) обозначает дифференцирование по η , а точка в формуле (20) – дифференцирование по t .

Условие $\epsilon \ll 1$ для медленного скатывания в инфляционном сценарии [32] в силу поправки (20) трансформируется в условие $\epsilon_q \ll 1$, которое должно быть дополнительно исследовано для оценки границы $r_{M_q} = R(A, q)$, т. е. по сути границы параметра деформации $\alpha_{R(A)}$ из формул (14) и (17).

Если учитывать процесс излучения шварцшильдовой ПЧД, то в силу вышеприведенных результатов в качестве ее начальной массы надо брать не M , а $M_q = \frac{r_{M_q}}{2G}$. В общем случае процесс такого излучения в подавляющем большинстве работ, в частности в публикации [30], рассматривается только в рамках полуклассической аппроксимации (без учета квантово-гравитационных эффектов), и поэтому предполагается, что ПЧД может полностью испариться.

Однако в исследуемом случае этого произойти не может в силу справедливости обобщенного принципа неопределенности (2) и формирования в результате испарения минимального (неисчезающего) планковского остатка (3) [31].

Тогда можно получить оценку потери массы черной дыры при ее излучении, но уже с учетом квантово-гравитационной поправки из общих формул. Так, в рассматриваемом случае скорость потери массы черной дыры будет иметь вид [24]

$$\frac{dM_q}{dt} \sim \sigma T_{H,q}^4 A_{M_q}, \quad (21)$$

где $T_{H,q}$ – температура черной дыры массой M_q с учетом квантово-гравитационной поправки (4); A_{M_q} – площадь горизонта событий этой черной дыры ($A_{M_q} = 4\pi r_{M_q}^2 = 4\pi R^2(A, q)$ из формулы (16)); $\sigma = \frac{\pi^2 k^4}{60\hbar^3 c^2}$ – константа Стефана – Больцмана.

Тогда формула (21) эквивалентна выражению [24, formula (10.1.19)]

$$-\frac{dM_q}{dt} \sim b \left(\frac{M_p}{M_q} \right)^2 \left(\frac{M_p}{t_p} \right)^2 N, \quad (22)$$

где $b \approx 2,59 \cdot 10^{-6}$, а N – число видов частиц. Интегрируя уравнение (22) по выбранному промежутку времени, например по $\Delta t = t_{\text{infl}} - t_0$, где $t_0 \approx 10^{-43}$ с (планковское время) и $t_{\text{infl}} \approx 10^{-42}$ с (время начала инфляции), можно найти потерю массы черной дыры с учетом квантово-гравитационной поправки к моменту начала инфляции.

Следует отметить, что ПЧД малого радиуса не могут образовываться в результате инфляции, а возникают только до начала инфляции или в самом ее начале. В частности, ПЧД, формируемые в конце инфляции, не могут быть квантовыми, так как инфляция накладывает условие на нижний предел спектра масс ПЧД [16; 17]:

$$M > M_{\text{min}} = M_p \left(\frac{T_{RH}}{T_p} \right)^{-2},$$

где T_{RH} – температура постинфляционного разогрева [32]; $T_p \approx 10^{19}$ ГэВ – планковская температура. Из современной наблюдательной (экспериментальной) космологии непосредственно следует, что $T_{RH} \approx 10^{16}$ ГэВ [16], но тогда $M_{\text{min}} \approx 10^6 M_p \approx 10$ г, так как $M_p \approx 10^{-5}$ г. В этом случае $M \gg M_{\text{min}} \approx M_p$, следовательно, такая ПЧД не может быть квантовой. Таким образом, ПЧД малого радиуса в инфляционной космологии могут образовываться только в очень ранней Вселенной, т. е. до начала инфляции или в самом ее начале.

Заключение

В настоящей статье продемонстрировано, как в явном виде могут быть вычислены квантово-гравитационные поправки к основным космологическим параметрам в инфляционном сценарии, порожденные ПЧД в доинфляционную эпоху (ранняя Вселенная). Из представленных формул непосредственно следует, что для ПЧД малого радиуса эти поправки особенно велики, и потому они могут внести существенные коррективы в основные параметры инфляции.

Несмотря на то что вывод вышеприведенных формул прост и непосредственно основан на квантовой теории черных дыр, полученные результаты являются новыми и потенциально важными для исследования процессов в ранней Вселенной.

Новизна полученных результатов заключается в том, что до этого квантово-гравитационные эффекты для ПЧД в рамках инфляционной космологии не учитывались, и ПЧД рассматривались в рамках полуклассической аппроксимации независимо от времени их возникновения. Однако, как показывают формулы (1)–(4) и (6), а также данные работ [9; 10; 20–23], в очень ранние времена (близкие к планковским) это будет уже неверным, и квантово-гравитационные поправки могут существенно сдвигать инфляционные параметры.

Согласно результатам, полученным в статье [3], квантовая теория поля [2] в предположениях данной работы имеет верхнюю границу применимости \tilde{E} , которая намного ниже планковской энергии ($\tilde{E} \ll E_p$). Очевидно, что квантово-гравитационные поправки, о которых шла речь выше, будут наиболее существенны в интервале энергий $\tilde{E} < E \leq E_p$, т. е. в той области, где актуализируется минимальная длина (3) и теория перестает быть локальной.

Как известно, инфляционная космология характеризуется космологическими возмущениями различной природы (скалярными, векторными, тензорными [32; 37; 38]; векторные возмущения обычно не учитываются, так как они очень быстро спадают). Тогда из результатов настоящей статьи следует, что на ранней стадии инфляции должны быть учтены квантово-гравитационные поправки этих возмущений, порожденные ПЧД.

Библиографические ссылки / References

1. Shalyt-Margolin A. The equivalence principle applicability boundaries, measurability, and UVD in QFT. *Nonlinear Phenomena in Complex Systems*. 2021;24(1):38–55. DOI: 10.33581/1561-4085-2021-24-1-38-55.
2. Weinberg S. *The quantum theory of fields*. Cambridge: Cambridge University Press; 1995. 2 volumes.
3. Shalyt-Margolin A. The quantum field theory boundaries applicability and black holes thermodynamics. *International Journal of Theoretical Physics*. 2021;60(5):1858–1869. DOI: 10.1007/s10773-021-04804-1.
4. Shalyt-Margolin A. The discrete and continuous quantum field theories and natural ultraviolet cutting-off. *Nonlinear Phenomena in Complex Systems*. 2021;24(3):280–291. DOI: 10.33581/1561-4085-2021-24-3-280-291.
5. Misner CW, Thorne KS, Wheeler JA. *Gravitation*. San Francisco: W. H. Freeman and Company; 1973. XXVII, 1278 p.
6. Hawking SW. Spacetime foam. *Nuclear Physics B*. 1978;144(2–3):349–362. DOI: 10.1016/0550-3213(78)90375-9.
7. Garay LJ. Spacetime foam as a quantum thermal bath. *Physical Review Letters*. 1998;80(12):2508. DOI: 10.1103/PhysRevLett.80.2508.
8. Scardigli F. Black hole entropy: a spacetime foam approach. *Classical and Quantum Gravity*. 1997;14(7):1781–1793. DOI: 10.1088/0264-9381/14/7/014.
9. Scardigli F. Generalized uncertainty principle in quantum gravity from micro-black hole gedanken experiment. *Physics Letters B*. 1999;452(1–2):39–44. DOI: 10.1016/S0370-2693(99)00167-7.
10. Scardigli F. Gravity coupling from micro-black holes. *Nuclear Physics B: Proceedings Supplements*. 2000;88(1–3):291–294. DOI: 10.1016/S0920-5632(00)00788-X.
11. Green AM, Kavanagh BJ. Primordial black holes as a dark matter candidate. *Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics*. 2021;48(4):043001. DOI: 10.1088/1361-6471/abc534.
12. Zel'dovich YaB, Novikov ID. The hypothesis of cores retarded during expansion and the hot cosmological model. *Soviet Astronomy – AJ*. 1967;10(4):602–603.
13. Hawking S. Gravitationally collapsed objects of very low mass. *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society*. 1971;152(1):75–78. DOI: 10.1093/mnras/152.1.75.
14. Carr BJ, Hawking SW. Black holes in the early Universe. *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society*. 1974;168(2):399–415. DOI: 10.1093/mnras/168.2.399.
15. Carr BJ. The primordial black hole mass spectrum. *The Astrophysical Journal*. 1975;201:1–19. DOI: 10.1086/153853.
16. Carr BJ. Primordial black holes as a probe of cosmology and high energy physics. In: Giulini DJW, Kiefer C, Lämmerzahl C, editors. *Quantum gravity: from theory to experimental search*. Berlin: Springer-Verlag; 2003. p. 301–321 (Lecture notes in physics; volume 631). DOI: 10.1007/978-3-540-45230-0_7.
17. Carr BJ. Primordial black holes – recent developments. In: Chen P, Bloom E, Madejski G, Patrosian V, editors. *Proceedings of the 22nd Texas symposium on relativistic astrophysics at Stanford University; 2004 December 13–17; Stanford, USA*. [S. l.]: [s. n.]; 2004. p. 89–100.
18. Calmet X, Carr B, Winstanley E. *Quantum black holes*. Heidelberg: Springer; 2014. XI, 104 p. (SpringerBriefs in physics). DOI: 10.1007/978-3-642-38939-9.
19. Hawking SW. Particle creation by black holes. *Communications in Mathematical Physics*. 1975;43(3):199–220. DOI: 10.1007/BF02345020.
20. 't Hooft G, Giddings SB, Rovelli C, Nicolini P, Mureika J, Kaminski M, et al. Panel discussion, «The duel»: the good, the bad, and the ugly of gravity and information. In: Nicolini P, Kaminski M, Mureika J, Bleicher M, editors. *2nd Karl Schwarzschild meeting on gravitational physics; 2015 July 20–24; Frankfurt am Main, Germany*. Cham: Springer; 2018. p. 13–35 (Springer proceedings in physics; volume 208). DOI: 10.1007/978-3-319-94256-8_2.
21. Adler RJ, Santiago DI. On gravity and the uncertainty principle. *Modern Physics Letters A*. 1999;14(20):1371–1378. DOI: 10.1142/s0217732399001462.
22. Tawfik A, Diab A. Generalized uncertainty principle: approaches and applications. *International Journal of Modern Physics D*. 2014;23(12):1430025. DOI: 10.1142/S0218271814300250.
23. Nouicer K. Quantum-corrected black hole thermodynamics to all orders in the Planck length. *Physics Letters B*. 2007;646(2–3):63–71. DOI: 10.1016/j.physletb.2006.12.072.
24. Frolov VP, Novikov ID. *Black hole physics: basic concepts and new developments*. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers; 1998. XXI, 770 p. (Fundamental theories of physics; volume 96).
25. Shalyt-Margolin AE, Suarez JG. Quantum mechanics at Planck's scale and density matrix. *International Journal of Modern Physics D*. 2003;12(7):1265–1278. DOI: 10.1142/s0218271803003700.
26. Shalyt-Margolin AE, Tregubovich AY. Deformed density matrix and generalized uncertainty relation in thermodynamics. *Modern Physics Letters A*. 2004;19(1):71–81. DOI: 10.1142/s0217732304012812.
27. Wald RM. *General relativity*. Chicago: University of Chicago Press; 1984. XIII, 491 p. DOI: 10.7208/chicago/9780226870373.001.0001.
28. Nariai H. On some static solutions of Einstein's gravitational field equations in a spherically symmetric case. *Science Reports of the Tohoku University. Series I, Physics, chemistry, astronomy*. 1950;34(3):160–167.
29. Nariai H. On a new cosmological solution of Einstein's field equations of gravitation. *Science Reports of the Tohoku University. Series I, Physics, chemistry, astronomy*. 1951;35(1):62–67.
30. Prokopec T, Reska P. Scalar cosmological perturbations from inflationary black holes. *Journal of Cosmology and Astroparticle Physics*. 2011;3:050. DOI: 10.1088/1475-7516/2011/03/050.
31. Adler RJ, Chen P, Santiago DI. The generalized uncertainty principle and black hole remnants. *General Relativity and Gravitation*. 2001;33(12):2101–2108. DOI: 10.1023/A:1015281430411.
32. Gorbunov DS, Rubakov VA. *Introduction to the theory of the early Universe: cosmological perturbations and inflationary theory*. Singapore: World Scientific; 2011. XIII, 489 p.
33. Bekenstein JD. Black holes and entropy. *Physical Review D*. 1973;7(8):2333. DOI: 10.1103/PhysRevD.7.2333.
34. Bekenstein JD. Black holes and the second law. *Lettere al Nuovo Cimento*. 1972;4(15):737–740. DOI: 10.1007/BF02757029.
35. Corless RM, Gonnet GH, Hare DEG, Jeffrey DJ, Knuth DE. On the Lambert W function. *Advances in Computational Mathematics*. 1996;5:329–359. DOI: 10.1007/BF02124750.
36. Faddeev LD. [Mathematical view on the evolution of physics]. *Priroda*. 1989;5:11–16. Russian.
37. Weinberg S. *Cosmology*. Oxford: Oxford University Press; 2008. XVII, 593 p.
38. Mukhanov V. *Physical foundations of cosmology*. Cambridge: Cambridge University Press; 2005. XX, 421 p. DOI: 10.1017/CBO9780511790553.

ВЫДАЮЩИЕСЯ УЧЕНЫЕ

OUTSTANDING SCIENTISTS



— — — — —

**АНТОН АНТОНОВИЧ
ЛАБУДА
(1923–2011)**

**Anton Antonovich
LABUDA
(1923–2011)**

— — — — —

9 апреля 2023 г. исполнилось 100 лет со дня рождения советского и белорусского ученого-физика, доктора физико-математических наук, профессора, заслуженного работника народного образования Республики Беларусь Антона Антоновича Лабуды.

А. А. Лабуда родился в 1923 г. в д. Бакуны Пружанского района Брестской области (на территории Западной Белоруссии) в крестьянской семье. Его родители – трудолюбивые белорусы Антон Ульянович и Феодосия Прокоповна – сделали все, что от них зависело, чтобы дать сыну образование. Антон Антонович окончил четырехлетнюю сельскую школу и польскую общеобразовательную гимназию в Пружанах, а после присоединения Западной Белоруссии к БССР учился в русской средней школе. А. А. Лабуда – участник Великой Отечественной войны. С 1944 по 1945 г. он воевал в Восточной Пруссии, затем в Маньчжурии в полковой разведке в составе 3-го Белорусского и Забайкальского фронтов. Награжден орденом Славы III степени, орденом Красной Звезды, орденом Отечественной войны II степени и многими медалями, в том числе медалями «За взятие Кёнигсберга», «За победу над Германией в Великой

Отечественной войне 1941–1945 гг.», «За победу над Японией». После демобилизации в 1947 г. работал учителем начальной школы, с отличием окончил пружанское педучилище. С 1949 по 1954 г. учился на физическом отделении физико-математического факультета БГУ, затем – в аспирантуре. С 1957 по 2010 г. работал в БГУ, пройдя путь от ассистента до профессора. В 1959 г. защитил кандидатскую диссертацию на тему «Исследование импульсного разряда через тонкую металлическую проволочку», а в 1988 г. – докторскую диссертацию на тему «Спектрально-оптическая диагностика плазмы для целей микроэлектроники». С 1960 по 1976 г. являлся заместителем декана физического факультета. В 1976 г. возглавил открывшийся факультет радиофизики и электроники, которым руководил до 1980 г., затем с 1980 по 1992 г. заведовал кафедрой физической электроники, с 1992 г. занимал должность профессора этой кафедры.

Областью научных интересов А. А. Лабуды являлись физика и диагностика газоразрядной плазмы и ее применение в электронике и микроэлектронике. По инициативе Антона Антоновича в 1980 г.

создано учебно-научно-производственное объединение «БГУ – НПО “Интеграл”» и начата целевая подготовка специалистов по микроэлектронике для этого предприятия, затем здесь же был открыт филиал кафедры физической электроники. В 1988 г. при кафедре физической электроники организована научно-исследовательская лаборатория спектрального контроля в плазменной технологии, основателем и научным руководителем которой являлся профессор А. А. Лабуда. Разработанные в лаборатории системы спектрального контроля и автоматического управления неоднократно демонстрировались на Выставке достижений народного хозяйства СССР, международных и республиканских выставках, успешно использовались на многих отечественных и зарубежных предприятиях, а также в учебном процессе.

А. А. Лабуда является автором более 230 научных публикаций, среди которых – изданные в соавторстве учебно-методические пособия к практикумам по физике полупроводниковых приборов, полупроводниковой электронике, микроэлектронике, плазменной технологии в микроэлектронике, а также курсы лекций по физической микроэлектронике, теоретическим основам радиотехники, основам радиоэлектроники. Антоном Антоновичем получены 10 авторских свидетельств на изобретения. Он подготовил 1 доктора и 6 кандидатов наук.

На протяжении длительного времени А. А. Лабуда поддерживал тесное научное сотрудниче-

ство с учеными Софийского университета имени Климента Охридского (Болгария), Ягеллонского университета и Кошалинского технического университета (Польша), Йенского университета имени Фридриха Шиллера (Германия), неоднократно читал лекции за границей и выступал с докладами на международных конференциях. Он являлся членом оргкомитета Международной летней школы по плазменной инженерии поверхности в Кошалине, членом-корреспондентом Международного научного радиосоюза (*Union Radio-Scientifique Internationale*, URSI) по разделу плазменных исследований, членом Польского вакуумного общества, входил в состав редколлегии журнала «Вакуумная техника и технология», а также в состав ученого совета факультета радиофизики и электроники, специализированного совета по защите диссертаций.

За многолетнюю плодотворную научно-педагогическую и организационную деятельность в 1992 г. А. А. Лабуде присвоено почетное звание «Заслуженный работник народного образования Республики Беларусь». Он был награжден грамотой Президиума Верховного Совета БССР, почетными грамотами Министерства высшего и среднего специального образования БССР и ректората БГУ, нагрудным знаком Министерства высшего и среднего специального образования СССР «За отличные успехи в работе».

Умер А. А. Лабуда 8 апреля 2011 г.

*В. М. Борздов*¹

¹*Владимир Михайлович Борздов* – доктор физико-математических наук, профессор; заведующий кафедрой физической электроники и нанотехнологий факультета радиофизики и компьютерных технологий Белорусского государственного университета.

Vladimir M. Borzdov, doctor of science (physics and mathematics), full professor; head of the department of physical electronics and nanotechnologies, faculty of radiophysics and computer technologies, Belarusian State University.

E-mail: borzdov@bsu.by

СОДЕРЖАНИЕ

ЛАЗЕРНАЯ ФИЗИКА

<i>Альремеити Дж., Гончаренко И. А.</i> Одночастотный лазер на базе легированного ионами $\text{Er} - \text{Yb}$ оптического волокна с волоконными брэгговскими решетками.....	4
--	---

ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ

<i>Курилкина С. Н., Алблооши Р. Ё. А. А., Ропот П. И., Варанецкий А. М.</i> Световые пучки, генерируемые аксиконом с закругленной вершиной.....	14
<i>Скақун В. В., Анасанович В. В.</i> Расчет распределения числа фотоотсчетов в системах регистрации флуктуаций интенсивности флуоресценции.....	22
<i>Пантелеева Е. П., Кабанова О. С., Мельникова Е. А.</i> Формирование переключаемых дифракционных решеток в слое жидкого кристалла методом поляризационной голографии.....	39

ФИЗИКА И ТЕХНИКА ПОЛУПРОВОДНИКОВ

<i>Пилипенко В. А., Ковальчук Н. С., Жигулин Д. В., Шестовский Д. В., Анищук В. М., Понарядов В. В.</i> Влияние длительной и быстрой термообработок на формирование границы раздела алюминий – поликремний.....	51
<i>Евсейчик М. А., Максимов С. Е., Хорошко Л. С., Баглов А. В., Королик О. В., Якимчук Д. В., Рузимурадов О. Н., Маматкулов Ш. И.</i> Одностадийный темплатный золь-гель синтез тонкопленочных фотокатализаторов на основе TiO_2	58

ФИЗИКА КОНДЕНСИРОВАННОГО СОСТОЯНИЯ

<i>Волобуев В. С., Долгий В. К., Почтенный А. Е.</i> Электрофизические свойства тонких пленок оксида индия.....	66
---	----

ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ ФИЗИКА

<i>Шалыт-Марголин А. Э.</i> Некоторые аспекты первичных черных дыр в ранней Вселенной и инфляционная космология.....	74
--	----

ВЫДАЮЩИЕСЯ УЧЕНЫЕ

Антон Антонович Лабуда (1923–2011).....	82
---	----

CONTENTS

LASER PHYSICS

<i>Alrumeithi J., Goncharenko I. A.</i> A single-frequency laser on the base of Er – Yb co-doped optical fiber with fiber Bragg gratings	4
--	---

OPTICS AND SPECTROSCOPY

<i>Kurilkina S. N., Alblooshi R. Y. A. A., Ropot P. I., Varanetski A. M.</i> Light beams generated by oblate-tip axicon.....	14
<i>Skakun V. V., Apanasovich V. V.</i> Calculation of photon counting distribution in fluorescence intensity fluctuations registration systems	22
<i>Pantsialejeva Ye. P., Kabanova O. S., Melnikova E. A.</i> Formation of switchable liquid crystal diffraction gratings by polarisation holography	39

SEMICONDUCTOR PHYSICS AND ENGINEERING

<i>Pilipenka U. A., Kovalchuk N. S., Zhyhulin D. V., Shestovski D. V., Anishchik V. M., Ponariadov V. V.</i> Effect of long-term and rapid thermal treatments on the formation of the aluminum – polysilicon interface.....	51
<i>Yauseichyk M. A., Maksimov S. E., Khoroshko L. S., Baglov A. V., Korolik O. V., Yakimchuk D. V., Ruzimuradov O. N., Mamatkulov Sh. I.</i> One-step template sol-gel synthesis of TiO ₂ -based thin-film photocatalysts.....	58

CONDENSED STATE PHYSICS

<i>Volobuev V. S., Dolgiy V. K., Pochtenny A. E.</i> Electrophysical properties of thin films of indium oxide.....	66
--	----

THEORETICAL PHYSICS

<i>Shalyt-Margolin A. E.</i> Some aspects of primary black holes in the early Universe and inflationary cosmology	74
---	----

OUTSTANDING SCIENTISTS

Anton Antonovich Labuda (1923–2011).....	82
--	----

Журнал включен Высшей аттестационной комиссией Республики Беларусь в Перечень научных изданий для опубликования результатов диссертационных исследований по техническим (экспериментальная и прикладная физика; микро- и нанoeлектроника) и физико-математическим наукам.

Журнал включен в библиографические базы данных научных публикаций «Российский индекс научного цитирования» (РИНЦ), China National Knowledge Infrastructure.

**Журнал Белорусского
государственного университета. Физика.
№ 2. 2023**

Учредитель:
Белорусский государственный университет

Юридический адрес: пр. Независимости, 4,
220030, г. Минск.

Почтовый адрес: пр. Независимости, 4,
220030, г. Минск.

Тел. (017) 259-70-74, (017) 259-70-75.

E-mail: jphys@bsu.by

URL: <https://journals.bsu.by/index.php/physics>

«Журнал Белорусского государственного университета. Физика» издается с января 1969 г. До 2017 г. выходил под названием «Вестник БГУ. Серия 1, Физика. Математика. Информатика» (ISSN 1561-834X).

Редактор *О. А. Семенец*
Технический редактор *В. В. Пижкова*
Корректор *Л. А. Меркуль*

Подписано в печать 31.05.2023.
Тираж 110 экз. Заказ 160.

Республиканское унитарное предприятие
«Издательский центр Белорусского
государственного университета».
ЛП № 02330/117 от 14.04.2014.
Ул. Красноармейская, 6, 220030, г. Минск.

© БГУ, 2023

**Journal
of the Belarusian State University. Physics.
No. 2. 2023**

Founder:
Belarusian State University

Registered address: 4 Niezaliežnasci Ave.,
Minsk 220030.

Correspondence address: 4 Niezaliežnasci Ave.,
Minsk 220030.

Tel. (017) 259-70-74, (017) 259-70-75.

E-mail: jphys@bsu.by

URL: <https://journals.bsu.by/index.php/physics>

«Journal of the Belarusian State University. Physics» published since January, 1969. Until 2017 named «Vestnik BGU. Seriya 1, Fizika. Matematika. Informatika» (ISSN 1561-834X).

Editor *O. A. Semenets*
Technical editor *V. V. Pishkova*
Proofreader *L. A. Merkul'*

Signed print 31.05.2023.
Edition 110 copies. Order number 160.

Republic Unitary Enterprise
«Publishing Center of the Belarusian State University».
License for publishing No. 02330/117, 14 April, 2014.
6 Cyrvonaarmiejskaja Str., Minsk 220030.

© BSU, 2023