

СИБИРСКИЙ ФИЗИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ

Научный журнал
Основан в 2006 году

2018. Том 13, № 4

СОДЕРЖАНИЕ

Физика высоких энергий, ускорителей и высокотемпературной плазмы

- Аржанников А. В., Беденко С. В., Иванов А. А., Модестов Д. Г., Приходько В. В., Синицкий С. Л., Шаманин И. В., Шмаков В. М., Титова А. М.* Изменения изотопного состава топливной сборки гибридного реактора с источником нейтронов на основе D-D-реакции в плазменном столбе (компьютерное моделирование длительного рабочего цикла) 5

Физика жидкости, нейтральных и ионизованных газов

- Попов В. Н.* Оценка конвективного массопереноса при импульсном лазерном нагреве поверхности стали 25
- Шевченко А. К., Яковенко С. Н.* Моделирование развития неустойчивости в плоской затопленной струе при небольших числах Рейнольдса 35
- Абдуракипов С. С., Дулин В. М., Токарев М. П., Маркович Д. М.* Анализ когерентных структур в осесимметричной и шевронной струях 46

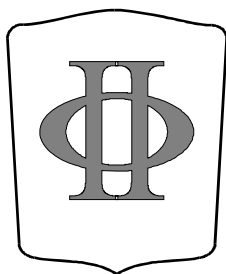
Физика твердого тела, полупроводников, наноструктур

- Родякина Е. Е., Ситников С. В., Роголо Д. И., Латышев А. В.* Перераспределение атомных ступеней на поверхности кремния (001) при сублимации в условиях нагрева постоянным электрическим током 60
- Золкин А. С., Семерикова А. И., Чепкасов С. Ю., Хомяков М. Н.* Влияние имплантации ионов углерода на адгезию и свойства аморфных углеродных пленок на германии 67
- Ткаченко О. А., Ткаченко В. А., Бакшеев Д. Г.* Прохождение электрона через туннельный плавный барьер в высокочастотном поле 74
- Третьяков Д. Б., Коляко А. В., Плешков А. С., Энтин В. М., Рябцев И. И., Неизвестный И. Г.* Исследование статистики регистрации одиночных фотонов двумя фотодетекторами для применений в квантовой криптографии 91

Комбинационное рассеяние – 90 лет исследований

- От редколлегии 105
- Jersch J., Demokritov S.* Complex for Nanoscale Researches by Using TERS, SNOM, BLS, and SPM Techniques 106
- Стрекаль Н. Д., Аскирка В. Ф., Маскевич С. А.* Разделение вкладов КР и люминесценции в спектрах хромофоров в ближнем поле у поверхности с плазмонными свойствами 111

Гайслер В. А., Дербезов И. А., Гайслер А. В., Дмитриев Д. В. Люминесценция одиночных квантовых точек InAs и AlInAs	117
Мороз Т. Н., Горайнов С. В., Пономарчук В. А. Структурные особенности природных углеродистых веществ разного генезиса по данным спектроскопии комбинационного рассеяния света	126
Горайнов С. В., Бородин У. О. Исследование методом спектроскопии комбинационного рассеяния света сверхгидратации цеолита ломонтита при высоком давлении в различных водосодержащих средах	131
Чернышев В. А., Рюшин В. С. Фононный спектр MeF_2 ($Me = Ca, Sr, Ba, Pb$) в кубической и орторомбической фазах: <i>ab initio</i> расчет	138
Информация для авторов	144



Сибирский физический журнал

Журнал адресован профессорско-преподавательскому составу университетов, научным работникам, аспирантам и студентам, которые интересуются новейшими результатами фундаментальных и прикладных исследований по различным направлениям физики и физико-технической информатики.

Редакция принимает к опубликованию обзоры и оригинальные научные статьи по тем направлениям физики, которые, главным образом, представлены на кафедрах физического факультета НГУ. Принимаются также к рассмотрению статьи по другим направлениям, если в ходе рецензирования подтверждается их высокий научный статус.

Мы приглашаем научные коллективы и отдельных авторов направлять к нам для опубликования материалы по следующим основным разделам:

- квантовая оптика, квантовая электроника;
- радиофизика и электроника;
- теоретическая и математическая физика;
- физика жидкости, нейтральных и ионизованных газов;
- физика высоких энергий, ускорителей и высокотемпературной плазмы;
- физика твердого тела, полупроводников, наноструктур;
- физика химическая, биологическая и медицинская;
- информатика, информационно-коммуникационные технологии;
- учебно-методическое обеспечение преподавания физики.

Периодичность выхода издания – 4 раза в год. Журнал включен в перечень ВАК выпускаемых в Российской Федерации научных и научно-технических изданий, в которых рекомендуется публикация основных результатов диссертаций на соискание ученой степени кандидата и доктора наук.

SIBERIAN JOURNAL OF PHYSICS

Scientific Journal

Since 2006

In Russian

2018. Volume 13, № 4

CONTENTS

High-Energy and Accelerator Physics, Physics of High-Temperature Plasma

- Arzhannikov A. V., Bedenko S. V., Ivanov A. A., Modestov D. G., Prikhodko V. V., Sinitsky S. L., Shamanin I. V., Shmakov V. M., Titova A. M.* Isotopic Composition Changes in the Fuel Assembly of a Hybrid Reactor with a Neutron Source Based on D-D Reaction in Plasma Column (Computer Simulation of a Long Operation Cycle) 5

Physics of a Fluid, Neutral and Ionized Gases

- Popov V. N.* Evaluation of Convective Mass Transfer during Pulsed Laser Heating of Steel Surface 25
- Shevchenko A. K., Yakovenko S. N.* Simulation of Instability Development in a Plane Submerged Jet at Low Reynolds Numbers 35
- Abdurakipov S. S., Dulin V. M., Tokarev M. P., Markovich D. M.* Analysis of Coherent Structures in Circular and Chevron Jets 46

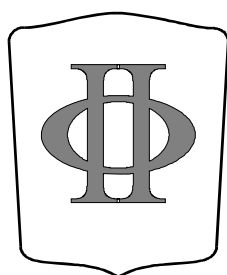
Solid-State and Semiconductor Physics, Physics of Nanostructures

- Rodyakina E. E., Sitnikov S. V., Rogilo D. I., Latyshev A. V.* Rearrangement of Atomic Steps on the Silicon (001) Surface at Sublimation under Heating by Direct Electric Current 60
- Zolkin A. S., Semerikova A. I., Chepkasov S. Yu., Khomyakov M. N.* Influence of the Carbon Ion Implantation on the Adhesion and Properties of Amorphous Carbon Films on Germanium 67
- Tkachenko O. A., Tkachenko V. A., Baksheyev D. G.* Electron Transmission through a Smooth Tunnel Barrier in High-Frequency Field 74
- Tretyakov D. B., Kolyako A. V., Pleshkov A. S., Entin V. M., Ryabtsev I. I., Neizvestny I. G.* Investigation of the Statistics of Single-Photon Counting by Two Photodetectors for Applications in Quantum Cryptography 91

Raman Spectroscopy – 90 Years of Investigations

- Jersch J., Demokritov S.* Complex for Nanoscale Researches by Using TERS, SNOM, BLS, and SPM Techniques 106
- Strekal N. D., Askirka V. F., Maskevich S. A.* Selection of Raman or Fluorescence Contributions in Chromophores Spectra Near the Surface with Plasmon Properties 111
- Gaisler V. A., Derebezov I. A., Gaisler A. V., Dmitriev D. V.* Luminescence of InAs and AlInAs Single Quantum Dots 117

Moroz T. N., Goryainov S. V., Ponomarchuk V. A. Structural Peculiarities of Natural Carbonaceous Materials: Raman Spectroscopy Data	126
Goryainov S. V., Borodina U. O. High Pressure Raman Study of Laumontite Overhydration in Different Water-Containing Media	131
Chernyshev V. A., Ryumshin V. S. Phonon Spectrum MeF_2 ($Me = Ca, Sr, Ba, Pb$) Cubic and Ortho Phase: <i>ab initio</i> Calculation	138
Instructions to Contributors	144



Siberian Journal of Physics

The magazine is addressed to the faculty of universities, science officers, post-graduate students and students who are interested in the newest results fundamental and applied researches in various directions of physics and physico-technical computer science.

Edition accepts to publication reviews and original scientific articles in those directions of physics which, mainly, are presented on faculties of physical faculty of NSU. Are accepted also to viewing article in other directions if during reviewing their high title proves to be true.

We invite scientific personnel and separate authors to guide to us for publication materials on following basic sections:

- Quantum optics, quantum electronics;
- Radiophysics and electronics;
- The theoretical and mathematical physics;
- Physics of a fluid, neutral and ionized gases;
- High-energy and accelerator physics, physics of high-temperature plasma;
- Solid-state and semiconductor physics, physics of nanostructures;
- Chemical, biological and medical physics;
- Computer science, information-communication technologies;
- Educational and methodical provision of teaching of physics

Periodicity of an exit of the edition – 4 times a year. The magazine is included in list Higher Attestation Committee of scientific and technical editions in Russian Federation in which the publication of the basic results of dissertations on competition of a scientific degree of the doctor and candidate of sciences is recommended.

Editor in Chief Andrej V. Arzhannikov
Executive Secretary Sofiya A. Arzhannikova

Editorial Board of the Journal

S. V. Alekseenko, A. V. Arzhannikov, A. L. Aseev, S. N. Bagaev, A. E. Bondar
 S. A. Dzyuba, S. I. Eidelman, V. S. Fadin, V. M. Fomin, A. A. Ivanov, B. A. Knyazev, V. V. Kozlov, E. V. Kozyrev
 A. V. Latyshev, I. B. Logashenko, V. P. Maltsev, A. G. Pogosov, A. L. Reznik, A. V. Shalagin
 V. I. Telnov, S. V. Tsibulya

*The series is published quarterly in Russian since 2006
 by Novosibirsk State University Press*

The address for correspondence

Physics Department, Novosibirsk State University
 Pirogov Street 2, Novosibirsk, 630090, Russia
 Tel. +7 (383) 363 44 25

E-mail address: physics@vestnik.nsu.ru

On-line version: <http://elibrary.ru>; <http://www.phys.nsu.ru/vestnik/>

УДК 621.039.5, 621.039.6, 533.9.07
DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-5-24

Изменения изотопного состава топливной сборки гибридного реактора с источником нейтронов на основе D-D-реакции в плазменном столбе (компьютерное моделирование длительного рабочего цикла)

**А. В. Аржанников¹, С. В. Беденко², А. А. Иванов¹, Д. Г. Модестов³
В. В. Приходько¹, С. Л. Сеницкий¹, И. В. Шаманин²
В. М. Шамаков³, А. М. Титова³**

¹ *Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН
Новосибирск, Россия*

² *Национальный исследовательский Томский политехнический университет
Томск, Россия*

³ *Российский федеральный ядерный центр ВНИИТФ им. Е. И. Забабахина
Снежинск, Россия*

Аннотация

Для изучения нейтронно-физических характеристик ториево-плутониевого топлива ранее нами была предложена установка, состоящая из подкритической сборки высокотемпературного ядерного реактора и источника дополнительных нейтронов в виде плазменного столба, пронизывающего эту сборку. Дополнительные нейтроны генерируются в результате реакции D-D-синтеза в этом столбе высокотемпературной плазмы, которая создается и удерживается в длинной магнитной ловушке. В статье представлены результаты компьютерного моделирования эволюции ядерного топлива в предложенной установке. Моделирование проводилось для параметров плазмы, при которых реакция D-D-синтеза дает суммарный выход $N = 2 \cdot 10^{16}$ нейтронов в секунду из плазменного столба внутри подкритической сборки длиной 3 м. Рассмотрены два варианта работы топливной сборки, отличающиеся содержанием плутония в исходном ториево-плутониевом топливе. В первом варианте исходная доля плутония составляет 4 %, что обеспечивает подкритическое состояние топливной сборки с эффективным коэффициентом размножения нейтронов $k_{\text{eff}} = 0,95$. Во втором варианте доля плутония повышена до 5 %, что позволяет иметь рабочее состояние сборки с $k_{\text{eff}} = 0,99$. Выбор таких величин процентного содержания плутония был сделан по результатам детального компьютерного моделирования основных нейтронно-физических процессов в активной зоне реактора. Эволюция изотопного состава топлива рассчитывалась за все время эксплуатации сборки – 3 000 дней. В процессе «горения» топлива при неизменном суммарном выходе нейтронов из плазменного столба было обнаружено уменьшение коэффициента размножения нейтронов и мощности процесса ядерного деления в активной зоне реактора с течением времени от начала рабочего цикла. Для компенсации этого снижения мощности установки рассчитано необходимое увеличение выхода нейтронов от плазменного источника. В статье приведены результаты моделирования и обсуждаются различные аспекты полученных решений.

Ключевые слова

ториевая подкритическая сборка, источник термоядерных нейтронов, открытая магнитная ловушка, эволюция топливных компонентов

Благодарности

Авторы выражают благодарность Д. В. Юрову за предоставление результатов компьютерного моделирования по оптимизации параметров плазмы в длинной магнитной ловушке применительно к ее использованию в качестве источника дополнительных нейтронов в подкритической топливной сборке

Для цитирования

Аржанников А. В., Беденко С. В., Иванов А. А., Модестов Д. Г., Приходько В. В., Сеницкий С. Л., Шаманин И. В., Шамаков В. М., Титова А. М. Изменения изотопного состава топливной сборки гибридного реактора с источником нейтронов на основе D-D-реакции в плазменном столбе (компьютерное моделирование длительного рабочего цикла) // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 4. С. 5–24. DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-5-24

© А. В. Аржанников, С. В. Беденко, А. А. Иванов, Д. Г. Модестов,
В. В. Приходько, С. Л. Сеницкий, И. В. Шаманин,
В. М. Шамаков, А. М. Титова, 2018

Isotopic Composition Changes in the Fuel Assembly of a Hybrid Reactor with a Neutron Source Based on D-D Reaction in plasma Column (Computer Simulation of a Long Operation Cycle)

A. V. Arzhannikov¹, S. V. Bedenko², A. A. Ivanov¹, D. G. Modestov³
V. V. Prikhodko¹, S. L. Sinitsky¹, I. V. Shamanin²
V. M. Shmakov³, A. M. Titova³

¹ Budker Institute of Nuclear Physics SB RAS
Novosibirsk, Russian Federation

² National Research Tomsk Polytechnic University
Tomsk, Russian Federation

³ Russian Federal Nuclear Center
Zababakhin All-Russia Research Institute of Technical Physics
Snezhinsk, Russian Federation

Abstract

To study the neutron-physical characteristics of thorium-plutonium fuel, we have previously proposed to construct a facility consisting a subcritical assembly of a high-temperature nuclear reactor and a source of additional neutrons in the form of a plasma column. Additional neutrons are generated as a result of the D-D synthesis in this column of high-temperature plasma, which is created and confined in a long magnetic trap. The article presents the computer simulation results of the nuclear fuel evolution in the proposed facility. The simulation was carried out for plasma parameters, in which the D-D synthesis reaction gives the total neutron yield of 2×10^{16} neutrons/s from the plasma column inside the subcritical assembly with a length of 3 m. Two variants of the fuel assembly operation mode, differing in the content of plutonium in the original thorium-plutonium fuel, are considered. In the first one, the initial plutonium fraction is 4 %, which ensures the subcritical state of the fuel assembly with an effective neutron multiplication factor $k_{\text{eff}} = 0.95$. In the second variant, the part of plutonium is increased up to 5 %, which allows the assembly to have $k_{\text{eff}} = 0.99$ at the operation conditions. The choice of such values of plutonium percentage was made according to the results of a detailed computer simulation of the main neutron-physical processes in the reactor core. The evolution of the fuel isotopic composition was calculated for the total time of the assembly operation – 3000 days. In the process of the fuel “burning” at the conditions of unchanged neutron yield from the plasma, a time decrease in the neutron multiplication factor and the power of the nuclear fission process in the reactor core from the beginning of the operating cycle was detected. To compensate this reduction in produced power, the required increase in the neutron yield from a plasma source is calculated. The article presents the simulation results and discusses various aspects of the solutions obtained.

Keywords

thorium subcritical fuel assembly, source of thermonuclear neutrons, open magnetic trap, evolution of fuel composition

Acknowledgements

Authors thank D. Yurov for presenting the results of computer simulation on optimization of the plasma parameters in a long open magnetic trap as source of additional neutrons in subcritical fuel assembly

For citation

Arzhannikov A. V., Bedenko S. V., Ivanov A. A., Modestov D. G., Prikhodko V. V., Sinitsky S. L., Shamanin I. V., Shmakov V. M., Titova A. M. Isotopic Composition Changes in the Fuel Assembly of a Hybrid Reactor with a Neutron Source Based on D-D Reaction in Plasma Column (Computer Simulation of a Long Operation Cycle). *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 5–24. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-5-24

Введение

Торий-урановый цикл ядерной энергетики имеет ряд преимуществ по сравнению с уран-плутониевым циклом. Цена тория в качестве источника энергии в ядерном реакторе минимальна, поскольку природный торий состоит из одного изотопа и не требует сложной технологии разделения изотопов при подготовке топлива перед его загрузкой в реактор. При этом немаловажно и то, что торий уже накоплен в больших объемах в отвалах, возникших при добыче и переработке редкоземельного сырья. В случае ториево-уранового реактора, практически невозможно несанкционированное использование делящихся материалов из-за наличия в них изотопа урана U-232, который дает жесткое гамма-излучение. В то же время

другой изотоп урана U-233, который образуется в рабочем цикле и служит источником энергии в результате его деления тепловыми нейтронами, является наиболее привлекательным с точки зрения нейтронной физики при сравнении трех изотопов, используемых в ядерной энергетике: U-235, Pu-239 и U-233. Более того, нарабатываемый изотоп U-233 может быть использован в качестве топлива, пригодного практически для любого типа реакторов деления. Учитывая эти преимущества, высокотемпературный ториевый реактор со съёмом тепловой энергии потоками гелия представляется нам очень привлекательным для применения в Российской Федерации [1]. Для получения тепловой мощности такого реактора на уровне 60 МВт плотность нейтронного потока в критической сборке активной зоны реактора должна составлять $(3-4) \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ при стационарном режиме работы (см. [1]). В случае гибридного реактора (синтез-деление) с аналогичной сборкой в докритическом состоянии необходимо разместить на оси сборки источник быстрых нейтронов с удельным выходом нейтронов $\sim 10^{14} \text{ см}^{-1} \text{ с}^{-1}$ [2; 3].

Необходимо отметить, что гибридный реактор синтеза-деления, в котором используется расплавленная соль тория, а в качестве источника дополнительных нейтронов применен плазменный столб в осесимметричной магнитной ловушке, был ранее предложен исследователями из Ливерморской национальной лаборатории (LNLL, США) и обсуждался ими на конференциях и в научных публикациях [4–6]. Однако нами рассматривается другой тип топливной сборки, который существенно отличается от указанного. Вместо подачи топлива в активную зону реактора в виде расплава солей тория, как описано в указанных публикациях, мы предлагаем использовать загрузку в графитовую матрицу микрокапсулированной смеси оксидов тория и плутония [1], что обеспечивает формирование топливной сборки реактора, которая будет эксплуатироваться в открытом топливном цикле в течение ~ 10 лет.

Поскольку такого типа тепловыделяющие сборки ранее не изучались в нейтронно-физических экспериментах для режимов газоохлаждаемого реактора, то необходимо решить несколько задач как с помощью компьютерного моделирования, так и в экспериментальных исследованиях. Одной из ключевых задач является изучение влияния кинетики накопления и распада протактиния Pa-233 на критичность системы реактора в условиях сильной критичности, которая возникает из-за использования «пусковых» нуклидов деления при загрузке активной зоны торием в начале периода использования топливныхборок. Также необходимо разработать новые и усовершенствовать существующие методы контроля критичности в связанных системах типа «импульсный источник нейтронов – подкритическая топливная сборка». Необходимо также исследовать расходящуюся «волну» деления по объему подкритической сборки в случае импульсного источника быстрых нейтронов. Для проведения экспериментальных исследований по этим тематикам необходимо создать специальную установку. Такая установка должна состоять из подкритической ториевой сборки в сочетании с источником быстрых нейтронов [2; 3]. По нашему мнению, длинная магнитная ловушка с инжекцией высокоэнергетических нейтральных пучков в плазменный столб будет наиболее подходящим источником термоядерных нейтронов с энергией 2,45 МэВ (реакция D-D) или 14 МэВ (реакция D-T). В статье приведена общая структура предлагаемого экспериментального стенда, объединяющего в себе плазменный источник термоядерных нейтронов с подкритической ториевой сборкой ядерного реактора, дан анализ требований к плазме как источнику нейтронов, и кратко обсуждены основные особенности технического решения по нагреву и удержанию плазмы. Основную часть статьи занимает описание результатов компьютерного моделирования эволюции изотопного состава в топливной сборке предлагаемого экспериментального стенда в течение длительного времени его эксплуатации. Мы надеемся, что математическая модель, составленная для описания процессов, протекающих в этом стенде, подойдет и для анализа ториевого топливного цикла в гибридном реакторе, предназначенном для ядерной энергетики.

Стенд для изучения эволюции изотопного состава топлива

Схема установки

Установка состоит из топливной подкритической сборки и длинной магнитной ловушки для удержания плазмы, которая служит источником термоядерных нейтронов (рис. 1). Источник D-D термоядерных нейтронов пронизывает приосевую область активной зоны реактора, составленной из гексагональных графитовых топливных блоков. Подробное описание активной зоны подобного реактора приведено в работе [1]. В активной зоне этого реактора применены тепловыделяющие блоки с двумя несколько различающимися составами торий-плутониевого топлива. Изотопные составы плутония в этих двух составах топлива приведены в табл. 1. Три слоя тепловыделяющих блоков в поперечном сечении активной зоны реактора представлены оттенками красного цвета в отдельном фрагменте рис. 1, в его верхней части. Выбор геометрических размеров области, занимаемой этими тепловыделяющими блоками в поперечном сечении активной зоны реактора, был сделан по результатам оптимизации ее структуры с помощью компьютерного моделирования. Область активной зоны реактора, содержащая топливо, покрыта снаружи двумя слоями чистого графита, образующими гексагональный блок (синие шестиугольники на рис. 1). Активная зона реактора состоит из трех слоев топливных блоков единой конструкции (ТБЕК) и имеет высоту 2,4 м [1]. Каждый из этих ТБЕК представляет собой изготовленный из графита шестиугольный блок с шириной поперечного сечения 0,2 м и высотой 0,8 м. В каждом блоке имеется 78 отверстий диаметром $8,2 \cdot 10^{-3}$ м для топливных таблеток и 7 отверстий диаметром $2,4 \cdot 10^{-2}$ м для прохождения газообразного теплоносителя (гелия) [1]. В левом верхнем углу рисунка изображена цилиндрическая топливная таблетка и микрокапсула, содержащая в себе ядерное топливо. Такие микрокапсулы заполняют внутреннюю полость таблеток, что позволяет осуществлять пространственное распределение микрокапсулированного топлива по необходимому закону в объеме топливной сборки. Чистый графит толщиной 0,3 м закрывает верх и низ активной зоны реактора.

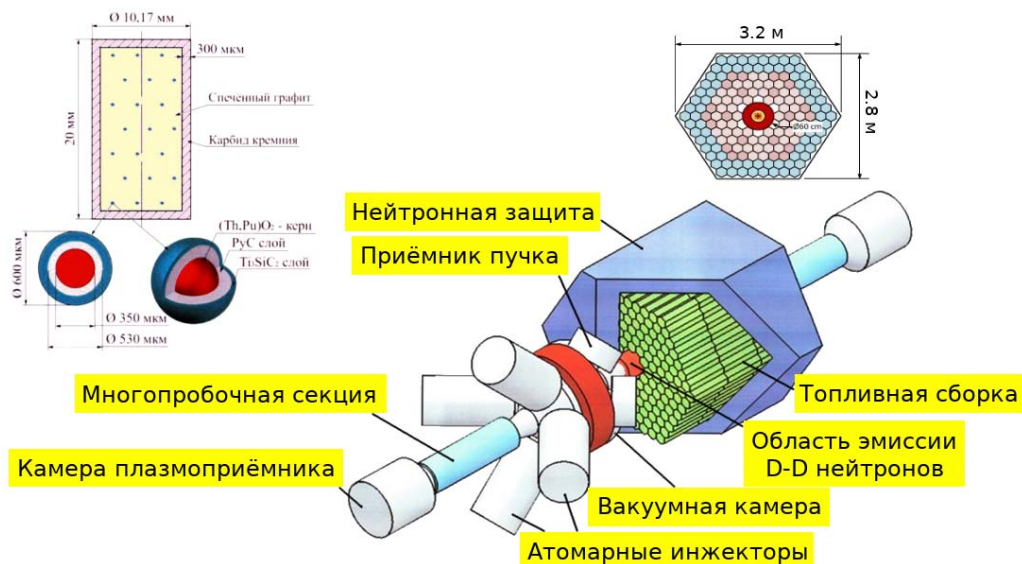


Рис. 1. Схема установки для изучения эволюции изотопного состава торий-плутониевого топлива

Fig. 1. Schematic of facility for studying the evolution of thorium-plutonium fuel composition

Таблица 1

Процентное содержание изотопов плутония в его исходном оксиде
для двух разновидностей топливных тепловыделяющих блоков
на основе смеси оксидов ThO_2 и PuO_2

Table 1

Percentage of plutonium isotopes in its original oxide
for two types of fuel assemblies based on the mixture of oxides ThO_2 and PuO_2

Тип	Изотопы Pu, %				
	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242
1	1,8	59	23	12,2	4
2	0	94	5	1	0

Второй ключевой составляющей предлагаемого экспериментального стенда является длинная магнитная ловушка, которая включает в себя зону для инъекции нейтральных нагревающих пучков, плазменный столб внутри подкритической сборки и две части с многопробочным магнитным полем для минимизации продольных потерь энергии плазмы вдоль оси плазменного столба. Общая длина плазменного устройства составляет около 12 м. Красный кружок в центральной части поперечного сечения активной зоны реактора, изображенный в левом верхнем углу на рис. 1, показывает положение плазменного источника быстрых термоядерных нейтронов. Подробное описание активной зоны реактора с плазменным столбом в его центральной части приведено в работе [3]. В соответствии с [3], плазменный источник нейтронов по своим геометрическим размерам должен заменить семь топливных блоков в приосевой области поперечного сечения активной зоны реактора. Магнитная система плазменного источника нейтронов построена в виде цилиндрического соленоида с медной обмоткой. Схематическое изображение этого охлаждаемого водой соленоида, размещенного внутри топливной сборки, представлено на рис. 2. Обмотка этого соленоида охватывает вакуумную камеру, в которой удерживается плазма, генерирующая термоядерные нейтроны. Левый конец этой камеры подсоединен к расширяющемуся по диаметру вакуумному объему, к которому под углом к его оси присоединены инжекторы высокоэнергетических нейтральных пучков. Для подавления продольных потерь высокотемпературной плазмы из центральной части длинной магнитной ловушки, к этой центральной части присоединены участки вакуумной камеры с многопробочным магнитным полем. Распределение магнитного поля вдоль оси Z в пределах той области центральной части установки, где плазменный источник дополнительных нейтронов охватывается топливной сборкой активной зоны ядерного реактора, также представлен на рис. 2. На этом рисунке, в качестве точки начала отчета по оси Z был выбран центр вакуумной камеры, в которой осуществляется нагрев плазмы путем инъекции в нее нейтральных пучков. Геометрия вакуумной камеры, а также упрощенная конструкция соленоида, изображенные на рис. 2, были использованы в компьютерном моделировании нейтронных полей в этой части установки.

Из представленного на рисунке распределения индукции магнитного поля видно, что она имеет величину около 2,5 Тл, которая вполне приемлема для технической реализации такого соленоида.

Параметры плазменного источника термоядерных нейтронов

Из приведенного выше краткого описания предлагаемого исследовательского стенда можно прийти к заключению, что термоядерный источник нейтронов (ТИН) является наиболее

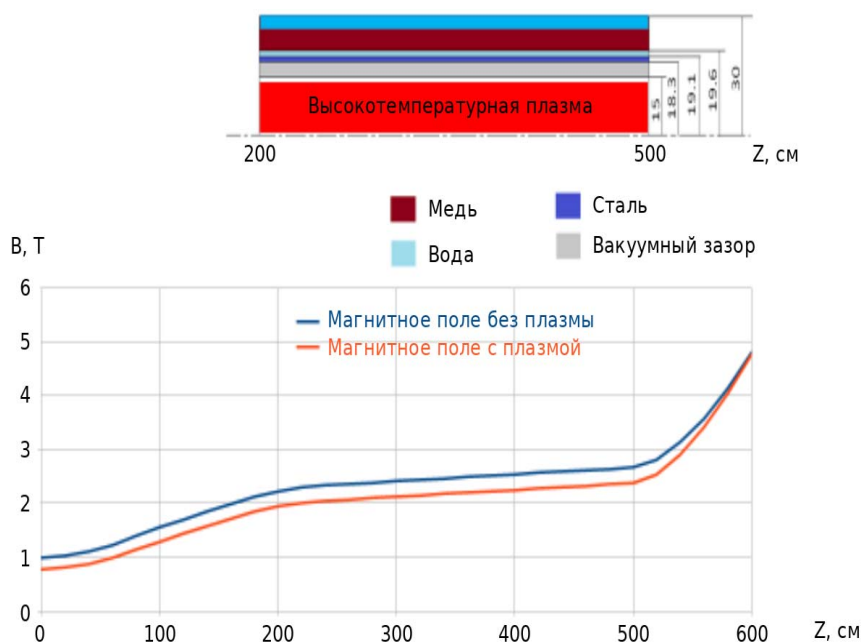


Рис. 2. Схематическое изображение той части вакуумной камеры, которая с соленоидом размещена на оси топливной сборки ядерного реактора, и распределение магнитного поля на оси этой части установки (вверху и внизу рисунка соответственно). Все пространственные размеры даны в сантиметрах

Fig. 2. A schematic drawing of the part of vacuum chamber with the solenoid placed on the axis of the fuel assembly of a nuclear reactor, and the distribution of the magnetic field along the axis of this part of the facility (at the top and bottom of the figure, respectively). All spatial dimensions are in centimeters

сложной составляющей установки. В основу инженерного решения по этому плазменному генератору D-D (или D-T) термоядерных нейтронов положена разрабатываемая в Институте ядерной физики им. Г. И. Будкера концепция газодинамической многопробочной ловушки (ГДМЛ) [7]. Заявленные цели проекта ГДМЛ включают в себя создание и удержание в течение ~ 1 с двухкомпонентной дейтериевой плазмы, состоящей из быстрых плещущихся ионов со средней энергией около 80 кэВ и основной (так называемой фоновой) плазмы с температурой электронов до 1 кэВ и плотностью 10^{20} м^{-3} . Именно эти параметры плазмы служат нам ориентиром при разработке экспериментального стенда для исследований нейтронно-физических характеристик рассматриваемого ядерного топлива. Как представлено на рис. 1, левая часть центральной области всей магнитной системы нашей установки представляет собой открытую магнитную пробочную ловушку с наклонной инжекцией высокоэнергетичных нейтральных атомов в основную теплую плазму, что приводит к образованию в ней неравновесной компоненты в виде высокоэнергетических плещущихся ионов (дейтерия и/или трития). Правая часть этой центральной области магнитной системы представляет собой соленоид с вакуумной камерой, окруженной подкритической топливной сборкой. Плещущиеся ионы имеют анизотропную функцию распределения в пространстве скоростей. Выбирая угловой разброс плещущихся ионов, а также профиль магнитного поля на оси соленоида, можно сместить максимум интенсивности радиальной эмиссии термоядерных нейтронов в область плазмы, которая расположена именно в приосевой области подкритической топливной сборки. Геометрические размеры узлов, входящих в состав плазменного источника нейтронов, а также оценки его основных технических параметров приведены в табл. 2.

Основные технические параметры плазменного источника нейтронов

Таблица 2

Table 2

Main technical parameters of plasma neutron source

Показатель	Численная оценка
Длина плазменного столба в нейтронно-генерирующей части ловушки, м	3
Внешний радиус соленоида внутри подкритической сборки, м	0,6
Внутренний диаметр вакуумной камеры в нейтронно-генерирующей части ловушки, м	0,35
Магнитное поле в ней, Тл	2–3,5
Длина плазменной камеры для инжекции нейтральных пучков, м	2
Энергия частиц инжектируемых пучков, кэВ	200
Полная мощность нейтральной инжекции, МВт	20
Магнитное поле в области инжекции пучков нейтралов, Тл	0,7–1
Длина многопробочных секций соленоида ловушки, м	2,5
Магнитное поле в многопробочных секциях (мин/макс), Тл	4,5 / 9

Моделирование генерации термоядерных нейтронов в длинной магнитной ловушке с нагретой плазмой осуществлялось с использованием компьютерного кода DOL и с учетом параметров плазмы, которые планируется достигнуть в экспериментах на установке ГДМЛ [7]. В основе кода DOL лежат три основные составляющие его модели [7; 8]. Первая из них рассчитывает решение нестационарного кинетического уравнения (Фоккера – Планка), в котором функция распределения усреднена по периодическому продольному движению иона внутри магнитной ловушки. С его помощью можно моделировать временную динамику функции распределения высокоэнергетических быстрых плещущихся ионов в ловушке. Вторая составляющая кода DOL вычисляет решение нестационарных уравнений баланса частиц и энергии для фоновой плазмы. Эта плазма включает в себя теплые ионы и электроны с температурой порядка 1 кэВ. Предполагается, что фоновая плазма имеет максвелловскую функцию распределения частиц с температурой, которая на порядок величины меньше средней энергии быстрых плещущихся ионов. Третья составляющая кода DOL обеспечивает решение стационарного кинетического уравнения, которое описывает состояние функции распределения нейтрального газа в ловушке. В таком подходе к решению задачи удастся количественно описать взаимодействие с плазмой атомарных пучков, которые создаются системой инжекторов нейтральных пучков. Эта система инжекторов вносит главный вклад в нагрев плазмы в магнитной ловушке предлагаемого проекта гибридного реактора. В процессе моделирования все указанные уравнения решаются одновременно, а полученные функции распределения ионов используются для расчета скоростей реакций термоядерного синтеза.

Конфигурация силовых линий магнитного поля в соленоиде, расположенном внутри подкритической топливной сборки, была подобрана специальным образом для достижения квазиоднородного распределения интенсивности выходящих из плазмы термоядерных нейтронов вдоль оси сборки (график распределения индукции поля по оси установки представлен на рис. 2). В результате проведенных расчетов был найден набор параметров плазмы, магнитной системы и инжекторов нейтральных пучков, которые обеспечивают требуемую интенсивность генерации быстрых нейтронов в единице объема плазмы для поддержания процесса делением ядер топлива в подкритической сборке¹. Полученный в результате расчетов

¹ См.: Юров Д. В., Аржанников А. В. Расчет параметров источника нейтронов на основе длинной магнитной ловушки для проекта стенда, предназначенного для отработки режимов рабочего цикла подкритических топливныхборок // Отчет о проведенных расчетах с использованием ресурсов информационно-вычислительного центра НГУ. 2016. 5 с.

Таблица 3

Параметры плазмы в части магнитной ловушки,
расположенной внутри топливной сборки

Table 3

Plasma parameters in the part of the magnetic trap,
which is located inside the fuel assembly

Показатель	Численная оценка
Диаметр плазменного столба в нейтронно-генерирующей секции, м	0,3
Плотность ионов основной плазмы в нейтронно-генерирующей секции, см^{-3}	$0,6 \cdot 10^{13}$
Ионная температура плазмы в нейтронно-генерирующей секции, кэВ	0,4
Электронная температура плазмы в нейтронно-генерирующей секции, кэВ	1,4
Плотность высокоэнергетичных плещущихся ионов дейтерия, см^{-3}	$15 \cdot 10^{13}$
Средняя энергия плещущихся ионов, кэВ	80
Относительное давление плазмы, β	0,64
Время удержания частиц фоновой плазмы, мс	0,8
Время удержания быстрых ионов, мс	50
Скорость производства D-D нейтронов на единицу длины установки, $\text{n} \cdot \text{с}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$	$6 \cdot 10^{13}$

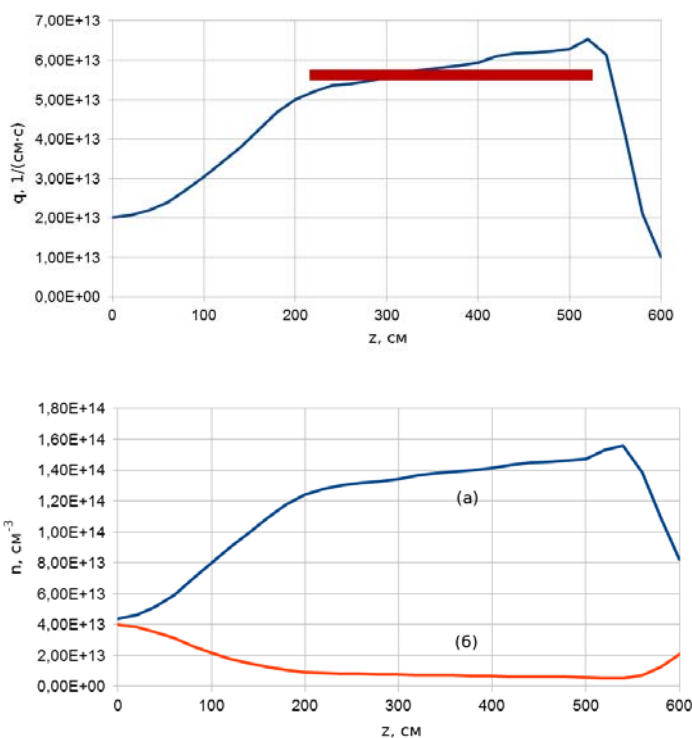


Рис. 3. Зависимости параметров от координаты вдоль оси системы внутри подкритической сборки (в верхней части рисунка эта область отмечена полосой): вверху – удельная эмиссия D-D нейтронов на единицу длины установки, внизу – плотность высокоэнергетичных плещущихся ионов (а) и ионов фоновой плазмы (б)

Fig. 3. The dependences of the parameters along the system axis inside the subcritical assembly (in the upper part this area is marked with a stripe): at the top is the specific emission of DD neutrons per unit length of the device, at the bottom is the density of high-energy sloshing ions (a) and the ions of background plasma (b)

набор параметров плазмы в магнитной ловушке приведен в табл. 3. Эти параметры далее были использованы для расчета радиального потока нейтронов из плазменного столба через соленоид в топливную сборку. Результат расчета распределения нейтронной эмиссии по оси плазменного столба, который с соленоидом пронизывает топливную сборку, показан на рис. 3. Из рисунка видно, что на том участке плазменного столба, который находится внутри подкритической сборки (этот участок отмечен полосой на верхнем графике рис. 3), эмиссия нейтронов распределена по его длине практически однородно.

Компьютерные коды для расчета эволюции изотопного состава.

Выбор начального состава топлива

Использованные компьютерные коды

Выбор между двумя изотопными составами плутониевой компоненты (см. табл. 1) в исходной топливной смеси $\text{ThO}_2\text{-PuO}_2$ был сделан на основе результатов расчетов с помощью программного кода серии MCU5 [9]. Этот же код был использован нами для проработки структуры топливной сборки с плазменным источником быстрых нейтронов внутри нее, а также для расчета эволюции топлива в подкритической сборке в течение продолжительного по времени рабочего цикла. Как было описано выше, процесс генерации термоядерных нейтронов с энергией 2,45 МэВ (реакция D-D) в плазменном столбе, расположенном внутри топливной сборки, был смоделирован с использованием компьютерного кода DOL. Для моделирования дальнейшего переноса и размножения нейтронов внутри сборки мы использовали несколько компьютерных кодов. Эффективный коэффициент размножения нейтронов, коэффициент воспроизводства нейтронов, а также распределения потоков нейтронов и энерговыделения по объему топливной сборки были получены с помощью кода PRISMA [10], основанного на методе Монте-Карло с непрерывными данными для нейтронов, взятыми из ENDF / B-VII.1. Расчеты кинетики ядерного топлива были проведены с использованием кода RISC [11] на основе данных по распадам из ENDF / B-VII.0, а также с учетом результатов расчета выгорания топлива. Сам процесс выгорания топлива рассчитывался вместе с переносом нейтронов посредством кода PRISMA. Кроме того, в дополнение к результатам, полученным с помощью кода PRISMA, были проведены расчеты коэффициента выгорания различных компонентов топлива с использованием компьютерного кода MCU5 (ENDF/B-VII.0) [9]. Схема, по которой выполнялся процесс моделирования эволюции изотопного состава в топливной сборке на основе использования метода Монте-Карло, представлена на рис. 4.

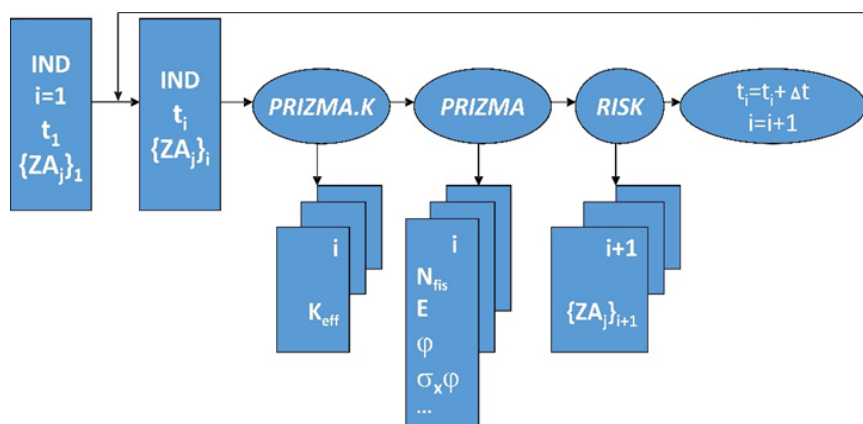


Рис. 4. Схема процесса моделирования эволюции изотопного состава в топливной сборке

Fig. 4. Diagram of the procedure used for modeling the evolution of the isotopic composition in the fuel assembly

Расчет начинался с ввода файла исходных данных (IND) и начального изотопного состава $(ZAJ)_1$. На следующем шаге рассчитывался эффективный коэффициент размножения нейтронов (k_{ef}) в установке с использованием кода Монте-Карло *PRIZMA.K*. Затем с использованием кода *PRIZMA* вычислялись различные акты ядерных реакций (N_{fis}), выделение энергии (E), нейтронные потоки (ϕ), скорость образования ядер (σ_{xf}) и т. д. На заключительном этапе отдельного цикла компьютерных вычислений, мы использовали код RISK для расчета эволюции изотопного состава $\{ZAJ\}$ за отрезок времени Δt для топливной подкритической сборки. Для второго расчетного цикла использовались файлы, содержащие исходные данные (IND) при t_2 и изотопный состав $(ZAJ)_2$, полученные в результате первого расчетного цикла. Для третьего цикла использовались результаты расчетов второго цикла и т. д.

Выбор исходного состава топлива

На первом этапе моделирования мы изучили поведение эффективного коэффициента размножения нейтронов (k_{ef}) нашей установки для случая отсутствия поступления нейтронов из плазменного столба в топливную сборку. Мы рассчитали коэффициент k_{ef} нашей установки как функцию процентного содержания плутония в составе топлива: Pu (α), Th ($1 - \alpha$). Этот результат представлен на рис. 5. По результатам проведенного моделирования мы пришли к выводу, что для сильно подкритического состояния нашей установки требуется, чтобы k_{ef} было на уровне 0,95. Согласно результату, представленному на рис. 5, для обеспечения $k_{ef} = 0,95$ в нашей установке необходимо, чтобы процентное содержание плутония в топливе имело величину $\alpha = 4 \%$. Что касается содержания различных изотопов плутония в этой компоненте топлива, то ядерная плотность этих компонент представлена в табл. 4.

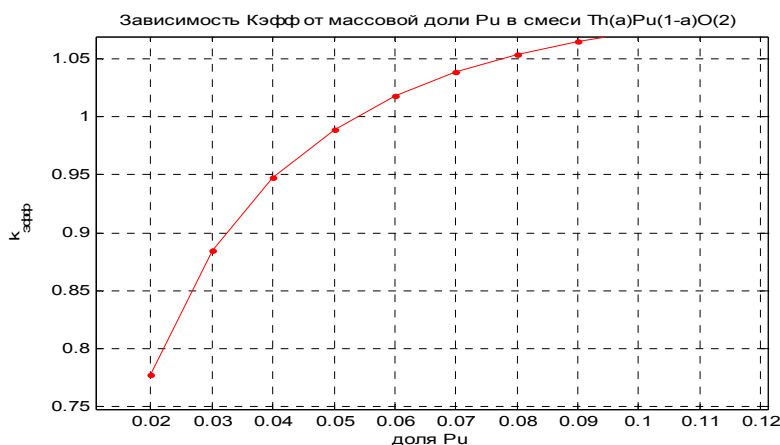


Рис. 5. Эффективный коэффициент размножения нейтронов (k_{ef}) установки в зависимости от доли содержания плутония в топливной смеси: Pu (α), Th ($1 - \alpha$)

Fig. 5. Effective neutron multiplication factor (k_{ef}) of the facility depending on the fraction of the plutonium content in the fuel mixture: Pu (α), Th ($1 - \alpha$)

Таблица 4

Процентное содержание различных изотопов плутония
в плутониевой компоненте загружаемого топлива

Table 4

Percentage of various plutonium isotopes
in the plutonium component of the feed fuel

Th, %	Pu, %	Pu-239, cm^{-3}	Pu-240, cm^{-3}	Pu-241, cm^{-3}	Th-232, cm^{-3}	k_{ef}
96	4	0.1994e20	0.1061e19	0.2123e18	5.0947e20	0.9480

Результаты расчетов нейтронно-физических характеристик топливной сборки и эволюции изотопного состава в ней

Для геометрии и параметров нашей установки, которая предназначена для использования в качестве экспериментального стенда по изучению эволюции ториево-плутониевого топлива, мы провели компьютерное моделирование процессов, протекающих в топливной сборке, с целью проследить изменения во времени эффективного коэффициента размножения нейтронов (k_{ef}) и выделяемой в топливной сборке мощности (P). Это моделирование проводилось для случая нейтронной эмиссии из плазменного столба с интенсивностью $2 \cdot 10^{16}$ н/с. Следует подчеркнуть, что моделирование с использованием метода Монте-Карло должно проводиться с учетом специфики цепочки ядерных реакций, которые протекают при использовании изотопа Th-232 в качестве ядерного топлива. Эта цепочка реакций реализуется в следующей последовательности: Th-232 + $n \rightarrow$ Th-233 (через 22 минуты) $\rightarrow$ Pa-233 (через 27 дней) $\rightarrow$ U-233 ($1,6 \cdot 10^6$ лет). Этот изотоп урана, возникающий в конце цепочки реакций, является источником энергии в ядерном реакторе с ториевым топливом, поскольку он делится при захвате нейтрона. Так как производство делящегося изотопа U-233 из Th-232 проходит через промежуточную стадию с изотопом протактиния Pa-233, из которого U-233 получается в результате процесса бета-распада с периодом полураспада 27 дней, переход к стационарному уровню ядерной концентрации U-233 может быть реализованным только в течение нескольких месяцев с начала рабочего цикла. Необходимо также учитывать отравление активной зоны реактора в результате накопления ксенона (Xe-135) и самария (Sm-149). В соответствии с этими особенностями, мы провели моделирование эволюции изотопного состава в топливе с использованием Монте-Карло расчетов в два этапа. На первом этапе расчетов, моделирующих работу активной зоны реактора в первые 70 часов после его запуска, использовался шаг по времени, равный одному часу. На втором этапе расчетов, в котором моделировалась работа активной зоны в течение последующих 3 000 дней, использовался шаг по времени, равный одному дню. Мы провели моделирование для двух значений коэффициента размножения: $k_{\text{ef}} = 0,95$ ($\alpha = 4\%$) – режим установки со сборкой в сильно подкритическом состоянии, и $k_{\text{ef}} = 0,99$ ($\alpha = 5\%$) – режим установки со сборкой, находящейся в условиях, близких к критическому состоянию.

Топливная сборка в сильно подкритическом состоянии

Результаты моделирования методом Монте-Карло процессов, протекающих в топливной сборке, позволили вычислить изменение во времени коэффициента эффективного размножения нейтронов k_{ef} и генерируемой мощности деления P . Для первых семидесяти часов работы установки (около трех дней) результаты расчетов представлены на рис. 6. Средняя величина этих параметров представлена линиями с точками. Полоса событий, охватывающих 95 % из 10^7 расчетных траекторий в моделировании по методу Монте-Карло, отмечена по границе розовыми линиями. В свою очередь, временная эволюция состава топлива и генерируемых в ходе ядерных реакций изотопов показана на рис. 7.

На этих рисунках по оси ординат откладывается величина, получаемая вычитанием из ядерной концентрации описываемого в данный момент времени изотопа величины ядерной концентрации этого изотопа в момент начала моделирования рабочего цикла. Поскольку протекание ядерных реакций в локальной области топливной сборки сильно зависит от энергии нейтронов в ней, то мы тщательно контролировали распределение нейтронов по энергиям на всех этапах компьютерного моделирования эволюции состава топлива. Спектр нейтронов в основной части сборки (четыре слоя топливных блоков в активной зоне реактора) представлен на рис. 8 для первых дней работы реактора. Здесь отражено процентное содержание нейтронов с энергией, величина которой меньше той энергии, которая указана на оси абсцисс. Видно, что около 90 % нейтронов имеют энергию менее 1 эВ. Поскольку сечение захвата таких низкоэнергетичных нейтронов исключительно велико, то полученный нейтронный спектр хорошо подходит для осуществления ядерных реакций деления, обеспечивающих энерговыделение в топливной сборке.

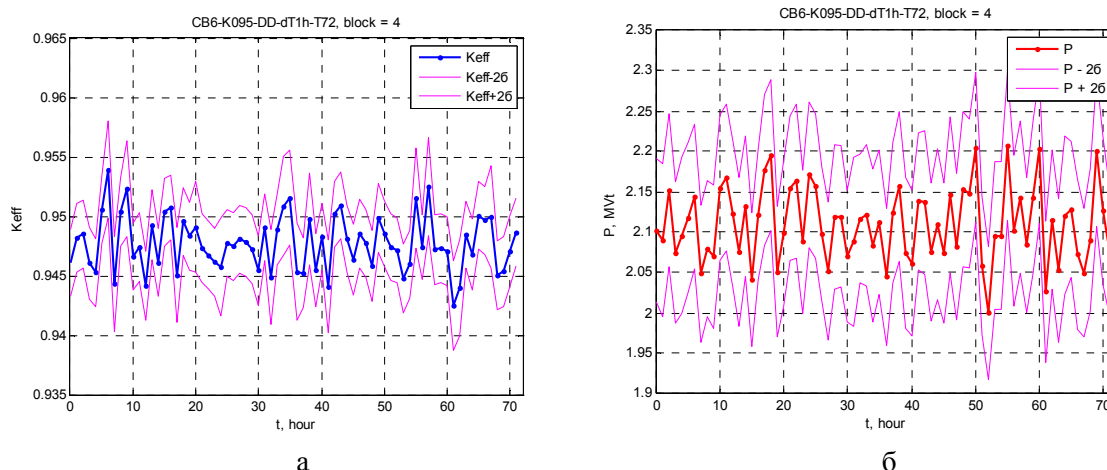


Рис. 6. Эффективный коэффициент размножения нейтронов в установке (а) и мощность, выделяемая в топливной сборке в результате ядерных реакций (б), в первые 70 часов работы установки

Fig. 6. The effective multiplication factor of neutrons in the facility (a) and the power released in the fuel assembly as a result of nuclear reactions (b), in the first 70 hours of the operation

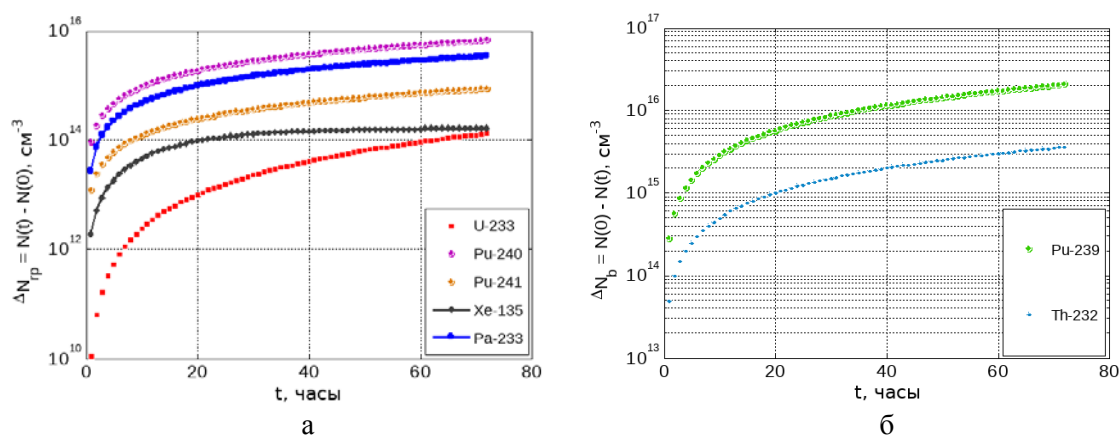


Рис. 7. Изменение концентрации изотопов в зависимости от времени в первые дни рабочего цикла: а – топливные и не радиоактивные изотопы; б – радиоактивные изотопы

Fig. 7. Changes in the concentration of isotopes depending on the time during the first few days of the working cycle: а – fuel and non-radioactive isotopes; б – radioactive isotopes

Как показали расчеты, спектр энергий нейтронов мало изменялся в течение всего рабочего цикла установки. Ядерная плотность различных изотопов (нукл/см³) в зависимости от времени работы установки показана на рис. 9 для ее рабочего цикла продолжительностью 3 000 дней. Прежде всего следует отметить плавное снижение ядерной плотности Pu-239 в течение рабочего цикла. Параллельно с этим осуществляется процесс увеличения ядерной плотности изотопа U-233. Именно процесс наработки изотопа U-233 может поддерживать уровень мощности, генерируемой в активной зоне реактора деления. Графики на рис. 10 демонстрируют некоторую компенсацию снижения вырабатываемой мощности по причине выгорания изотопа Pu-239.

Рис. 8. Интегральная доля нейтронов с энергией меньше заданной на оси абсцисс
 Fig. 8. Integral part of neutrons with the energy less than the specified one on the x-axis

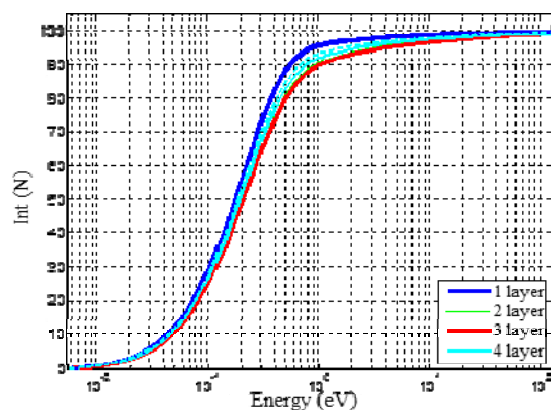


Рис. 9. Ядерная плотность различных изотопов (нукл/см³) в зависимости от времени работы установки
 Fig. 9. Nuclear density of different isotopes (nucl. · cm⁻³) depending on the operation time of the facility

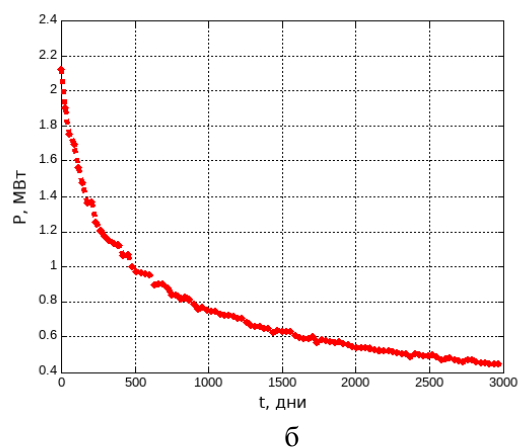
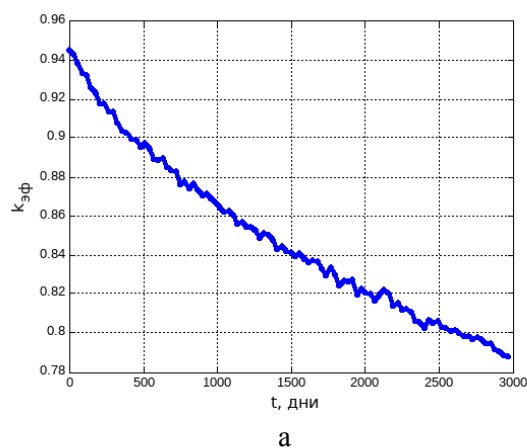
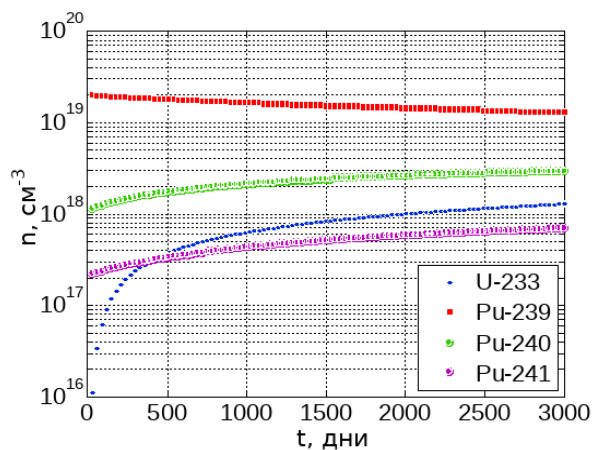


Рис. 10. Зависимость эффективного коэффициента размножения нейтронов (а) и тепловой мощности, выделяемой топливной сборкой (б), от времени работы установки

Fig. 10. Dependence of the effective neutron multiplication factor (a) and the thermal power, produced by the fuel assembly (b), on the operation time

Видно, что k_{eff} монотонно снижается с 0,95 до 0,8 за время рабочего цикла. Первоначальное снижение генерируемой мощности P , начиная с уровня 2,1 МВт, очень велико в первые 500 дней, а затем этот процесс замедляется, так что мощность падает до 0,4 МВт в рабочем цикле 3 000 дней.

Топливная сборка установки в условиях, близких к критическому состоянию

В случае использования плазменного источника, осуществляющего генерацию нейтронов в процессе DD-реакции с выходом их из плазменного столба на уровне $2 \cdot 10^{16}$ н/с, интересно проанализировать поведение ториевого топлива во времени также и для $k_{\text{ef}} = 0,99$. Исходный состав топлива для этого случая представлен в табл. 5.

Таблица 5

Исходный состав топлива для варианта загрузки, при которой $k_{\text{ef}} = 0,99$

Table 5

The initial fuel composition for the assembly version with $k_{\text{ef}} = 0,99$

Pu, %	Th-232, %	Th-232, cm^{-3}	Pu-239, cm^{-3}	Pu-240, cm^{-3}	Pu-241, cm^{-3}	k_{eff}
5	95	3.98e20	1.97e19	1.05e18	2.10e17	0.9847

Мы провели моделирование этого режима работы установки в условиях, когда состояние топливной сборки очень плавно подходит к критическому. Результаты расчетов методом Монте-Карло коэффициента эффективного размножения нейтронов k_{ef} и генерируемой в ходе ядерных реакций мощности P за первые 50 часов (около двух дней) приведены для этого режима на рис. 11. Представленные результаты охватывают 95 % из 10^7 траекторий в моделировании процессов методом Монте-Карло. Как видно, эффективный коэффициент размножения нейтронов и мощность, генерируемая сборкой в этих условиях, постепенно понижаются во время работы установки, что гарантирует безопасность выбранного режима работы.

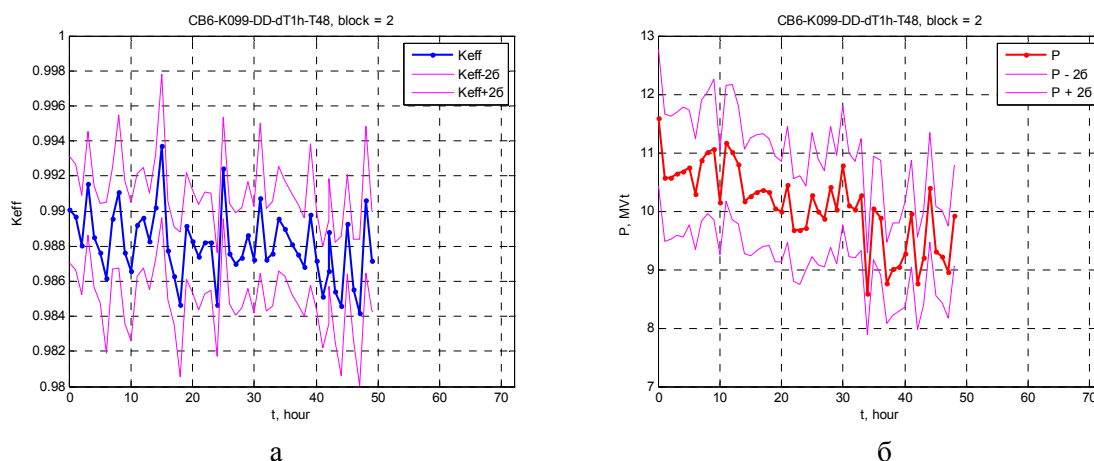


Рис. 11. Зависимость эффективного коэффициента размножения нейтронов (а) и тепловой мощности, выделяемой топливной сборкой (б), от времени работы установки в первые 50 часов работы

Fig. 11. Dependence of the effective neutron multiplication factor (a) and the thermal power, produced by the fuel assembly (b), on the operation time of the facility in the first 50 hours

Можно сравнить результаты для $k_{\text{ef}} = 0,99$ с результатами для $k_{\text{ef}} = 0,95$ (см. рис. 6 и 7). Из сравнения следует, что в случае плавного приближения параметров топливной сборки к области, описывающей ее критическое состояние, тепловая мощность, выделяемая в ней в начале рабочего цикла, в пять раз больше, чем ее величина для сильно подкритического состояния. Временная эволюция компонентов топлива и генерируемых изотопов показана на рис. 12. Эти графики демонстрируют временную эволюцию разницы между ядерной концентрацией описанных изотопов и их начальной концентрацией. Отметим, что концентрация ядер U-233 возрастает при $k_{\text{ef}} = 0,99$ более интенсивно, чем при $k_{\text{ef}} = 0,95$. При длительной эксплуатации топливной сборки соотношение вкладов в производство энергии от двух компонентов (Pu-239 и Th-232) ядерного топлива значительно изменяется во времени. Графики на рис. 13, на которых изображен процесс расходования этих изотопов, демонстрируют этот факт.

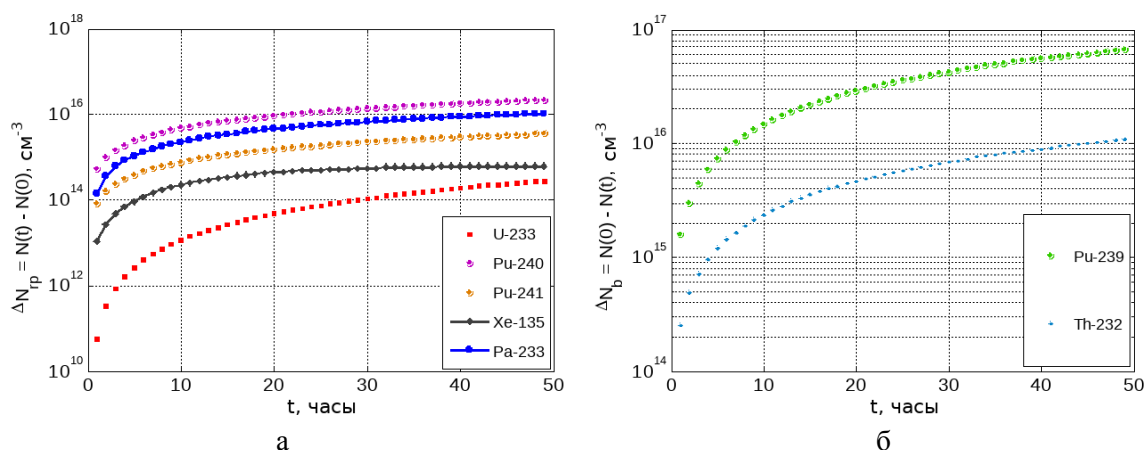


Рис. 12. Изменение концентрации изотопов в зависимости от времени в течение первых суток работы установки:
а – топливные и не радиоактивные изотопы; б – радиоактивные изотопы

Fig. 12. Concentration of isotopes on the time during the first days of the facility operation:
а – the fuel and non-radioactive isotopes; б – radioactive isotopes

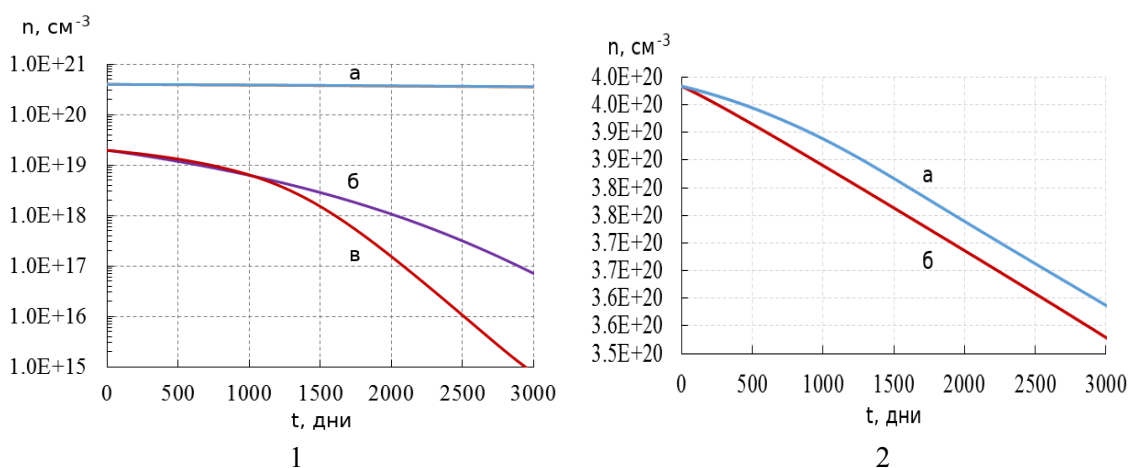


Рис. 13. Зависимость концентрации изотопов от времени:
1 – Th-232 (а, см. также рис. 13, 2); Pu-239, ТИН выключен (б); Pu-239, ТИН работает (в);
2 – Th-232, ТИН выключен (а); ТИН работает (б)

Fig. 13. Dependence of the isotope concentration on time:
1 – Th-232 (а, see also fig. 13, 2); Pu-239, Thermionuclear Source of Neutrons (TSN) is off (b); Pu-239, TSN is on (c);
2 – Th-232, TSN is off (а); TSN is on (b)

В начале рабочего цикла выработка энергии в процессе распада изотопа Pu-239 в топливной сборке является доминирующей; после 700 дней работы сборки энерговыделение от деления этого изотопа становится меньше, чем от деления изотопа урана U-233, который получается из тория Th-232 по цепочке ядерных реакций. При этом энерговыделение в топливной сборке всё время монотонно снижается.

Существует несколько способов предотвратить снижение уровня генерируемой мощности в топливной сборке. Одним из способов является постепенное увеличение уровня генерации нейтронов в единице объема плазменного столба начиная с уровня $6 \cdot 10^{11}$ н/(с·см³). Это значение соответствует средней по объему плотности нейтронной эмиссии, интеграл от которой по поперечному сечению дает удельную эмиссию на единицу длины установки $6 \cdot 10^{13}$ н/(с·см) (см. табл. 1). Требуемое увеличение плотности нейтронов, генерируемых в единице объема плазмы, которое обеспечит поддержание выделяемой в сборке мощности на неизменном уровне, показано на рис. 14. Видно, что к концу рабочего цикла продолжительностью 3 000 часов необходимо поднять уровень генерации нейтронов в единице объема плазменного столба до $5,5 \cdot 10^{13}$ н/(с·см³). По сравнению с исходной величиной эмиссии нейтронов из плазменного столба требуется ее подъем на два порядка величины. Частично, необходимый подъем наработки дополнительных нейтронов в плазме может быть реализован путем постепенного увеличения доли трития в высокоэнергетичном нейтральном пучке, инжектируемом в плазменный столб. Но, по-видимому, этого будет недостаточно. Возможна также реализация процесса дополнительного размножения нейтронов, выходящих в топливную сборку из плазменного столба.

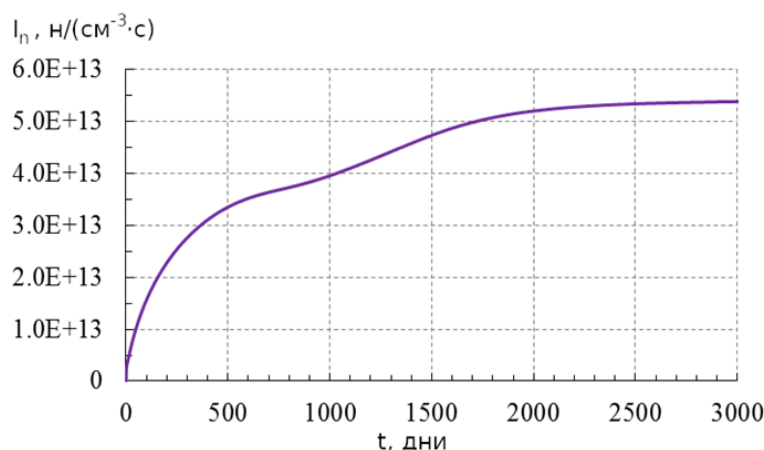


Рис. 14. Рост объемной плотности нейтронной эмиссии ТИН в зависимости от времени работы установки

Fig. 14. The increase in the specific density of neutron emission from TSN on the time of the facility operation

Другим способом поддержания уровня генерируемой мощности является увеличение доли радиоактивного плутония в загружаемом топливе при одновременном размещении в топливной сборке управляющих стержней, которые должны обеспечить поддержание эффективного коэффициента размножения нейтронов на уровне $k_{\text{ef}} = 0,95$ для гарантии ее строго подкритического состояния.

Суммирование результатов и заключение

Мы разработали компьютерные коды для расчета нейтронно-физических характеристик и эволюции изотопного состава в ходе длительной работы установки, состоящей из подкри-

тической топливной сборки высокотемпературного ториевого реактора в сочетании с плазменным источником термоядерных нейтронов, генерируемых в длинной магнитной ловушке. Эти коды позволяют проанализировать перспективы использования такой модифицированной подкритической ториевой сборки для решения задач по проблеме эволюции состава топлива за семилетний цикл работы активной зоны ядерного реактора.

С использованием разработанных кодов проведено компьютерное моделирование работы такой модифицированной подкритической сборки, в результате установлены следующие закономерности.

1. При выбранной геометрии и рабочих параметрах ториевой сборки в условиях строго подкритического состояния в длительном рабочем цикле происходит монотонное снижение эффективного коэффициента размножения нейтронов $k_{\text{эф}}$ и, как следствие, генерируемой мощности P . При уровне генерации нейтронов в плазменном столбе, пронизывающем топливную сборку, на уровне $2 \cdot 10^{16}$ н/с и исходной загрузке ее топливом в составе 96 % тория и 4 % плутония, происходит постепенное снижение коэффициента размножения нейтронов $k_{\text{эф}}$ с уровня 0,95 до уровня 0,8 в течение рабочего цикла продолжительностью 3 000 дней. При этом тепловая мощность P , выделяемая в топливной сборке в результате деления радиоактивных ядер, снижается с 2,1 до 0,4 МВт.

2. Полученный в ходе моделирования энергетический спектр нейтронов внутри модифицированной топливной сборки показывает, что около 90 % общего количества нейтронов сосредоточено в области энергий менее 1 эВ, что хорошо подходит для реализации ядерных реакций деления, ответственных за производство энергии.

3. Эволюция компонентов топлива во времени и генерация различных изотопов в ходе ядерных реакций сильно зависят от исходной величины эффективного коэффициента размножения нейтронов в топливной сборке и интенсивности выхода термоядерных нейтронов из плазменного столба. Приближением величины эффективного коэффициента размножения нейтронов к области его значений, которые дают состояние активной зоны реактора, близкое к критическому, можно выводить уровень вырабатываемой в модифицированной топливной сборке тепловой мощности к тем значениям, которые ожидаются для промышленного реактора. При этом безопасный запас реактивности для установки обеспечивается управляемым потоком дополнительных нейтронов, поступающих из плазменного столба.

Таким образом, полученные результаты моделирования демонстрируют, что с помощью модификации подкритической ториевой сборки путем размещения в ее приосевой области плазменного источника нейтронов на основе высокотемпературной дейтериевой плазмы можно построить специальную установку для проведения экспериментальных исследований нейтронно-физических характеристик топливной сборки и эволюции состава топлива в ней в течение многолетнего цикла ее эксплуатации. Чтобы сделать окончательный вывод по исследуемым вопросам, требуется спроектировать и соорудить специальный экспериментальный стенд, параметры которого выбираются в ходе моделирования с использованием описанных в работе компьютерных кодов.

Список литературы / References

1. Shamanin I., Bedenko S. et al. Gas-Cooled Thorium Reactor with Fuel Block of the Unified Design. *Advances in Materials Science and Engineering*, 2015, vol. 1084, p. 275–279.
2. Arzhannikov A. V., Anikeev A. V., Beklemishev A. D. et al. Gas-dynamic trap with $Q \sim 0.1$ as a driver for hybrid thorium reactor. In: Conference Program of the OS2014. OS5-04.URL: www.os2014.org
3. Arzhannikov A. V., Anikeev A. B., Beklemishev A. D. et al. Subcritical Assembly with Thermonuclear Neutron Source as Device for Studies of Neutron-physical Characteristics of Thorium Fuel. In: AIP Conference Proceedings, 2016, vol. 1771, p. 090004. DOI 10.1063/1.4964246
4. Moir R. W., Martovetsky N. N., Molvik A. W., Ryutov D. D., Simonen T. C. Axisymmetric Magnetic Mirror Fusion-Fission Hybrid. In: 15th International Conference on Emerging Nucle-

- ar Energy Systems ICENES 2011 May 15–19, 2011. San Francisco, Transactions of Fusion Science and Technology, 2012, January, vol. 61, p. 206–215.
5. **Moir R. W., Martovetsky N. N., Molvik A. W., Ryutov D. D., Simonen T. C.** Mirror-based hybrids of recent design. In: FUNFI, Workshop on Fusion for Neutrons and Sub-critical Nuclear Fission, Villa Monastero, Varenna, Italy, September 12–15, 2011. AIP Conference Proceedings, 2012, vol. 1442, p. 43–54.
 6. **Simonen T. C., Moir R. W., Molvik A. W., Ryutov D. D.** A 14MeV fusion neutron source for material and blanket development and fission fuel production. *Nucl. Fusion*, 2013, no. 53.
 7. **Beklemishev A., Anikeev A., Astrelin V. et al.** Novosibirsk Project of Gas-Dynamic Multiple-Mirror Trap. *Fusion Science and Technology*, 2013, vol. 63, no. 1T, p. 46–51. DOI 10.13182/FST13-A16872
 8. **Юров Д. В., Приходько В. В., Цидулко Ю. А.** Нестационарная модель для описания осесимметричной открытой ловушки с неравновесной плазмой // Физика плазмы. 2016. Т. 42, № 3. С. 217–233.
Yurov D. V., Prikhodko V. V., Tsidulko Yu. A. Nonstationary model of an axisymmetric mirror trap with nonequilibrium plasma. *Plasma Physics Reports*, 2016, vol. 42, no. 3, p. 217–233. (in Russ.)
 9. **Oleynik D. S., Shkarovskiy D. A., Gomin E. A. et al.** The status of MCU-5. *Physics of Atomic Nuclei*, 2012, no. 75, p. 1634–1646.
 10. **Зацепин О. В., Кандиев Я. З., Кашаева Е. А., Малышкин Г. Н., Модестов Д. Г.** Расчеты методом Монте-Карло по программе ПРИЗМА нейтронно-физических характеристик активной зоны ВВЭР-1000 // ВАЯТ. Серия: Физика ядерных реакторов. 2011. Вып. 4. С. 64–74.
Zatsepin O. V., Kandiev Ya. Z., Kashaeva E. A., Malishkin E. N., Modestov D. G. Raschety metodom Monte-Carlo po programme PRIZMA neytronno-fizicheskikh characteristic aktivnoy zoni WVER-1000 [Monte Carlo calculations using the PRIZMA code for neutron-physical characteristics of the WVER-1000 core]. *VANT. Seria: Fizika yadernikh reaktorov* [*Physics of Atomic Nuclei*], 2011, iss. 4, p. 64–74. (in Russ.)
 11. **Модестов Д. Г.** Компьютерная программа РИСК-2014 для решения задач ядерной кинетики. Препринт РФЯЦ – ВНИИТФ. Снежинск, 2014. № 243.
Modestov D. G. Computernaya programma RISK-2014 dlya reshenia zadach yadernoy kinetiki [Computer code RISK-2014 for solution of nuclear kinetics problems]. Preprint RFNC-VNIITF. Snezhinsk, Russia, 2014, no. 243. (in Russ.)

Материал поступил в редколлегию
Received
21.05.2018

Сведения об авторах / Information about the Authors

Аржанников Андрей Васильевич, доктор физико-математических наук, профессор, главный научный сотрудник, Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 11, Новосибирск, 630090, Россия); профессор, физический факультет, Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Andrey V. Arzhannikov, Doctor of Science (Physics and Mathematics), Professor, Chief Scientist, Budker Institute of Nuclear Physics SB RAS (11 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Professor, Novosibirsk State University (1 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

arzhan1@ngs.ru

Беденко Сергей Владимирович, кандидат физико-математических наук, доцент, Национальный исследовательский Томский политехнический университет (пр. Ленина, 30, Томск, 634050, Россия)

Sergey V. Bedenko, Candidate of Science (Physics and Mathematics), Associate Professor, National Research Tomsk Polytechnic University (30 Lenin Ave., Tomsk, 634050, Russian Federation)

Иванов Александр Александрович, доктор физико-математических наук, заместитель директора по научной работе, Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 11, Новосибирск, 630090, Россия); профессор, физический факультет, Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Aleksandr A. Ivanov, Doctor of Science (Physics and Mathematics), Deputy Director for Science, Budker Institute of Nuclear Physics SB RAS (11 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Professor, Novosibirsk State University (1 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

Модестов Дмитрий Геннадьевич, старший научный сотрудник, Российский федеральный ядерный центр – ВНИИТФ им. Е. И. Забабахина (ул. Васильева, 13, а/я 245, Снежинск, Челябинская область, 456770, Россия)

Dmitry G. Modestov, Senior Scientist, Russian Federal Nuclear Center – Zababakhin All-Russia Research Institute of technical Physics (13 Vasiliev Str., Snezhinsk, Chelyabinsk Region, 456770, Russian Federation)

Приходько Вадим Вадимович, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 11, Новосибирск, 630090, Россия)

Vadim V. Prikhodko, Candidate of Science (Physics and Mathematics), Senior Scientist, Budker Institute of Nuclear Physics SB RAS (11 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

v.v.prikhodko@inp.nsk.su

Синицкий Станислав Леонидович, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 11, Новосибирск, 630090, Россия); доцент кафедры общей физики и кафедры физики плазмы Новосибирского государственного университета (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Stanislav L. Sinitsky, Candidate of Science (Physics and Mathematics), Senior Scientist, Budker Institute of Nuclear Physics SB RAS (11 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Associate Professor, Novosibirsk State University (1 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

Шаманин Игорь Владимирович, доктор физико-математических наук, профессор, руководитель НЛ ИАТ ИЯТШ, Национальный исследовательский Томский политехнический университет (пр. Ленина, 30, Томск, 634050, Россия)

Igor V. Shamanin, Doctor of Science (Physics and Mathematics), Professor, Head of Scientific Laboratory of isotope analysis and technology at School of Nuclear Engineering, National Research Tomsk Polytechnic University (30 Lenin Ave., Tomsk, 634050, Russian Federation)

Шмаков Владимир Михайлович, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, ведущий научный сотрудник, Российский федеральный ядерный центр – ВНИИТФ им. Е. И. Забабахина (ул. Васильева, 13, а/я 245, Снежинск, Челябинская область, 456770, Россия)

Vladimir M. Shmakov, Candidate of Science (Physics and Mathematics), Senior Scientist, Leading Scientist, Russian Federal Nuclear Center – Zababakhin All-Russia Research Institute of technical Physics (13 Vasiliev Str., Snezhinsk, Chelyabinsk Region, 456770, Russian Federation)

Титова Александра Михайловна, младший научный сотрудник, Российский федеральный ядерный центр – ВНИИТФ им. Е. И. Забабахина (ул. Васильева, 13, а/я 245, Снежинск, Челябинская область, 456770, Россия)

Aleksandra M. Titova, Junior Scientist, Russian Federal Nuclear Center – Zababakhin All-Russia Research Institute of technical Physics (13 Vasiliev Str., Snezhinsk, Chelyabinsk Region, 456770, Russian Federation)

УДК 532.5/6 + 519.6:621.785.5
DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-25-34

Оценка конвективного массопереноса при импульсном лазерном нагреве поверхности стали

В. Н. Попов

*Институт теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН
Новосибирск, Россия*

Аннотация

Проведено численное моделирование процессов при легировании поверхностного слоя металла в подложке под воздействием импульсного лазерного излучения. С помощью предлагаемой математической модели, описывающей термо- и гидродинамические явления, рассматриваются процессы, включающие разогрев металла, его плавление, конвективный тепломассоперенос в расплаве и затвердевание после окончания импульса. По результатам численных экспериментов в зависимости от условий нагрева подложки определены два варианта формирования структуры течения в расплаве и распределения легирующего вещества.

Ключевые слова

термокапиллярная конвекция, конвективный тепломассоперенос, импульсное лазерное излучение, легирование металла, численное моделирование, поверхностно-активное вещество

Для цитирования

Попов В. Н. Оценка конвективного массопереноса при импульсном лазерном нагреве поверхности стали // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 4. С. 25–34. DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-25-34

Evaluation of Convective Mass Transfer during Pulsed Laser Heating of Steel Surface

V. N. Popov

*Khristianovich Institute of Theoretical and Applied Mechanics SB RAS
Novosibirsk, Russian Federation*

Abstract

Numerical modeling of the processes during the alloying of the substrate surface metal layer under pulsed laser radiation is carried out. The proposed mathematical model is used to consider the various processes, such as: heating, phase transition, heat and mass transfer in the molten metal, solidification of the melt. The surface of the substrate is covered with a layer of alloying substance that penetrates the melt. According to the results of numerical experiments, depending on the heating conditions of the substrate, two variants of the formation of the flow structure in the melt and the distribution of the alloying substance are determined.

Keywords

thermocapillary convection, convective heat and mass transfer, impulse laser radiation, metal alloying, numerical simulation, surface active component

For citation

Popov V. N. Evaluation of Convective Mass Transfer during Pulsed Laser Heating of Steel Surface. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 25–34. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-25-34

Введение

Одним из распространенных способов улучшения эксплуатационных свойств деталей является легирование расплава при лазерной обработке их поверхностей, что способствует повышению твердости, износостойкости и других физико-механических характеристик сталь-

ных изделий [1; 2]. В ходе исследований процессов в поверхностном слое металла при воздействии лазерного импульса определено, что основным фактором, влияющим на качество легирования, является термокапиллярная конвекция, которая при определенных условиях способствует гомогенному распределению материалов, проникающих в расплав [2; 3]. Однако проблема эффективности перемешивания легирующих добавок в расплаве до сих пор далека от решения [2], так как обычно не учитываются состав обрабатываемого металла [1] и, как следствие, возможные изменения его свойств. В [4–6] рассмотрено влияние растворенных в расплаве поверхностно-активных веществ на характер конвекции и показано, что структура течений в расплаве зависит от наличия и количества примесей. В связи с этим при совершенствовании технологии легирования поверхностного слоя металла актуальны исследования происходящих в нем взаимосвязанных процессов теплопереноса, фазового перехода, конвекции, распределения вводимого материала, а использование методов численного моделирования является единственным инструментом их детального рассмотрения [4–7].

В настоящей работе с использованием численного моделирования исследуются возможные структуры конвективных течений, возникающих в расплавленном металле при импульсном лазерном воздействии на поверхность подложки. Модель учитывает влияние поверхностно-активных веществ в металле на поверхностное натяжение расплава. В качестве материала подложки рассматривается сплав стали, в котором фактически всегда в небольших количествах присутствует сера, являющаяся поверхностно-активным веществом для расплавленного металла [6; 8]. С помощью предлагаемой математической модели, описывающей термо- и гидродинамические явления, исследуются нестационарные процессы, включающие нагрев металла, его плавление, конвективный теплоперенос в расплаве и далее, после окончания импульса, затвердевание. По результатам численных экспериментов оцениваются структуры течений и их влияние на распределение легирующего вещества, проникающего в жидкий металл с его поверхности, в зависимости от условий разогрева.

Математическая модель и алгоритм реализации

Рассматривается физическая задача импульсного воздействия луча лазера с радиусом r_0 перпендикулярно на поверхность металлической подложки из сплава железа, температура

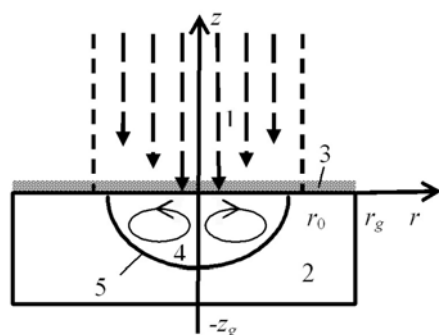


Рис. 1. Схема воздействия лазерного импульса на подложку: 1 – луч лазера; 2 – металлическая подложка и легирующий материал (3) на ее поверхности; 4 – расплав; 5 – граница проплавленной зоны

Fig. 1. Schematic of the action of the laser impulse: 1 – laser beam; 2 – metal substrate and alloying material (3) on the surface; 4 – melt; 5 – melted zone boundary

которой ниже температуры кристаллизации (рис. 1). Импульсное излучение имеет постоянную по времени мощность, продолжительность – t_H , а плотность мощности потока описывается распределением Гаусса. Поверхность подложки покрыта слоем легирующего материала. Под воздействием энергии металл разогревается и плавится, фазовый переход происходит при температуре плавления материала подложки T_m . В образовавшейся и увеличивающейся со временем жидкой лунке развивается конвекция под действием капиллярных и термогравитационных сил. Растворившаяся в расплаве часть легирующего материала формирующимися течениями распределяется в проплавленной лунке. На границе фазового перехода выполняются условия прилипания. После завершения импульса за счет отвода тепла в неразогретый материал подложки и теплообмена с окружающей средой происходит остывание расплава и затвердевание.

Для упрощения задачи считается, что теплофизические характеристики жидкой, твердой и двухфазной сред одинаковые и не зависят от температуры. Массовое содержание проникающего материала ма-

ло, и его влиянием на физические параметры расплава можно пренебречь. Количество растворенных компонентов в расплаве не значительно, так что можно не учитывать их влияние на температуру фазового перехода, полагая $T_m = \text{const}$. Плавление и затвердевание металла рассматривается в приближении Стефана с использованием эффективной теплоемкости [9]. Предполагается, что при рассматриваемых режимах нагрева небольшие величины конвективных скоростей обуславливают плоскую форму свободной поверхности жидкости. Границы r_g, z_g рассматриваемой области выбраны таким образом, чтобы их положение не оказывало влияние на исследуемые процессы.

Распределение температурного поля в твердом и жидком материале подложки описывается уравнением конвективного теплопереноса в цилиндрической системе координат (r, z) , которое для безразмерных переменных имеет вид

$$c_{ef}[\theta_t + (\nabla \cdot \mathbf{u})\theta] = \frac{1}{\text{Pr}} \Delta \theta, \quad 0 \leq r \leq r_g, \quad -z_g \leq z \leq 0. \quad (1)$$

Здесь θ – температура; t – время; $\text{Pr} = \nu / a$ – число Прандтля, ν – кинематическая вязкость расплава, a – температуропроводность; $\mathbf{u}$ – вектор скорости в расплавленном металле с компонентами u, w в радиальном (r) и вертикальном (z) направлениях соответственно (в твердом металле $u \equiv 0, w \equiv 0$). Эффективная теплоемкость, учитывающая скрытую теплоту фазового перехода κ , описывается соотношением $c_{ef} = 1 + \delta(\theta - 1)\text{St}$, где $\delta(\theta - 1) = 1$ при $\theta \in [1 - \Delta\theta/2, 1 + \Delta\theta/2]$ и $\delta(\theta - 1) = 0$, если $\theta \notin [1 - \Delta\theta/2, 1 + \Delta\theta/2]$, $\Delta\theta$ – температурный интервал, на котором «размазывается» фазовая граница; $\text{St} = \kappa / (c_p T_m)$ – число Стефана; κ – удельная теплота плавления; c_p – удельная теплоемкость. Безразмерные параметры определяются с помощью характерного размера r_0 , скорости $v_0 = \nu / r_0$, времени $t_0 = r_0^2 / \nu$ и температуры T_m : $r = r / r_0, z = z / r_0, u = u / v_0, w = w / v_0, t = t / t_0, \theta = T / T_m$.

Граничные условия для уравнения (1) следующие. На оси симметрии

$$\lim_{r \rightarrow 0} r(\partial\theta / \partial r) = 0, \quad r = 0, \quad -z_g \leq z \leq 0.$$

На внешней боковой границе расчетной области

$$\partial\theta / \partial r = 0, \quad r = r_g, \quad -z_g \leq z \leq 0.$$

На верхней границе ($z = 0$):

$$\partial\theta / \partial z = q(r), \quad 0 \leq r \leq 1; \quad \partial\theta / \partial z = \alpha(\theta_c - \theta), \quad 1 < r \leq r_g, \quad t \leq t_H;$$

$$\partial\theta / \partial z = \alpha(\theta_c - \theta), \quad 0 \leq r \leq r_g, \quad t > t_H.$$

На нижней границе расчетной области

$$\partial\theta / \partial z = 0, \quad 0 \leq r \leq r_g, \quad z = -z_g.$$

Здесь $\alpha = \alpha_0 r_0 / \lambda$, $q(r) = [q_0 \exp(-2r^2)] r_0 / (\lambda T_m)$, $\alpha_0 = \varepsilon \sigma_0 (T^2 + T_c^2)(T + T_c)$, $q(r)$ – плотность мощности теплового источника (в безразмерном виде), σ_0 – постоянная Стефана – Больцмана; λ, ε – теплопроводность и степень черноты материала подложки; q_0 – максимальная плотность мощности потока; T_c – температура окружающей среды ($\theta_c = T_c / T_m$).

При плавлении и затвердевании материала скорость v_n для каждой точки границы «расплав – твердая фаза» $\zeta(r, z, t)$ определяется условием

$$\text{Pr} \, St \, v_n = \partial\theta / \partial \mathbf{n}|_{\theta=1-} - \partial\theta / \partial \mathbf{n}|_{\theta=1+},$$

где $\mathbf{n}$ – единичный вектор нормали.

При плавлении металла в области $\theta > 1$ с границей «расплав – твердая фаза» $\zeta(r, z, t)$ течение в жидкости описывается уравнениями Навье – Стокса в приближении Буссинеска

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_t + (\nabla \cdot \mathbf{u})\mathbf{u} &= -\nabla p + \nabla^2 \mathbf{u} + \mathbf{k} \text{Gr}(\theta - 1), \\ \nabla \cdot \mathbf{u} &= 0. \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь p – давление; $\text{Gr} = \beta_p g r_0^3 T_m / \nu^2$ – число Грасгофа; g – ускорение свободного падения; β_p – коэффициент объемного теплового расширения расплава; $\mathbf{k}$ – единичный вектор вдоль координатной оси z .

Граничные условия для уравнений (2) следующие. На поверхности «расплав – твердая фаза» $\zeta(r, z, t)$

$$u = 0, \quad w = 0.$$

На оси симметрии $r=0$, $-z_f(t) \leq z \leq 0$ ($-z_f(t)$ – координата границы фазового перехода)

$$u = 0, \quad \lim_{r \rightarrow 0} (r \partial w / \partial r) = 0.$$

На поверхности жидкости $z = 0$, $0 \leq r < r_f(t)$ ($r_f(t)$ – радиус лунки расплавленного металла на свободной поверхности)

$$\frac{\partial u}{\partial z} = \frac{Mn}{\text{Pr}} \frac{\partial \theta}{\partial r} \eta, \quad w = 0.$$

При наличии в расплаве поверхностно-активных веществ для описания поверхностного натяжения используется эмпирическая формула [8]

$$\begin{aligned} \sigma &= \sigma_0 - k_\sigma (T - T_m) - TR \Gamma_s \ln(1 + KC_s), \quad K = S_l \exp[-\Delta H^0 / (RT)], \\ \frac{\partial \sigma}{\partial T} &= -k_\sigma - R \Gamma_s \ln(1 + KC_s) - \frac{KC_s}{1 + KC_s} \frac{\Gamma_s \Delta H^0}{T}, \end{aligned} \quad (3)$$

тогда $Mn = -k_\sigma T_m r_0 / (\rho \nu a)$ – число Марангони и

$$\eta = 1 + \frac{R \Gamma_s}{k_\sigma} \ln(1 + KC_s) + \frac{KC_s}{1 + KC_s} \frac{\Gamma_s \Delta H^0}{T k_\sigma}.$$

Здесь σ_0 – поверхностное натяжение в чистом металле в точке плавления; $k_\sigma = -\partial \sigma / \partial T$ – для чистого металла; R – универсальная газовая постоянная; C_s – концентрация примеси поверхностно-активных веществ на поверхности расплава; S_l – константа, соответствующая энтропии сегрегации; ΔH^0 – стандартная теплота адсорбции; Γ_s – избыток примеси в поверхностном слое на единицу площади.

Распределение концентрации легирующего вещества в расплаве C , которое вовлекается течением со свободной поверхности, описывается уравнением конвективной диффузии.

$$C_t + (\nabla \cdot \mathbf{u})C = \frac{1}{\text{Sc}} \Delta C, \quad (4)$$

где $Sc = \nu / D$ – число Шмидта; D – коэффициент диффузии; $C = C / C_0$, C_0 – количество легирующего вещества на поверхности подложки.

Граничные условия для (4) следующие. На поверхности «расплав – твердая фаза» $\zeta(r, z, t)$

$$\partial C / \partial \mathbf{n} = 0.$$

На оси симметрии $r = 0$, $-z_f(t) \leq z \leq 0$

$$\lim_{r \rightarrow 0} r(\partial C / \partial r) = 0.$$

На зеркале расплавленного металла $z = 0$, $0 \leq r < r_f$

$$\partial C / \partial z = ScBi_D(1 - C),$$

где Bi_D – отражает скорость проникновения легирующего вещества в расплав.

Начальные условия для уравнения теплопереноса (1)

$$\theta = \theta_0,$$

для (2) и (4) в только что расплавившемся металле

$$u = 0, w = 0, C = 0.$$

Для численной реализации модели, которая включает в себя уравнения Навье – Стокса и конвективного тепло- и массопереноса, проводится дискретизация пространственной расчетной области на прямоугольные ячейки. Шаг τ вдоль временной переменной постоянный. Распределения температуры и концентрации примеси описывались значениями в узлах сетки. Системы разностных уравнений строились посредством неявной аппроксимации балансных соотношений, получаемых интегрированием уравнений (1), (2), (4) с учетом соответствующих граничных условий. При аппроксимации (2) в области расплавившегося материала, по аналогии с методами типа MAC [10], составляющие скоростей u , w определялись в серединах боковых граней ячеек, а давление p – в центрах ячеек.

Алгоритм имеет следующий порядок действий. Первоначально вычислялось температурное поле в подложке при воздействии энергии лазерного импульса. После появления жидкой лунки на каждом временном шаге устанавливалась граница фазового перехода. Подстановка найденных значений температуры в уравнения количества движения позволила определить составляющие поля скоростей. Далее с использованием метода искусственной сжимаемости [11] рассчитывалось давление. Производилось несколько итераций для согласования распределения давления и скоростей до выполнения неравенства $\max |\nabla \cdot \mathbf{u}| \leq \gamma$, где γ – заданное малое число. Проводится расчет распределения легирующего материала в расплавленном металле. Решение алгебраических систем, получаемых при аппроксимации уравнений движения и тепломассопереноса, осуществлялось итерационными методами [12].

После завершения импульса решение задачи продолжалось до момента исчезновения перегрева в расплавленном металле подложки. Изменение концентрации легирующего вещества происходило только в расплаве, а в затвердевшей области фиксировались последние рассчитанные значения и координаты.

Результаты численных экспериментов

Численные исследования проводились при следующих параметрах: $r_0 = 0,001$ м, $z_g = 0,0012$ м, $r_g = 0,0015$ м; $t_H = 3-9$ мс; $T_c = 300$ К; $T_0 = 300$ К; $q_0 = (2-6) \cdot 10^8$ Вт/м². Свойства металла [6; 8; 13]: $\rho = 7065$ кг/м³, $c_p = 787$ Дж/(кг·К), $\lambda = 27$ Вт/(м·К), $\kappa = 2,77 \cdot 10^5$ Дж/кг, $\nu = 8,5 \cdot 10^{-7}$ м²/с, $k_\sigma = 4,3 \cdot 10^{-4}$ Н/(м·К), $\beta_p = 1,18 \cdot 10^{-4}$ 1/К, $D = 5 \cdot 10^{-9}$ м²/с, $R = 8314,3$ Дж/(моль·К),

$S_l = 3,18 \cdot 10^{-3}$, $\Gamma_s = 1,3 \cdot 10^{-8}$ моль/м², $\Delta H^0 = -1,88 \cdot 10^8$ Дж/моль, $T_m = 1775$ К, $\varepsilon = 0,5$, $\sigma_0 = 5,7 \cdot 10^{-8}$ ВТ/(м²·К⁴); $T_K = 1141$ К; $C_s = 0,015$ % от массы. Безразмерные параметры, используемые в расчетах: $Pr = 0,175$, $Gr = 2,848 \cdot 10^3$, $Mn = 2,62 \cdot 10^4$ (для металла без примеси серы), $\alpha = 7 \cdot 10^{-3}$, $Sc = 27$, $Bi_D = 0,5$, $\Delta\theta = 10^{-3}$, $\gamma = 10^{-4}$. Значение временного шага $\tau = 10^{-4}$ выбрано из условий устойчивости численного счета и минимизации количества итераций.

Из анализа формулы (3) следует, что величина $\partial\sigma/\partial T$ в зависимости от температуры может менять свой знак, влияя на направление движения жидкости. На рис. 2 отражены температуры разогрева свободной поверхности расплава T_{kp} для различных концентраций поверхностно-активных веществ в металле, при которых начинаются изменения в структуре течений. При температурах ниже указанных, в диапазоне $T_{kp} \geq T > T_m$, согласно (3), у поверхности расплава существует устойчивое течение «от холодного к горячему». В области более значительного перегрева расплава ($T > T_{kp}$), когда $\partial\sigma/\partial T$ поменял знак, существует течение «от горячего к холодному». Иначе говоря, появляются условия существования двух встречных потоков, их столкновения и, как следствие, возникновения сложной структуры течения в расплавленном металле. Таким образом, наличие поверхностно-активного вещества в расплаве предполагает существование двух основных сюжетов формирования структуры течения

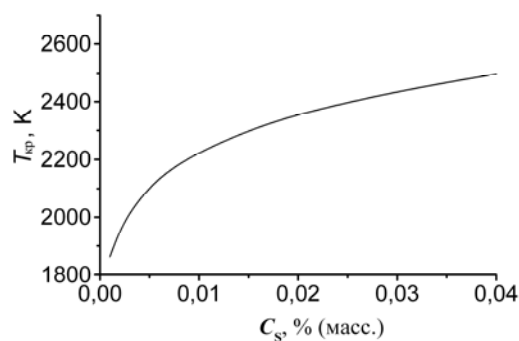


Рис. 2. Предельные значения температуры поверхности расплава при однонаправленном течении и различных концентрациях поверхностно-активных веществ в металле

Fig. 2. Utmost values of melt surface temperature for the existence of the steady centripetal flow at various concentrations of surface-active substances in the metal

в расплаве и, как следствие, распределения легирующего материала.

Рассмотрим первоначально вариант лазерного воздействия на подложку, когда максимальная температура расплавленного металла во время импульса не превышает T_{kp} : $q_0 = 2,8 \cdot 10^8$ ВТ/м², $t_H = 8$ мс для $C_s = 0,015$ % от массы. Рис. 3, а иллюстрирует поле скоростей в расплаве в момент завершения энергетического воздействия. Стрелки на рисунке здесь и далее указывают направление, а их длина характеризует интенсивность потока. Из представленных данных следует, что формируется общее тороидальное течение с направлением движения вблизи свободной поверхности жидкости от границы фазового перехода к центру лунки. Нисходящий поток в этой области при встрече с восходящим движением жидкости, вызванным естественной конвекцией, меняет направление и способствует расходящемуся течению вдоль границы фазового перехода.

Подобная структура движения существует с момента появления расплава до текущего времени при условии небольшого перегрева его поверхности относительно температуры фазового перехода. По результатам расчетов средняя скорость течения составляет около 0,35–0,5 м/с, а максимальное значение не превышает 1 м/с. После завершения импульса тепло отводится в материал подложки, температура расплава снижается, металл затвердевает, а структура течения, подобная представленной на рис. 3, а, сохраняется до полного затвердевания.

На рис. 3, б изоконцентраты иллюстрируют распределение проникшего в расплав легирующего вещества после полного затвердевания металла ($t = 9,5$ мс). Существование восходящего течения вдоль границы фазового перехода не дает проникать легирующему материалу вглубь расплава на его периферии. В центральной части лунки легирующие добавки переносятся в глубину нисходящим потоком в течение всего времени существования рас-

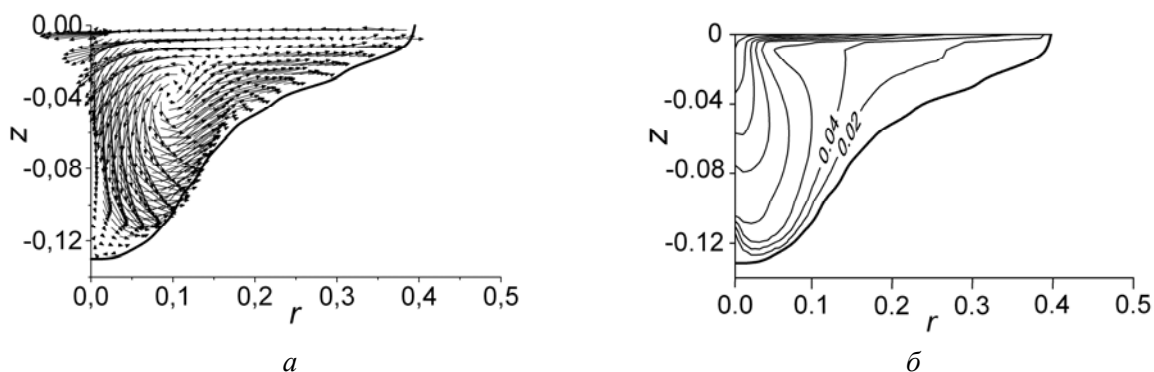


Рис. 3. Поле скоростей (а) и изоконцентраты распределения легирующего материала (б)

Fig. 3. Velocity field (a) in the melt and iso-concentrates of the alloying material distribution (b) in the solidified metal

плавленного металла. В целом получается, что легирующий материал распределяется очень неравномерно: максимальная концентрация вблизи свободной поверхности и в центральной части расплавленной лунки и фактическое отсутствие на периферии затвердевшего металла.

Рассмотрим вариант лазерного воздействия на подложку, когда максимальная температура расплава во время импульса превышает T_{kp} и имеет место значительный разогрев расплава в центре обрабатываемой области: $q_0 = 4 \cdot 10^8$ Вт/м², $t_H = 5$ мс при той же величине C_s . Структура течения в образующейся лунке изменяется от иллюстрируемого рис. 3, а до представленных на рис. 4. При превышении температуры на поверхности расплава величины $T_{kp} - \partial\sigma / \partial T$ меняет знак, и возникают разнонаправленные капиллярные силы, которые способствуют возникновению нескольких тороидальных течений. Поверхность расплава у границы фазового перехода имеет небольшой перегрев, при котором происходит движение жидкости к центру лунки. В центральной области в зоне максимального перегрева поверхности существует течение, направленное от центра. При столкновении встречных течений образуется нисходящий поток, который способствует переносу вглубь расплава тепла, оказывающего влияние на форму границы фазового перехода, и легирующего материала. В случае если одна из разнонаправленных капиллярных сил преобладает, явно выраженного встречного потока может и не возникать, однако большой однонаправленный тороидальный вихрь, подобный представленному на рис. 3, а, разрушается на более мелкие (см. рис. 4, а).

Сразу после завершения импульса перегрев жидкого металла в центральной области снижается, температура опускается ниже T_{kp} , и формируется структура течения, представленная на рис. 4, з, которая сохраняется до полного затвердевания. Тепло от поверхности переносится в глубину расплава, сдвигая границу фазового перехода. В области с минимальным перегревом расплавленный металл быстро остывает и затвердевает, уменьшая радиус лунки. По мере дальнейшего остывания расплава происходит движение границы фазового перехода к поверхности подложки, интенсивность перемешивания снижается и после полного снятия перегрева прекращается.

Рисунок 5 иллюстрирует распределение легирующего вещества, попавшего в расплавленный материал подложки, рис. 5, а отражает результат, полученный на момент завершения импульса, со структурой течения, представленной рис. 4, в. Согласно представленным данным, восходящее течение вдоль границы фазового перехода не дает проникать легирующему материалу вглубь расплава на его периферии. В центральной части лунки легирующие добавки проникают на значительную глубину лишь на первом этапе плавления за счет нисходящего течения, а на момент завершения импульса восходящее движение жидкости этому препятствует. И только в области столкновения встречных течений образуется нисходящий

поток, доставляющий вводимый материал в глубину расплавленного металла. В целом получается, что легирующий материал распределяется очень неравномерно и фактически отсутствует в глубине центральной части образовавшейся лунки и на периферии расплава (рис. 5, а).

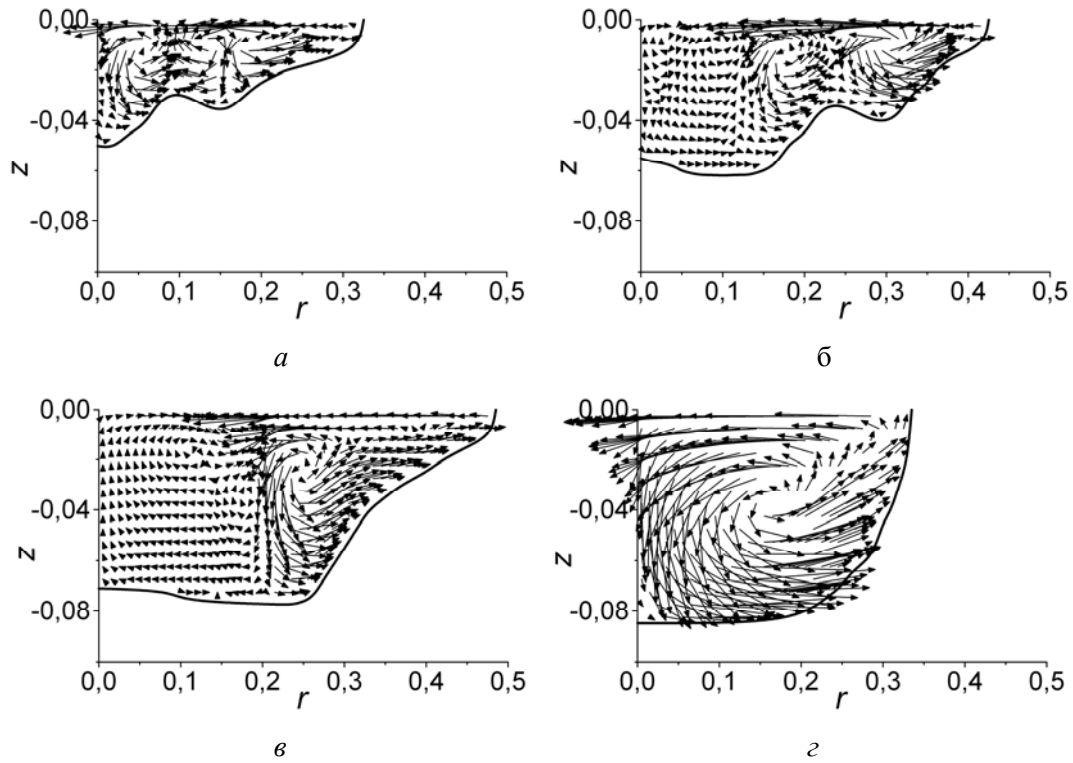


Рис. 4. Поле скоростей в расплаве при $t = 3$ мс (а), 4 мс (б), 5 мс (в), 5,25 мс (г)

Fig. 4. Velocity field in the melt at $t = 3$ ms (a), 4 ms (b), 5 ms (c), 5.25 ms (d)

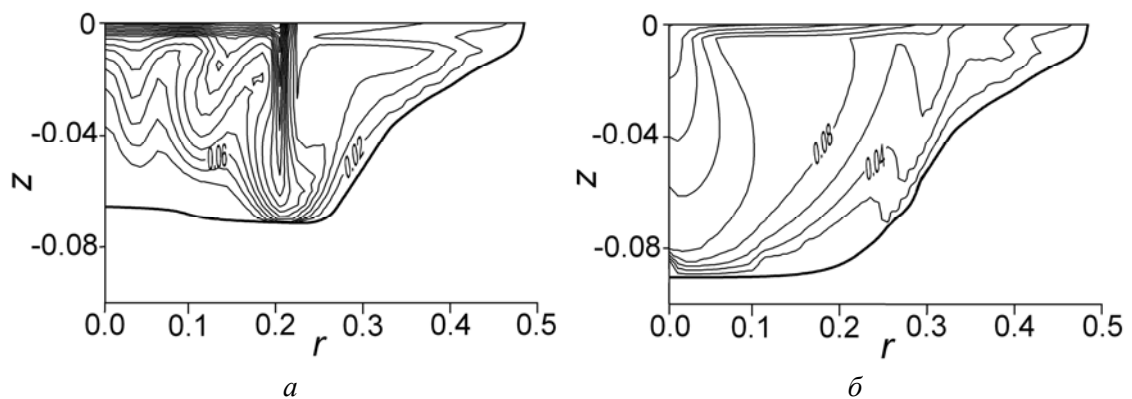


Рис. 5. Изоконцентраты легирующего материала в расплаве при $t = 5$ мс (а) и в затвердевшем металле (б)

Fig. 5. Iso-concentrates of the alloying material in the melt at $t = 5$ ms (a) and in the solidified metal (b)

Однако уже через 0,25 мс после завершения импульса в жидком металле формируется течение, представленное на рис. 4, *г*. Движение жидкости вблизи свободной поверхности увлекает легирующее вещество к центру лунки и нисходящим потоком переносит в глубину, а затем расходящимися течениями перераспределяет по всему объему расплава. Вновь образовавшееся общее тороидальное течение способствует равномерному перемешиванию ранее попавшего в расплав легирующего вещества. По мере продвижения границы фазового перехода к поверхности подложки интенсивность перемешивания снижается и после снятия перегрева в расплаве полностью прекращается ($t = 6$ мс). Рисунок 5, *б* иллюстрирует окончательное распределение растворившегося легирующего материала в области подложки, подвергавшейся плавлению. Из представленных данных следует, что наибольшая концентрация проникшего в расплав материала наблюдается вблизи поверхности, в центральной части затвердевшего металла и в меньшем количестве на периферии лунки, затвердевшей в первую очередь после прекращения импульса. Надо отметить, что проникновение легирующей добавки продолжается до полного затвердевания металла подложки, и ее суммарное количество к этому моменту (см. рис. 5, *б*) на 15 % превышает рассчитанное количество при завершении лазерного импульса.

Заключение

С использованием численного моделирования рассмотрено конвективное течение в расплавленном материале стальной подложки и распределение вводимой добавки при легировании металла с помощью импульсной лазерной обработки. Определены два возможных варианта течения при наличии поверхностно-активных веществ в расплаве. Распределение легирующего материала происходит только за счет конвективного течения в расплаве. Существование устойчивого центростремительного движения у поверхности жидкости возможно при условии, что ее разогрев не превышает температуры $T_{кр}$. В этом случае проникший с поверхности материал имеет максимальную концентрацию вблизи свободной поверхности и в центральной части расплавленной лунки и фактически отсутствует на ее периферии. Температура поверхности расплава в какой-либо области выше $T_{кр}$ способствует возникновению нескольких тороидальных течений в жидкости и более равномерному перемешиванию легирующего вещества. Очевидно, что для повышения качества обработки поверхностного слоя металла необходимо принимать во внимание его состав и с учетом этого выбирать оптимальные режимы разогрева.

Список литературы / References

1. **Bernatsky A. V.** Laser surface alloying of steel items (Review). *The Paton Welding Journal*, 2013, no. 12, p. 2–8.
2. **Tarasova T. V.** Distribution of elements in the molten pool produced by laser alloying. *Metal Science and Heat Treatment*, 2002, no. 3–4, p. 124–127. DOI 10.1023/A:1019674205189
3. **Majumdar J. D.** Development of wear resistant composite surface of mild steel by laser surface alloying with silicon and reactive melting. *Mater. Lett.*, 2008, no. 62, p. 4257–4259. DOI 10.1016/j.matlet.2008.06.042
4. **Popov V. N., Tsivinskii M. Y., Tsivinskaya Y. S.** Numerical evaluation of the contribution of a surface-active substance in melt to convective mass transfer caused by pulsed laser action on metal. *Math. Models Comput. Simul.*, 2012, vol. 4, no. 5, p. 527–533. DOI 10.1134/S2070048212050080
5. **Ribic B., Tsukamoto S., Rai R., DebRoy T.** Role of surface active elements during keyhole mode laser welding. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2011, vol. 44 (48), p. 485203. DOI 10.1088/0022-3727/44/48/485203

6. **Ehlen G., Ludwig A., Sahm P. R.** Simulation of Time-Dependent Pool Shape during Laser Spot Welding: Transient Effects. *Metall. Mater. Trans. A.*, 2003, vol. 34a, p. 2947–2961. DOI 10.1007/s11661-003-0194-x
7. **Sarkar S., Mohan Raj P., Chakraborty S., Dutta P.** Three dimensional computational modeling of momentum, heat and mass transfer in a laser surface alloying process. *Numer. Heat Transfer A.*, 2002, vol. 42, p. 307–326. DOI 10.1080/10407780290059576
8. **Sahoo P., DebRoy T., McNallan M. J.** Surface tension of binary metal-surface active solute systems under conditions relevant to welding metallurgy. *Metall. Trans. B.*, 1988, vol. 19B, p. 483–491. DOI 10.1007/BF02657748
9. **Самарский А. А., Моисеенко Б. Д.** Экономичная схема сквозного счета для многомерной задачи Стефана // Журн. вычисл. мат. и мат. физ. 1965. Т. 5, № 5. С. 816–827.
Samarsky A. A., Moiseenko B. D. Ekonomichnaya schema skvoznogo scheta dlya mnogomernoy zadachi Stefana. *Zhurnal vychislitel'noy matematiki i matematicheskoy fiziki*, 1965, vol. 5, no. 5, p. 816–827. (in Russ.)
10. **Harlow F. H., Welch J. E.** Numerical calculation of time-depend viscous incompressible flow of fluid with free surface. *Phys. Fluids*, 1965, vol. 8, p. 2182–2189. DOI 10.1063/1.1761178
11. **Chorin A. J.** A numerical method for solving incompressible viscous flow problems. *J. Comput. Phys.*, 1967, vol. 2, p. 12–26. DOI 10.1006/jcph.1997.5716
12. **Самарский А. А.** Теория разностных схем. М.: Наука, 1977. 656 с.
Samarsky A. A. Teoriya raznostnykh skhem. Moscow, Nauka, 1977, 656 p. (in Russ.)
13. **Zhengtao Gan, Gang Yu, Xiuli He, Shaoxia Li.** Numerical simulation of thermal behavior and multicomponent mass transfer in direct laser deposition of Co-base alloy on steel. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2017, vol. 104, p. 28–38. DOI 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2016.08.049

Материал поступил в редколлегию

*Received
06.06.2018*

Сведения об авторе / Information about the Author

Попов Владимир Николаевич, доктор физико-математических наук, старший научный сотрудник, Институт теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН (ул. Институтская, 4/1, Новосибирск, 630090, Россия)

Vladimir N. Popov, Doctor of Science (Physics and Mathematics), Senior Researcher, Khristianovich Institute of Theoretical and Applied Mechanics SB RAS (4/1 Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

popov@itam.nsc.ru

Моделирование развития неустойчивости в плоской затопленной струе при небольших числах Рейнольдса

А. К. Шевченко, С. Н. Яковенко

*Институт теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН
Новосибирск, Россия*

Аннотация

Выполнено численное моделирование плоской затопленной струи при числе Рейнольдса $32 \leq Re \leq 160$, основанном на средней входной скорости и высоте плоской щели на входе в струю, при помощи уравнений неразрывности и уравнений Навье – Стокса для несжимаемой жидкости. Изучено влияние изменения Re на характер течения при отсутствии и задании малых случайных возмущений на входе в струю. Результаты настоящих расчетов согласуются с имеющимися данными лабораторных экспериментов и показывают ламинарное состояние течения на первом участке у выхода из щели, асимметричную неустойчивость синусоидального вида на втором, переходном, участке и нерегулярный турбулентный характер течения на третьем участке. Получено, что длина первого и второго участков уменьшается с ростом амплитуды малых случайных возмущений, вводимых путем искажения профиля скорости на входе. Кроме того, увеличение числа Рейнольдса приводит к меньшей протяженности ламинарного участка, что согласуется с данными предыдущих работ. Проведена оценка характерных значений длины волны колебаний, соответствующих выявленному эффекту синусоидальной неустойчивости, и характерной частоты этих колебаний, которая резко возрастает с ростом Re .

Ключевые слова

плоская струя, ламинарное течение, неустойчивость, переход к турбулентности, численное моделирование, поле скорости, случайные возмущения

Благодарности

Работа выполнена при поддержке ИВЦ НГУ, предоставившего вычислительные ресурсы для проведения расчетов

Для цитирования

Шевченко А. К., Яковенко С. Н. Моделирование развития неустойчивости в плоской затопленной струе при небольших числах Рейнольдса // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 4. С. 35–45. DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-35-45

Simulation of Instability Development in a Plane Submerged Jet at Low Reynolds Numbers

A. K. Shevchenko, S. N. Yakovenko

*Khristianovich Institute of Theoretical and Applied Mechanics SB RAS
Novosibirsk, Russian Federation*

Abstract

Numerical simulation of a plane submerged jet with Reynolds number of $32 \leq Re \leq 160$ based on the mean inlet velocity and the flat slit height at the jet entrance is performed using the continuity and Navier – Stokes equations for incompressible fluid. The influence of changes in Re on the flow nature is studied with assignment of small random perturbations at the jet inlet and in the absence of these perturbations. In agreement with the available data of laboratory experiments, the present computation results show the laminar flow state in the first region near the exit from the slit, the asymmetric instability of sinusoidal type in the second, transitional region, and the irregular, turbulent nature of the flow in the third region. It is found that the lengths of the first and second sections decrease with increasing ampli-

tude of small random perturbations introduced by distortion of the inlet velocity profile. Moreover, an increase in the Reynolds number leads to a shorter extension of the laminar section in agreement with the data of previous studies. Estimations are made for typical values of the wavelength of oscillations corresponding to the revealed effect of sinusoidal instability and for the typical frequency of these oscillations, which sharply increases with the growth of Re .

Keywords

plane jet, laminar flow, instability, transition to turbulence, numerical simulation, velocity field, random perturbations

Acknowledgements

The study was performed with support by the Information-Computing Centre of NSU, which provided computing resources

For citation

Shevchenko A. K., Yakovenko S. N. Simulation of Instability Development in a Plane Submerged Jet at Low Reynolds Numbers. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 35–45. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-35-45

Введение

В последнее время в связи с миниатюризацией технических устройств наблюдается повышенное внимание к микроструйным течениям (см., например, [1–6]), связанное с развитием микроэлектромеханических систем, водородной энергетики и других отраслей науки и промышленности, где внимание уделяется вопросам струйного истечения из малоразмерных устройств и возможности влиять на них с помощью методов управления. Например, в авиации микроструи могут применяться для охлаждения передних кромок лопаток турбин двигателей и предотвращения обледенения обшивки фюзеляжей самолета, в химической промышленности – для сушки микрообъемов материалов и окрашивания микроповерхностей, в микроэлектронике – для отвода тепла от поверхностей микрочипов. Отметим здесь и применение пульсирующих струй для воздействия на основные источники шума от самолетов – крупные турбулентные вихри в выхлопных потоках авиадвигателей [7]. Кроме того, процессы струйного истечения водорода из форсунок и сопел различных типов горелок представляют интерес с точки зрения повышения устойчивости пламени и снижения выбросов в атмосферу оксидов азота. Возникает потребность в методах управления этими процессами. В частности, под влиянием акустики, в струе формируется вихревая структура, которая способствует росту подсоса воздуха, повышению степени смешения смеси топливо-воздух, устойчивости пламени, снижению температуры и длины пламени и, как результат, сокращению эмиссии вредных веществ [4].

В одном из первых экспериментальных исследований микроструй [1] приведена зависимость протяженности ламинарного участка струи перед ее переходом к турбулентному состоянию от числа Рейнольдса, и показаны соответствующие картины истечения микроструй. В [2] изучены особенности дозвуковых плоских и круглых микроструй и установлено, что развитие плоских струй связано с механизмом асимметричной (синусоидальной) неустойчивости. Также обнаружены эффекты расщепления струи на две, развивающиеся независимо друг от друга, и преобразования круглой струи в плоскую под действием поперечного акустического поля. В [3; 4] приведены результаты исследования горения пропана и водорода в микроструях при воздействии акустики. В [5; 8] продемонстрировано, как и в [2], развитие асимметричной моды неустойчивости. Кроме того, в [5] проанализирована зависимость координаты ламинарно-турбулентного перехода затопленной струи от числа Рейнольдса, аналогичная результатам из [1]. В [8] также исследована эволюция свободной и пристеночной струи, в частности переход к турбулентному режиму течения, и рассмотрено развитие вихревых структур.

Результаты лабораторных экспериментов [1–5] послужили мотивацией настоящей работы. Отметим незначительное количество работ по исследованию микроструйных течений по сравнению с макроструями, что связано со сложностью измерений и вычислений высокой точности в небольших устройствах сложной формы. Нестационарный расчет микроструй,

для которых характерны, как правило, небольшие числа Рейнольдса, требует весьма мелких сеток и больших размеров области расчета, чтобы и учесть малые размеры входной щели, и проследить развитие неустойчивости с переходом в турбулентное состояние на относительно большом расстоянии от входа. Это затрудняет проведение адекватного численного моделирования. В [6] получены предварительные результаты расчета микроструй в виде стационарных решений двумерных уравнений движения, полученных в нижней половине плоской ламинарной струи при условии симметрии в ее центре (на верхней границе области расчета). Данные [6] показали качественно правильную картину развития течения и асимптотическое стремление с ростом продольной координаты к точному аналитическому решению для струи из точечного источника [9]. Цель настоящего исследования – выполнить компьютерное моделирование развития неустойчивости плоской затопленной струи при небольших числах Рейнольдса и выяснить, согласуются ли полученные в физических и численных экспериментах результаты.

Постановка численных экспериментов

Использованы двумерные нестационарные уравнения неразрывности и уравнения Навье – Стокса для несжимаемой жидкости в прямоугольных декартовых координатах (x, y) . Расчеты проведены в программном пакете OpenFOAM¹, основанном на решении уравнений механики жидкости и газа методом конечных объемов (см., например, [10]). В файловой системе OpenFOAM выбран решатель isoFoam, и сделаны необходимые изменения для учета особенностей рассматриваемой задачи – плоской струи воздуха, вытекающей из узкой щели высотой $h = 0,2$ мм (как и в [1; 2]). Выбраны числа Рейнольдса $Re = u_0 h / \nu = 32, 80, 160$, соответствующие данным [1] и входной скорости $u_0 = 2, 4, 6, 12$ м/с истечения струи из щели, где ν – кинематическая вязкость.

На предварительных этапах исследования варьировались параметры численной реализации, где изучалось влияние шагов по пространству и времени, размеров области расчета, граничных условий, разностных схем на точность получаемых данных. Применены специальные критерии сравнения решений [11] (например, найденных на разных сетках) для получения независимого от деталей численной реализации решения. В результате выбраны параметры и граничные условия, приведенные в табл. 1 и 2, где Δt – шаг по времени, L_x и L_y – длина и ширина расчетной области, $\Delta x_{\min}$ и $\Delta y_{\min}$ – минимальные размеры ячейки, α_x и α_y – коэффициенты расширения сетки по геометрической прогрессии при $x > 0$ и $|y - L_y/2| > h$ соответственно.

Построенная неравномерная расчетная сетка содержала 268×394 ячеек; схема вычислительной области показана на рис. 1. Параллельные вычисления с количеством шагов Δt около 10^5 занимали в среднем четыре часа на 16 ядрах вдвоенных 4-ядерных процессоров кластера ИВЦ НГУ.

Начальные условия соответствуют покоящейся среде: $u(x, y, t = 0) = v(x, y, t = 0) = 0$ (кроме части входного сечения, Inlet, соответствующей выходу из щели) и $p(x, y, t = 0) = 0$.

Результаты моделирования

Первая серия расчетов (рис. 2) проведена для изучения роста возмущений из-за наличия численной неустойчивости, выступающей триггером для развития физической неустойчивости. Это развитие может быть связано со снижением (при увеличении Re) вклада молекулярной вязкости в уравнениях Навье – Стокса по сравнению с конвективным членом, ответственным за рост неустойчивости. Полученные результаты сопоставлены с данными визуализации из [1]. Очевидно, результаты при $Re = 32$ (рис. 2, а) воспроизводят поведение

¹ <https://ru.wikipedia.org/wiki/OpenFOAM/>.

струи, наблюдаемое в опыте [1] при $16 \leq Re \leq 48$ на достаточно больших расстояниях от щели. Однако с ростом числа Рейнольдса результаты расчета (рис. 2, б–г) и эксперимента [1]

Таблица 1

Оптимальные параметры вычислений

Table 1

Optimal parameters of computations

Расчетная схема	$\Delta t(u_0/h)$	L_x/h	L_y/h	$\Delta x_{\min}/h = \Delta y_{\min}/h$	α_x	α_y
Gauss Linear [10] (аналог центрально-разностной схемы для конвективных слагаемых)	0,0144	300	200	0,025	1,013	1,05

Таблица 2

Граничные условия [10]

Table 2

Boundary conditions [10]

Название и координаты границы	Условия для компонент вектора скорости (u, v)	Условия для давления p
Inlet ($x = 0, y - L_y/2 < h/2$)	Постоянное значение скорости $u(y) = u_0$ (ударный профиль)	zeroGradient – нулевой градиент давления
Wall ($x = 0, y - L_y/2 \geq h/2$)	noSlip – условие прилипания	
Top ($y = L_y$)	inletOutlet – условие истечения, позволяющее не только выход, но и вход течения в расчетную область в случае обратного потока	Advective – адвективное истечение, не допускающее отражения волн
Bottom ($y = 0$)		
Outlet ($y = L_x$)		

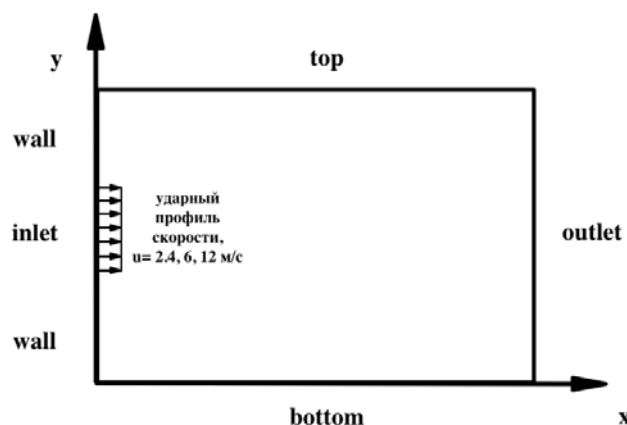


Рис. 1. Схема границ области расчета

Fig. 1. Scheme of computation domain boundaries

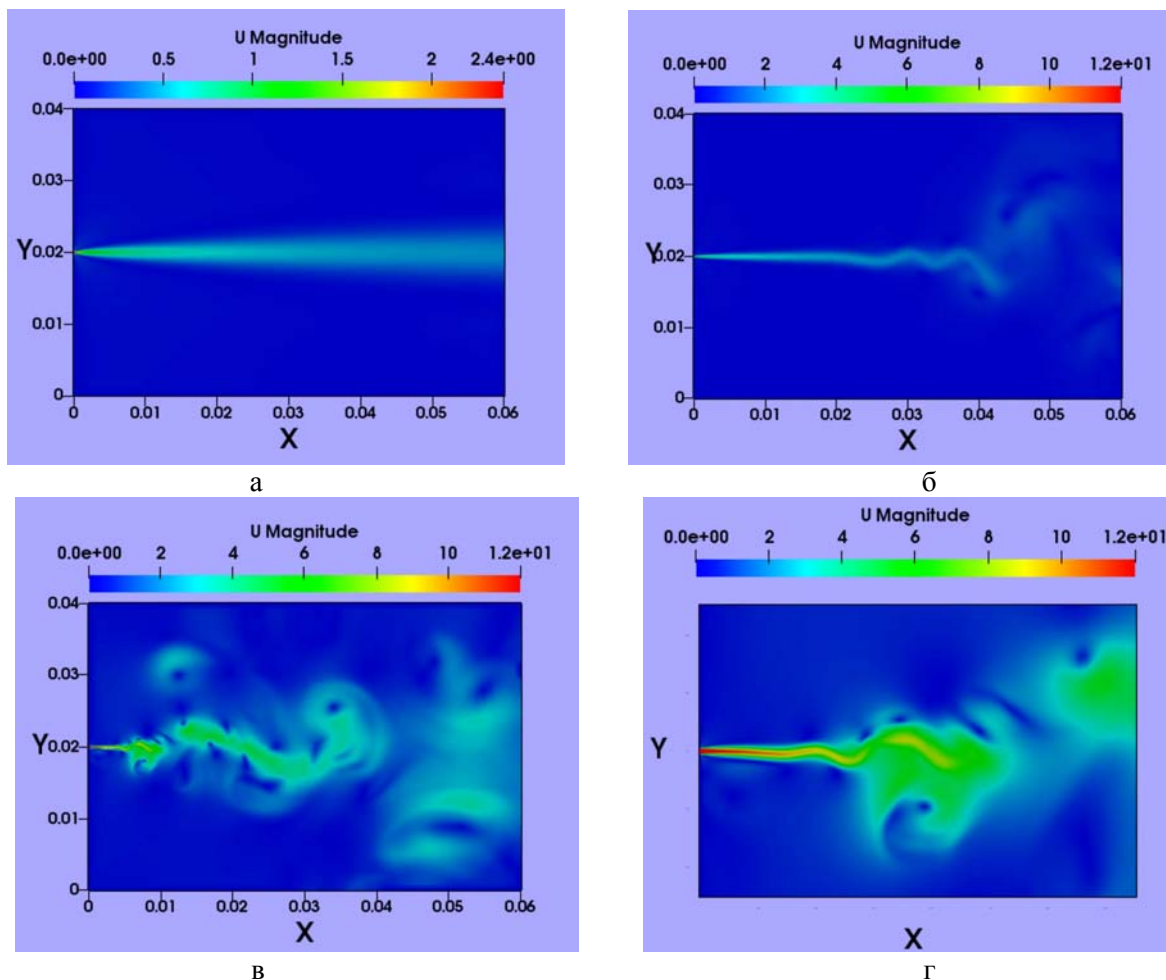


Рис. 2. Изолинии амплитуды вектора скорости (м/с) на плоскости (x, y) координат (в метрах) при $Re = 32$ (а), 80 (б), 160 (в); картина течения при $Re = 160$ (г) увеличена в четыре раза для иллюстрации различных участков струи

Fig. 2. Contours of the velocity vector magnitude (m/s) on the plane (x, y) of coordinates (in meters) at $Re = 32$ (a), 80 (b), 160 (c); the flow pattern at $Re = 160$ (d) is enlarged four times to illustrate various parts of the jet

начинают расходиться. Струя, полученная в настоящем расчете, как и в [5], может быть условно разделена на три участка: на первом «спокойное» ламинарное течение, где нет каких-либо возмущений; на втором поток приобретает асимметричную неустойчивость синусоидального типа; на третьем, очевидно, вследствие развития этой неустойчивости струя разрушается, что можно трактовать как переход к турбулентному режиму. В [1] на картинах течения второй участок не наблюдался, и струя сразу переходила от ламинарного к турбулентному режиму, при этом было измерено расстояние L от выхода струи из щели до точки разрушения ламинарного режима при различных числах Re . Вероятно, в [1] синусоидальная неустойчивость всё же имела место, однако ее выявление затруднялось условиями проведения эксперимента и регистрации результатов.

С другой стороны, полученные в вычислениях картины течения на переходном (втором) участке с синусоидальной неустойчивостью соответствуют осциллирующему поведению струи, обнаруженному в опыте [5] при числе $Re = 172$, основанном на среднерасходной скорости (для параболического профиля Пуазейля) на выходе из щели, и в работе [2] (рис. 3).

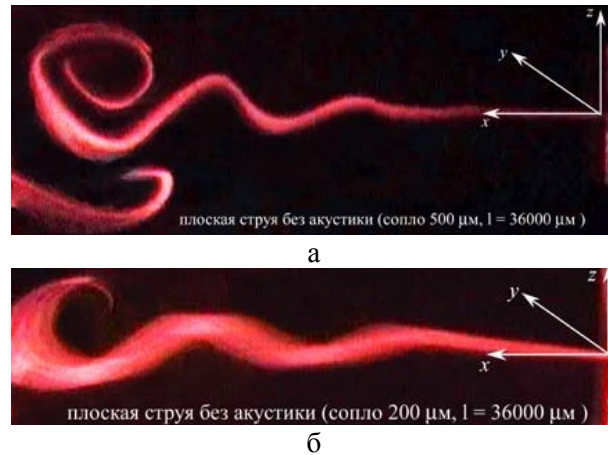


Рис. 3. Визуализация течения плоской микроструи без акустического воздействия (из [2], с разрешения авторов) при $h = 0,5$ мм (а) и $0,2$ мм (б)

Fig. 3. Flow visualization of a flat microjet without acoustic action (from [2], with permission of the authors) at $h = 0.5$ mm (a) and 0.2 mm (b)

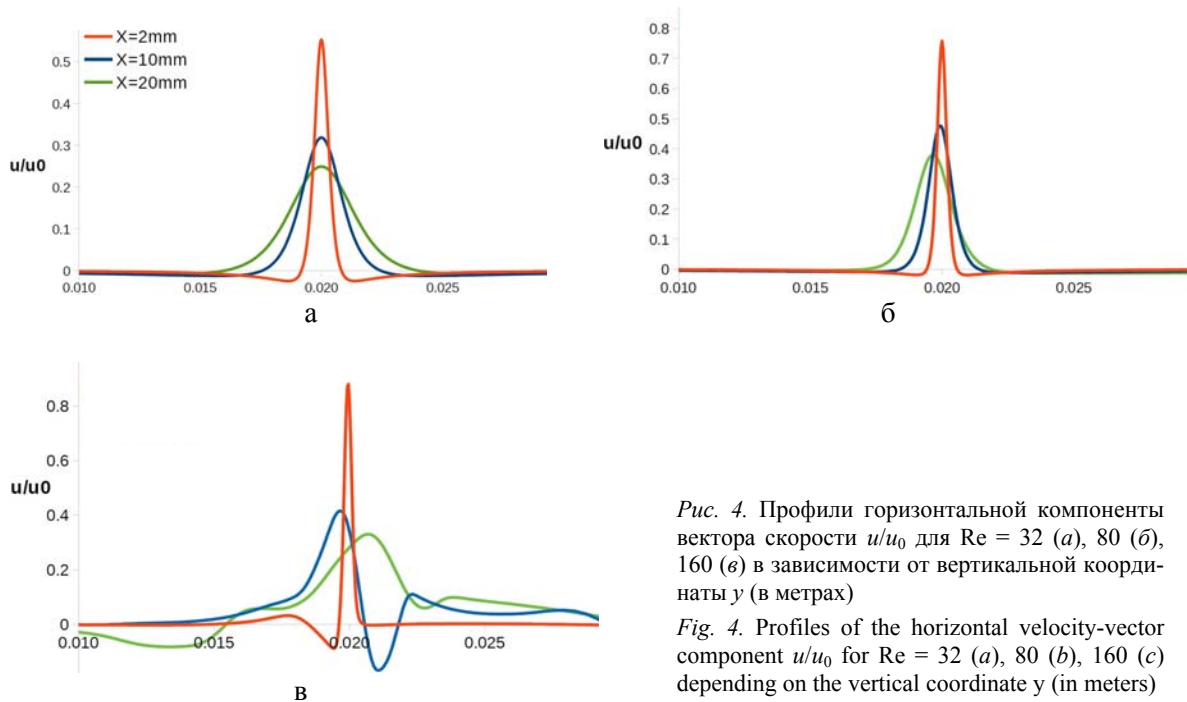


Рис. 4. Профили горизонтальной компоненты вектора скорости u/u_0 для $Re = 32$ (а), 80 (б), 160 (в) в зависимости от вертикальной координаты y (в метрах)

Fig. 4. Profiles of the horizontal velocity-vector component u/u_0 for $Re = 32$ (a), 80 (b), 160 (c) depending on the vertical coordinate y (in meters)

На рис. 4 для трех различных чисел Рейнольдса построены полученные в расчетах профили скорости на расстояниях $x = 2, 10, 20$ мм от входного сечения.

Эволюция $u(y)$ подтверждает ламинарное поведение течения при $Re = 32$ с симметричным расплыванием струи под действием молекулярной диффузии (рис. 4, а) и неустойчивое поведение при $Re = 80$ с отклонением от плоскости симметрии (рис. 4, б). При $Re = 160$ виден турбулентный характер движения с немонотонным поведением $u(y)$ (рис. 4, в), показывающим преобладание влияния конвекции над молекулярной вязкостью с ростом числа Рейнольдса.

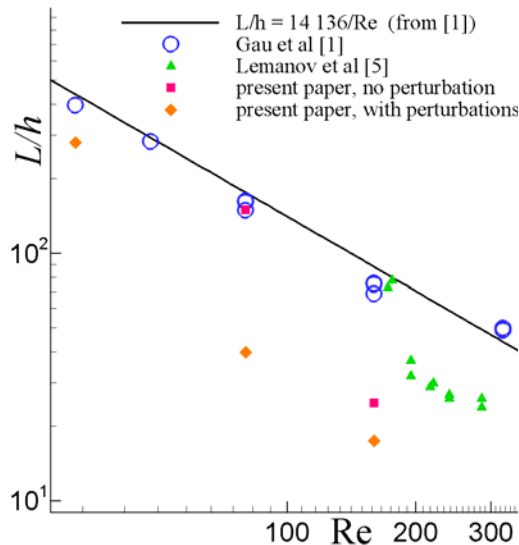


Рис. 6. Положение точки ламинарно-турбулентного перехода в зависимости от Re в настоящей работе и в [1; 5]

Fig. 6. The position of the laminar-turbulent transition point depending on Re in the present study and in [1; 5]

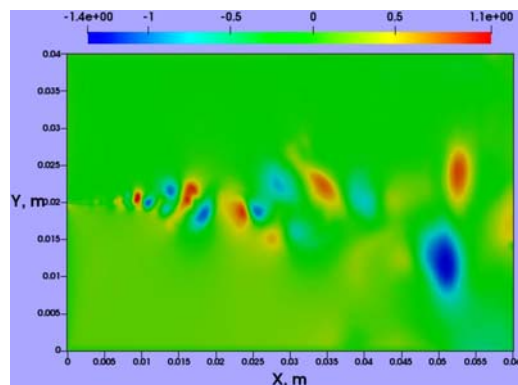


Рис. 7. Изолинии вертикальной компоненты вектора скорости $v(x, y)$ в м/с, пример для $Re = 80$ с возмущениями

Fig. 7. Contours of the vertical velocity-vector component $v(x, y)$ in m/s, an example for $Re = 80$ with perturbations

Таблица 3

Оценка характеристик колебаний синусоидальной неустойчивости из результатов расчета

Table 3

Estimation of oscillation characteristics of sinusoidal instability from the computation results

Число Рейнольдса	Входная скорость струи	λ , мм	λ/h	v^* , м/с	f , Гц
$Re = 80$	Без возмущений	13	65	0,5	40
	С возмущениями	2,5	12,5	0,6	240
$Re = 160$	Без возмущений	6	30	2,5	420
	С возмущениями	2	10	3,0	1 500

[1; 5], хотя их уровень в [5] и [9], очевидно, был также неодинаковым и приводил к отличию L в этих работах примерно в два раза для $Re > 180$. Кроме того, уменьшение амплитуды случайных возмущений в расчетах приводит к росту L/h , с наилучшим совпадением для $Re = 80$ с данными [1].

По данным вычислений можно оценить длину волны колебаний, которые соответствуют выявленному эффекту синусоидальной неустойчивости струи. Действительно, распределения $v(x, y)$ демонстрируют знакопеременный характер вдоль оси x (рис. 7), и можно измерить расстояние между сечениями с соседними максимумами (минимумами) распределений.

В табл. 3 приведены эти расстояния как длины волн колебаний λ , а также характерные скорости осцилляций по вертикали v^* (найденные из среднеквадратичной скорости), откуда получается характерная частота колебаний $f \approx v^*/\lambda$. Видно, что с ростом Re и амплитуды возмущений второй участок, где наблюдаются колебания синусоидальной неустойчивости, сдвигается ближе к щели, длина волны падает, а скорость осцилляций по вертикали возрастает, что, в свою очередь, приводит к резкому росту частоты «самовозбуждения» струи. Отметим, что при $Re = 80$ значение $\lambda = 13$ мм оказывается сравнимо по порядку величины с $\lambda = 50$ мм для плоской макроструи в [12], а частота $f = 40$ Гц близка к величине $f = 30$ Гц, полученной в [12] для самовозбуждения струи без наложенных акустических колебаний.

Заметим, что в [2; 5; 8] синусоидальная неустойчивость струи в итоге приводит к закрутке в «спирали» (см., например, рис. 3), тогда как в численном эксперименте схожие структуры имеют иной вид (см. рис. 2, 5). Это может быть связано с тем, что расчеты выполнены в двумерной области. Для адекватного описания поздних стадий развития неустойчивости и перехода к турбулентности необходимо провести трехмерные расчеты в продолжение настоящей работы.

Заключение

В работе выполнено численное моделирование плоской затопленной струи при небольших числах Рейнольдса на основе уравнений Навье – Стокса и изучено влияние изменения Re на характер течения при отсутствии и задании малых случайных возмущений на входе в струю. Результаты настоящих расчетов, как и в экспериментах, показывают ламинарное состояние течения на первом участке у выхода из щели, синусоидальную неустойчивость на втором, переходном, участке и нерегулярный турбулентный характер течения на третьем участке. Показано, что с ростом амплитуды случайных возмущений, аналогичных наблюдаемым в природе и вводимых путем искажения профиля скорости на входе, уменьшается длина первого и второго участков. Кроме того, увеличение числа Re приводит к меньшей протяженности ламинарного участка в согласии с данными предыдущих работ. Проведена оценка длины волны колебаний λ , соответствующих выявленному эффекту синусоидальной неустойчивости, и их характерной частоты f , резко возрастающей с ростом Re . Для получения более точных результатов необходим переход к трехмерным расчетам.

Естественным продолжением настоящей работы также является изучение влияния входного распределения скорости и искусственного задания не только случайных возмущений, но и гармонических колебаний различной частоты на границах расчетной области, моделирующих акустическое воздействие для плоской и для круглой струи [2], на развитие неустойчивости.

Результаты работы проясняют механизмы роста возмущений и перехода к турбулентности в струе и могут применяться в задачах энергетики и транспорта, в частности в задаче управления потоком для снижения шума и сопротивления летательных аппаратов и экономии топлива.

Список литературы / References

1. Gau C., Shen C. H., Wang Z. B. Peculiar phenomenon of micro-free-jet flow. *Phys. Fluids*, 2009, vol. 21, paper no. 092001, p. 1–13.
2. Козлов В. В., Грек Г. Р., Литвиненко Ю. А., Козлов Г. В., Литвиненко М. В. Дозвуковые круглая и плоская макро- и микроструи в поперечном акустическом поле // Вестн. Новосиб. гос. ун-та, Серия: Физика. 2010. Т. 5, вып. 2. С. 28–42.
Kozlov V. V., Grek G. R., Litvinenko Yu. A., Kozlov G. V., Litvinenko M. V. Subsonic Round and Plane Jets in the Transversal Acoustic Field. *Vestnik NSU. Series: Physics*, 2010, vol. 5, no. 2, p. 28–42. (in Russ.)
3. Грек Г. Р., Катасонов М. М., Козлов В. В., Коробейничев О. П., Литвиненко Ю. А., Шмаков А. Г. Особенности горения пропана в круглой и плоской макро- и микроструе в по-

перечном акустическом поле при малых числах Рейнольдса // Вестн. Новосиб. гос. ун-та. Серия: Физика. 2013. Т. 8, вып. 3. С. 98–120.

Grekh G. R., Katasonov M. M., Kozlov V. V., Korobeinichev O. P., Litvinenko Yu. A., Shmakov A. G. Features of the Propane Combustion in the Round and Plane Macro- and Micro-Jet in a Transverse Acoustic Field at the Small Reynolds Number. *Vestnik NSU. Series: Physics*, 2013, vol. 8, no. 3, p. 98–120. (in Russ.)

4. **Козлов В. В., Грек Г. Р., Коробейничев О. П., Литвиненко Ю. А., Шмаков А. Г.** Особенности горения водорода в круглой и плоской струе в поперечном акустическом поле и их сравнение с результатами горения пропана в тех же условиях // Вестн. Новосиб. гос. ун-та. Серия: Физика. 2014. Т. 9, вып. 1. С. 79–86.

Kozlov V. V., Grekh G. R., Korobeinichev O. P., Litvinenko Yu. A., Shmakov A. G. The Features of Hydrogen Combustion in Round and Plane Microjet in the Transverse Acoustic Field, and Comparison with the Results Propane Combustion. *Vestnik NSU. Series: Physics*, 2014, vol. 9, no. 1, p. 79–86. (in Russ.)

5. **Леманов В. В., Терехов В. И., Шаров К. А., Шумейко А. А.** Экспериментальное исследование затопленных струй при низких числах Рейнольдса // Письма в ЖТФ. 2013. Т. 39, вып. 9. С. 34–40.

Lemanov V. V., Terekhov V. I., Sharov K. A., Shumeiko A. A. An experimental study of submerged jets at low Reynolds numbers. *Technical Physics Letters*, 2013, vol. 39, no. 5, p. 421–423.

6. **Yakovenko S. N.** Modeling of plane jet at moderate Reynolds numbers. *AIP Conference Proceedings*, 2017, vol. 1893, issue 1, paper no. 030101, 5 p.

7. **Копьев В. Ф., Остриков Н. Н., Зайцев М. Ю., Чернышев С. А.** Устройство и способ воздействия на вихревые структуры в турбулентной воздушной струе. Патент 2357109 Рос. Федерация. № 2007141384/11; заявл. 07.11.2007; опубл. 27.05.2009. 7 с.

Kopiev V. F., Ostrikov N. N., Zaitsev M. Yu., Chernushev S. A. RU Patent 2357109 C1 (27 May 2009). (in Russ.)

8. **Gogineni S., Shih C.** Experimental investigation of the unsteady structure of a transitional plane wall jet. *Exp. Fluids*, 1997, vol. 23, p. 121–129.

9. **Лойцянский Л. Г.** Механика жидкости и газа. М.: Дрофа, 2003. 840 с.

Loitsyansky L. G. Mechanics of Liquids and Gases. Moscow, Drofa Publ., 2003, 840 p. (in Russ.)

10. **Moukalled F., Mangani L., Darwish M.** The finite volume method in computational fluid dynamics: An advanced introduction with OpenFOAM® and Matlab®. Springer, 2016, 791 p.

11. **Курбацкий А. Ф., Яковенко С. Н.** Численное исследование турбулентного течения вокруг двумерного препятствия в пограничном слое // Теплофизика и аэромеханика. 1996. Т. 3, № 2. С. 145–163.

Kurbatskii A. F., Yakovenko S. N. Numerical investigation of a turbulent flow around a two-dimensional obstacle in the boundary layer. *Thermophysics and Aeromechanics*, 1996, vol. 3, no. 2, p. 137–155.

12. **Козлов Г. В., Грек Г. Р., Сорокин А. М., Литвиненко Ю. А.** Влияние начальных условий на срезе сопла на структуру течения и устойчивость плоской струи // Вестн. Новосиб. гос. ун-та, Серия: Физика. 2008. Т. 3, вып. 3. С. 14–33.

Kozlov G. V., Grekh G. P., Sorokin A. M., Litvinenko Yu. A. Influence of Initial Conditions at Nozzle Section on Flow Structure and Instability of Plane Jet. *Vestnik NSU. Series: Physics*, 2008, vol. 3, no. 3, p. 14–33. (in Russ.)

Материал поступил в редакцию

Received

05.06.2018

Сведения об авторах / Information about the Authors

Шевченко Антон Константинович, лаборант, Институт теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН (ул. Институтская, 4/1, Новосибирск, 630090, Россия)

Anton K. Shevchenko, Laboratory Assistant, Khristianovich Institute of Theoretical and Applied Mechanics SB RAS (4/1 Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

a.shevchenko@live.com

Яковенко Сергей Николаевич, доктор физико-математических наук, доцент, старший научный сотрудник, Институт теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН (ул. Институтская, 4/1, Новосибирск, 630090, Россия)

Sergey N. Yakovenko, Doctor of Science (Physics and Mathematics), Associate Professor, Senior Researcher, Khristianovich Institute of Theoretical and Applied Mechanics SB RAS (4/1 Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

yakovenk@itam.nsc.ru

УДК 532.517.4; 532.525.2; 532.522.2; 533.69.048
DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-46-59

Анализ когерентных структур в осесимметричной и шевронной струях

С. С. Абдуракипов, В. М. Дулин, М. П. Токарев, Д. М. Маркович

*Институт теплофизики им. С. С. Кутателадзе СО РАН
Новосибирский государственный университет
Новосибирск, Россия*

Аннотация

Работа посвящена анализу пространственной формы и динамики когерентных вихревых структур в осесимметричной и шевронной затопленных струях. Томографическая PIV-система использовалась для измерений 3D-распределений скорости с частотой съемки 2 кГц. Массив данных о поле скорости был проанализирован с применением пространственного преобразования Фурье по азимутальному углу и статистического метода POD (Proper Orthogonal Decomposition). Показано, что для шевронной струи кинетическая энергия пульсаций осесимметричной моды $m = 0$, связанная с кольцевыми вихрями в слое смещения струи, в два раза меньше по сравнению со струей из круглого сопла.

Ключевые слова

шеvronная струя, Томо PIV, когерентные структуры

Благодарности

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ, грант № 18-79-00138

Для цитирования

Абдуракипов С. С., Дулин В. М., Токарев М. П., Маркович Д. М. Анализ когерентных структур в осесимметричной и шевронной струях // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 4. С. 46–59. DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-46-59

Analysis of Coherent Structures in Circular and Chevron Jets

S. S. Abdurakipov, V. M. Dulin, M. P. Tokarev, D. M. Markovich

*Institute of Thermophysics SB RAS
Novosibirsk State University
Novosibirsk, Russian Federation*

Abstract

The present study reports on measurements of the spatial shape and dynamics of large-scale coherent structures in circular and chevron submerged jets by the volumetric particle image velocimetry technique. A tomographic PIV system was used for the measurements of 3D velocity fields with 2 kHz acquisition rate. The datasets of PIV velocity fields were analyzed by spatial Fourier transform over the azimuthal angle and proper orthogonal decomposition (POD). It was concluded that for the chevron jet the turbulent kinetic energy of the axisymmetric mode $m = 0$, related with ring-like vortices in mixing layer of the jet, was more than twice smaller in comparison with the jet from a circular nozzle.

Keywords

circular and chevron jets, Tomographic PIV, coherent structures

Acknowledgements

This work was supported by the Russian Science Foundation, grant number 18-79-00138

For citation

Abdurakipov S. S., Dulin V. M., Tokarev M. P., Markovich D. M. Analysis of Coherent Structures in Circular and Chevron Jets. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 46–59. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-46-59

© С. С. Абдуракипов, В. М. Дулин, М. П. Токарев, Д. М. Маркович, 2018

ISSN 2541-9447

Сибирский физический журнал. 2018. Том 13, № 4
Siberian Journal of Physics, 2018, vol. 13, no. 4

Введение

Общеизвестно, что динамика крупномасштабных вихревых структур очень важна в процессе тепломассопереноса в турбулентных сдвиговых течениях, к которым относятся струи [1; 2]. Кроме того, нестационарная динамика вихрей играет ключевую роль в генерации акустического шума в дозвуковых струях. Эта проблема связана с образованием и взаимодействием вихревых структур в слое смешения струй [3]. Сопла с альтернативной геометрией (эллиптические, шевронные, лопастные и др.) часто используются на практике для воздействия на генерацию шума и перенос тепла и массы посредством изменения свойств крупномасштабных вихревых структур. Например, шевронные сопловые насадки широко применяются для уменьшения шума выхлопа авиационных реактивных двигателей [4–6]. Они также активно используются для интенсификации перемешивания топлива и воздуха в камерах сгорания для более эффективного сжигания и снижения уровня выбросов [7]. В работах [8; 9] проводилось исследование турбулентной структуры и динамики осесимметричных и шевронных струй посредством прямого численного моделирования (Direct Numerical Simulation, DNS) [8] и метода крупных вихрей (Large Eddy Simulation, LES) [9] для струй при умеренных и высоких числах Рейнольдса. Однако в случае сложной геометрии указанные методы требуют больших вычислительных затрат для разрешения широкого спектра масштабов течения и нуждаются в детальной верификации результатов моделирования. Томографический метод PIV позволяет получить информацию о мгновенном пространственном распределении всех компонент вектора скорости и тензора градиента скорости. Такие измерения важны для выявления и анализа трехмерных характеристик и динамики вихревых структур с целью получения более подробной информации о механизмах процессов, протекающих в таких потоках. Как уже упоминалось, это также важно с практической точки зрения.

В работе [3] представлены результаты детальных 3D PIV-измерений нестационарной организации и динамики первичных и вторичных когерентных структур, которые играют значимую роль с точки зрения генерации акустических шумов. Процессы сворачивания, распространения и попарного объединения кольцевых вихрей, связанных с неустойчивостью Кельвина – Гельмгольца, являются наиболее выраженными явлениями в ближнем поле осесимметричных струй [10]. Кроме первичных структур (вихрей Кельвина – Гельмгольца) также обнаруживаются вторичные структуры в виде продольных вихрей с ненулевой осевой завихренностью. На основе результатов анализа линейной устойчивости полей средней скорости в работе [11] сделан вывод о том, что инкременты пространственного роста доминирующих азимутальных мод в шевронных струях оказываются существенно ниже, чем для осесимметричных струй, а пики дисперсионных кривых смещены в область более низких частот.

Авторами работ [2; 12; 13] было показано, что полосчатые структуры, которые развиваются и усиливаются в области между первичными кольцевыми вихрями Кельвина – Гельмгольца, значительно увеличивают интенсивность вовлечения в ближнем поле струи. Продольная (осевая) завихренность значительно влияет на процесс вовлечения по сравнению с азимутальной завихренностью, особенно в конце потенциального ядра струи. Однако, как упоминалось в работе [14], вихри Кельвина – Гельмгольца также играют неоспоримую роль в процессе вовлечения окружающей жидкости на этом расстоянии. К тому же ориентированные по потоку продольные вихри, по-видимому, также значимы для процесса стабилизации пламени [15; 16]. Как подтверждают результаты [17], стабилизация пламени обеспечивается путем смешения на масштабах, меньших, чем масштаб основных кольцевых вихрей. В работе [18] авторы наблюдали повторяющиеся продольные когерентные вихревые структуры, присоединенные к крупномасштабным кольцевым вихрям в струях, организованных соплами короновидной формы. Авторы продемонстрировали, что формой и динамикой обнаруженных продольных структур можно эффективно управлять путем изменения длины зубьев и количества сопловых насадок. В работах [19; 20] наглядно показано, что полосчатые структуры могут генерироваться непосредственно на выходе из сопла с использованием элементов

искусственной продольной шероховатости внутри сопла. Взаимодействие полосчатых структур с кольцевыми вихрями Кельвина – Гельмгольца приводит к трехмерным искажениям вихревых колец и образованию лямбда- или омега-структур, характеризующихся ростом азимутальных пульсаций скорости. Эти вторичные структуры непосредственно связаны с процессом турбулизации струй и интенсификацией перемешивания с окружающей жидкостью. В работах [21; 22] показано, что распространяющиеся вниз по потоку когерентные структуры спиральной формы являются характерными собственными модами струйного течения и вносят существенный вклад в структуру и динамику пульсаций скорости прямооточной турбулентной струи.

В настоящей работе проведено исследование трехмерной пространственной формы и динамики крупномасштабных вихревых структур в ближней области осесимметричной и шевронной струй с использованием томографического метода PIV. Наиболее энергонесущие собственные азимутальные моды потока были проанализированы на основе большого массива данных 3D PIV-эксперимента с применением пространственного преобразования Фурье по азимутальному углу и статистического метода Proper Orthogonal Decomposition (POD).

Описание экспериментальной установки

Осесимметричные и шевронные затопленные струйные течения были организованы в замкнутом гидродинамическом контуре, который включал резервуар для воды, насос, расходомер и участок измерений. Прямоугольный измерительный участок ($200 \times 600 \times 200 \text{ мм}^3$) был изготовлен из плексигласа. Расход контролировался с помощью обратной связи от расходомера к насосу. На рис. 1, а представлена фотография экспериментальной установки и измерительной системы. Начало декартовой системы координат (x, y, z) расположено в центре выхода сопла. Ось y совпадает с осью струи. Координата z направлена на PIV-камеры. В соответствии с декартовыми координатными осями компоненты скорости определяются как (u, v, w) и (u_r, u_y, u_θ) для декартовых и цилиндрических осей координат соответственно.

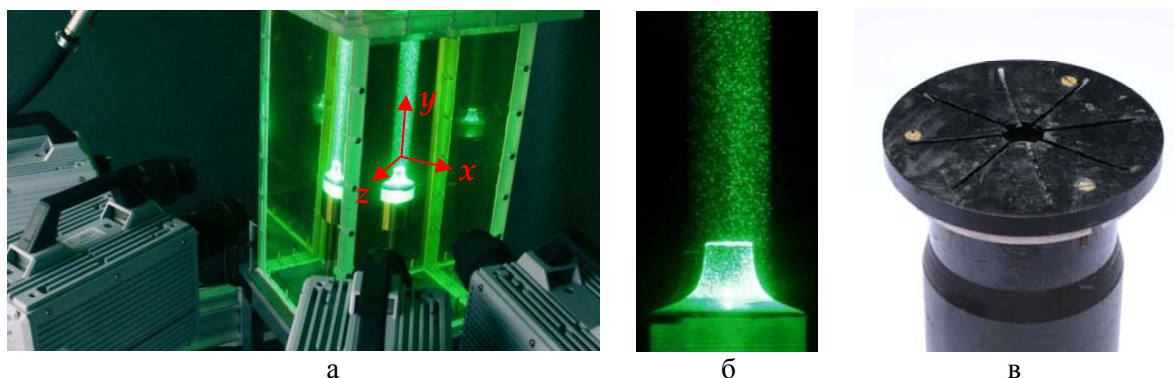


Рис. 1. Фотографии экспериментальной установки (а), освещенного объема (б), пьедестала, установленного на сопле для создания азимутальных возмущений (в)
Fig. 1. Photographs of the experimental setup (a), illuminated volume (b), pedestal mounted on the nozzle to create azimuthal disturbances (c)

Для организации осесимметричной струи использовалось круглое сопло с поджатием (рис. 1, б). Подробную информацию о геометрии сопла можно найти в работе [23]. Диаметр выходного отверстия $d = 15 \text{ мм}$. Для формирования регулярных азимутальных возмущений потока на сопло был установлен специальный пьедестал с радиальными канавками (рис. 1, в).

В работе исследованы пьедесталы с различным количеством канавок (4, 6, 8, 10) и сравнены со случаем без канавок (но с пьедесталом) и без пьедестала [24]. В данной статье в качестве наиболее показательного примера сравниваются случаи с 8-ю канавками и без пьедестала. Число Рейнольдса, определенное как $Re = U_0 d / \nu$ (U_0 – среднерасходная скорость потока, ν – кинематическая вязкость воды), было установлено равным 8 900 (как в предыдущих исследованиях [23; 25]).

Для проведения PIV-измерений поток засеивался полиамидальными частицами размером 50 мкм. Измерительный объем $2,67d \times 2,67d \times 2,67d$ захватывался четырьмя высокоскоростными CMOS-камерами (Photron FASTCAM SA5) с разрешением 1024×1024 пикселя. Камеры были оборудованы объективами SIGMA AF 105 мм f / 2.8 EX DG MACRO. Измерительный объем освещался импульсным Nd: YAG-лазером с высокой частотой (Photonix DM100-532) и со средней мощностью 100 Вт. Камеры и лазер были синхронизированы устройством BNC 575 от Berkeley Nucleonics. Частота съемки составляла 2 кГц. Собственное разработанное программное обеспечение «ActualFlow» использовалось для измерения и обработки данных. Более детально методика исследований представлена в работе [25].

Камеры были откалиброваны с помощью изображений плоской мишени (150×150 мм), перемещаемых через измерительный объем с помощью микроскопа. Процедура самокалибровки (аналогичная процедуре, описанной в работе [26]) использовалась до томографической реконструкции трехмерных изображений. Размер реконструированных 3D-изображений составлял $571 \times 571 \times 571$ вокселей. Томографическая реконструкция была выполнена с помощью усовершенствованного двухкадрового подхода MLOS + 15 SMART + 3 × (MTE + 15 SMART) [27; 28]. Сдвиг частиц оценивался с использованием итерационного алгоритма с непрерывным сдвигом и деформацией объема. Коэффициент перекрытия расчетной области был установлен на 75 %. Конечный размер корреляционной области для расчета одного вектора скорости составлял $2,8 \times 2,8 \times 2,8$ мм³ ($40 \times 40 \times 40$ вокселей). Для каждого режима струйного течения были получены две тысячи полей скорости.

Описание методов анализа данных

Чтобы выявить когерентные моды, присутствующие в наборе полей скорости, мы выполнили процедуру преобразования Фурье трехмерных мгновенных полей скорости по азимутальному углу θ . Таким образом, каждое 3D-поле скорости $\mathbf{u}(r, \theta, y, t_k)$ было представлено в качестве комплексных амплитуд Фурье $\hat{\mathbf{u}}^m(r, y, t_k)$ согласно формуле

$$\hat{\mathbf{u}}^m(r, y, t_k) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \mathbf{u}(r, \theta, y, t_k) e^{-im\theta} d\theta \approx \frac{1}{N_\theta} \sum_{i=1}^{N_\theta} \mathbf{u}(r, \theta_i, y, t_k) e^{-im\theta_i}. \quad (1)$$

Для анализа характерных частот азимутальных мод мы выполнили дополнительное преобразование Фурье во времени согласно формуле

$$\hat{\mathbf{u}}(r, m, y, f) = \frac{1}{2\pi T} \int_0^{2\pi} \int_0^T \mathbf{u}(r, \theta, y, t) e^{-i(m\theta - 2\pi f t)} d\theta dt \approx \frac{1}{N_\theta N_t} \sum_{i=1}^{N_\theta} \sum_{j=1}^{N_t} \mathbf{u}(r, \theta_i, y, t_j) e^{-i(m\theta_i - 2\pi f t_j)}. \quad (2)$$

Процедура преобразования Фурье требует интерполяции данных из декартовой системы координат на цилиндрическую сетку. Это делается с постоянным шагом сетки в каждом направлении с использованием метода взвешенных ближайших соседей, где r – радиальная координата, определяемая как $r^2 = x^2 + z^2$. 3D-поля скорости разлагались до максимального волнового числа $|m| = M = 30$.

Для каждой азимутальной моды m полученная последовательность комплексных амплитуд Фурье $\hat{\mathbf{u}}(r, m, y, t_k)$, анализировалась методом POD [29; 30] для извлечения наиболее энергоемких когерентных возмущений:

$$\mathbf{u}(r, \theta, y, t_k) = \sum_{m=-M}^{+M} \hat{\mathbf{u}}^m(r, y, t_k) e^{im\theta} = \sum_{m=-M}^{+M} \sum_{q=1}^{N_t} a_q^m(t_k) \lambda_q^m \boldsymbol{\phi}_q^m(r, y) e^{im\theta}, \quad (3)$$

где

$$\int_{\Omega_{r-y}} \boldsymbol{\phi}_i^m \boldsymbol{\phi}_j^m r dr dy = \delta_{ij}, \quad \frac{1}{N} \sum_{k=1}^{N_t} a_i^m(t_k) a_j^m(t_k) = \delta_{ij}. \quad (4)$$

Метод POD основан на представлении каждого k -го мгновенного комплексного коэффициента Фурье $\hat{\mathbf{u}}^m(r, y, t_k)$ соответствующего поля скоростей $\mathbf{u}(r, \theta, y, t_k)$ в качестве конечного ряда (3) произведений комплекснозначных пространственных ортонормированных базисных функций $\boldsymbol{\phi}_q^m$ с безразмерными комплекснозначными временными коэффициентами a_q^m , удовлетворяющими равенству (4), и действительных собственным значениям λ_q^m , характеризующих амплитуду каждой моды POD в последовательности данных. N_t соответствует числу измеренных полей скорости, т. е. $N_t = 2000$. Моды и коэффициенты POD для волновых чисел m с противоположным знаком являются комплексно-сопряженными.

Чтобы уменьшить вычислительные потребности алгоритма POD, мы использовали разложение на сингулярные значения (Singular Value Decomposition, SVD) (см. [31]) для вычисления пространственных ортонормированных базисных функций, собственных значений и временных амплитуд. Эта процедура была ранее проверена и использована в работе [32]. Пространственная структура доминирующих азимутальных мод анализировалась как суперпозиция поля средней скорости $\mathbf{U}_{\text{mean}}$ и наиболее энергичных POD-мод (т. е. для $q = 1$) с использованием формулы

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_{LO}^{|m|}(r, \theta, y, t) &= \mathbf{U}_{\text{mean}}(r, \theta, y) + \mathbf{u}_q^{|m|}(r, \theta, y, t) = \\ &= \mathbf{U}_{\text{mean}} + a_q^m(t) \lambda_q^m \boldsymbol{\phi}_q^m(r, y) e^{im\theta} + a_q^{-m}(t) \lambda_q^{-m} \boldsymbol{\phi}_q^{-m}(r, y) e^{-im\theta} = \\ &= \mathbf{U}_{\text{mean}} + 2 \operatorname{Re} \left[a_q^m(t) \lambda_q^m \boldsymbol{\phi}_q^m(r, y) e^{im\theta} \right]. \end{aligned}$$

Результаты

На рис. 2, *a, в* показано поле средней скорости и распределения кинетической энергии радиальных пульсаций скорости, усредненные по времени и по азимутальному углу, для осесимметричной и шевронной струи соответственно. На рис. 2, *б, г* – пространственные распределения кинетической энергии радиальных пульсаций, полученные после пространственного анализа Фурье для первых четырех азимутальных мод ($|m|$ от 0 до 3). Как можно видеть, осесимметричная мода $m = 0$ в осесимметричной струе содержит наибольшее количество кинетической энергии пульсаций по сравнению с другими модами.

Для шевронной струи средняя кинетическая энергия радиальных пульсаций в слое смешения выше, а максимумы распределения кинетической энергии для различных азимутальных мод расположены ближе к соплу (см. рис. 2, *г*). Осесимметричная мода $m = 0$ уже не доминирует в потоке и содержит примерно такое же количество кинетической энергии, как азимутальная мода с $|m| = 1$. На рис. 3, *a* показаны поля мгновенной скорости в центральной плоскости осесимметричной струи и распределения величины Q -критерия $Q = \Omega_{ij}\Omega_{ij} - S_{ij}S_{ij}$ (Ω_{ij} и S_{ij} – антисимметричная и симметричная части тензора градиента скорости), окрашенные в соответствии с величиной осевой завихренности. Вследствие неустойчивости Кельвина – Гельмгольца сдвигового слоя тороидальные вихри начинают формироваться вблизи выхода сопла. Помимо эволюции тороидальных вихрей, также проявляется рост азимутальных неустойчивостей вниз по течению.

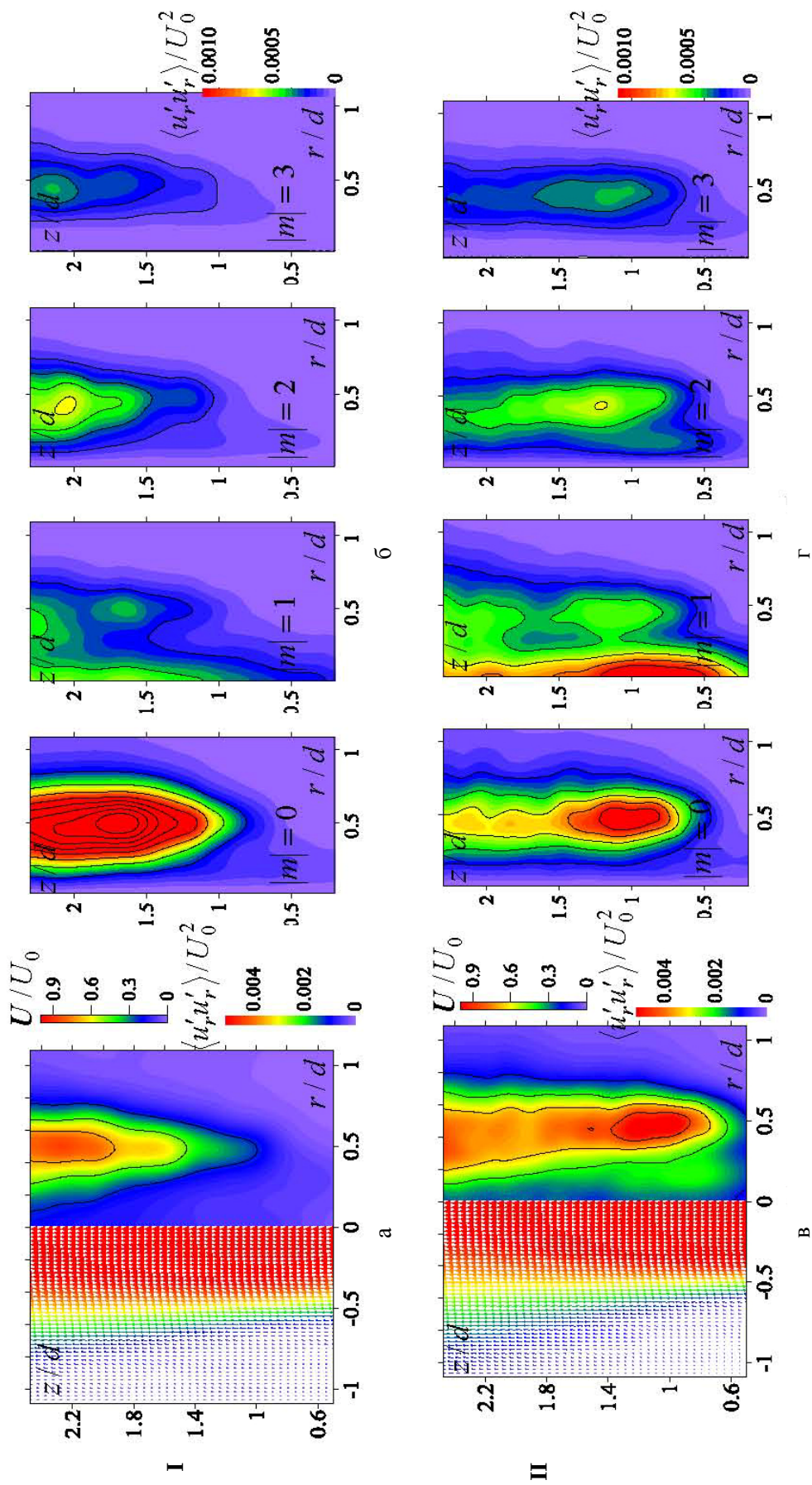


Рис. 2. Результаты анализа осесимметричной (I) и шевронной (II) струй ($Re = 8900$):
 a, ϑ – среднее поле скорости (слева) и кинетическая энергия радиальных пульсаций скорости (справа),
 усредненная по времени и азимутальному углу; δ, z – доля кинетической энергии радиальных пульсаций в разных азимутальных модах

Fig. 2. The results of the analysis of axisymmetric (I) and chevron (II) jets ($Re = 8900$):
 a, ϑ – mean velocity field (left) and kinetic energy of radial velocity pulsations (right), averaged over time and azimuthal angle;
 δ, z – part of the kinetic energy of radial pulsations in different azimuthal modes

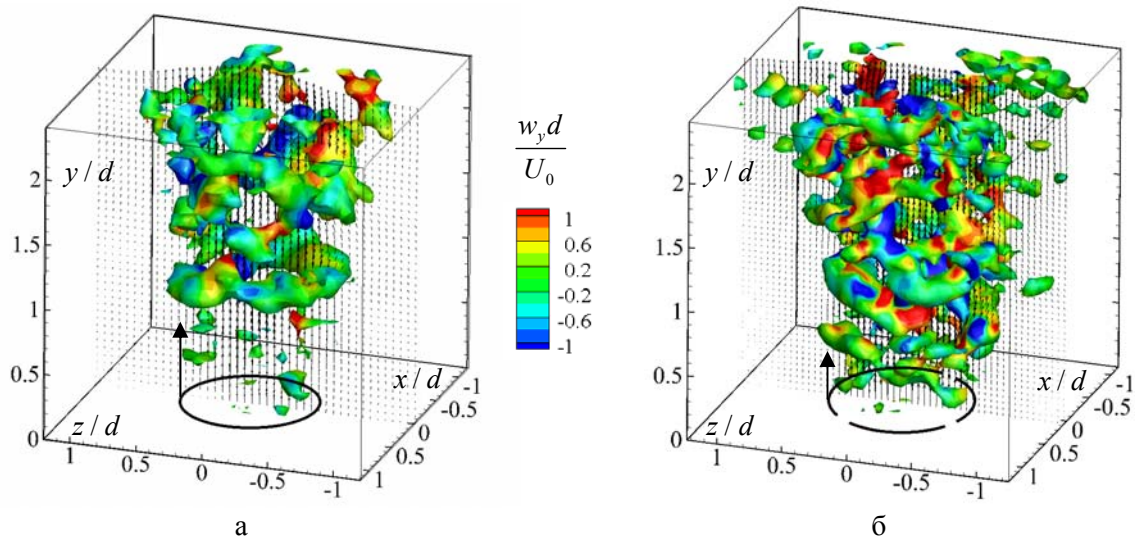


Рис. 3. Распределения мгновенной скорости в плоскости $x = 0$ и изоповерхности Q -критерия, окрашенные локальными значениями осевой завихренности для осесимметричной (а) и шевронной (б) струй
 Fig. 3. Distributions of instantaneous velocity fields for $x = 0$ plane and isosurfaces of Q -criterion, colored with local values of axial vorticity for axisymmetric (a) and chevron (b) jets

Рост амплитуды азимутальных мод сопряжен с образованием вторичных вихревых структур, которые усиливаются вниз по течению. После $z/d \approx 2$ вторичные структуры начинают взаимодействовать с первичными вихрями и друг с другом, поток становится более турбулентным: с более сложной структурой и динамикой крупномасштабных вихрей. Турбулентная структура шевронной струи значительно отличается от структуры осесимметричной струи. В этом случае взаимодействие различных азимутальных мод определяет картину течения и динамику пульсаций скорости вблизи выхода сопла. Они также взаимодействуют с кольцевыми вихрями, что приводит к искажению их формы и дроблению на сегменты. Чтобы количественно оценить влияние шевронного сопла на деформацию вихревых структур, нормированные характеристики деформации вихрей (растяжение и наклон вихрей) оцениваются по аналогии с работой [3]:

$$|S| = \left| (\boldsymbol{\omega} \cdot \nabla) \mathbf{u} \cdot \frac{\boldsymbol{\omega}}{|\boldsymbol{\omega}|} \right|, \quad |T| = \left| (\boldsymbol{\omega} \cdot \nabla) \mathbf{u} \times \frac{\boldsymbol{\omega}}{|\boldsymbol{\omega}|} \right|. \quad (6)$$

Как видно на рис. 4, абсолютные значения характеристик деформации вихрей значительно выше, чем в случае шевронной струи. Для осесимметричной струи в слое смешения, где распространяются вихревые структуры, характеристики растяжения и наклона вихрей возрастают вниз по течению. В случае шевронной струи наибольшее растяжение вихрей происходит в области потока $z/d = 0,5-1,5$. Область значительной деформации наклона вихрей оказывается более протяженной ($z/d = 0,3-2,0$).

На рис. 5 показаны результаты анализа POD-разложения (спектры POD) осесимметричной и шевронной струй. Анализ POD показывает принципиальную разницу между азимутальными модами для двух типов струй. В осесимметричной струе преобладают вихревые кольца, отраженные в двух первых POD-модах для пульсаций осесимметричной моды $m = 0$. В на-

шем случае выраженного парного объединения вихрей не наблюдалось в области измерения, и предполагается, что оно происходит дальше по течению (после $y/d = 2,5$).

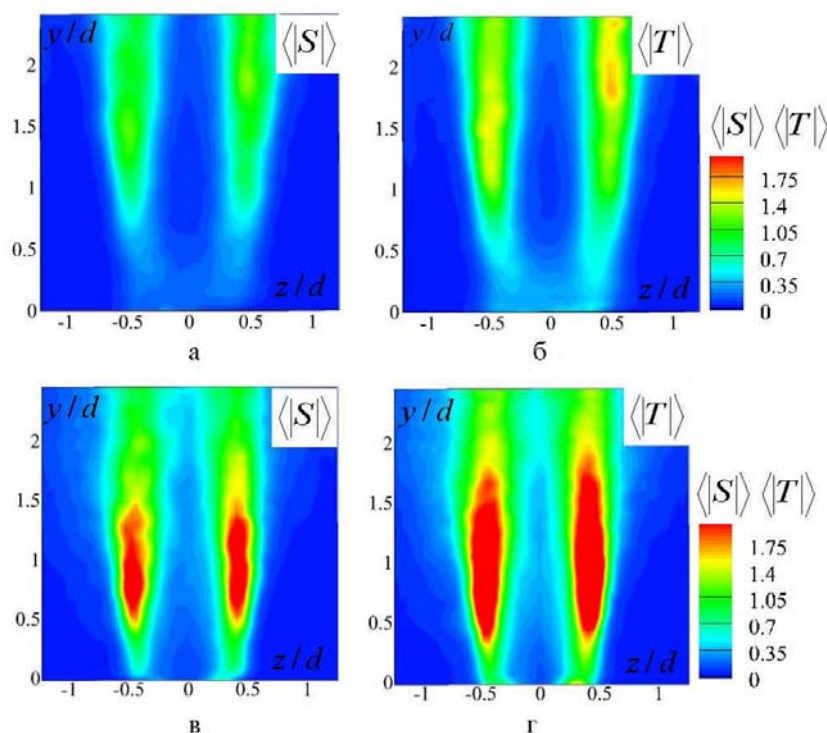


Рис. 4. Нормированные усредненные по времени характеристики деформации вихрей: растяжение $\langle |S| \rangle$ и наклон $\langle |T| \rangle$ вихрей в центральной плоскости (а, б) осесимметричной и шевронной (в, г) струй

Fig. 4. Normalized time-averaged characteristics of vortex deformation: stretching $\langle |S| \rangle$ and tilting $\langle |T| \rangle$ of vortices in the central plane (a, б) of axisymmetric and chevron (в, г) jets

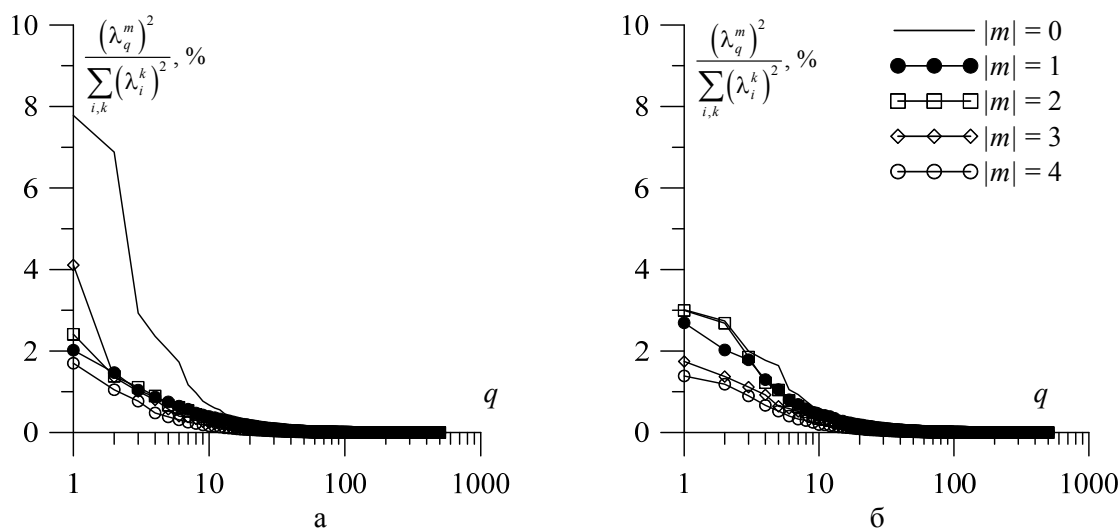


Рис. 5. Спектры POD-разложения для различных азимутальных мод в осесимметричной (а) и шевронной (б) струях

Fig. 5. Spectra of POD-decomposition for various azimuthal modes in axisymmetric (a) and chevron (б) jets

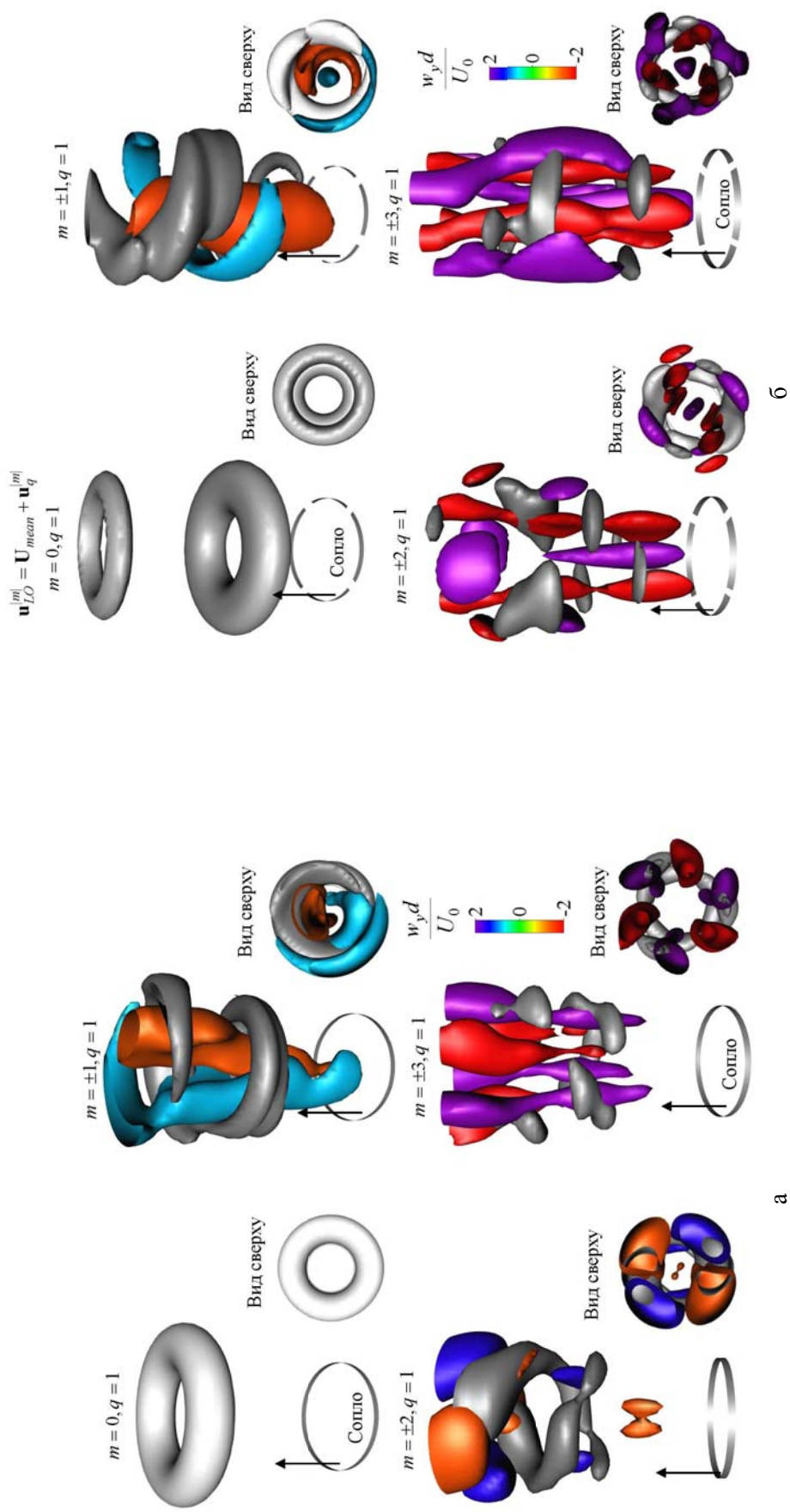


Рис. 6. Реконструкция доминирующих азимутальных мод осесимметричной (а) и шевронной (б) струй на основе поля средней скорости и наиболее энергичных мод POD. Вихревые структуры визуализируются изоповерхностями осевой завихренности $d\omega_y/U_0$ (цвет) и Q -критерием (серый). Стрелкой показано направление потока на выходе из сопла

Fig. 6. Reconstruction of the dominant azimuthal modes of axisymmetric (a) and chevron (б) jets based on the mean velocity field and the most energetic POD modes. Vortex structures are visualized by isosurfaces of axial vorticity $d\omega_y/U_0$ (color) and Q -criterion (gray). The arrow shows the flow direction at the nozzle exit

На рис. 6 показаны наиболее энергоемкие азимутальные моды, полученные из анализа POD для осесимметричной и шевронной струй. Деформация ядра осесимметричной струи при прохождении кольцевых вихрей приводит к образованию вторичных спиральных неустойчивостей ($|m| = 1, 2$) и создает вторичные продольные вихри, которые, в свою очередь, также взаимодействуют с доминирующими кольцевыми структурами (рис. 6, а). Энергия этих вторичных вихревых структур значительно меньше по сравнению с осесимметричной модой. Для шевронной струи кинетическая энергия осесимметричных пульсаций находится на том же уровне, что и кинетическая энергия других азимутальных мод. Спиральные неустойчивости, вызывающие деформации ядра струи, также присутствуют в шевронной струе (рис. 6, б). Таким образом, в случае шевронной струи осесимметричные кольцевые вихри больше не являются доминирующими структурами, а флуктуации скорости в большей степени определяются суперпозицией продольных вихревых структур, формирующихся вблизи кромки сопла. Описание трехмерной структуры вихрей осесимметричной и шевронной струй согласуется с результатами, представленными в работе [3].

На рис. 7 и 8 представлены результаты дискретного преобразования Фурье по азимутальной координате, а также по времени, рассчитанному для радиальных и осевых пульсаций

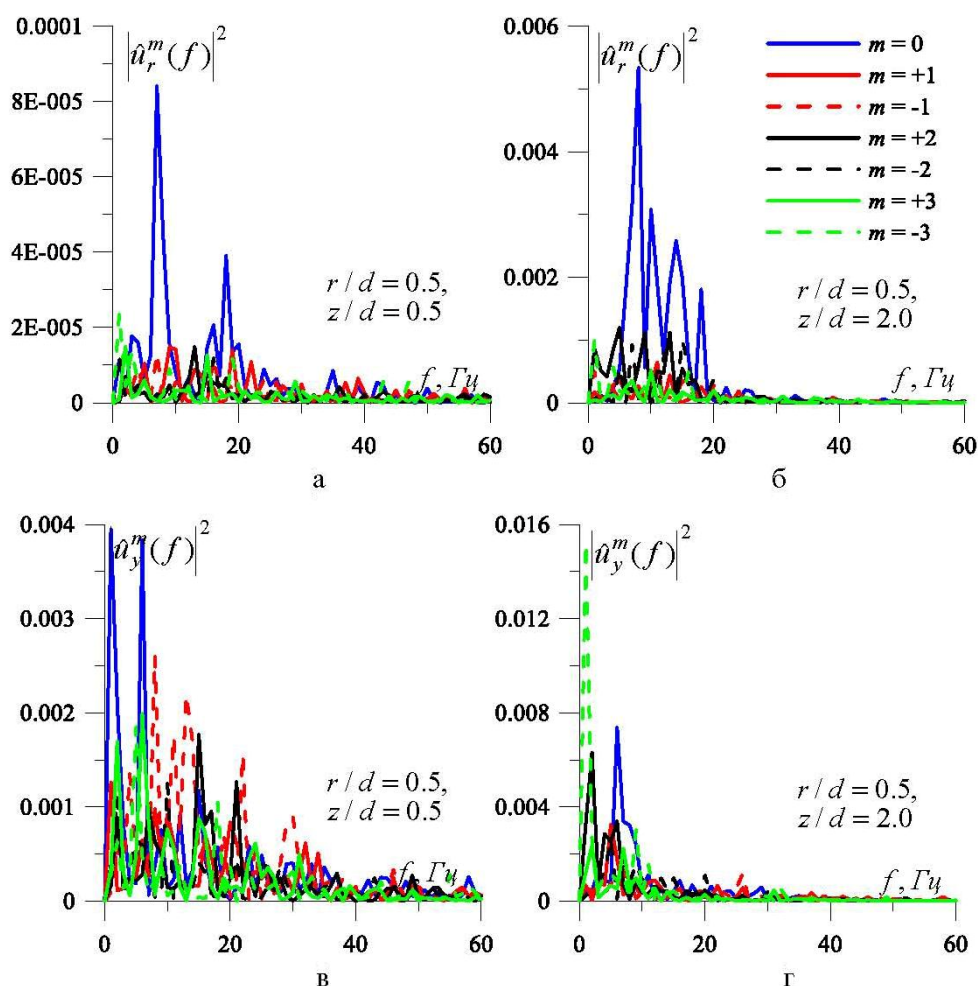


Рис. 7. Дискретное преобразование Фурье по азимутальной координате и времени радиальных (а, б) и осевых (в, г) пульсаций скорости в осесимметричной струе

Fig. 7. Discrete Fourier transform over azimuthal coordinate and time of the radial (a, б) and axial (в, г) velocity pulsations for axisymmetric jet

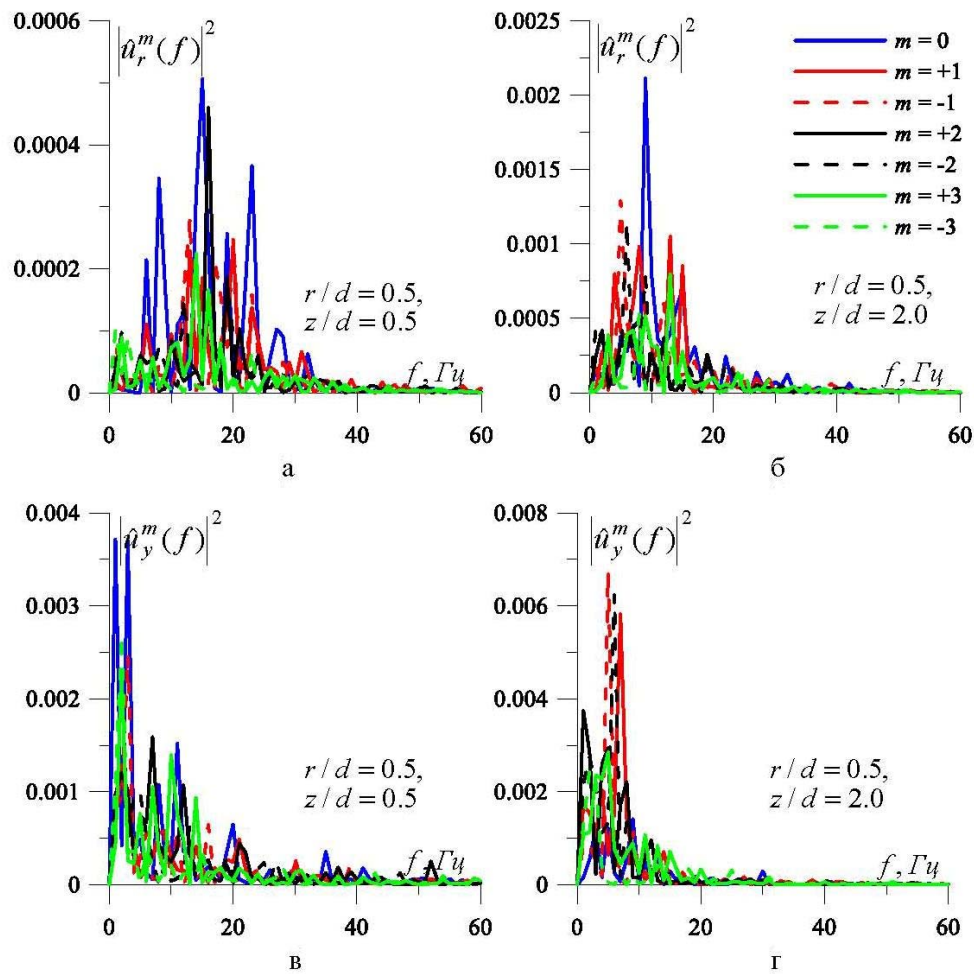


Рис. 8. Дискретное преобразование Фурье по азимутальной координате и времени радиальных (а, б) и осевых (в, г) пульсаций скорости в шевронной струе

Fig. 8. Discrete Fourier transform over azimuthal coordinate and time of the radial (a, б) and axial (в, г) velocity pulsations for chevron jet

скорости в двух локальных точках потока ($r/d = 0,5$; $z/d = 0,5$ и $r/d = 0,5$; $z/d = 2,0$), расположенные в слое смешения осесимметричной и шевронной струй. Спектры отчетливо демонстрируют поведение азимутальных мод с положительными $+m$ и отрицательными $-m$, которые имеют противоположное направление винтовой завивки. Частотные спектры для различных азимутальных мод показывают, что первичным кольцевым вихрям соответствуют пики на частотах около 8 и 17 Гц (безразмерное число Струхала $St = 0,25$ и $0,5$ соответственно) в спектрах радиальных и осевых пульсаций скорости. Пики для мод $m = -1$ при $z/d = 0,5$, вероятно, соответствуют наклону кольцевых вихрей, тогда как моды $|m| > 1$, как ожидается, связаны с их деформацией из-за вторичных неустойчивостей.

Осесимметричная мода ($m = 0$) шевронной струи имеет несколько значительных пиков в спектре радиальных пульсаций скорости вблизи сопла ($z/d = 0,5$) из-за деформации торoidalных вихрей и их взаимодействия с другими азимутальными модами. Согласно рис. 7, г азимутальная мода $m = -3$, имеющая отношение к продольным вихревым структурам (см. рис. 6, а), демонстрирует доминирующее поведение в конце области измерений. Вблизи выхода сопла ($z/d = 0,5$) интенсивность осесимметричных флуктуаций выше, чем в осесиммет-

ричной струе, но далее по течению ($z/d = 2,0$) их амплитуда уменьшается и становится сравнимой с амплитудой других азимутальных мод.

Заключение

Характеристики доминирующих азимутальных мод в турбулентной осесимметричной и шевронной струях были исследованы с применением Фурье- и POD-анализа разрешенных во времени томографических данных PIV эксперимента. Согласно выполненному анализу азимутальных мод 3D-полей скорости показано, что в осесимметричной струе азимутальная мода $m = 0$ содержала существенную часть кинетической энергии турбулентности. В случае шевронной струи слой смещения был более широким в поперечном направлении, и кинетическая энергия пульсаций распределялась более равномерно между различными азимутальными модами. Кинетическая энергия пульсаций для осесимметричной моды $m = 0$ оказалась существенно ниже по сравнению с осесимметричной струей. Согласно анализу POD в осесимметричной струе доминировали когерентные структуры в виде кольцевых вихрей. Были идентифицированы вторичные спиральные структуры, соответствующие азимутальным модам с $|m| = 1, 2$, связанные с неустойчивостью потенциального ядра струи и противовращающимися парами продольных вихрей, расположенных в области деформации между кольцевыми вихрями. Сделан вывод о том, что в случае шевронной струи кинетическая энергия турбулентности осесимметричной моды, связанной с кольцевыми вихрями в слое смещения струи, была подавлена более чем в два раза по сравнению со струей из круглого сопла.

Список литературы / References

1. Yule A. Large-scale structure in the mixing layer of a round jet. *J. Fluid Mech.*, 1978, vol. 89, p. 413–432.
2. Liepmann D., Gharib M. The role of streamwise vorticity in the near field entrainment of round jets. *J. Fluid Mech.*, 1992, vol. 245, p. 643–668.
3. Violato D., Scarano F. Three-dimensional evolution of flow structures in transitional circular and chevron jets. *Phys. Fluids*, 2011, vol. 23, no. 12, p. 124104.
4. Kuchar A., Chamberlin R. Scale model performance test investigation of exhaust system mixers for an energy efficient engine (E3) propulsion system. *AIAA Journal*, 1980, vol. 1980-0229, p. 229.
5. Presz W., Reynolds G., McCormick D. Thrust augmentation using mixer-ejector-diffuser systems. *AIAA Journal*, 1994, vol. 1994-0020, p. 20.
6. Mabe J., Calkins F., Butler G. Boeing's variable geometry chevron, morphing aerostructure for jet noise reduction. *AIAA Journal*, 2016, vol. 2006-2142, p. 2142.
7. Smith L., Majamaki A., Lam I., Delabroy O., Karagozian A., Marble F., Smith O. Mixing enhancement in a lobed injector. *Phys. Fluids*, 1997, vol. 9, no. 3, p. 667–678.
8. Freund J. Noise sources in a low-Reynolds-number turbulent jet at Mach 0.9. *J. Fluid Mech.*, 2001, vol. 438, p. 277–305.
9. Uzun A., Hussaini M. Simulation of noise generation in the near-nozzle region of a chevron nozzle jet. *AIAA Journal*, 2009, vol. 47, no. 8, p. 1793–1810.
10. Becker H., Massaro T. Vortex evolution in a round jet. *J. Fluid Mech.*, 1968, vol. 31, no. 3, p. 435–448.
11. Uzun A., Alvi F., Colonius T., Hussaini M. Spatial stability analysis of subsonic jets modified for low-frequency noise reduction. *AIAA Journal*, 2015, vol. 53, no. 8, p. 2335–2358.
12. Hu H., Saga T., Kobayashi T., Taniguchi N. A study on a lobed jet mixing flow by using stereoscopic particle image velocimetry technique. *Phys. Fluids*, 2001, vol. 13, no. 11, p. 3425–3441.

13. **Nastase I., Meslem A., Gervais P.** Primary and secondary vortical structures contribution in the entrainment of low Reynolds number jet flows. *Exp. Fluids*, 2008, vol. 44, no. 6, p. 1027–1033.
14. **El Hassan M., Meslem A.** Time-resolved stereoscopic particle image velocimetry investigation of the entrainment in the near field of circular and daisy-shaped orifice jets. *Phys. Fluids*, 2010, vol. 22, no. 3, p. 035107.
15. **Lin C., Jeng M., Chao Y.** The stabilization mechanism of the lifted jet diffusion flame in the hysteresis region. *Exp. Fluids*, 1993, vol. 14, no. 5, p. 353–365.
16. **Demare D., Baillot F.** The role of secondary instabilities in the stabilization of a nonpremixed lifted jet flame. *Phys. Fluids*, 2001, vol. 13, no. 9, p. 2662–2670.
17. **Gutmark E., Parr T., Hanson-Parr D., Schadow K.** Azimuthal structure of an annular diffusion flame. *Combust. Flame*, 1989, vol. 75, no. 3, p. 229–240.
18. **Longmire E., Eaton J., Elkins C.** Control of jet structure by crown-shaped nozzles. *AIAA Journal*, 1992, vol. 30, no. 2, p. 505–512.
19. **Litvinenko M., Kozlov V., Kozlov G., Grek G.** Effect of streamwise streaky structures on turbulentization of a circular jet. *J Appl. Mech. Tech. Phys.*, 2004, vol. 45, no. 3, p. 349–357.
20. **Kozlov G., Grek G., Sorokin A., Litvinenko Y.** Influence of initial conditions at the nozzle exit on the structure of round jet. *Thermophysics and Aeromechanics*, 2008, vol. 15, no. 1, p. 55–68.
21. **Mullyadzhanov R., Abdurakipov S., Hanjalić K.** Helical structures in the near field of a turbulent pipe jet. *Flow Turb. Combust.*, 2017, vol. 98, no. 2, p. 367–388.
22. **Mullyadzhanov R., Sandberg R., Abdurakipov S., George W., Hanjalić K.** Propagating helical waves as a building block of round turbulent jets. *Phys. Rev. Fluids*, 2018, vol. 3, no. 6, p. 062601.
23. **Alekseenko S., Dulin V., Kozorezov Y., Markovich D.** Effect of axisymmetric forcing on the structure of a swirling turbulent jet. *Int. J. Heat Fluid Flow*, 2008, vol. 29, p. 1699–1715.
24. **Abdurakipov S., Dulin V., Kozinkin L., Tokarev M., Markovich D.** Tomographic PIV measurements of azimuthal modes in jets issuing from circular and chevron nozzles. In: *Proceedings of 18 International Symposium on the Application of Laser and Imaging Techniques to Fluid Mechanics*. Lisbon, Portugal, July 4–7. 2016.
25. **Alekseenko S., Abdurakipov S., Hrebtov M., Tokarev M., Dulin V., Markovich D.** Coherent structures in the near-field of swirling turbulent jets: A tomographic PIV study. *Int. J. Heat Fluid Flow*, 2018, vol. 70, no. 1, p. 363–379.
26. **Wieneke B.** Volume self-calibration for 3D particle image velocimetry. *Exp. Fluids*, 2008, vol. 45, p. 549–456.
27. **Atkinson C., Soria J.** An efficient simultaneous reconstruction technique for tomographic particle image velocimetry. *Exp. Fluids*, 2009, vol. 47, p. 553–568.
28. **Novara M., Batenburg J., Scarano F.** Motion tracking-enhanced MART for tomographic PIV. *Meas. Science Tech.*, 2010, vol. 21, p. 035401.
29. **Holmes P., Lumley J., Berkooz G.** *Turbulence, coherent structures, dynamical systems and symmetry*. Cambridge, Cambridge University Press, 1998.
30. **Kerschen G., Golinval J., Vakakis A., Bergman L.** The method of proper orthogonal decomposition for dynamical characterization and order reduction of mechanical systems: an overview. *Nonlinear Dynamics*, 2005, vol. 41, no. 1–3, p. 147–169.
31. **Markovich D., Abdurakipov S., Chikishev L., Dulin V., Hanjalic K.** Comparative analysis of low- and high-swirl confined flames and jets by proper orthogonal and dynamic mode decompositions. *Phys. Fluids*, 2014, vol. 26, p. 065109.
32. **Markovich, D., Dulin V., Abdurakipov S., Kozinkin L., Tokarev M., Hanjalić K.** Helical modes in low-and high-swirl jets measured by tomographic PIV. *J. Turbulence*, 2016, vol. 17, no. 7, p. 678–698.

Материал поступил в редколлегию

Received

30.07.2018

Сведения об авторах / Information about the Authors

Абдуракипов Сергей Сергеевич, кандидат физико-математических наук, младший научный сотрудник, Институт теплофизики им. С. С. Кутателадзе СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 1, Новосибирск, 630090, Россия); Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Sergey S. Abdurakipov, PhD, Junior Researcher, Institute of Thermophysics SB RAS (1 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Novosibirsk State University (1 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

s.s.abdurakipov@gmail.com

Дулин Владимир Михайлович, доктор физико-математических наук, заведующий лабораторией, Институт теплофизики им. С. С. Кутателадзе СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 1, Новосибирск, 630090, Россия); Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Vladimir M. Dulin, PhD, D. Sci., Head of Laboratory, Institute of Thermophysics SB RAS (1 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Novosibirsk State University (1 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

vmd@itp.nsc.ru

Токарев Михаил Петрович, кандидат технических наук, научный сотрудник, Институт теплофизики им. С. С. Кутателадзе СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 1, Новосибирск, 630090, Россия); Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Mikhail P. Tokarev, PhD, Researcher, Institute of Thermophysics SB RAS (1 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Novosibirsk State University (1 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

mtokarev@itp.nsc.ru

Маркович Дмитрий Маркович, доктор физико-математических наук, член-корреспондент РАН, директор, Институт теплофизики им. С. С. Кутателадзе СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 1, Новосибирск, 630090, Россия); Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Dmitriy M. Markovich, PhD, D. Sci., Corresponding Member of RAS, Director, Institute of Thermophysics SB RAS (1 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Novosibirsk State University (1 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

dmark@itp.nsc.ru

УДК 539.211.537.533

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-60-66

Перераспределение атомных ступеней на поверхности кремния (001) при сублимации в условиях нагрева постоянным электрическим током

Е. Е. Родякина^{1,2}, С. В. Ситников¹, Д. И. Роголо¹, А. В. Латышев^{1,2}

¹ Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН

² Новосибирский государственный университет
Новосибирск, Россия

Аннотация

Методами *in situ* сверхвысоковакуумной отражательной электронной микроскопии и *ex situ* атомно-силовой микроскопии исследовано объединение атомных ступеней в эшелоны (группы близкорасположенных ступеней) в условиях электромиграции, инициированной нагревом образца путем пропускания постоянного электрического тока, на поверхности кремния (001) при сублимации в интервале температур 950–1150 °С. Показано, что изменение среднего расстояния между эшелонами атомных ступеней во времени зависит степенным образом, с показателем степени порядка 0,3. Получены данные о температурной зависимости числа эшелонов ступеней на единицу длины, образующихся за одно и то же время отжига в процессе сублимации. Обнаружена слабая зависимость от температуры при токе вниз по ступеням. Соответствующая эффективная энергия активации процесса эшелонирования при электрическом токе вверх по ступеням составила порядка 0,24 эВ.

Ключевые слова

поверхность кремния (001), электромиграция, сублимация, атомные ступени

Благодарности

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 16-32-60199 «мол_а_дк») с использованием оборудования ЦКП «Наноструктуры» ИФП СО РАН

Для цитирования

Родякина Е. Е., Ситников С. В., Роголо Д. И., Латышев А. В. Перераспределение атомных ступеней на поверхности кремния (001) при сублимации в условиях нагрева постоянным электрическим током // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 4. С. 60–66. DOI 10.25205/ 2541-9447-2018-13-4-60-66

Rearrangement of Atomic Steps on the Silicon (001) Surface at Sublimation under Heating by Direct Electric Current

Е. Е. Rodyakina^{1,2}, S. V. Sitnikov¹, D. I. Rogilo¹, A. V. Latyshev^{1,2}

¹ Institute of Semiconductor Physics SB RAS

² Novosibirsk State University
Novosibirsk, Russian Federation

Abstract

The combining atomic steps into bunches (groups of closely spaced steps) under conditions of electromigration, induced by direct current sample heating, on silicon surface (001) during sublimation in the temperature range 950–1150°C is studied using *in situ* reflection electron microscopy and *ex situ* atomic force microscopy. It is shown that changes in the average distance between the atomic steps bunches in time depend in a power-law manner, with an exponent of about 0.3. The data on the temperature dependence of the number of steps bunches per unit length, formed during the same time of annealing in the process of sublimation, has been obtained. It has been found that the temperature dependence is weak with step-down current. The corresponding effective activation energy of the bunching process is about 0.24 eV with step-up current.

Keywords

silicon surface, electromigration, sublimation, atomic steps

© Е. Е. Родякина, С. В. Ситников, Д. И. Роголо, А. В. Латышев, 2018

ISSN 2541-9447

Сибирский физический журнал. 2018. Том 13, № 4
Siberian Journal of Physics, 2018, vol. 13, no. 4

Acknowledgements

This work was supported by the Russian Foundation for Basic Research (grant 16-32-60199 “mol_a_dk”) using the equipment of CKP ISP SBRAS “Nanostructures”

For citation

Rodyakina E. E., Sitnikov S. V., Rogilo D. I., Latyshev A. V. Rearrangement of Atomic Steps on the Silicon (001) Surface at Sublimation under Heating by Direct Electric Current. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 60–66. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-60-66

Введение

Широкое использования подложек кремния (Si) (001) в микроэлектронике обеспечивает и практическую, и фундаментальную актуальность исследования трансформации морфологии их поверхности при внешних воздействиях, в частности при нагреве образца постоянным электрическим током [1]. Известно, что при протекании через образец кремния электрического тока наблюдается электромиграция адсорбированных атомов, вызванная электрическим полем, что приводит к перераспределению изначально эквидистантно расположенных атомных ступеней в скопления (эшелоны), разделенные широкими террасами. Процесс эшелонирования на поверхности Si(001) исследовался как экспериментально [2–7], так и теоретически [8–12], однако данных по температурным и временным зависимостям характерных величин, таких как среднее расстояние между эшелонами и между ступенями в эшелонах, недостаточно для верификации результатов численного моделирования. Отметим, что теоретическое описание морфологических перестроек осложнено тем, что вицинальная грань Si(001) после отжига представляет собой разделенные ступенями высотой 0,136 нм террасы, поочередно покрытые сверхструктурными реконструкциями 1×2 или 2×1 , образованными попарно сближенными атомами поверхности (димерами) [13]. При этом коэффициенты диффузии вдоль и поперек димерных рядов могут отличаться в тысячи раз, свободная энергия и форма ступеней также зависят от типа сверхструктуры вышележащей террасы [14; 15]. В данной работе исследовались морфологические трансформации ступенчатой поверхности кремния при нагреве постоянным электрическим током в широком интервале температур.

Эксперимент

Образцы размером $8 \times 1,1 \times 0,4$ мм³ вырезались из кремниевой шайбы, разориентированной от направления (001) менее чем на $0,1^\circ$, что соответствует расстоянию более 90 нм между эквидистантными ступенями. После стандартной химической очистки образцы закреплялись в танталовом держателе и помещались в сверхвысоковакуумную камеру отражательного электронного микроскопа (СВВ ОЭМ) [16]. С целью очищения поверхности от естественного оксида проводился термический отжиг при температуре выше 1250°C посредством резистивного нагрева пропусканием переменного электрического тока с последующим отжигом при заданной температуре в интервале $950\text{--}1150^\circ\text{C}$ постоянным электрическим током в двух противоположных направлениях: в сторону вышележащих относительно ступени террас (“up”) или нижележащих террас (“down”). При этом угол между направлением тока и ступенями составлял $10\text{--}20^\circ$. Отсутствие центров торможения атомных ступеней при их смещении в процессе сублимации свидетельствовало о высокой степени очистки поверхности от загрязнений. Использование метода ОЭМ позволило проводить *in situ* диагностику морфологических перестроек на поверхности образца при нагреве кристалла вплоть до температуры порядка 1200°C , при которой происходит переход порядок-беспорядок, сверхструктурные рефлексы на дифракционной картине исчезают и ступени перестают визуализироваться [17]. ОЭМ-изображение формировалось в сверхструктурном рефлексе 2×1 , что позволяет однозначно определять тип сверхструктуры на террасах. Последующий анализ профиля поверхности образцов проводился *ex situ* с помощью атомно-

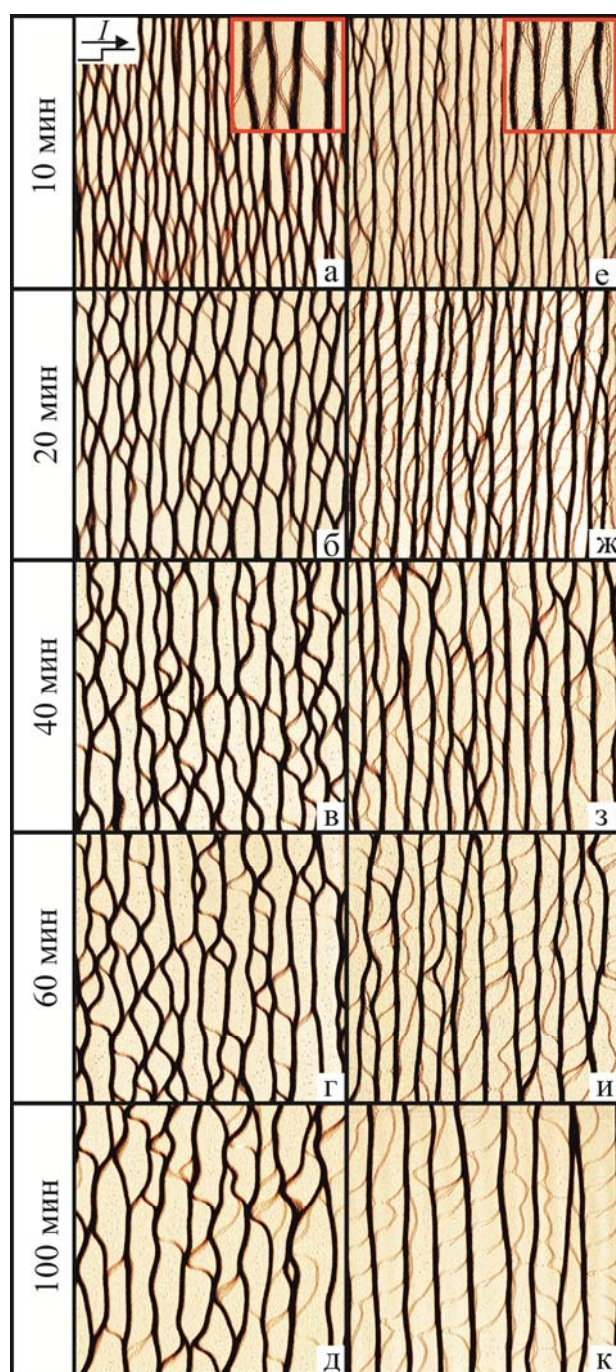


Рис. 1. АСМ-изображения (фазовый контраст) участков поверхности Si(001) размером $25 \times 25 \text{ мкм}^2$, полученные после отжига при температуре 1000°C (а–д) и 1100°C (е–к) при различном времени отжига при постоянном электрическом токе, протекавшем в направлении “up”

Fig. 1. AFM images (phase contrast) Si (001) surface areas $25 \times 25 \text{ }\mu\text{m}^2$ in size obtained after annealing at temperature of 1000°C (a–d) and 1100°C (e–k) at different annealing time and electric current flowing in “up” direction

силового микроскопа (АСМ) (MultiMode8, Bruker, США) при атмосферных условиях после быстрого охлаждения до комнатной температуры, АСМ-методика исследования поверхности Si(001) описана в работе [18].

Результаты и обсуждение

Процессу образования эшелонов на поверхности Si(001) предшествует образование пары ступеней, при этом тип преобладающей сверхструктуры зависит от направления постоянного электрического тока: 1×2 – при токе “down”, 2×1 – при токе “up” [2]. Затем пары ступеней формируют эшелоны, соответственно эшелонирование наблюдается при обоих направлениях электрического тока в отличие от поверхности кремния (111), на которой при высоких температурах сверхструктура отсутствует и диффузия адатомов при нулевом электрическом поле изотропна [19]. Со временем расстояние между эшелонами увеличивается как за счет слияния небольших эшелонов, так и за счет обмена парами ступеней между соседними эшелонами.

Фазовые АСМ-изображения участков поверхности, полученные для серии образцов, отожженных при разных временах и токе, направленном в сторону вышележащих террас, для двух температур показаны на рис. 1, где широкие вертикальные темные линии соответствуют эшелонам, а более светлые линии между эшелонами – парам ступеней. Отдельные ступени в парах четко визуализируются на вставках на рис. 1, а, е (размер участков на изображениях $5 \times 5 \text{ мкм}^2$). Видно, что расстояние между эшелонами увеличивается со временем. При этом на образцах, отожженных при 1000°C , эшелоны извилистые, и число пар ступеней между эшелонами мало, тогда как при 1100°C эшелоны более ровные, но увеличивается число пар ступеней между ними. Можно предположить, что при более низких температурах основным механизмом увеличения числа ступеней в эшелонах является их изгиб и объединение между собой, а при повышенных – обмен парами ступеней.

Как указывалось выше, эшелонирование наблюдается при обоих направлениях постоянного электрического тока, при этом, согласно литературным данным, форма и количественные характеристики различны вследствие разницы коэффициентов диффузии на террасах между эшелонами. Поэтому была проведена серия экспериментов по отжигу образцов в течение одного и того же времени в более широком температурном интервале и при двух противоположных направлениях нагревающего тока. Результаты представлены на АСМ-изображениях (рис. 2), демонстрирующих, что форма эшелонов изогнута и пары ступеней отсутствуют независимо от направления тока при температурах до 1050 °С. При более высоких температурах эшелоны выпрямляются и начинают обмениваться парами ступеней. При этом от направления тока зависит среднее расстояние между эшелонами во всем исследуемом температурном интервале.

Для количественного анализа наблюдаемых эффектов были построены соответствующие температурные и временные зависимости среднего количества эшелонов N на 100 мкм длины в направлении перпендикулярном линии изначально эквидистантных ступеней (рис. 3). Для расчета N по АСМ-изображениям (использовался фазовый контраст изображений участков размером 100×100 мкм²) была написана программа в среде Labview, измеряющая расстояния между центрами соседних эшелонов в каждой из 2000 строчек АСМ-снимка. Поскольку число ступеней между эшелонами мало по сравнению с числом ступеней в эшелонах N_s , то N обратно пропорциональна N_s , которое является критерием в экспериментальных и теоретических работах.

Зависимости числа эшелонов на единицу длины (рис. 3, а) от времени t имеют степенной вид $N \sim t^a$, где если ток “up”, то $a = -0,34 \pm 0,02$ при 1000 °С и $a = -0,31 \pm 0,03$ при 1100 °С, а если ток “down”, то $a = -0,27 \pm 0,02$ при 1100 °С. В пределах погрешности темпы эшелонирования совпадают. Полученные значения a меньше наблюдаемых экспериментально ранее $a = -0,5$ [2] и определенных в теоретических работах [8–10; 20; 21], но совпадают со значениями, полученными для начальных стадий эшелонирования

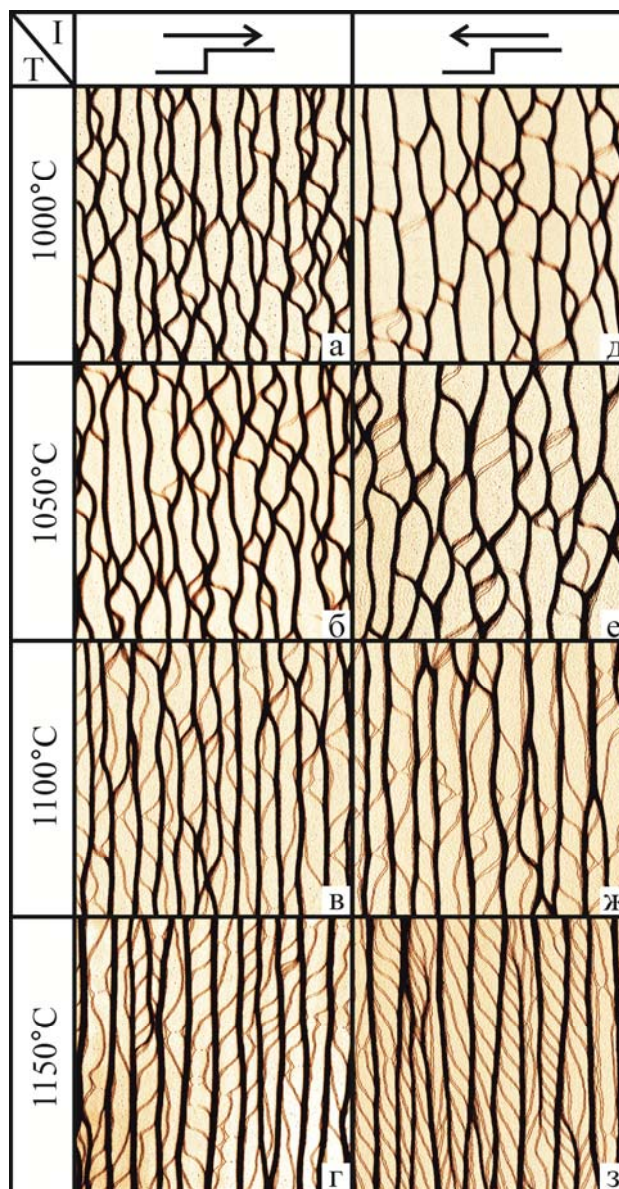


Рис. 2. АСМ-изображения (фазовый контраст) участков поверхности Si(001) размером 25×25 мкм², полученные после отжига при различных температурах после быстрого охлаждения образцов, отожженных в течение 40 минут при различных температурах и постоянном электрическом токе, протекавшем в направлении “up” (а–д) и “down” (е–з)

Fig. 2. AFM images (phase contrast) Si (001) surface areas 25×25 μm² in size, obtained after quenching of samples annealed during 40 minutes at various temperatures and constant electric current flowing in the direction “up” (a–d) and “down” (e–z)

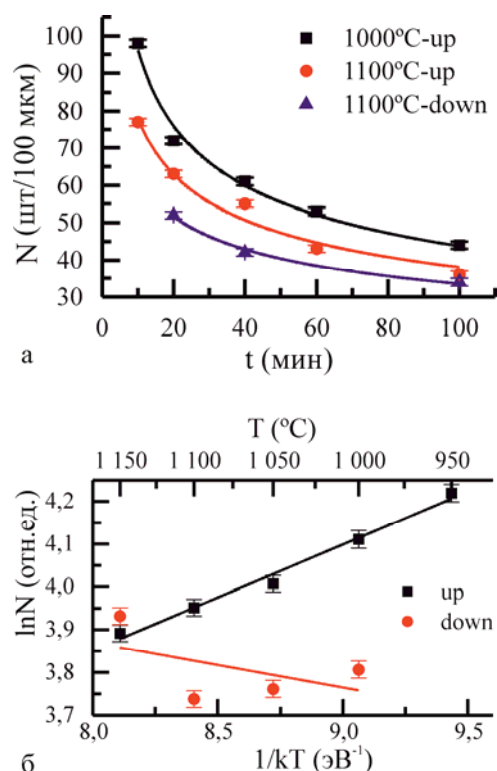


Рис. 3. Графики временных (а) и температурных (б) зависимостей, характеризующих процесс эшелонирования при различных параметрах отжига

Fig. 3. Plots of time (a) and temperature (b) dependencies, characterized the step bunching process at different annealing parameters

венно и количественно показано, что температура отжига существенно влияет на процессы эшелонирования, что требуется учитывать при теоретическом описании процессов.

Заключение

В данной работе показано влияние температуры отжига на формирование эшелонов атомных ступеней на поверхности Si(001), обусловленное электромиграцией адсорбированных атомов при нагреве образца постоянным электрическим током. Для двух противоположных направлений электрического тока и двух температур получены степенные зависимости изменения среднего расстояния между эшелонами атомных ступеней от времени с показателем степени меньше значения, полученного ранее в ряде работ. Меньшие темпы эшелонирования, по-видимому, обусловлены более низкой температурой эксперимента, чем в других работах. Получена эффективная энергия активации процесса эшелонирования при токе в сторону вышележащих террас, составившая $0,24 \pm 0,02$ эВ. Предполагается, что эта энергия может быть обусловлена температурной зависимостью соотношения коэффициентов диффузии адсорбированных атомов вдоль и поперек димерных рядов.

Список литературы / References

1. Misbah C., Pierre-Louis O., Saito Y. Crystal surfaces in and out of equilibrium: A modern view. *Reviews of Modern Physics*, 2010, vol. 82, no. 1, p. 981–1040.

2. **Latyshev A. V., Litvin L. V., Aseev A. L.** Peculiarities of step bunching on Si(001) surface induced by DC heating. *Applied Surface Science*, 1998, vol. 130–132, p. 139–145.
3. **Nielsen J. F., Pettersen M. S., Pelz J. P.** Anisotropy of mass transport on Si(001) surfaces heated with direct current. *Surface Science*, 2001, vol. 480, no. 1–2, p. 84–96.
4. **Nishimura H., Minoda H., Tanishiro Y., Yagi K.** DC heating-induced step instability on Si(001) vicinal surfaces. *Surface Science*, 1999, vol. 442, no. 2, p. L1006–L1012.
5. **Stoyanov S., Ichikawa M.** Size-scaling exponents of current-induced step bunching on silicon surfaces. *Physical Review B*, 1999, vol. 60, no. 23, p. 16006–16012.
6. **Doi T., Koguchi M.** Investigation of Si(001) stable surfaces in alternating current heating. *Surface Science*, 2016, vol. 653, p. 226–236.
7. **Родякина Е. Е., Ситников С. В., Латышев А. В.** Эффект электромиграции на поверхности кремния (001) в условиях гомоэпитаксии // Сибирский физический журнал. 2017. Т. 12, вып. 4. Р. 73–78. DOI 10.25205/2541-9447-2017-12-4-73-78
Rodyakina E. E., Sitnikov S. V., Latyshev A. V. Electromigration Effect on Silicon (001) Surface under Homoepitaxy Conditions. *Siberian Journal of Physics*, 2017. vol. 12, no. 4, p. 73–78. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2017-12-4-73-78
8. **Sato M., Mori T., Uwaha M., Hirose Y.** Growth of step bunches on a Si(001) vicinal face with drift of adatoms. *Journal of the Physical Society of Japan*, 2004, vol. 73, no. 7, p. 1827–1832.
9. **Sato M., Uwaha M., Mori T., Hirose Y.** Step bunching with alternation of structural parameters. *Journal of the Physical Society of Japan*, 2003, vol. 72, no. 11, p. 2850–2855.
10. **Natori A., Fujimura H., Fukuda M.** Step structure transformation of Si(001) surface induced by current II. *Applied Surface Science*, 1992, vol. 60–61, p. 85–91.
11. **Sato M., Uwaha M., Hirose Y.** Effect of two-dimensionality on step bunching on a Si(001) vicinal face. *Journal of the Physical Society of Japan*, 2006, vol. 75, no. 4, p. 4–7.
12. **Sato M., Uwaha M., Saito Y.** Evaporation and impingement effects on drift-induced step instabilities on a Si(001) vicinal face. *Physical Review B*, 2005, vol. 72, no. 4, p. 045401.
13. **White S. J., Woodruff D. P.** The surface structure of Si(100) surfaces using averaged LEED. *Surface Science*, 1977, vol. 64, no. 1, p. 131–140.
14. **Mo Y. W., Kleiner J., Webb M. B., Lagally M. G.** Activation energy for surface diffusion of Si on Si(001): A scanning-tunneling-microscopy study. *Physical Review Letters*, 1991, vol. 66, no. 15, p. 1998–2001.
15. **Zandvliet H. J. W., Elswijk H. B.** Morphology of monatomic step edges on vicinal Si(001). *Physical Review B*, 1993, vol. 48, no. 19, p. 14269–14275.
16. **Latyshev A. V., Krasilnikov A. B., Aseev A. L.** Application of ultrahigh vacuum reflection electron microscopy for the study of clean silicon surfaces in sublimation. epitaxy. and phase transitions. *Microscopy Research and Technique*, 1992, vol. 20, no. 4, p. 341–351.
17. **Metois J. J., Wolf D. E.** Kinetic surface roughening of Si(001) during sublimation. *Surface Science*, 1993, vol. 298, no. 1, p. 71–78.
18. **Rodyakina E. E., Kosolobov S. S., Sheglov D. V., Nasimov D. A., Song S. A., Latyshev A. V.** Atomic steps on sublimating Si (001) surface observed by atomic force microscopy. *Phys. Low-Dim. Struct.*, 2004, vol. 1–2, p. 9–18.
19. **Latyshev A. V., Aseev A. L., Krasilnikov A. B., Stenin S. I.** Transformations on clean Si(111) stepped surface during sublimation. *Surface Science*, 1989, vol. 213, no. 1, p. 157–169.
20. **Sato M., Deura K.** Effect of alternation of kinetic coefficients on step instabilities on Si(001) vicinal face. *Journal of Crystal Growth*, 2008, vol. 310, no. 7–9, p. 1371–1375.

21. **Sato M., Uwaha M., Takahashi T.** Motion of step pairs during drift-induced step bunching on a Si(001) vicinal face. *Journal of Crystal Growth*, 2007, vol. 303, no. 1, p. 85–89.
22. **Jeong S., Oshiyama A.** Adsorption and Diffusion of Si Adatom on Hydrogenated Si(100) Surfaces. *Physical Review Letters*, 1997, vol. 79, no. 22, p. 4425–4428.

Материал поступил в редколлегию

Received

09.12.2018

Сведения об авторах / Information about the Authors

Родякина Екатерина Евгеньевна, кандидат физико-математических наук, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия); Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Ekaterina E. Rodyakina, Candidate of Science (Physics and Mathematics), A. V. Rzhzanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Novosibirsk State University (2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

rodyakina@isp.nsc.ru

Ситников Сергей Васильевич, кандидат физико-математических наук, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия)

Sergey V. Sitnikov, Candidate of Science (Physics and Mathematics), A. V. Rzhzanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

sitnikov@isp.nsc.ru

Рогило Дмитрий Игоревич, кандидат физико-математических наук, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия)

Dmitriy I. Rogilo, Candidate of Science (Physics and Mathematics), A. V. Rzhzanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

rogilo@isp.nsc.ru

Латышев Александр Васильевич, доктор физико-математических наук, академик РАН, профессор, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия); Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Aleksandr V. Latyshev, Doctor of Science (Physics and Mathematics), Academician of RAS, Professor, A. V. Rzhzanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Novosibirsk State University (2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

latyshev@isp.nsc.ru

Влияние имплантации ионов углерода на адгезию и свойства аморфных углеродных пленок на германии

А. С. Золкин¹, А. И. Семерикова¹, С. Ю. Чепкасов¹, М. Н. Хомяков²

¹ *Новосибирский государственный университет*

² *Институт лазерной физики СО РАН
Новосибирск, Россия*

Аннотация

Предложен метод синтеза аморфных гидрогенизированных (a-C:H) пленок углерода с высокой адгезией, основанный на имплантации ионов углерода в подложку из монокристаллического германия. Поток ионизированного углерода создавался источником ионов с азимутальным дрейфом электронов в скрещенных электрическом и магнитном полях. В область с повышенной концентрацией электронов вводили газ пропан. Расход газа – от 4,5 до 10 см³/мин. Ионизованные фрагменты пропана, включая углерод, ускорялись электрическим полем и осаждались на подложку. При этом ионизированный углерод внедрялся в поверхностный слой германия, создавая переходную область, обеспечивающую сцепление с напыляемой пленкой. Подложка предварительно обрабатывалась ионами аргона в течение нескольких минут. Синтез покрытия включает двух-этапное осаждение. На первом этапе пленки осаждались ионным пучком со средней энергией около 1,6 кэВ в течение от 0,5 до 1 часа для получения адгезионного слоя. Затем средняя энергия пучка уменьшалась до 0,3 кэВ, и осаждение продолжалось в течение 3,5 часов для сохранения твердости покрытий. Скорость роста покрытий составила 1,8 нм/мин при осаждении из ионных пучков со средней энергией 0,3 кэВ и 7,8 нм/мин при средней энергии пучка 1,6 кэВ. Адгезия, связь покрытия с подложкой высокая: отрыв отсутствует при скрайбировании алмазным наноиндентором Берковича с нагрузкой до 50 мН. Твердость покрытия достигает 20 ГПа. Толщина пленки – 600 нм. Спектроскопические исследования показали, что максимум пропускания германия с односторонним a-C:H покрытием – 67 % на длине волны 5 мкм, а монокристаллического Ge – 51 %. Результаты работы могут быть использованы при создании защитных просветляющих покрытий оптических систем, создании медицинских имплантов и в механических устройствах.

Ключевые слова

аморфные углеродные гидрогенизированные пленки, адгезия, просветляющие покрытия на германии

Благодарности

Авторы выражают благодарность В. А. Володину за помощь при работе на спектрометре КРС.

Работа выполнена при поддержке проекта НГУ: Стратегические академические единицы (САЕ) «Нелинейная фотоника и квантовые технологии 2016–2017»

Для цитирования

Золкин А. С., Семерикова А. И., Чепкасов С. Ю., Хомяков М. Н. Влияние имплантации ионов углерода на адгезию и свойства аморфных углеродных пленок на германии // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 4. С. 67–73. DOI 10.25205/ 2541-9447-2018-13-4-67-73

Influence of the Carbon Ion Implantation on the Adhesion and Properties of Amorphous Carbon Films on Germanium

A. S. Zolkin¹, A. I. Semerikova¹, S. Yu. Chepkasov¹, M. N. Khomyakov²

¹ *Novosibirsk State University*

² *Institute of Laser Physics SB RAS
Novosibirsk, Russian Federation*

Abstract

A method for the synthesis of amorphous hydrogenated (a-C:H) carbon films with high adhesion is proposed, based on the implantation of carbon ions into a monocrystalline germanium substrate. The flow of ionized carbon was

created by an anode layer ion source in crossed electric and magnetic fields. Propane gas was introduced into the area with an increased electron concentration. The gas flow rate was ranged from 4.5 to 10 cm³/min. Ionized fragments of propane, including carbon, were accelerated by the electric field and deposited on the substrate. At the same time, ionized carbon penetrated into the surface layer of germanium, creating an interlayer that provides adhesion of the film. The substrate was sputtered by argon ions for several minutes. The synthesis of the coating includes two-stage deposition. At the first stage, the films were deposited by an ion beam with a mean energy of about 1.6 keV for 0.5 to 1 hour to obtain an adhesive interlayer. Then the mean energy of the beam was reduced to 0.3 keV and the deposition continued for 3.5 hours to maintain the hardness of the coatings. The coating growth rate was ranged from 0.3 to 1.3 Å/sec. Adhesion, the bond between the coating and the substrate, obtained is high: there is no detachment while scratching by the Berkovich diamond nanoindent with a load of up to 50 mN. The hardness is 20 GPa. The film thickness is 600 nm. Spectroscopic studies have shown that the maximum transmission of the germanium with a single side a-C:H coating is 67 % at a wavelength of 5 μm, and of the single crystal Ge is 51 %. The results of the current research can be applied in the formation of protective antireflective coatings of optical systems, the creation of medical implants and mechanical devices.

Keywords

amorphous hydrogenated carbon films, adhesion, antireflection coatings on germanium

Acknowledgements

Authors thank Dr. Vladimir A. Volodin for his help in operating the Raman spectrometer. The support of the Novosibirsk State University Project Strategic Academic Units Nonlinear Photonics and Quantum Technologies 2016–2017 is highly acknowledged

For citation

Zolkin A. S., Semerikova A. I., Chepkasov S. Yu., Khomyakov M. N. Influence of the Carbon Ion Implantation on the Adhesion and Properties of Amorphous Carbon Films on Germanium. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 67–73. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-67-73

Введение

Технология синтеза аморфных углеродных гидрогенизированных (a-C:H) пленок с контролируемыми свойствами постоянно развивается в связи с практическим применением в качестве просветляющих и защитных покрытий для оптики ИК диапазона [1–3], солнечных элементов [4; 5], лазерных систем [5; 6].

Повышение адгезии при сохранении других необходимых характеристик, таких как оптические свойства, твердость, – одна из важных задач. Известны работы, в которых синтез углеродных пленок из ИП осуществляется при различных энергиях в диапазоне от 40 до 5000 эВ [7–10]. В отдельных случаях удается получить высококачественное покрытие. Обычно формирование связывающего слоя между подложкой и пленкой происходит в результате взаимодействия верхнего слоя подложки и осаждаемых атомов или молекул. Возникает тонкий переходной слой, который связывает атомы подложки и атомы покрытия. Однако механические напряжения, возникающие в результате, например, различных коэффициентов теплового расширения, часто превосходят силы, связывающие покрытие с основой. В результате происходит отслоение покрытия. Возможным решением является усиление связи между основой и осаждаемым материалом за счет имплантации ионов углерода в материал подложки. В этом случае толщина переходного слоя существенно увеличивается, сцепление между атомами подложки и атомами покрытия возрастает [3; 11]. Недостаток такого способа заключается в формировании дефектов, что критично для элементов микро- и нанoeлектроники. Для формирования защитных покрытий на оптические системы это допустимо.

Мы использовали ионный источник (ИИ) бессеточного типа, который не вносит примесей в покрытие в результате распыления материала сеток или катодных узлов. Источник с азимутальным дрейфом электронов дает возможность получать пучки ионов со средней энергией от 0,3 до 1,6 кэВ. Данный ИИ позволяет варьировать энергию пучка в широком диапазоне. Пучки со средней энергией 1,6 кэВ способны обеспечить высокую адгезию, а низкоэнергетичные пучки (0,3 кэВ) – благоприятные условия для роста.

Цель работы – исследовать влияние адгезионного слоя путем осаждения ионов со средней энергией на механические и оптические свойства a-C:H пленок на Ge.

Методика эксперимента и исследования

Пленки осаждались из источника с азимутальным дрейфом электронов. Камера откачивалась до остаточного давления 10^{-3} Па. После подачи газа в процессе осаждения давление было примерно $5 \cdot 10^{-3}$ Па. В область ионизации подавался пропан (C_3H_8), расход составил от 1,4 до 4,2 см³/мин. Для очистки от адсорбированных атомов и молекул подложки обрабатывались ионами аргона со средней энергией 0,3 кэВ от 5 до 10 мин. Такая обработка способствует возбуждению поверхностных состояний подложки. Это позволяет улучшить химическую связь между пленкой и подложкой.

В первом режиме (А) пленки осаждались из ионных пучков со средней энергией 0,3 эВ в течение 2–3 часов. Напряжение анода – 1 кВ, ток анода – 20 мА.

Во втором режиме (В) адгезионный слой формировался ионами рабочего газа с энергией 1,6 кэВ в течение от 30 мин до 1 часа. Напряжение анода – 5 кВ, ток анода составил 50–60 мА. Затем средняя энергия пучка уменьшалась до 0,3 кэВ, и осаждение продолжалось в течение 3,5–4 часов. Напряжение анода – 1 кВ, ток анода – 20 мА. Для компенсации пространственного заряда ионного пучка использовали вольфрамовый эмиттер электронов.

В третьем режиме (С) пленки осаждались из ионных пучков со средней энергией 1,6 кэВ в течение двух часов. Напряжение анода – 5 кВ, ток анода составил 50–60 мА. Для компенсации пространственного заряда ионного пучка использовали вольфрамовый эмиттер электронов.

Толщина покрытий измерялась лазерным эллипсометром LEF-752 на длине волны 632 нм в режиме многоугловых измерений [12]. Для расчета толщины использовалась модель «однородная пленка – подложка», в которой известны оптические постоянные подложки [12; 13]. Погрешность измерения толщины составляла 2–4 нм.

Твердость покрытия определялась методом наноиндентирования на сканирующем нано-твердомере «НаноСкан-3D». Для исключения влияния подложки на результат измерений твердости пользовались моделью, предложенной в [14]. Адгезионную прочность пленок оценивали по критической нагрузке их отслоения от подложки при склерометрии с переменной нагрузкой. Методика основана на нанесении царапины алмазным пирамидальным индентором с постоянно возрастающей нагрузкой с последующим сканированием рельефа поверхности. В результате испытания получается рельеф поверхности до и после царапания, кривая зависимости силы нагружения и углубления индентора. Их анализ позволяет оценить пороговую нагрузку перехода от пластической деформации к хрупкому разрушению и измерить толщину покрытия в месте отрыва пленки.

Спектры комбинационного рассеяния света получены на спектрометре Jobin Yvon T64000 с длиной волны возбуждения 514,5 нм с целью изучения структурных особенностей пленок. ИК спектры получены на ИК Фурье-спектрометре ФТ-801 в диапазоне длин волн от 2,5 до 16,7 мкм для изучения просветляющих свойств покрытий. Опорный спектр записывался без чистой подложки.

Результаты и обсуждение

Твердость и адгезия покрытия

При осаждении на германий ионов со средней энергией 0,3 кэВ при потенциале анода 1 кВ без адгезионного подслоя (режим А) твердость покрытия составляет от 13,5 до 16 ГПа. Адгезия таких пленок характеризуется отслоением при царапании с нагрузкой 10 мН. Скорость роста покрытия – 1,8 нм/мин.

С целью улучшения адгезии и сохранения качества покрытия применили двухэтапный режим В. На первом этапе осуществили мягкую имплантацию ионов, образующихся в ионном пучке из рабочего газа. Средняя энергия пучка достигала 1,6 кэВ при потенциале анода 5 кВ. Предполагаем, что ионы проникают в поверхностный слой на глубину нескольких на-

нометров [11; 15; 16]. Часть имплантированных ионов может образовывать химическое соединение карбида германия. На втором этапе в режиме В энергия ионов понижалась с 1,6 до 0,3 кэВ с целью эффективного синтеза а-С:Н покрытия. Данной энергии ионов достаточно для осуществления связи С-С: связи осаждаемого материала с адгезионным слоем.

Получена хорошая адгезия а-С:Н пленок на германии. Пленки с адгезионным слоем не отрывались при многократном скрайбировании алмазным индентором с максимальной нагрузкой 50 мН. Отслаивания пленки от основы с течением времени не замечено при хранении в комнатных условиях более двух лет. Описанный способ дал значения твердости 18–20 ГПа при осаждении адгезионного слоя в течение 35 мин и 14–15 ГПа при часовом осаждении.

Отметим, что напыление при постоянной энергии ионного пучка 1,6 кэВ (режим С) обеспечивает хорошую адгезию и высокую скорость синтеза – 7,8 нм/мин. Однако твердость покрытия в этом случае не превышает твердости германия 10 ГПа.

Оптические свойства

На рис. 1, а представлены ИК спектры пропускания а-С:Н пленок на германии с эффектом просветления. Максимум просветления 65–67 % наблюдается в диапазоне длин волн 4,5–6 мкм. Для сравнения на рис. 1 представлен спектр пропускания чистого германия. В ИК спектрах поглощения (рис. 1, б) присутствуют слабовыраженные характеристические полосы поглощения на валентных колебаниях СН-групп в области $3\,100\text{--}2\,700\text{ см}^{-1}$. Это подтверждает присутствие водорода в пленках вследствие синтеза из пропана.

Спектроскопия комбинационного рассеяния света (КРС)

Для анализа зависимости структуры пленок от энергии осаждаемых частиц в режимах А, В и С выбрана методика спектроскопии КРС. Спектры раскладывали на два гауссовых пика (рис. 2, а–в), соответствующих D и G модам [17; 18]. С целью сравнения спектры нормировались на максимум интенсивности (рис. 2, г). Изменение характеристик спектров комбинационного рассеяния света пленок (см. таблицу), полученных при режимах А, В и С, показывает, что положения пиков D и G смещаются в область высоких частот, интенсивность и полуширина на полувысоте пика D увеличивается, а пика G уменьшается. Отношение интегральных интенсивностей пиков I_D/I_G растет с ростом энергии осаждаемых частиц. Это может быть связано с увеличением доли sp^2 гибридизованного углерода, упорядочением sp^2 связей и, как следствие, с графитизацией пленок.

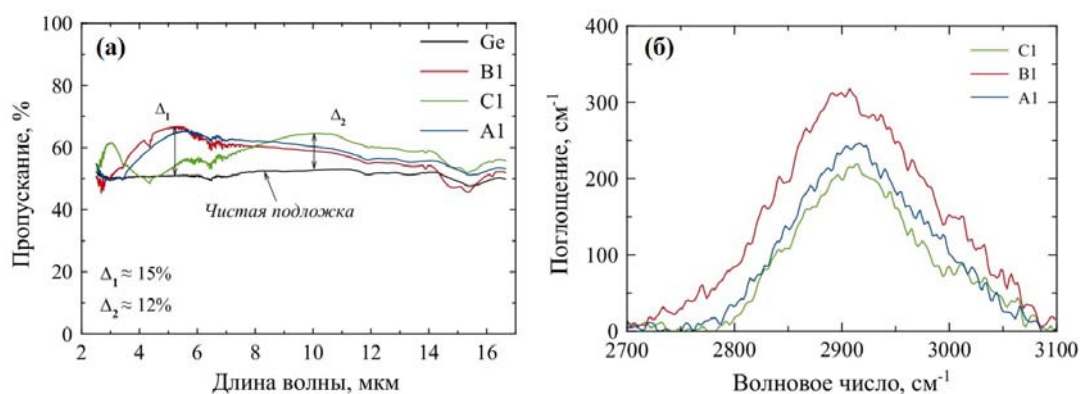


Рис. 1. (а) ИК спектры пропускания германия с односторонним просветляющим защитным а-С:Н покрытием толщиной 600 нм (B1), 750 нм (A1), 950 нм (C1) и чистой подложки (Ge);

(б) ИК спектры поглощения а-С:Н пленок на германии

Fig. 1. (a) FTIR spectra of the germanium with single-side antireflective protective a-C:H films with thicknesses 600 nm (B1), 750 nm (A1), 950 nm (C1) and the bare substrate (Ge);

(b) IR absorption spectra of the a-C:H films on germanium

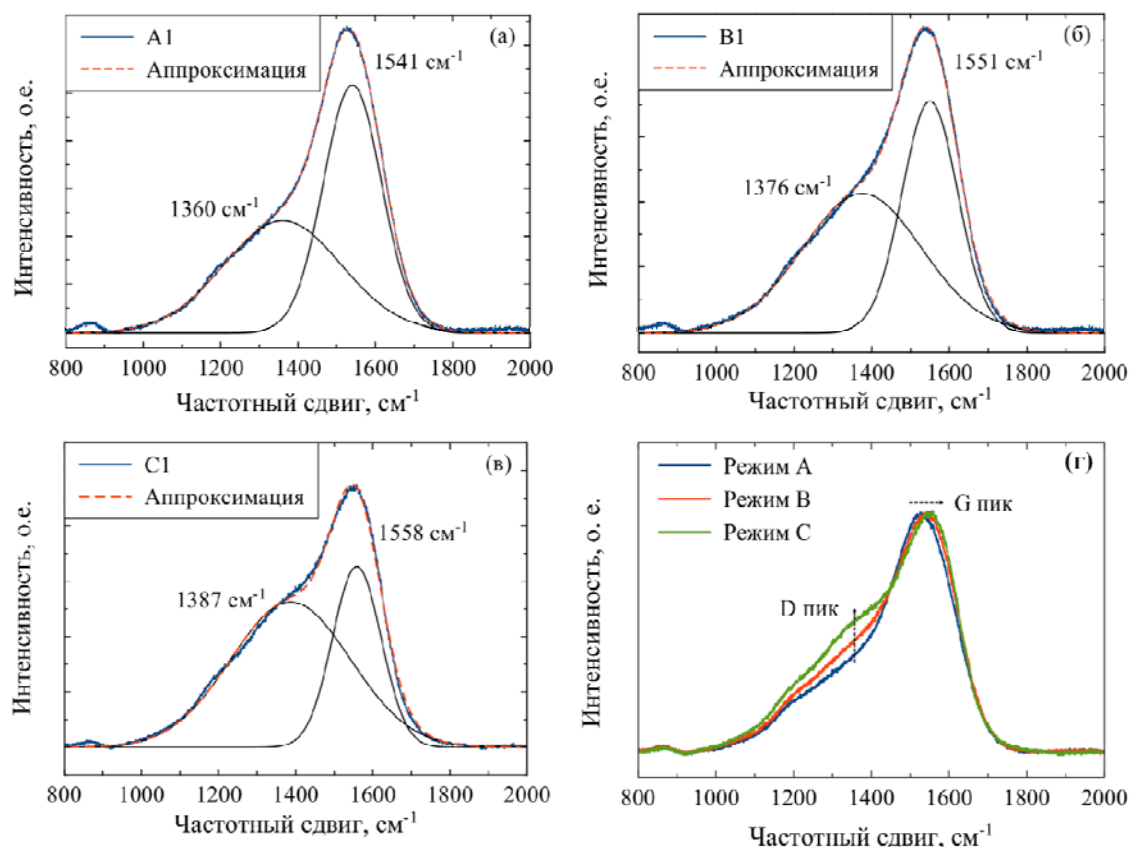


Рис. 2. Разложение спектров комбинационного рассеяния света пленок, полученных в режимах (а) А, (б) В и (в) С на пики D и G; (г) сравнение нормированных на максимум интенсивности спектров образцов А, В и С

Fig. 2. Deconvolution of the Raman spectra of the films, obtained by the use of the Modes (a) A, (b) B and (c) C, on D and G peaks; (d) a comparison of A, B, and C sample spectra normalized to intensity maximum

Характеристики спектров комбинационного рассеяния света пленок,
полученных в режимах А, В и С

Characteristics of Raman spectra of the films
obtained in Modes A, B, and C

Ре- жим	Пик D			Пик G			I_D/I_G
	Положе- ние, см^{-1}	Полуширина на полувы- соте, см^{-1}	Интен- сивность, о. е.	Положе- ние, см^{-1}	Полушири- на на полу- высоте, см^{-1}	Интен- сивность, о. е.	
А	1 360	178	116	1 541	88	259	0,90
В	1 376	180	106	1 551	84	178	1,27
С	1 378	183	131	1 558	74	163	1,98

В свою очередь, это объясняет снижение твердости пленок с ростом энергии осаждаемых частиц. Рост температуры поверхности роста пленки в процессе синтеза влечет рост концентрации sp^2 гибризованного углерода и его упорядочение [19]. Снижение концентрации

sp^3 гибризованного углерода в пленке (связь C-C), вызванное локальным перегревом поверхности роста, приводит к падению твердости.

Промежуточное положение спектра пленки, осажденной в двухэтапном режиме В, связано с глубиной анализа метода: лазерное излучение проникает и рассеивается по всей толщине пленки и даже достигает подложки, о чем свидетельствует пик в области 850 см^{-1} . Таким образом, для пленки В измеряется суперпозиция спектров промежуточного высокоэнергетического и низкоэнергетического слоев.

Выводы

Нами установлено, что формирование адгезионного подслоя ионным пучком из C_3H_8 с относительно высокой средней энергией (1,6 кэВ) способствует увеличению адгезионной прочности напыляемого покрытия. Наилучшая твердость покрытия (до 20 ГПа), достигнута при двухэтапном напылении: адгезионный слой синтезирован ионным пучком со средней энергией 1,6 кэВ с последующим осаждением ионов со средней энергией 0,3 эВ. Пропускание германия с односторонним защитным просветляющим покрытием а-С:Н достигает 65–67 % в диапазоне длин волн 4,5–6 мкм.

Список литературы / References

1. **Peng S. et al.** Effects of the ion-beam voltage on the properties of the diamond-like carbon thin film prepared by ion-beam sputtering deposition. *Chinese Physics B*, 2015, vol. 24, no. 6, p. 067803.
2. **Ankit K. et al.** Synthesis of high hardness IR optical coating using diamond-like carbon by PECVD at room temperature. *Diamond and Related Materials*, 2017, vol. 78, p. 39–43.
3. **Lu Y. et al.** Diamond-like carbon film with gradient germanium-doped buffer layer by pulsed laser deposition. *Surface and Coatings Technology*, 2018, vol. 337, p. 290–295.
4. **Ismail R. A. et al.** Synthesis of diamond-like carbon films by electro-deposition technique for solar cell applications. *Optical and Quantum Electronics*, 2016, vol. 48, no. 1, p. 16.
5. **Grill A.** Electrical and optical properties of diamond-like carbon. *Thin Solid Films*, 1999, vol. 355, p. 189.
6. **Xu J. et al.** Influence of electric field on laser damage properties of DLC films by unbalanced magnetron sputtering. *Applied Surface Science*, 2013, vol. 265, p. 234–238.
7. **Hakovirta M. et al.** Correlation of carbon ion energy with sp^2sp^3 ratio in amorphous diamond films produced with a mass-separated ion beam. *Physics Letters A*, 1995, vol. 205, no. 4, p. 287–289.
8. **Kim W. R. et al.** Effect of voltage on diamond-like carbon thin film using linear ion source. *Surface and Coatings Technology*, 2014, vol. 243, p. 15–19.
9. **Shevchenko E. F. et al.** Diamond-like carbon film deposition using DC ion source with cold hollow cathode. *Advances in Materials Science and Engineering*, 2014, vol. 2014, p. 1–5.
10. **Suschke K. et al.** High energy radial deposition of diamond-like carbon coatings. *Coatings*, 2015, vol. 5, no. 3, p. 326–337.
11. **Murmu P. P. et al.** A novel radial anode layer ion source for inner wall pipe coating and materials modification – hydrogenated diamond-like carbon coatings from butane gas. *Review of Scientific Instruments*, 2014, vol. 85, no. 8, p. 085118.
12. **Tompkins H. G., Irene E. A.** (eds.). Handbook of Ellipsometry. New York, William Andrew Publ., 2005, 892 p.
13. **Tolmachev V. A.** Adsorption-ellipsometry method of studying the optical profile, thickness, and porosity of thin films. *Journal of Optical Technology*, 1999, vol. 66, no. 7, p. 596.

14. **Korsunsky A. M. et al.** On the hardness of coated systems. *Surface and Coatings Technology*, 1998, vol. 99, no. 1–2, p. 171–183.
15. **Gibbons J. F., Johnson W. S., Hylroic S. W.** Projected Range Statistics: Semiconductors and Related Materials. 2nd ed. Stroudsbury, PA, Halsted Press, 1975, 93 p.
16. **Nusupov K. K. et al.** Structural studies of thin silicon layers repeatedly implanted by carbon ions. *Physics of the Solid State*, 2006, vol. 48, no. 7, p. 1255–1267.
17. **Ferrari A. C., Robertson J.** Interpretation of Raman spectra of disordered and amorphous carbon. *Physical Review B*, 2000, vol. 61, no. 20, p. 14095.
18. **Casiraghi C., Ferrari A. C., Robertson J.** Raman spectroscopy of hydrogenated amorphous carbons. *Physical Review B*, 2005, vol. 72, no. 8, p. 085401.
19. **Robertson J.** Diamond-like amorphous carbon. *Materials Science and Engineering: Reports*, 2002, vol. 37, no. 4–6, p. 129–281.

Материал поступил в редколлегию
Received
02.07.2018

Сведения об авторах / Information about the Authors

Золкин Александр Степанович, кандидат физико-математических наук, доцент, заведующий лабораторией, Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Aleksandr S. Zolkin, Candidate of Science (Physics and Mathematics), Associate Professor, Head of the Laboratory, Novosibirsk State University (2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

zolkinas@gmail.com

Семерикова Анна Ивановна, инженер, Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Anna I. Semerikova, engineer, Novosibirsk State University (2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

Чепкасов Сергей Юрьевич, ведущий инженер, Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

S. Yu. Chepkasov, Principal Engineer, Novosibirsk State University (2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

Хомяков Максим Николаевич, младший научный сотрудник, Институт лазерной физики СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 15Б, Новосибирск, 630090, Россия)

Maksim N. Khomyakov, Research Assistant, Institute of Laser Physics SB RAS (15B Academician Lavrentiev Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

Прохождение электрона через туннельный плавный барьер в высокочастотном поле

О. А. Ткаченко¹, В. А. Ткаченко^{1,2}, Д. Г. Бакшеев²

¹ Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН

² Новосибирский государственный университет
Новосибирск, Россия

Аннотация

Численно изучено фотонно-ассистированное прохождение электрона через одномерный плавный барьер, моделирующий потенциал в нижней энергетической подзоне квантового точечного контакта. Показано, что на зависимостях коэффициента прохождения от энергии присутствуют плечеобразные особенности, которые на частотных зависимостях трансформируются в максимумы. Особенности вызваны переходами в канал с энергией, близкой к вершине барьера, при поглощении одного, двух или трех фотонов, и их положение не зависит от амплитуды высокочастотного поля. С понижением частоты фотон-индуцированные ступени исчезают, но в производной коэффициента прохождения от энергии остаются два пика, равноотстоящие по энергии от средней высоты барьера на амплитуду колебаний высоты барьера. Найденные особенности предлагается наблюдать экспериментально при облучении полупроводниковой структуры с квантовым точечным контактом на частотах 0,01–1,7 ТГц.

Ключевые слова

туннелирование, надбарьерное прохождение, квантовый точечный контакт, ступень контактанса, микроволны, терагерцы, низкочастотные особенности, фотонно-ассистированное прохождение

Благодарности

Работа поддержана проектом РНФ № 14-22-00143.

Мы признательны З. Д. Квону и С. Д. Ганичеву за стимулирующие обсуждения

Для цитирования

Ткаченко О. А., Ткаченко В. А., Бакшеев Д. Г. Прохождение электрона через туннельный плавный барьер в высокочастотном поле // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 4. С. 74–90. DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-74-90

Electron Transmission through a Smooth Tunnel Barrier in High-Frequency Field

O. A. Tkachenko¹, V. A. Tkachenko^{1,2}, D. G. Baksheyev²

¹ A. V. Rzhanyov Institute of Semiconductor Physics SB RAS

² Novosibirsk State University
Novosibirsk, Russian Federation

Abstract

The photon-assisted transmission of an electron through a smooth one-dimensional barrier that simulates the potential in the lower energy subband of the quantum point contact is numerically studied. The dependence of the transmission coefficient on energy shows shoulder-like features, that frequency dependence transforms into maxima. The features are caused by transitions into a channel with the energy close to the top of the barrier when one, two or three photons are absorbed, and their position does not depend of the amplitude of the high-frequency field. With decreasing fre-

quency, the photon-induced steps disappear, but the derivative of the transmission coefficient on energy shows two peaks placed at points lower and higher average height of the barrier on the value equal the amplitude of oscillations. The discovered features can be observed experimentally upon irradiation of a semiconductor structure with a quantum point contact at frequencies 0.01–1.7 THz.

Keywords

tunneling, over-barrier transmission, quantum point contact, conductance step, microwaves, terahertz, low-frequency features, photon-assisted transmission

Acknowledgements

The work is supported by Russian Scientific Fund, grant no. 14-22-00143.

We are grateful to Z. D. Kvon and S. D. Ganichev for stimulating discussions

For citation

Tkachenko O. A., Tkachenko V. A., Baksheyev D. G. Electron Transmission through a Smooth Tunnel Barrier in High-Frequency Field. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 74–90. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-74-90

Введение

Влияние высокочастотных (ВЧ) полей на квантовый транспорт в наноструктурах уже полвека исследуется теоретически и экспериментально. В первых работах изучалось влияние микроволн с частотой ω на туннелирование электрона через слой изолятора между сверхпроводниками [1; 2]. На нелинейных зависимостях тока I от тянущего напряжения V были обнаружены ступеньки одинаковой ширины $e\Delta V = \hbar\omega$ [1]. Аналогичные ступеньки, т. е. эквидистантные пики дифференциального кондактанса dI/dV , наблюдались в последовательном туннелировании через гетероструктурные сверхрешетки под действием терагерцового излучения [3]. Появление таких особенностей на вольтамперных характеристиках объяснялось фотон-ассистированным туннелированием через высокий барьер [2], при этом предполагалось, что ВЧ потенциал не зависит от координаты x и отличен от нуля лишь с одной стороны от барьера. В более общей теории рассматривалось когерентное фотон-ассистированное прохождение электронов с начальной энергией E_0 через конечную по x область одномерного комбинированного потенциала $U(x) + V(x)\cos(\omega t)$ [4; 5]. Зависимости $U(x)$, $V(x)$ могли быть произвольными кусочно-постоянными функциями внутри области неоднородности потенциала и константами за ее пределами [5]. Решение нестационарного уравнения Шредингера в этом случае является суперпозицией прошедших и отраженных волн в каналах с энергиями $E_n = E_0 \pm n\hbar\omega$, где n – номер канала, и канал с $n = 0$ отвечает упругому прохождению. Полный коэффициент прохождения $D(E_0)$, который вычисляется как сумма вкладов частичных коэффициентов прохождения D_n , определяет кондактанс структуры $G \equiv I/V$ в пределе малого напряжения $V \rightarrow 0$. Это означает, что эффекты фотонно-ассистированного прохождения (ФАП) могут проявляться в линейном режиме транспорта.

Для проверки предсказаний теории ФАП важно, чтобы электронный транспорт оставался когерентным, а положение общего уровня Ферми плавно менялось относительно эффективного потенциала, в котором движутся электроны. Эти условия легко выполняются в наноструктурах с затворно-управляемым баллистическим коротким сужением в двумерном электронном газе (ДЭГ), т. е. в случае квантового точечного контакта (КТК) [6–8]. В отсутствие облучения кондактанс чистых от примесей КТК квантуется, т. е. с изменением ширины канала G меняется ступеньками высотой $G_0 = 2e^2/h$. Этот эффект обусловлен тем, что движение поперек канала квантуется. Уровни энергии E_k в поперечном сечении потенциала $U(x_i, y)$ плавно меняются с координатой x_i , и эффективный потенциал $U(x, y=0) + E_k(x)$ одномерных подзон с $k = 0, 1..N$ является гладким барьером с вершиной в самом узком месте $x = 0$. Если энергия падающих электронов меньше высоты барьера в нижней подзоне $k = 0$, то можно пренебречь туннелированием через более высокие подзоны, и задача рассеяния на КТК

сводится к одномерной. Когда же структура с квантовым точечным контактом облучается электромагнитным полем с длиной волны много больше размеров самой наноструктуры, без расчетов говорить о распределении электромагнитного поля и его ориентации трудно. Надо решать трехмерную задачу электродинамики о ближнем поле, в которой учитываются все металлические затворы, а также проводящие и изолирующие области в плоскости ДЭГ. Насколько нам известно, таких расчетов для КТК еще не проводилось. Однако, поскольку в структуре есть выделенные направления, теоретически рассматривались случаи ориентации ВЧ поля вдоль [9] или поперек тока в сужении [10]. В первом случае динамический потенциал имеет вид $V(x)\cos(\omega t)$, и задача о фотонно-ассистированном прохождении остается одномерной, если энергия кванта ВЧ поля не слишком велика для прохождения по более высоким подзонам в результате оптических переходов с поглощением фотонов. Во втором случае задача о ФАП становится принципиально двумерной из-за межподзонных оптических переходов.

Ранее для продольной ориентации ВЧ поля при имитации КТК в глубоком туннельном режиме одномерным ступенчатым барьером расчетом получен гигантский рост коэффициента прохождения, обусловленный фотонно-индуцированным переходом электрона в надбарьерное состояние [9]. Такой рост подтверждался разными способами численного моделирования ФАП в одномерном туннельном барьере с плавной вершиной [11–14].

Для поперечной ориентации действующего ВЧ электрического поля на качественном уровне были рассмотрены оптические переходы между одномерными подзонами КТК и предсказаны отвечающие им ступеньки на затворной зависимости кондактанса в [10]. Это предсказание в дальнейшем пересматривалось [11; 13] и уточнялось численными расчетами [15; 16] с учетом негативных результатов измерений. Заметим, что до сих пор нет надежных расчетов особенностей ФАП в случае смешанных межподзонных и оптических переходов в КТК с двумерным потенциалом вида $U(x, y) + V(x, y)\cos(\omega t)$.

Отклик структур с КТК на облучение с частотой $0,1 \leq f \leq 2,5$ ТГц ранее экспериментально исследовался во многих работах [17–21], но измерения ограничивались главным образом открытым режимом прохождения $G \geq e^2/h$ и ориентацией терагерцового поля поперек тока. О наблюдении фотонных ступенек при этом не сообщалось. Обнаруженное небольшое влияние терагерцовых полей на квантование кондактанса КТК объяснялось радиочастотным выпрямлением либо нагревом ДЭГ при поглощении излучения. Лишь недавно при монохроматическом облучении структур на частотах $f = 0,15, 0,69$ и $1,63$ ТГц был измерен кондактанс короткого туннельного точечного контакта (ТТК), который создан в ДЭГ тонким навесным металлическим затвором [22; 23]. На наибольшей частоте $1,63$ ТГц заметного отклика ДЭГ и ТТК на облучение не было обнаружено. Но для двух меньших f отклик ТТК оказался гигантским: кондактанс увеличивался почти на два порядка от $10^{-3} \cdot 2e^2/h$ при облучении, которое практически не влияло на температуру ДЭГ. Поляризационными измерениями на частоте $0,69$ ТГц выяснено, что данный эффект вызван ВЧ электрическим полем, которое направленно вдоль тока [23]. Результаты для трех частот были количественно объяснены когерентным фотонно-ассистированным туннелированием через плавный одномерный барьер [23–25]. Однако измеренные и вычисленные зависимости кондактанса от затворного напряжения V_g не имели особенностей, отличающих ФАП от более простых механизмов, которые также могут дать сильный рост кондактанса при облучении структуры [24; 25]. Такие особенности в туннельном режиме предсказаны лишь совсем недавно [26]. Кроме того, насколько нам известно, не были проанализированы особенности коэффициента прохождения в низкочастотном пределе.

В настоящей работе, продолжающей и расширяющей [26], мы приводим результаты расчетов, согласно которым ожидается появление особенностей в двух диапазонах частот при влиянии ВЧ поля на прохождение электронов через плавный барьер в нижней одномерной подзоне квантового точечного контакта. Особенности в низкочастотном пределе представ-

ляют собой два пика производной коэффициента прохождения dD/dE_0 , которые отстоят по E_0 от положения основного максимума производной коэффициента прохождения через статический барьер D_{st} на амплитуду колебаний V_0 исходной высоты барьера U_0 . Положение этих пиков $U_0 \pm V_0$ не зависит от конкретного значения частоты в диапазоне $f < 25$ ГГц. Напротив, особенности в диапазоне частот $f = 0,5 \div 1,7$ ТГц представляют собой ступени, которые возникают при совмещении энергии канала $E_0 \pm n\hbar\omega$ для $n = 1, 2, 3$ с вершиной исходного туннельного барьера U_0 в ТТК. С ростом $n\hbar\omega$ растет интервал по $U_0 - E_0$, и, соответственно, уменьшается D_{st} на нижней границе этого интервала, однако сила эффекта, т. е. отношение D/D_{st} увеличивается и может достигать нескольких порядков. В контрасте с низкочастотным пределом положение ступеней не зависит от амплитуды ВЧ поля. Ступени трансформируются в максимумы на частотных зависимостях $D(\hbar\omega)$ в предположении, что амплитуда динамического потенциала $V(x)$ не меняется с изменением частоты.

Метод

Потенциал в ТТК удобно описывать плавным одномерным барьером $U(x) = U_0/\text{ch}^2(x/W)$, где W – характерная полуширина барьера [8; 27]. Высокочастотное поле учитывается в виде периодической по времени добавки к статическому потенциалу:

$$U(x, t) = U_0/\text{ch}^2(x/W) + V(x)\cos(\omega t). \quad (1)$$

Рассмотрены два случая динамического потенциала $V(x)\cos(\omega t)$. Эксперименты показывают, что ВЧ поле может возникать как между ДЭГ и затвором, создающим сужение [21] (симметричная функция $V(x)$), так и между морями ДЭГ [18] (антисимметричное ВЧ поле $dV(x)/dx$). Расчетами в рамках теории фотонно-ассистированного прохождения было проверено, что оба варианта одинаково хорошо моделируют обнаруженный сильный (на порядки) рост коэффициента прохождения электронов [23–25]. Поэтому основное внимание мы уделяем симметричному случаю, в котором $V(x)$ пропорционален статическому потенциалу (рис. 1, а, в). В антисимметричном случае $V(x)$ считается линейной функцией на интервале $|x| \leq 3W$, а вне этого интервала константами (рис. 1, б, г). Параметры модели выбираются в согласии с основными экспериментальными данными о структуре и ее облучении из работ [22; 23]. Полуширина барьера $W \approx 100$ нм соответствует фактической геометрии металлического затвора в узком месте и глубине залегания ДЭГ. Высота статического барьера U_0 в модели фиксирована на уровне 30 мэВ, отвечающем туннельному режиму $G_{\text{dark}} \approx 10^{-3} G_0$ при высокой плотности ДЭГ $7,5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ в изучаемой структуре GaAs / AlGaAs. Чтобы влияние ВЧ поля на кондактанс ТТК при низкой температуре могло быть столь же сильным, как при значительном нагреве ДЭГ, максимальная амплитуда колебаний высоты барьера $V_0 = 6$ мэВ берется близкой к характерной активационной энергии, которая была измерена в туннельном режиме по температурной зависимости темнового кондактанса при $T = 10 \div 60$ К [23]. В расчетах начальная энергия электрона E_0 меняется в интервале $[U_0 - \Delta, U_0 + \Delta]$, в котором Δ слегка превосходит максимальное значение V_0 и максимальную энергию фотона в эксперименте $\sim 6,75$ мэВ.

Заметим, что эффекты ФАП численно моделировались раньше для потенциалов вида $(U_0 + V_0 \cos(\omega t))/\text{ch}^2(x/W)$, но в других физических постановках задачи, без связи с ТТК в ДЭГ и в другом диапазоне частот [12; 14]. Методы численного моделирования тоже отличались от метода, предложенного в работе [5] и использованного нами.

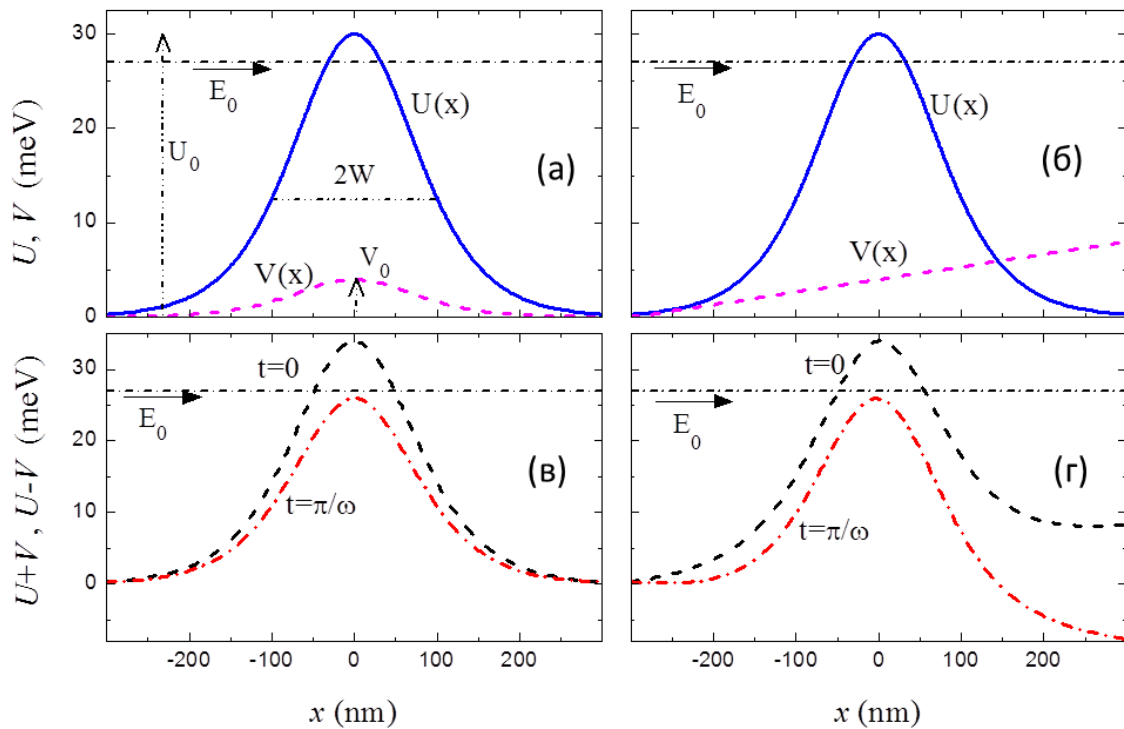


Рис. 1. Статический потенциал $U(x)$, амплитуды $V(x)$ для симметричного (а) и антисимметричного (б) вариантов динамического потенциала $V(x)\cos(\omega t)$. Мгновенные потенциалы $U(x, t)$ в моменты времени $t = 0$ и $t = \pi/\omega$ для симметричного (в) и антисимметричного (г) динамических потенциалов. В показанных случаях амплитуды колебаний высоты барьера одинаковы (4 мэВ). Горизонтальная штрихпунктирная линия отвечает характерной энергии падающих на барьер частиц $E_0 = 27$ мэВ

Fig. 1. Static potential $U(x)$, amplitudes $V(x)$ for symmetric (a) and antisymmetric (б) variants of the dynamic potential $V(x)\cos(\omega t)$. Instantaneous potentials $U(x, t)$ at the instants of time $t = 0$ and $t = \pi/\omega$ for symmetric (в) and antisymmetric (г) dynamic potentials. In the cases shown, the amplitudes of oscillations of the barrier height are the same (4 meV). The horizontal dash-dotted line corresponds to the characteristic energy of particles incident on the barrier $E_0 = 27$ meV

Анализ туннелирования частицы через прямоугольный барьер колеблющейся высоты с частотой ω и амплитудой колебаний V_0 был впервые сделан Бюттикером и Ландауэром [4]. Там же обсуждалось понятие времени взаимодействия частицы с барьером, называемого также временем туннелирования τ . Предполагалось, что частица с массой m и энергией E_0 падает на прямоугольный барьер шириной d и высотой U_0 . Квазиклассическая оценка времени туннелирования в приближении Вентцеля – Крамерса – Бриллюэна (ВКБ) $\tau = \int dx \left[m/2(U(x) - E_0) \right]^{1/2}$ дает $\tau = md/\hbar k$, где $k = [2m(U_0 - E_0)]/\hbar$. Авторы работы [4] обосновывают справедливость этой оценки, решая аналитически нестационарное одномерное уравнение Шредингера с потенциалом $U_0 + V_0 \cos(\omega t)$, который отличен от нуля в области барьера $|x| < d/2$. При слабых колебаниях $V_0 \ll \hbar\omega$ и в глубоком туннельном режиме $\hbar\omega \ll E_0 \ll U_0$ учитывались только три канала прохождения: упругий канал с коэффициентом прохождения D и энергией E_0 и два неупругих $D_{\pm}$ с энергиями $E_0 \pm \hbar\omega$. При этом в выражение для $D_{\pm}$ (формула 7 из [4]) входит квазиклассическое время τ . Эту формулу можно переписать как $\tanh(\omega\tau) = (D_+ - D_-)/(D_+ + D_-)$ или $\omega\tau = 0,5 \ln(D_+/D_-)$. Легко видеть, что $D_+ \approx D_-$, если $\omega\tau \ll 1$. В пределе высоких частот $\omega\tau \gg 1$ коэффициенты прохождения по ± 1

сильно различаются $D_+ \gg D_-$ вследствие того, что прохождение по каналу с большей энергией экспоненциально растет. Как обсуждалось в работе [4], значение $\tau \approx 1/\omega$ характеризует переход между низкочастотным и высокочастотным пределами прохождения. В низкочастотном пределе $\omega\tau \ll 1$, когда время прохождения через барьер мало по сравнению с обратной частотой, туннелирование определяется мгновенной высотой барьера. Когда $\omega\tau \sim 1$, барьер уже нельзя считать статическим, вероятность вынужденных переходов в каналы $E_0 \pm \hbar\omega$ определяется из решения время-зависящего уравнения Шредингера. Отметим, что время туннелирования, а следовательно, диапазон низких и высоких частот зависят от параметров статического барьера и энергии падающих частиц. В нашей задаче барьер вида $U_0/\text{ch}^2(x/W)$ имеет параболическую макушку, поэтому для энергий E_0 , близких к вершине, оценка по ВКБ приближению дает $\tau = \pi W (m^*/2U_0)^{1/2} = 0,8 \cdot 10^{-12}$ с, где $m^* = 0,07m_e$ – эффективная масса электрона в GaAs, $U_0 = 30$ мэВ, $W = 100$ нм. Таким образом, условию $\omega\tau = 1$ отвечает $\hbar\omega = \hbar f = 0,82$ мэВ, и диапазон $\hbar\omega$ от 0,1 до 8 мэВ охватывает как низкие, так и высокие частоты.

В отличие от работы [4], мы рассматриваем многоканальное прохождение через плавный барьер конечной высоты, когда важны переходы в каналы надбарьерного прохождения $E_0 + n\hbar\omega > U_0$. Амплитуда ВЧ поля V_0 в рассматриваемой задаче также не мала $V_0 \sim \hbar\omega$, при этом число каналов с энергиями $E_0 \pm n\hbar\omega$, которые вносят существенный вклад в прохождение / отражение, становится гораздо больше трех. В этом случае получить и проанализировать решение нестационарного уравнения Шредингера при разных частотах и интенсивностях облучения можно только численно. Алгоритм решения нестационарного уравнения Шредингера

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{\partial^2 \Psi}{\partial x^2} + [U(x) + V(x)\cos(\omega t)]\Psi,$$

который был использован в расчетах, основан на аппроксимации потенциалов $U(x)$, $V(x)$ кусочно-постоянными функциями [5]. Предполагается, что поток электронов с начальной энергией E_0 рассеивается на области неоднородности потенциала с поглощением и испусканием n фотонов. Вне этой области статический и динамический потенциалы не зависят от x . Мультиканальная волновая функция $\Psi(x, t)$ является суперпозицией плоских волн на интервалах постоянства потенциала, и амплитуды этих волн определяются из условий сшивки волновой функции Ψ и ее производной по x на границах соседних интервалов. Алгоритм позволяет выполнять расчеты для потенциалов разных профилей $U(x)$, $V(x)$ [9; 28–34]. По точности и универсальности алгоритм аналогичен простому методу решения стационарного уравнения Шредингера с кусочно-постоянным $U(x)$ [35]. В представленных здесь расчетах $U(x)$, $V(x)$ задавались по формуле (1) на отрезке $|x| \leq 3W$ с шагом 1 нм, а вне интервала заменялись нулем (или константой в случае антисимметричной функции $V(x)$). Наши расчеты относятся к эксперименту, в котором измеренный кондактанс КТК был меньше $G_0 = 2e^2/h$ независимо от наличия или отсутствия облучения, и, кроме того, не было обнаружено температурной зависимости темнового кондактанса при $T < 10$ К [24]. Квант поперечного финитного движения, определяющий расстояние между одномерными подзонами, в туннельном режиме узкого квантового точечного контакта обычно больше нескольких миллиэлектронвольт, так что прохождением по более высоким одномерным подзонам можно пренебречь. В таком случае в пределе нулевой температуры справедлива простая формула Ландауэра: $G = D(E_0)G_0$, где E_0 имеет смысл уровня Ферми E_F . Применение более общей формулы обосновывалось раньше в случае двумерного транспорта через сужение [16].

Результаты

В силу простой связи $G(E_F) = D(E_0)G_0$ ниже мы говорим о расчете $D(E_0)$. В пределе $\omega t \ll 1$ легко вычислить средний по времени коэффициент прохождения через симметричный барьер вида $(U_0 + V_0 \cos(\omega t))/\text{ch}^2(x/W)$. Для этого нужно усреднить по фазе $\varphi = \omega t$ коэффициенты прохождения $D(E_0)$, полученные из решения стационарного уравнения Шредингера для барьеров $(U_0 + V_0 \cos(\varphi))/\text{ch}^2(x/W)$, где φ меняется от 0 до 2π . Аналитическое решение для коэффициента прохождения через барьер такой формы приведено в [36]. Результат усреднения показан на рис. 2 для трех разных амплитуд V_0 ВЧ поля и в отсутствие его $V_0 = 0$. Без ВЧ поля коэффициент прохождения представляет собой плавную ступень с точкой перегиба при $E = U_0$, когда $D = 0,5$. В ненулевом ВЧ поле в туннельной области $D < 0,5$ происходит гигантское усиление прохождения, а в открытом режиме прохождение подавляется (рис. 2, а, в). Сила эффекта, т. е. отношение D к коэффициенту прохождения через статический барьер D_{st} , определяется амплитудой ВЧ поля V_0 . В производной коэффициента прохождения по энергии (рис. 2, б, г) возникают два максимума, которые отстоят от высоты статического барьера U_0 примерно на V_0 , что показано сеткой вертикальных штрихпунктирных линий на энергиях $E = U_0 \pm V_0$. Зависимости $D(E)$ и dD/dE мы здесь и далее приводим в линейном и логарифмическом масштабах для лучшего представления найденных особенностей.

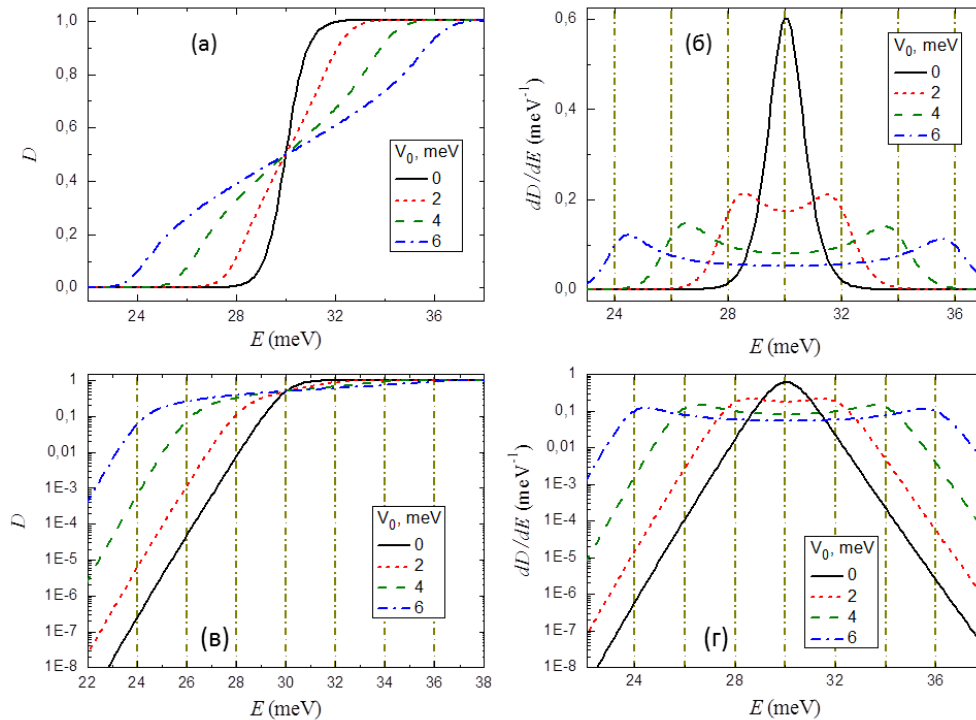


Рис. 2. Результат расчетов в низкочастотном пределе:

а, в – зависимости от энергии $E \equiv E_0$ среднего по времени коэффициента прохождения D через барьер $(U_0 + V_0 \cos(\omega t))/\text{ch}^2(x/W)$ для $U_0 = 30$ мэВ, $W = 100$ нм и указанных значений V_0 ;

б, г – производная dD/dE для кривых, приведенных в (а, в)

Fig. 2. Calculations in the low-frequency limit:

а, в – dependences on the energy $E \equiv E_0$ of the time-averaged transmission coefficient D through the barrier $(U_0 + V_0 \cos(\omega t))/\text{cosh}^2(x/W)$ for $U_0 = 30$ meV, $W = 100$ nm and the values of V_0 shown in the plot;

б, г – derivatives dD/dE for curves given in (а, в)

Отметим, что характерная ширина пиков с $V_0 \neq 0$ практически совпадает с шириной основного пика в $D_{st}(E_0)$ (см. рис. 2, б). Из рис. 2, в ясно, что форма кривых $\ln D(E)$ при $V_0 \neq 0$ в общих чертах одинакова и сходна с формой основной ступени с $V_0 = 0$. Разумеется, логарифмический масштаб скрывает различия формы $D(E)$ при $D \sim 0,5$, которые видны в линейном масштабе (см. рис. 2, а). Тем не менее мы считаем, что в данном случае наблюдаются реплики основной ступени коэффициента прохождения через статический плавный барьер. Появление этих реплик является следствием того, что при равномерном изменении фазы φ колебаний высоты барьера гармоническая добавка к этой высоте $V_0 \cos(\varphi)$ медленно меняется возле значений $\pm V_0$ и быстро при $\varphi \neq \pi n$. На усредненном по φ коэффициенте прохождения D эти замедления и ускорения отражаются парой реплик основной ступени, отстоящих от нее по E чуть меньше чем на $|V_0|$. Найденные простым расчетом зависимости $D(E)$ должны получиться такими же и в теории фотонно-ассистированного прохождения в пределе низких частот, что будет проверено далее.

Рисунок 3 демонстрирует основной результат расчетов по теории ФАП при $\omega t > 1$ на большом интервале по энергии – плечеподобные особенности на зависимостях $D(E_0)$, которые появляются при действии ВЧ поля. В отличие от случая $\omega t \ll 1$ (см. рис. 2), положение этих особенностей зависит уже не от V_0 , а от энергии фотона hf (частоты облучения f). Рисунок 3, а показывает, что все кривые пересекаются примерно в одной точке $D = 0,5$, и основная ступень, имеющая ширину около 2 мэВ, под действием облучения существенно деформируется. Заметно, что при $hf = 2\div 4$ мэВ на зависимостях $D(E_0)$ появляются квазиplateau. Они лучше всего видны в туннельном режиме на рис. 3, в. График производной dD/dE_0 (рис. 3, б, г) показывает, что в точках перегиба между квазиplateau выполняется $U_0 - E_0 = \pm n\hbar\omega$ с $n = 1, 2$. Значения энергии $E_0 = U_0 - n\hbar\omega$ в туннельном режиме можно считать нижними краями ступеней. Из рис. 3, в видно, как эти края ступенек дискретно сдвигаются с изменением hf . При повышенных f видна только ступень, отвечающая $n = 1$. На этой ступени отношение вычисленного по теории ФАП коэффициента прохождения к D_{st} составляет 3–4 порядка. При $hf = 2$ и 3 мэВ заметны дополнительные ступени, которые размываются с дальнейшим понижением f . На этих частотах в области ступени с $n = 1$ отношение D/D_{st} становится меньше, но все равно остается значительным $D/D_{st} \approx 50\div 100$.

Рисунок 3, д отвечает моделированию случая из работы [23], в котором структура с ТТК облучалась на частоте $f = 1,63$ ТГц. На всем интервале измерения D от $2 \cdot 10^{-3}$ до 0,5 отклик на облучение отсутствовал. В согласии с экспериментом рис. 3, д показывает, что коэффициенты прохождения в теории ФАП и для статического барьера почти совпадают на большом интервале по E_0 , который расширяется с понижением амплитуды ВЧ поля V_0 . Однако в расчетах при $V_0 \neq 0$ ниже этого интервала в $D(E)$ появляется выраженное плато с неподвижным нижним краем, отвечающим равенству $U_0 - E_0 = \hbar\omega$. Под действием ВЧ поля D при $E_0 = U_0 - \hbar\omega$ может возрасти на три или четыре порядка по сравнению со случаем статического барьера. Таким образом, положение нижних краев ступеней нечувствительно к изменению V_0 в контрасте с тем, что было в случае $\omega t \ll 1$ (см. рис. 2).

Мы выяснили, что коэффициент прохождения $D(E)$ демонстрирует аналогичные ступени в случае антисимметричного динамического потенциала $V(x)\cos(\omega t)$ (см. рис. 1, б, г). Это хорошо видно из сравнения рис. 3, в, г с рис. 4, а, б, на которых в логарифмическом масштабе представлены вычисленные зависимости $D(E)$ и $dD(E)/dE$. В антисимметричном случае задан такой наклон dV/dx на участке $|x| < 3W$, при котором $V(x=0) = 4$ мэВ, т. е. вершина барьера колеблется с той же амплитудой, что и в случае симметричного $V(x)$. Неодинаковость потенциалов $U(x, t)$ проявляется лишь в том, что темп снижения характерных значений квазиplateau с ростом hf постоянен на рис. 3, в, но заметно падает при $hf = 7$ мэВ на рис. 4, а. Однако положение по E_0 особенностей на соответствующих кривых на рис. 3, в, г и 4, а, б

совпадает, и форма этих особенностей практически одинакова в случае симметричного и антисимметричного $V(x)$.

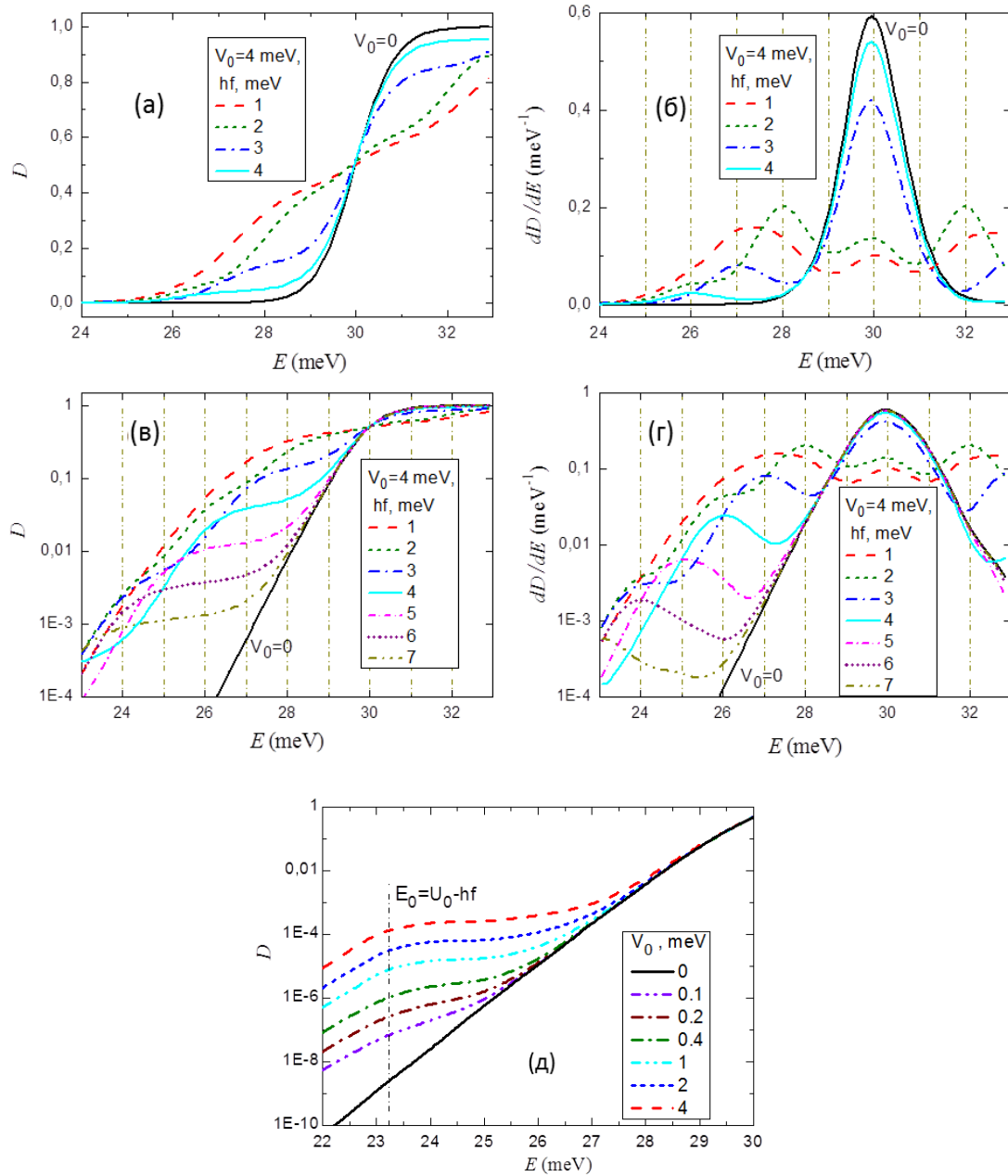


Рис. 3. Результаты вычислений по теории ФАП для терагерцовых частот:

a, b – зависимости от $E \equiv E_0$ коэффициента прохождения D через барьер $(U_0 + V_0 \cos(\omega t)) / \cosh^2(x/W)$ в теории ФАП; $U_0 = 30$ мэВ, $W = 100$ нм, $V_0 = 4$ мэВ для указанных энергий фотона hf ; c, d – производная dD/dE для кривых, приведенных в (a, b) ; e – $D(E)$ в случае параметров из работы [23]; $W = 115$ нм, $f = 1,63$ ТГц ($hf = 6,74$ мэВ) для указанных V_0

Fig. 3. The results of calculations by the theory of photon-assisted transmission (PAT) for terahertz frequencies: a, b – dependences on $E \equiv E_0$ of the transmission coefficient D through the barrier $(U_0 + V_0 \cos(\omega t)) / \cosh^2(x/W)$; $U_0 = 30$ meV, $W = 100$ nm, $V_0 = 4$ meV for the indicated photon energies hf ; c, d – derivative dD/dE for the curves given in (a, b) ; e – $D(E)$ for parameters from [23], with $W = 115$ nm, $f = 1.63$ THz ($hf = 6.74$ meV) for the indicated V_0

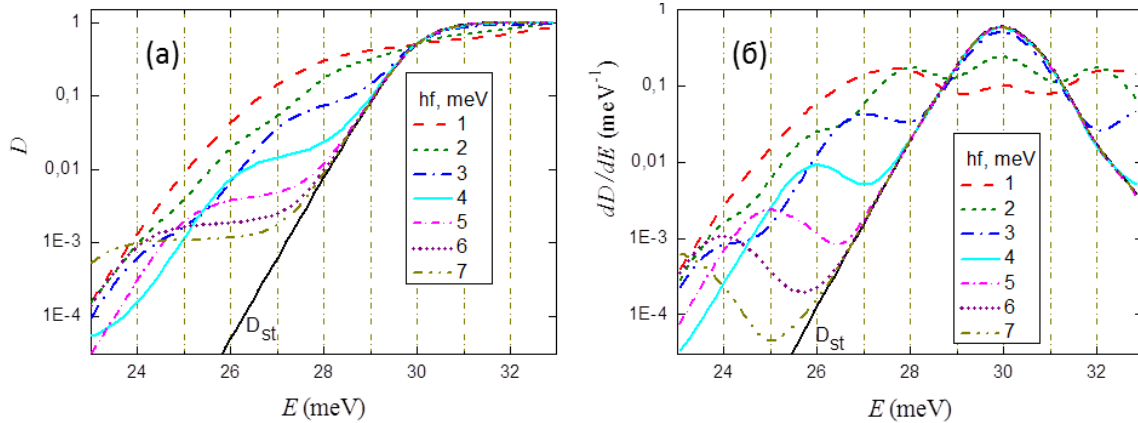


Рис. 4. Зависимости $D(E)$ (а) и $dD(E)/dE$ (б) в теории ФАП для указанных hf в случае потенциала из рис. 1, б, г (антисимметричный $V(x)$); $U_0 = 30$ мэВ, $W = 100$ нм

Fig. 4. Dependencies $D(E)$ (a) and $dD(E)/dE$ (б), calculated in the PAT theory, for the indicated hf in the case of the potential from fig. 1, б, г (antisymmetric $V(x)$); $U_0 = 30$ meV, $W = 100$ nm

Пики dD/dE_0 на всех кривых из рис. 3, б, г и 4, б, кроме $hf = 1$ мэВ, а также переходы между соседними квазиplateau на рис. 3, в и 4, а имеют такую же характерную ширину (2 мэВ), что и ступень при $V_0 = 0$ на рис. 3, а, поэтому особенности с четким положением $E_0 = U_0 - n\hbar\omega$ ($n = 1, 2, 3$) можно считать фотонными репликами основной особенности коэффициента прохождения. Кривые, отвечающие $hf = 1$ мэВ на рис. 3, 4, относятся к промежуточному случаю $\omega\tau \approx 1$. На них не видны ни особенности с $E_0 \approx U_0 \pm V_0$, ни особенности $E_0 \approx U_0 - n\hbar\omega$. Вместо этих особенностей виден более широкий пик с положением при $E_0 \approx 27,5$ мэВ и формой, которые отличаются от того, что было в случае $\omega\tau \ll 1$ при $V_0 = 4$ мэВ (см. рис. 2).

Известно, что в пределе $\omega \rightarrow \infty$ коэффициент прохождения через плавный барьер стремится к D_{st} , поскольку прохождение возникает через усредненный по времени потенциал, который совпадает со статическим [11; 12]. Переход к этому пределу можно видеть на рис. 3, в, д и 4, а по прилипанию кривых $D(E_0)$ к $D_{st}(E_0)$ при повышенных $\hbar\omega$ и достаточно малых $U_0 - E_0$ и V_0 .

На рис. 5 в случае симметричного $V(x)$ показана частотная зависимость коэффициента прохождения через плавный барьер для разных V_0 и E_0 . Видно, что на кривых $D(hf)$ присутствуют осцилляции. Мы приводим зависимости D от величины $(U_0 - E_0)/\hbar\omega$, из которых ясно, что положение локальных максимумов D точно отвечает условию $U_0 - E_0 = n\hbar\omega$ (рис. 5, г–е). Отметим, что в низкочастотном пределе теория ФАП [12] дает тот же самый результат, что и простой расчет при $\omega \rightarrow 0$ [12]. Коэффициент прохождения не зависит от частоты, что объясняет насыщение при $\omega \rightarrow 0$, но зависит от амплитуды V_0 и энергии E_0 (рис. 5, а–в). Мы проверили, что усредненный по ϕ коэффициент прохождения равен полному D , полученному из решения мультифотонной задачи для наименьших в расчетах $\hbar\omega = 0,1$ мэВ ($\tau\omega = 0,12$). При этом для достижения высокой точности требуется учитывать 80 каналов фотон-ассистированного прохождения. В показанных случаях (см. рис. 5, а–в) отличие D от $D(\omega \rightarrow 0)$ становится заметным при $\hbar\omega \approx 1$ мэВ, что отвечает условию $\tau\omega \approx 1$.

Рисунки 5, а, г даны для случая, когда $E_0 = 27,5$ мэВ и $D_{st}(E_0) = 2 \cdot 10^{-3}$, т. е. соответствует минимальному в экспериментах с ТТК [22; 23]. Видна особенность типа плато при повышен-

ных V_0 , которая становится пиком при $V_0 = 1$ мэВ, и его центр соответствует энергии $+1$ канала вблизи макушки барьера. На высоких частотах $\hbar\omega \gg U_0 - E_0$ полное прохождение экспоненциально подавляется и выходит на насыщение, отвечающее $D_{st}(E_0)$. Напротив, с уменьшением частоты становятся эффективными мультифотонные переходы с поглощением и испусканием $\pm n$ фотонов ($n > 10$). Коэффициент прохождения при этом может расти, оставаться на одном уровне либо убывать в зависимости от V_0 . Таким образом, при $D_{st}(E_0) = 2 \cdot 10^{-3}$ эффекты фотонно-ассистированного прохождения в ТТК являются сильными для частот $f = 0,15 \div 0,69$ ТГц, и они подавляются для более высоких частот. Эти результаты соответствуют экспериментальным данным [22; 23].

На рис. 5, б, д показаны частотные зависимости для $E_0 = 26$ мэВ и $E_0 = 25$ мэВ, которые отвечают значениям $D_{st} = 5 \cdot 10^{-5}$ и $D_{st} = 3,5 \cdot 10^{-6}$. Для этих случаев видны уже две особенности коэффициента прохождения, отвечающие $n = 1$ и $n = 2$. При $\hbar\omega \gg U_0 - E_0$ наблюдается экспоненциальный спад $D(hf)$, который прекратится с выходом на D_{st} . В пределе низких частот для $E_0 = 25$ мэВ наблюдается смена поведения $D(hf)$ по сравнению с расчетами для более высоких энергий и той же самой $V_0 = 4$ мэВ. Это объясняется тем, что для этой амплитуды ВЧ поля высоты барьеров меняются от 26 до 34 мэВ. При $E_0 > 26$ мэВ для самых низких высот барьеров ($\cos(\varphi) \approx -1$) прохождение является классически разрешенным и соответствующие коэффициенты прохождения $D(\varphi)$ вносят большой вклад в искомое усредненное значение D . При $E_0 < 26$ мэВ все барьеры с высотами 26–34 мэВ являются туннельными, и с ростом частоты полный коэффициент прохождения растет, а не падает, как для $E_0 > 26$ мэВ. Подобная смена поведения происходит и на рис. 5, а при уменьшении интенсивности до $V_0 = 1$ мэВ.

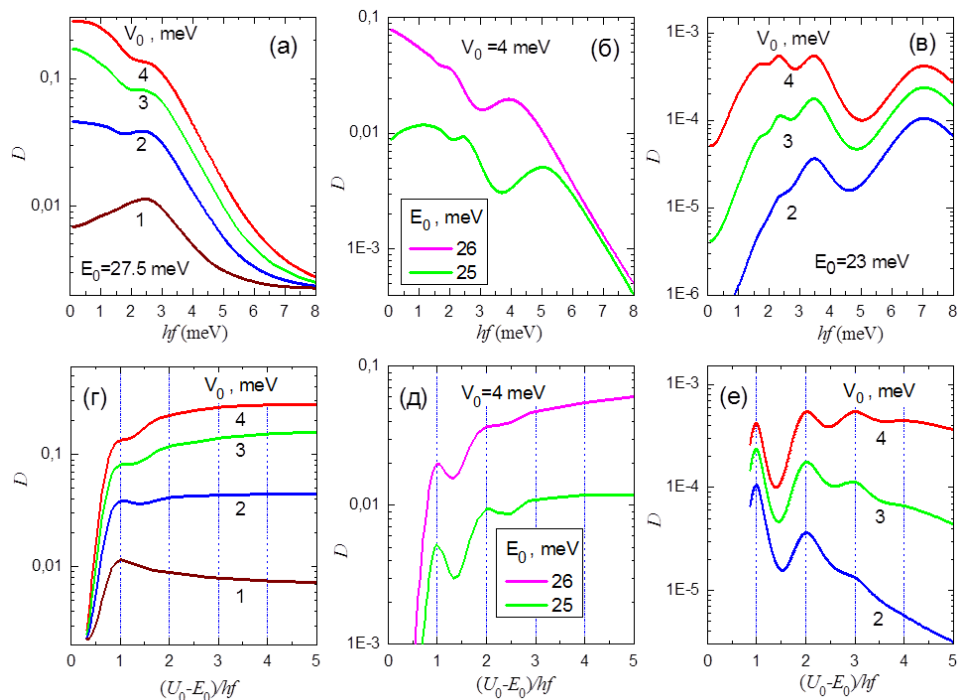


Рис. 5. Зависимости коэффициента прохождения от энергии фотона hf при фиксированных E_0 [26] (а–в). Нижние графики (г–е) представляют верхние кривые в другом масштабе по горизонтали, т. е. $D((U_0 - E_0)/hf)$. Плавный барьер определяется параметрами $U_0 = 30$ мэВ, $W = 100$ нм. ВЧ поле задано симметричной функцией с $V_0 = 1, 2, 3, 4$ мэВ

Fig. 5. Dependences of the transmission coefficient on the photon energy hf with fixed E_0 [26] (a–e). Lower graphics (г–е) show the upper curves at a different horizontal scale, that is, $D((U_0 - E_0)/hf)$. The smooth barrier is determined by parameters $U_0 = 30$ meV, $W = 100$ nm. The high-frequency field is given by a symmetric function with $V_0 = 1, 2, 3, 4$ meV

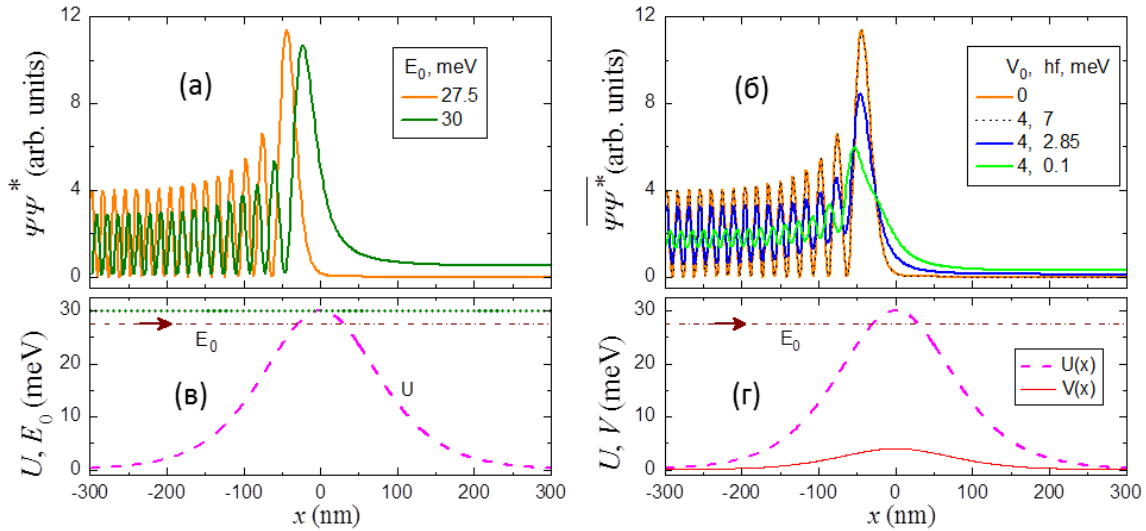


Рис. 6. Плотность вероятности (а) для электронов, падающих с указанной начальной энергией E_0 слева на статический барьер. Усредненная по времени плотность вероятности (б) для электронов с $E_0 = 27,5$ мэВ, в случаях $V_0 = 0, 4$ мэВ и трех частот $\hbar\omega = 7, 2,85$ и $0,1$ мэВ. Статический потенциал $U(x)$ (в) и амплитуда динамического потенциала $V(x)$ (г) ($U_0 = 30$ мэВ, $V_0 = 4$ мэВ). Энергия падающих частиц $E_0 = 27,5$ мэВ отмечена стрелочкой

Fig. 6. (a) – Probability density for electrons incident from the left with initial energy E_0 . (б) – The time-averaged probability density for electrons with $E_0 = 27.5$ meV, in the cases $V_0 = 0, 4$ meV and three frequencies $\hbar\omega = 7, 2.85$, and 0.1 meV. (в, г) – The static potential $U(x)$ and the amplitude of the dynamic potential $V(x)$ ($U_0 = 30$ meV, $V_0 = 4$ meV). The initial energy $E_0 = 27.5$ meV is marked by the arrow

Рисунки 5, в, е отвечают $E_0 = 23$ мэВ, т. е. предельно малому для измерений значению $D_{st} = 1,6 \cdot 10^{-8}$. Однако D на 3–4 порядка выше, чем D_{st} , и на зависимостях D от $(U_0 - E_0)/\hbar f$ видны осцилляции с периодом 1 и локальными максимумами, лежащими точно на целых значениях аргумента от 1 до 4. Отметим, что в эксперименте связь V_0 с контролируемой мощностью источника микроволн неизвестна и может иметь сложную частотную зависимость из-за интерференции электромагнитных волн в макроскопической экспериментальной установке. Гораздо проще будет наблюдать предсказанные особенности кондактанса ТТК при фиксированных частотах (см. рис. 3), например так, как делалось в [22; 23].

Интересно увидеть, как меняются с энергией падающих частиц E_0 координатные зависимости плотности вероятности в случае прохождения через статический барьер (рис. 6, а, в), и как меняются с частотой усредненные по времени координатные зависимости при фиксированной E_0 (рис. 6, б, г). Они вычислялись теми же алгоритмами и программами, которые были описаны в [35] и [28], и использованы здесь при расчете коэффициентов прохождения D . Отметим, что для статического потенциала ($V_0 = 0$, см. рис. 6, в) плотность вероятности имеет максимум вблизи классической точки поворота (см. рис. 6, а), причем в туннельном режиме этот максимум в 3 раза больше, чем в случае высокого прямоугольного туннельного барьера, где $|\Psi|_{\max}^2 = 4$ (при отражении, близком к полному). Этот эффект нарастания плотности вероятности на гладком барьере (эффект «цунами») усиливает вероятность фотон-стимулированных переходов по сравнению с туннелированием через прямоугольный барьер. Расчеты показывают, что для используемых параметров барьера в отсутствие ВЧ поля ($V_0 = 0$) значение максимума $|\Psi|_{\max}^2$ в точке поворота сначала растет с увеличением энергии падающих частиц до $E_0 = 29$ мэВ, а потом падает. При этом плотность состояний, определяемая суммой плотностей вероятности при падении частиц на барьер с двух сторон [27], в центре барьера растет с энергией до значения $E_0 = 30,35$ мэВ, при котором $D(E_0) = 0,7$, а потом падает. На рис. 6, а

показано состояние с $E_0 = U_0 = 30$ мэВ, при котором $D(E_0) = 0,5$. В терагерцовом поле переходы с испусканием и поглощением фотонов могут быть эффективными, если локальная плотность состояний, отвечающая энергиям соответствующих каналов, велика, и волновые функции хорошо перекрываются. Эти условия необходимы, но недостаточны, важно еще, чтобы амплитуда ВЧ колебаний барьера V_0 была соизмеримой с $\hbar\omega$.

На рис. 6, б в случае симметричного $V(x)$ показаны усредненные по времени координатные распределения для трех частот $\hbar f = 0,1, 2,85$ и 7 мэВ. Заметим, что энергия фотона $2,85$ мэВ связывает начальную энергию электрона $E_0 = 27,5$ мэВ с каналом $E_1 = 30,35$ мэВ, в котором достигается максимальная плотность состояний при прохождении через статический барьер. Этот рисунок демонстрирует, что теория ФАП при $V_0 \sim \hbar\omega$ в случае $E_0 = 27,5$ мэВ дает существенное отличие усредненной по времени плотности вероятности от $|\Psi|^2$ при прохождении через статический барьер. Отличие проявляется также в коэффициентах прохождения и отражения. В случае $\hbar\omega = 2,85$ мэВ возникает сильное отражение в боковые каналы $n = \pm 1$ за счет уменьшения отражения по упругому каналу, так $R_{-1} = 0,32$, $R_0 = 0,45$, $R_1 = 0,06$. Прохождение оказывается максимальным по $+1$ каналу $D_1 = 0,07$, в то время как полное прохождение увеличивается почти в 55 раз ($D = 0,12$) по сравнению со случаем без ВЧ поля $D_{st} = 0,0022$. В случае $\hbar\omega = 0,1$ мэВ полный коэффициент прохождения $D = 0,28$ возрастает в 127 раз по сравнению с D_{st} . Напротив, переходы электрона в дополнительные каналы подавлены при $\hbar\omega = 7$ мэВ, и усредненная по времени $\langle |\Psi(x, t)|^2 \rangle$ при $V_0 = 4$ мэВ практически совпадает с $|\Psi(x)|^2$ в отсутствие ВЧ поля. Отметим, что для более широких плавных барьеров эффекты ФАП становятся сильнее из-за роста плотности вероятности вблизи точки поворота, однако диапазон энергий и частот, на которых эти эффекты будут заметны, сужается. Поэтому для наблюдения ступенек кондактанса нужно выбирать короткие КТК.

Обсуждение

Интересно экспериментально проверить простой результат, полученный в низкочастотном пределе (см. рис. 2), поскольку наблюдение низкочастотных реплик основной особенности коэффициента прохождения позволит измерить амплитуду ВЧ колебаний V_0 высоты плавного барьера в ТТК и найти коэффициент пропорциональности A между V_0^2 и мощностью источника монохроматических электромагнитных волн, облучающих образец. Заметим, что коэффициент пропорциональности A неизвестен и сильно зависит от частоты из-за деталей геометрии экспериментальной установки и самого образца, но требуемая для нахождения V_0 связь параметра $U_0 - E_F$ с затворным напряжением V_g может быть измерена безотнositельно действия ВЧ поля.

Сравнивая основной результат работы с тем, что было известно до публикации [26], подчеркнем, что в рамках теории ФАП не предсказывалось ступенек полного коэффициента прохождения через плавный одномерный туннельный барьер, а также соответствующих осцилляций с несколькими пиками на частотной зависимости. Показанные на рис. 3, 4 ступени можно считать фотонными повторениями (репликами) основной особенности коэффициента прохождения через статический барьер. Хотя высота ступеней по абсолютной величине с ростом $|n\hbar\omega|$ резко падает, относительный перепад коэффициента прохождения между соседними квазиplate в туннельном режиме может быть больше одного порядка (см. рис. 3, в, 4, а), и ширина переходов между квазиplate совпадает с шириной основного перехода в коэффициенте прохождения через статический барьер (см. рис. 3, а, б).

По основному механизму найденные нами фотонные ступеньки аналогичны экспериментально обнаруженным ступенькам при фотонно-ассистированном туннелировании между

сверхпроводниками [1; 2] либо между полупроводниковыми квантовыми ямами [3; 37–39]. Речь идет о фотонных повторениях основной особенности, существующей без облучения, но есть существенное отличие в природе этой особенности, свойственной самим наноструктурам. В экспериментальных работах [1–3; 37–39] основная особенность является резонансным пиком дифференциального кондактанса, который возникает при совмещении заполненного и пустого краев сверхпроводящих щелей в туннельно-разделенных различных сверхпроводниках [1; 2] либо при совмещении заполненного и пустого квазидискретных уровней энергии в соседних потенциальных ямах [3; 37–39]. Временная задержка при попадании электрона в эти совмещаемые электрическим напряжением состояния огромна. Соответственно, фотонные реплики базовых резонансов являются выраженными резонансными пиками дифференциального кондактанса. Заметим, что ранее были предсказаны и другие резонансные особенности коэффициента прохождения для наноструктур разных типов в ВЧ полях светового, ИК, терагерцового и микроволнового диапазонов [9; 28–34; 40–43]. Во всех этих случаях существенным было присутствие в наноструктурах особенностей по энергии с бесконечной или очень большой плотностью состояний типа уровней энергии [29; 41], квазиуровней [9; 30; 31; 40; 42], надбарьерных резонансов [9; 43] или дна одномерного континуума [32–34]. Предсказанные резонансные эффекты все еще ожидают экспериментальной проверки. В случае квантового точечного контакта коэффициент прохождения не имеет резонансных особенностей, но плотность состояний при $E_0 = U_0$ достаточно велика. Соответственно фотонные реплики этой особенности проявляются в виде ступенек. Недавние эксперименты по терагерцовому облучению структур с коротким туннельным точечным контактом [23] вплотную подошли к наблюдению обнаруженных расчетом фотонно-индуцированных особенностей прохождения через плавный барьер. Необходимо лишь еще больше углубиться в туннельный режим или немного сдвинуть энергию фотона.

Заключение

Работа дополняет краткое сообщение [26]. Расчетом в случаях симметричного и антисимметричного динамических потенциалов терагерцовой частоты найдены фотонные ступеньки коэффициента прохождения D через плавный барьер, моделирующий статический потенциал в нижней подзоне квантового точечного контакта. Фотонные ступеньки отвечают совмещению вершины статического барьера U_0 с каналом волновой функции, имеющим энергию $E_0 \pm n\hbar\omega$, где E_0 – начальная энергия электрона. Квазиклассическое торможение электрона в канале возле вершины барьера и рядом с точкой поворота в туннельном канале E_0 делает эффективным оптический переход с поглощением 1, 2, 3 терагерцовых фотонов при характерной амплитуде высокочастотных колебаний барьера $V_0 \sim \hbar\omega$. В низкочастотном пределе предсказаны особенности другой природы в виде пиков производной dD/dE_0 при $E_0 \approx U_0 \pm V_0$. Ожидается, что коэффициент прохождения и, следовательно, наблюдаемый кондактанс в туннельном режиме будут увеличиваться на 1–4 порядка при облучении структуры с КТК электромагнитными волнами в диапазоне частот 0,01–1,7 ТГц.

Список литературы / References

1. **Dayem A. H., Martin R. J.** Quantum interaction of microwave radiation with tunneling. *Phys. Rev. Lett.*, 1962, vol. 8, p. 246–248.
2. **Tien P. K., Gordon J. P.** Multiphoton process observed in the interaction of microwave fields with the tunneling between superconductor films. *Phys. Rev.*, 1963, vol. 129, p. 647–651.
3. **Guimarães P. S. S., Keay B. J., Kaminski J. P., Allen S. J. Jr., Hopkins P. F., Gos-sard A. C., Florez L. T., Harbison J. P.** Photon-mediated sequential resonant tunneling in intense terahertz electric fields. *Phys. Rev. Lett.*, 1993, vol. 70, p. 3792–3795.

4. **Büttiker M., Landauer R.** Traversal Time for Tunneling. *Phys. Rev. Lett.*, 1982, vol. 49, p. 1739–1742.
5. **Coon D. D., Liu H. C.** Time-dependent quantum-well and finite-superlattice tunneling. *J. Appl. Phys.*, 1985, vol. 58, p. 2230–2235.
6. **Wees B. J. van, Houten H. van, Beenakker C. W. J., Williamson J. G., Kouwenhoven L. P., Marel D. van der, Foxon C. T.** Quantized Conductance of Point Contacts in a Two-dimensional Electron Gas. *Phys. Rev. Lett.*, 1988, vol. 60, p. 848–850.
7. **Wharam D., Thornton T. J., Newbury R., Pepper M., Ahmed H., Frost J. E. F., Hasko D. G., Peacock D. C., Ritchie D. A., Jones G. A. C.** One-dimensional transport and the quantisation of the ballistic resistance. *J. Phys. C: Solid State Phys.*, 1988, vol. 21, p. L209–L214.
8. **Büttiker M.** Quantized transmission of a saddle-point constriction. *Phys. Rev. B*, 1990, vol. 41, p. 7906–7909.
9. **Tkachenko O. A., Tkachenko V. A., Baksheyev D. G., Nejoh H.** Localization of tunneling electron in a potential barrier with alternating height. In: Quantum coherence and decoherence. Proceedings of the 5th International Symposium on Foundations of Quantum Mechanics in the Light of New Technology (ISQM-Tokyo'95), Japan, August 21–24, 1995. Eds. K. Fujikawa, Y. A. Ono. New York, Elsevier / North Holland, 1996, p. 207–210.
10. **Hu Q.** Photon-assisted quantum transport in quantum point contacts. *Appl. Phys. Lett.*, 1993, vol. 62, p. 837–839.
11. **Yakubo K., Feng S., Hu Q.** Simulation studies of photon-assisted quantum transport. *Phys. Rev. B*, 1996, vol. 54, p. 7987–7995.
12. **Ge J.-Y., Zhang J. Z. H.** Quantum mechanical tunneling through a time-dependent barrier. *J. Chem. Phys.*, 1996, vol. 105, p. 8628–8632.
13. **Ohe J.-I., Yakubo K.** Transfer matrix approach to photon-assisted quantum transport in quantum point contacts. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 1999, vol. 68, p. 2729–2734.
14. **Takahashi K., Ikeda K. S.** Instanton and noninstanton tunneling in periodically perturbed barriers: Semiclassical and quantum interpretations. *Phys. Rev. E*, 2012, vol. 86, p. 056206.
15. **Grincwajg A., Gorelik I. Y., Kleiner V. Z., Shekhter R. I.** Photoconductance oscillations in a two-dimensional quantum point contact. *Phys. Rev. B*, 1995, vol. 52, p. 12168–12178.
16. **Maaß F. A., Gorelik L. Y.** Photoconductance through quantum point contacts: Exact numerical results. *Phys. Rev. B*, 1996, vol. 53, p. 15885–15892.
17. **Wyss R. A., Eugster C. C., del Alamo J. A., Hu Q.** Far-infrared photon-induced current in a quantum point contact. *Appl. Phys. Lett.*, 1993, vol. 63, p. 1522–1524.
18. **Janssen T. J. B. M., Maan J. C., Singleton J., Patel N. K., Pepper M., Frost J. E. F., Ritchie D. A., Jones G. A. C.** A new mechanism for high-frequency rectification in a ballistic quantum point contact. *J. Phys.: Condens. Matter.*, 1994, vol. 6, p. L163–L168.
19. **Wyss R. A., Eugster C. C., del Alamo J. A., Hu Q., Rooks M. J., Melloch M. R.** Far-infrared radiation-induced thermopower in a quantum point contact. *Appl. Phys. Lett.*, 1995, vol. 66, p. 1144–1146.
20. **Song J. W., Aizin G. R., Mikalopas J., Kawano Y., Ishibashi K., Aoki N., Reno J. L., Ochiai Y., Bird J. P.** Bolometric terahertz detection in pinched-off quantum point contacts. *Appl. Phys. Lett.*, 2010, vol. 97, p. 083109.
21. **Song J. W., Kabir N. A., Kawano Y., Ishibashi K., Aizin G. R., Mourokh L., Reno J. L., Merkelz A. G., Bird J. P.** Terahertz response of quantum point contacts. *Appl. Phys. Lett.*, 2008, vol. 92, p. 223115.
22. **Levin A. D., Gusev G. M., Kvon Z. D., Bakarov A. K., Savostianova N. A., Mikhailov S. A., Rodyakina E. E., Latyshev A. V.** Giant microwave photo-conductance of a tunnel point contact with a bridged gate. *Appl. Phys. Lett.*, 2015, vol. 107, p. 072112.
23. **Otteneder M., Kvon Z. D., Tkachenko O. A., Tkachenko V. A., Jaroshevich A. S., Rodyakina E. E., Latyshev A. V., Ganichev S. D.** Giant Terahertz Photoconductance of Quantum Point Contacts in the Tunneling Regime. *Phys. Rev. Appl.*, 2018, vol. 10, p. 0140157.

24. **Ткаченко О. А., Ткаченко В. А., Квон З. Д.** Фотонно-стимулированное прохождение электрона через туннельный точечный контакт в микроволновом поле // Письма в ЖЭТФ. 2015. Т. 102. С. 417–422.
Tkachenko O. A., Tkachenko V. A., Kvon Z. D. Photon-Assisted Electron Transport through a Quantum Point Contact in a Microwave Field. *JETP Letters*, 2015, vol. 102, p. 378–382.
25. **Ткаченко О. А., Ткаченко В. А., Квон З. Д.** Response to the Comment on “Photon-Assisted Electron Transport through a Quantum Point Contact in a Microwave Field” (*JETP Lett.* 102, 378 (2015)). *JETP Letters*, 2016, vol. 103, p. 555–556.
26. **Ткаченко О. А., Ткаченко В. А., Бакшеев Д. Г., Квон З. Д.** Ступени терагерцового гигантского фотоконтактанса туннельного точечного контакта // Письма в ЖЭТФ. 2018. Т. 108, вып. 6. С. 422–427.
Tkachenko O. A., Tkachenko V. A., Baksheyev D. G., Kvon Z. D. Steps of the Giant Terahertz Photoconductance of a Tunneling Point Contact. *JETP Letters*, 2018, vol. 108, no. 6, p. 396–401.
27. **Ткаченко О. А., Ткаченко В. А.** О температурной зависимости аномальных особенностей контактанса и термоЭДС в квантовых точечных контактах // Письма в ЖЭТФ. 2012. Т. 96. С. 804–808.
Tkachenko O. A., Tkachenko V. A. Temperature dependence of conductance and thermopower anomalies of quantum point contacts. *JETP Letters*, 2012, vol. 96, p. 396–401.
28. **Baksheyev D. G., Tkachenko O. A., Tkachenko V. A.** Modeling of high frequency field influence on electron transmission through quantum size structures. In: Physics, Chemistry and Application of Nanostructures. Eds. V. E. Borisenko et al. Minsk, Belarus, 1995, p. 268–270.
29. **Tkachenko O. A., Tkachenko V. A., Baksheyev D. G.** Resonant transmission of electrons in a quantum wire through a potential well with oscillating bottom. In: Physics, Chemistry and Application of Nanostructures. Eds. V. E. Borisenko et al. Minsk, Belarus, 1995, p. 126–130.
30. **Tkachenko O. A., Tkachenko V. A., Baksheyev D. G., Jaroshevich A. S.** Windows of full photon-assisted electron transmission via Stark ladder of semiconductor superlattice. In: Compound Semiconductors-95. Inst. Phys. Conf. Ser., 1996, no. 145, ch. 10, p. 1193–1198.
31. **Tkachenko O. A., Tkachenko V. A., Baksheyev D. G.** Terahertz-field-induced recovery of resonant-electron transparency of semiconductor superlattices in electric field. *J. Appl. Phys.*, 1997, vol. 81, p. 1771–1774.
32. **Tkachenko O. A., Tkachenko V. A., Baksheyev D. G.** Multiple-quantum resonant reflection of ballistic electrons from a high-frequency potential step. *Phys. Rev. B*, 1995, vol. 53, p. 4672–4676.
33. **Tkachenko O. A., Tkachenko V. A., Baksheyev D. G.** Resonant Reflection, Cooling, and Quasitrapping of Ballistic Electrons by Dynamic Potential Barriers. *Phys. Rev. B*, 1996, vol. 54, p. 13452–13456.
34. **Tkachenko O. A., Baksheyev D. G., Tkachenko V. A., Wojtsekhowski M. B.** Dynamic Barriers in Uniform 2DEG as Splitter and Source of Electron Beams. *Physica B*, 1998, vol. 249–251, p. 373–376.
35. **Tkachenko V. A., Tkachenko O. A., Kotkin G. L., Tupitsin V. G.** Programs for modeling waves in quantum-size microstructures. *Physica B*, 1991, vol. 175, p. 75–79.
36. **Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.** Квантовая механика. М.: Наука, 1974.
Landau L. D., Lifshitz E. M. Quantum Mechanics. Moscow, Nauka, 1974. (in Russ.)
37. **Chitta V. A., de Bekker R. E. M., Maan J. C., Hawksworth S. J., Chamberlain J. M., Henini M., Hill G.** Photon-assisted tunneling in sequential resonant tunneling devices. *Semicond. Sci. Technol.*, 1992, vol. 7, p. 432–435.
38. **Drexler H., Scott J. S., Allen S. J., Campman K. L., Gossard A. C.** Photon-assisted tunneling in a resonant tunneling diode: stimulated emission and absorption in the THz range. *Appl. Phys. Lett.*, 1995, vol. 67, p. 2816–2818.

39. **Faist J., Capasso F., Sirtori C., Sivco D., Cho A.** In: Intersubband transitions in quantum wells: physics and device applications II. Eds. H. C. Liu and F. Capasso. San Diego, Academic, 2000, vol. 66, ch. 1, p. 1–83.
40. **Sokolovski D.** Resonance tunneling in a periodic time-dependent external field. *Phys. Rev. B*, 1988, vol. 37, p. 4201–4208.
41. **Sacks R. A., Szoke A.** Electron scattering assisted by an intense electromagnetic field: Exact solution of a simplified model. *Phys. Rev. A*, 1989, vol. 40, p. 5614–5632.
42. **Сумецкий М. Ю., Фельштын М. Л.** Абсолютная прозрачность неупругого канала и фотовольтаический эффект при резонансном туннелировании через двухъямную гетероструктуру // Письма в ЖЭТФ. 1991. Т. 53. С. 24–27.
Sumetskii M. Yu., Felshtyn M. L. Absolute transparency of an inelastic channel and the photovoltaic effect in the resonance tunneling through the two-well heterojunction. *JETP Lett.*, 1991, vol. 53, p. 24–27. (in Russ.)
43. **Hagmann M. J.** Mechanism for resonance in the interaction of tunneling particles with modulation quanta. *J. Appl. Phys.*, 1995, vol. 78, p. 25–29.

Материал поступил в редколлегию
Received
 14.08.2018

Сведения об авторах / Information about the Authors

Ткаченко Ольга Александровна, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия)

Olga A. Tkachenko, Candidate of Science (Physics and Mathematics), Senior Scientist, A. V. Rzhzanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

otkach@list.ru

Ткаченко Виталий Анатольевич, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия); доцент, Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Vitaliy A. Tkachenko, Candidate of Science (Physics and Mathematics), Senior Scientist, A. V. Rzhzanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Associate Professor, Novosibirsk State University (2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

vtkach@isp.nsc.ru

Бакшеев Дмитрий Георгиевич, кандидат физико-математических наук, ассистент, Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Dmitriy G. Baksheev, Candidate of Science (Physics and Mathematics), Professor, Novosibirsk State University (2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

d.baksheev@g.nsu.ru

Исследование статистики регистрации одиночных фотонов двумя фотодетекторами для применений в квантовой криптографии

Д. Б. Третьяков^{1,2}, А. В. Коляко¹⁻³, А. С. Плешков¹⁻³, В. М. Энтин^{1,2},
И. И. Рябцев^{1,2}, И. Г. Неизвестный^{1,4}

¹ Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН

² Новосибирский государственный университет

³ Институт лазерной физики СО РАН

⁴ Новосибирский государственный технический университет
Новосибирск, Россия

Аннотация

Предложен метод обнаружения атаки с делением числа фотонов в квантово-криптографических системах связи по измерению распределения числа фотонов в лазерном импульсе. Вместо использования сложного фотодетектора, способного различать число зарегистрированных фотонов, мы предлагаем использовать два обычных однофотонных детектора на основе лавинных фотодиодов. Представлены результаты экспериментов по измерению числа фотонов в лазерном импульсе и их сравнение с теоретическими расчетами. Обсуждаются пределы применимости предложенного метода.

Ключевые слова

квантовая криптография, атака с делением числа фотонов, детекторы одиночных фотонов

Благодарности

Работа поддержана Институтом физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН и Новосибирским государственным университетом

Для цитирования

Третьяков Д. Б., Коляко А. В., Плешков А. С., Энтин В. М., Рябцев И. И., Неизвестный И. Г. Исследование статистики регистрации одиночных фотонов двумя фотодетекторами для применений в квантовой криптографии // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 4. С. 91–104. DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-91-104

Investigation of the Statistics of Single-Photon Counting by Two Photodetectors for Applications in Quantum Cryptography

D. B. Tretyakov^{1,2}, A. V. Kolyako¹⁻³, A. S. Pleshkov¹⁻³, V. M. Entin^{1,2},
I. I. Ryabtsev^{1,2}, I. G. Neizvestny^{1,4}

¹ A. V. Rzhzanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS

² Novosibirsk State University

³ Institute of Laser Physics SB RAS

⁴ Novosibirsk State Technical University
Novosibirsk, Russian Federation

Abstract

A method for revealing a photon-number-splitting attack in quantum-cryptographic communication systems by measuring the photon-number distribution in a laser pulse is proposed. Instead of using a complex photon-number-resolving detector, we propose to use two conventional single-photon detectors based on avalanche photodiodes. The results of experiments on measuring the photon numbers in a laser pulse and their comparison with theoretical calculations are presented. The limits of the applicability of the proposed method are discussed.

Keywords

quantum cryptography, photon-number-splitting attack, single-photon detectors

Acknowledgements

This work was supported by Rzhanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS and Novosibirsk State University

For citationTretyakov D. B., Kolyako A. V., Pleshkov A. S., Entin V. M., Ryabtsev I. I., Neizvestny I. G. Investigation of the Statistics of Single-Photon Counting by Two Photodetectors for Applications in Quantum Cryptography. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 91–104. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-91-104**Введение**

Интерес к быстро развивающейся в последнее время квантовой криптографии обусловлен возможностью создания в ближайшее время квантового компьютера, который, как теоретически доказано, способен взломать самые надежные на сегодняшний день криптографические шифры [1]. Поскольку в квантовой криптографии передача секретной информации происходит посредством квантовых объектов – одиночных фотонов, абсолютная секретность передачи обеспечивается законами квантовой механики, а именно невозможностью измерить и воспроизвести состояние перехваченного одиночного фотона с абсолютной достоверностью [2]. С помощью передачи одиночных фотонов в квантовом канале (оптоволоконной или атмосферной линии связи) генерируется только секретный ключ, который затем используется отправителем (Алисой) и получателем (Бобом) в симметричной криптосистеме, а само зашифрованное сообщение может передаваться по любому открытому каналу [1]. Наибольшая потребность в квантово-криптографических системах связи ожидается в тех случаях, когда абсолютная секретность передачи информации обладает большим приоритетом, чем скорость передачи данных. Дальнейшее развитие квантовых систем связи требует увеличения дальности и скорости генерации квантового ключа, а также степени их защищенности.

В 1984 г. был предложен первый квантово-криптографический протокол BB84 [3], а в 1992 г. осуществлена первая экспериментальная демонстрация генерации квантового ключа по данному протоколу с помощью передачи одиночных, поляризованных в двух неортогональных базисах фотонов по воздушной линии связи [4]. В дальнейшем фундаментальные научные исследования в этой области постепенно перешли к проблеме создания практических квантовых систем связи и появлению коммерческих устройств, таких как система Clavis производства фирмы «ID Quantique»¹.

Поскольку в настоящее время коммерчески доступных истинных источников одиночных фотонов еще не существует, в квантовой криптографии в качестве таких источников применяются сильно ослабленные короткие лазерные импульсы [1]. Если обозначить среднее число фотонов в лазерном импульсе как μ , то вероятность $P(n)$ найти n фотонов в лазерном импульсе подчиняется статистике Пуассона:

$$P(n) = \frac{\mu^n}{n!} e^{-\mu}. \quad (1)$$

При $\mu \ll 1$ доля «пустых» импульсов, вообще не содержащих фотонов, будет равна $P(0) \approx 1 - \mu + \mu^2/2$. Доля импульсов, содержащих один фотон, $P(1) \approx \mu - \mu^2$, а доля импульсов, содержащих два фотона, $P(2) \approx \mu^2/2$. Например, для $\mu = 0,1$ получаем $P(0) \approx 0,905$, $P(1) \approx 0,09$, $P(2) \approx 0,005$. Это означает, что вероятность найти в лазерном импульсе больше, чем один фотон, мала по сравнению с вероятностью однофотонных лазерных импульсов.

¹ <https://www.idquantique.com>

Основной проблемой квантовых линий связи является потеря одиночных фотонов при передаче по протяженному квантовому каналу, что приводит к уменьшению скорости генерации квантового ключа. Для увеличения скорости генерации квантового ключа можно увеличить среднее число фотонов в лазерном импульсе, однако это будет способствовать тому, что подслушиватель (Ева) применит атаку с делением числа фотонов [5]. В этом типе атак Ева, по предположению обладающая любыми совершенными технологиями, перехватывает каждый импульс, идущий от Алисы, и измеряет число фотонов в импульсе с помощью квантовых неразрушающих измерений [6]. Далее она отделяет от многофотонных импульсов по одному фотону, сохраняет этот фотон в квантовой памяти до конца одиночной сессии между Алисой и Бобом, а оставшиеся фотоны посылает Бобу. При этом однофотонные импульсы Евой не пропускаются. После того, как Алиса и Боб проведут сверку базисов по открытому каналу в соответствии с протоколом BB84, Ева измерит состояния фотонов в нужном базисе, получив таким образом весь ключ, сформированный Алисой и Бобом. После атаки с делением числа фотонов резко уменьшается число фотонов в квантовом канале, что легко может обнаружить Боб, если он знает заранее, сколько примерно фотонов он должен зарегистрировать при генерации квантового ключа. Поэтому данный тип атаки может использоваться только в случае квантового канала с высокими потерями. Тогда Ева может направить Бобу оставшиеся после атаки фотоны не по основному, а по дополнительному каналу без потерь, увеличив таким образом число фотонов, дошедших до Боба. Однако, как показано в работе [5], для того, чтобы Ева отправила Бобу столько фотонов, сколько он должен зарегистрировать в отсутствие атаки, коэффициент пропускания квантового канала T должен быть меньше критического значения T_0 :

$$T_0 = 1 - \ln(1 + \mu)/\mu. \quad (2)$$

На сегодняшний день разработано несколько протоколов, предназначенных для противодействия атакам с делением числа фотонов в квантовых каналах с большими потерями [7–10]. Одним из наиболее широко применяемых на практике является протокол, использующий импульсы-«ловушки» (decoy state) [10]. В данном протоколе некоторые лазерные импульсы, несущие информацию, заменяются Алисой на импульсы со средним числом фотонов, большим, чем для основных лазерных импульсов. Поскольку Ева не может отличить импульс-«ловушку» от обычного импульса, то она проводит с ним те же операции, что и с обычным. В итоге Алиса и Боб обнаруживают атаку по увеличению числа зарегистрированных импульсов-«ловушек» по отношению к числу обычных импульсов.

В случае, когда коэффициент пропускания квантового канала $T > T_0$ из уравнения (2), Ева, чтобы не внести ошибок в передаваемый ключ, вынуждена будет пропускать однофотонные импульсы и отделять по одному фотону только от многофотонных импульсов. Таким образом, она незаметно получит только часть ключа, сформированного Алисой и Бобом. Однако в этом случае атака с делением числа фотонов делает распределение числа фотонов в лазерном импульсе отличным от пуассоновского (1). Как показано в работе [11], если у Боба имеется фотодетектор, способный различать число зарегистрированных фотонов, то он может выявить атаку с делением числа фотонов по изменению статистики регистрации импульсов с разным числом фотонов. В настоящее время предложено несколько технологий для реализации таких фотодетекторов [12–14], однако все они достаточно сложны в изготовлении и имеют высокую стоимость.

В работе [15] предложен более простой способ обнаружения атаки с делением числа фотонов по измерению распределения числа фотонов в импульсе с использованием двух обычных фотодетекторов, не обладающих разрешением по числу фотонов, перед которыми расположено полупрозрачное зеркало. Идущее от Алисы излучение делится на зеркале пополам таким образом, что одна половина фотонов направляется на один фотодетектор, вторая – на второй. Однако в работе [15] рассматривается специфическая атака с делением числа фо-

тонов, в результате которой распределение числа фотонов в импульсе меняется иначе, чем в классической атаке с делением числа фотонов.

В нашей работе мы рассматриваем метод обнаружения атаки с делением числа фотонов по распределению числа фотонов в импульсе с использованием двух обычных фотодетекторов именно для классического варианта этой атаки. Также представлены результаты простого эксперимента по регистрации одиночных фотонов двумя фотодетекторами и сравнение их с теоретическими расчетами. Обсуждаются пределы применимости предложенного метода.

Теория

После прохождения одиночных фотонов через квантовый канал с коэффициентом пропускания T и регистрации фотонов фотодетектором с эффективностью регистрации η формула (1) преобразуется в следующее выражение:

$$P_{\text{det}}(n) = \frac{(\mu\eta T)^n}{n!} e^{-\mu\eta T}, \quad (3)$$

где $P_{\text{det}}(n)$ – вероятность зарегистрировать n фотонов в одном лазерном импульсе. Эта формула получается сверткой вероятностей испускания и регистрации определенного числа фотонов [11; 16; 17].

Если фотодетектор различает число зарегистрированных фотонов, то вероятность регистрации одного фотона будет равна

$$P_{\text{det}}(1) = \mu\eta T \cdot e^{-\mu\eta T}, \quad (4)$$

а вероятность регистрации двух фотонов –

$$P_{\text{det}}(2) = (\mu\eta T)^2 \cdot e^{-\mu\eta T} / 2. \quad (5)$$

Если фотодетектор не различает число зарегистрированных фотонов, то вероятность срабатывания фотодетектора при регистрации любого числа фотонов будет равна

$$\bar{P}_{1\text{det}} = \sum_{n=1}^{\infty} P_{\text{det}}(n) = 1 - e^{-\mu\eta T}. \quad (6)$$

Если разделить лазерный импульс полупрозрачным зеркалом и направить одну часть фотонов на один фотодетектор, а вторую – на второй, то при условии равенства эффективности регистрации этих фотодетекторов, вероятность срабатывания только одного из них будет выглядеть следующим образом:

$$\bar{P}_{2\text{det}}(1) = 2(1 - e^{-\mu\eta T/2}) \cdot e^{-\mu\eta T/2}, \quad (7)$$

а вероятность одновременного срабатывания –

$$\bar{P}_{2\text{det}}(2) = (1 - e^{-\mu\eta T/2})^2. \quad (8)$$

Формула (7) представляет собой произведение вероятности срабатывания одного из фотодетекторов и вероятности отсутствия срабатывания другого. Произведение умножается на 2,

поскольку та же самая вероятность существует при перестановке фотодетекторов. Показатель экспоненты делится пополам, так как на оба фотодетектора падает импульсное излучение со средним числом фотонов в импульсе $\mu/2$. В свою очередь, формула (8) есть произведение вероятностей срабатывания обоих фотодетекторов.

Если оба фотодетектора различают число зарегистрированных фотонов, то вероятность срабатывания только одного из фотодетекторов будет равна вероятности регистрации одного фотона одиночным фотодетектором, различающим число зарегистрированных фотонов согласно формуле (4).

Наглядно представить различие в статистике регистрации фотонов одним фотодетектором, различающим число зарегистрированных фотонов, и двумя обычными фотодетекторами можно в случае $\mu \cdot \eta \cdot T \ll 1$. Тогда, оставляя члены только первого и второго порядка по $\mu \cdot \eta \cdot T$ (т. е., пренебрегая вероятностью регистрации трехфотонных импульсов), преобразуем выражение (4) в выражение

$$P_{\text{det}}(1) \approx \mu \cdot \eta \cdot T - (\mu \cdot \eta \cdot T)^2, \quad (9)$$

выражение (5) преобразуем в выражение

$$P_{\text{det}}(2) \approx (\mu \cdot \eta \cdot T)^2 / 2, \quad (10)$$

выражение (7) преобразуем в выражение

$$\bar{P}_{2\text{det}}(1) \approx \mu \cdot \eta \cdot T = 3(\mu \cdot \eta \cdot T)^2 / 4, \quad (11)$$

а выражение (8) преобразуем в выражение:

$$\bar{P}_{2\text{det}}(2) \approx (\mu \cdot \eta \cdot T)^2 / 4. \quad (12)$$

При сравнении выражения (9) с (11) и выражения (10) с (12) видно, что система из двух обычных фотодетекторов будет различать число зарегистрированных фотонов только частично, так как в половине случаев оба фотона проходят через зеркало или отражаются от него, попадая на один из фотодетекторов, и регистрируются, как один фотон. Мы поставили себе целью проанализировать эти предположения в эксперименте.

Экспериментальная установка

Эксперименты по исследованию статистики регистрации фотонов в лазерном импульсе проводились на основе атмосферной экспериментальной установки для генерации квантового ключа по протоколу BB84, созданной ранее в Институте физики полупроводников СО РАН [16; 17]. На рисунке 1 изображена часть этой установки, используемая в описываемых экспериментах. В качестве источника световых импульсов применялся лазерный диод ADL-78901TL фирмы «Laser components GmbH» с длиной волны излучения 780 нм. Источник тока лазерного диода работал как в непрерывном режиме для настройки оптической схемы, так и в импульсном для проведения экспериментов. Длительность лазерного импульса составляла 5 нс. Излучение лазерного диода заводилось в оптический волоконный светоделитель 50/50. Одна половина излучения направлялась на измеритель мощности, вторая – на детекторы одиночных фотонов. Часть излучения, идущая на фотодетекторы, выводилась из волокна с помощью коллиматора и ослаблялась калиброванными нейтральными фильтрами до уровня мощности, при котором на лазерный импульс приходилось не более одного фотона. С по-

мощью ручного поляризационного контроллера, установленного на волоконный делитель, линейная поляризация выходного излучения выставлялась горизонтальной.

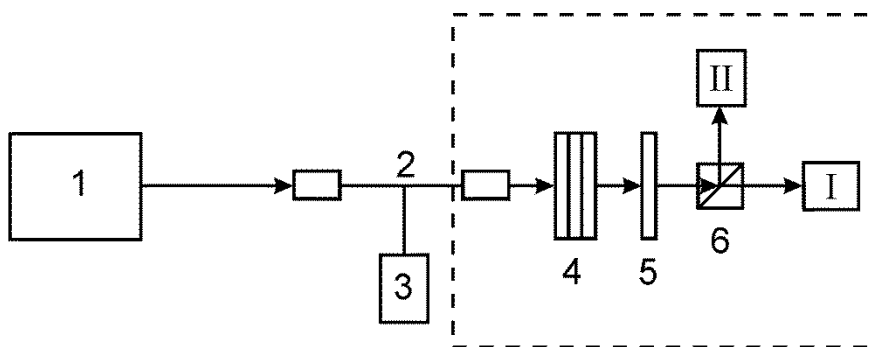


Рис. 1. Схема экспериментальной установки:

1 – лазерный диод; 2 – волоконный светоделитель 50/50; 3 – измеритель мощности;
4 – набор нейтральных светофильтров; 5 – полуволновая пластинка; 6 – призма Глана;
I, II – детекторы одиночных фотонов на основе кремниевых лавинных фотодиодов

Fig. 1. Scheme of the experimental setup:

1 – laser diode; 2 – fiber-optics beam splitter 50/50; 3 – power meter;
4 – a stack of neutral optical filters; 5 – half-wave plate; 6 – Glan prism;
I, II – single-photon detectors based on silicon avalanche photodiodes

Излучение затем попадало на полуволновую пластинку и призму Глана. При работе с фотодетектором I ось полуволновой пластинки выставлялась под углом 0° по отношению к падающему излучению, что не изменяло поляризацию падающего излучения; при работе с фотодетектором II – под углом 45° , что поворачивало поляризацию падающего излучения на 90° . При работе одновременно с двумя фотодетекторами ось пластинки выставлялась под углом $22,5^\circ$, что поворачивало поляризацию падающего излучения на 45° .

Регистрация одиночных фотонов производилась кремниевыми лавинными фотодиодами С30902S производства фирмы «EG&G Optoelectronics», работающими в гейгеровском режиме при температуре 273 К. Выходные импульсы фотодиодов усиливались и поступали на блок амплитудного дискриминирования и временного стробирования, в котором они преобразовывались в стандартные TTL-импульсы и направлялись на вход счетчика импульсов. Длительность строб-импульса составляла 20 нс.

Запуск лазерных импульсов и строб-импульсов тактовыми импульсами с частотой до 1 МГц, а также счет TTL-импульсов с блока стробирования осуществлялись быстродействующей системой на базе программируемой логической платы сбора данных NI 7811 R Series Multifunction RIO компании «National Instruments», встраиваемой в блок персонального компьютера. Система позволяла изменять задержку и совмещать лазерные и строб-импульсы с точностью 5 нс. Система управлялась программой, написанной в среде LabVIEW.

Для защиты от внешнего света часть установки находилась в непрозрачном кожухе, обозначенном на рис. 1 штриховой линией.

Результаты

Далее показаны экспериментальные и теоретические зависимости частоты срабатывания одного или двух фотодетекторов от среднего числа фотонов в лазерном импульсе. Мощность излучения, соответствующая разному среднему числу фотонов в импульсе, выставлялась регулировкой тока лазерного диода и контролировалась измерителем мощности 3 на рис. 1.

Перед проведением основных экспериментов были измерены зависимости частоты срабатывания каждого фотодетектора от частоты следования лазерных импульсов f . Данная зависимость должна быть линейной в соответствии с формулой

$$N = \bar{P}_{\text{ldet}} \cdot f, \quad (13)$$

где N – частота срабатывания фотодетектора; $\bar{P}_{\text{ldet}}$ – вероятность срабатывания фотодетектора при регистрации любого числа фотонов согласно формуле (6).

На рис. 2 приведена типичная экспериментальная зависимость частоты срабатывания фотодетектора I от частоты лазерных импульсов. Среднее число фотонов в лазерном импульсе μ было выставлено равным 0,6. Как видно из графика, при частотах срабатывания фотодетектора более 20 кГц зависимость частоты срабатывания от частоты лазерных импульсов перестает быть линейной, что может быть связано с насыщением фотодетектора. Также на рис. 2 показана аппроксимация экспериментальных данных при низких частотах срабатывания фотодетектора (менее 5 кГц), когда еще не возникает насыщения, и зависимость частоты срабатывания детектора N линейная в соответствии с формулой (13). Значение эффективности регистрации одиночных фотонов было получено из измеренного значения $\bar{P}_{\text{ldet}}$ и составило 17 %. Коэффициент пропускания T здесь и везде, где теоретические расчеты сравниваются с экспериментальными данными, берется равным 1 (использовался короткий воздушный промежуток без потерь).

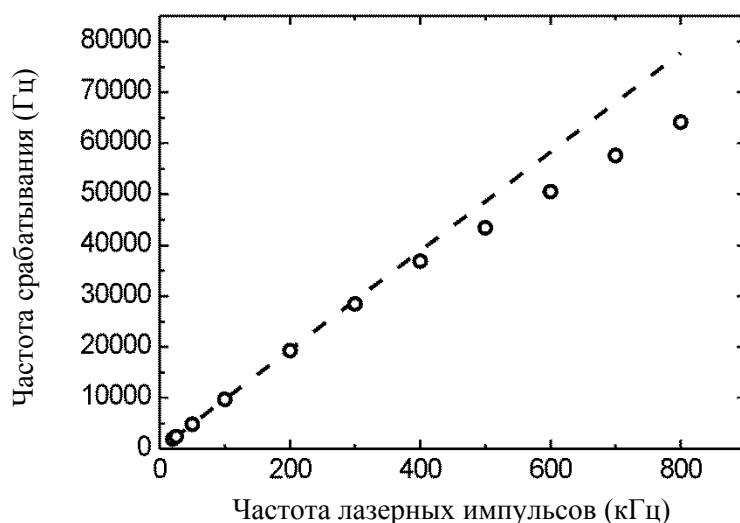


Рис. 2. Экспериментальная зависимость частоты срабатывания фотодетектора I от частоты лазерных импульсов (кружки). Штриховая линия построена по формуле (13)

Fig. 2. Experimental dependence of the frequency of clicks of photodetector I on the frequency of laser pulses (circles). The dashed line is drawn according to equation (13)

Наблюдаемое на рис. 2 насыщение при таких относительно небольших частотах срабатывания фотодетектора оказалось неожиданным, потому что так называемое «мертвое время» (время восстановления после образования лавины) лавинного фотодиода составляет 300 нс, а полоса пропускания усилителя выходных импульсов лавинного фотодиода – 0,5 ГГц. К тому же оказалось, что коэффициент насыщения для разных частот срабатывания не воспроизводится в точности после выключения-включения установки даже при тех же точно выстав-

ленных значениях напряжения питания и температуры лавинного фотодиода. Возможной причиной наблюдаемого насыщения является уменьшение амплитуды выходного импульса фотодетектора при больших частотах срабатывания, поэтому количество импульсов, проходящих через амплитудный дискриминатор, уменьшается.

На рис. 3 представлены экспериментальная и теоретическая зависимости частоты срабатывания фотодетектора I от среднего числа фотонов в импульсе. Частота лазерных импульсов составляла 500 кГц, эффективность регистрации 16,7 %. Для того чтобы избежать насыщения при больших частотах срабатывания фотодетектора, измерения для каждого значения среднего числа фотонов в импульсе проводились при уменьшенных частотах лазерных импульсов, при которых частота срабатывания не превышала 5 кГц. Потом измеренное значение частоты срабатывания умножалось на коэффициент деления частоты лазерных импульсов. Применимость данного метода подтверждается хорошим согласием экспериментальных данных (кружки) и теоретических расчетов (сплошная линия), сделанных по формуле (13). Для каждого значения среднего числа фотонов набиралась статистика из пятикратного измерения частоты срабатывания. Время измерения составляло 5 с. Затем из полученных данных вычислялось среднее значение $N_{\text{ср}}$, представленное на рис. 3. Кроме того, из $N_{\text{ср}}$ вычиталось среднее значение частоты темновых импульсов лавинного фотодиода, которое составляло 65 Гц. Среднеквадратичное отклонение измеренных значений от среднего не превышало теоретического предела, равного $(N_{\text{ср}})^{1/2}$. Поскольку это значение достаточно мало, то погрешность экспериментальных данных на рисунках не приводится.

На рис. 3 для сравнения представлены также две теоретические кривые, одна из которых (штриховая линия) показывает количество зарегистрированных фотонов $\mu \cdot \eta \cdot f$, которое было бы измерено в случае способности фотодетектора различать число зарегистрированных фотонов при той же эффективности регистрации.

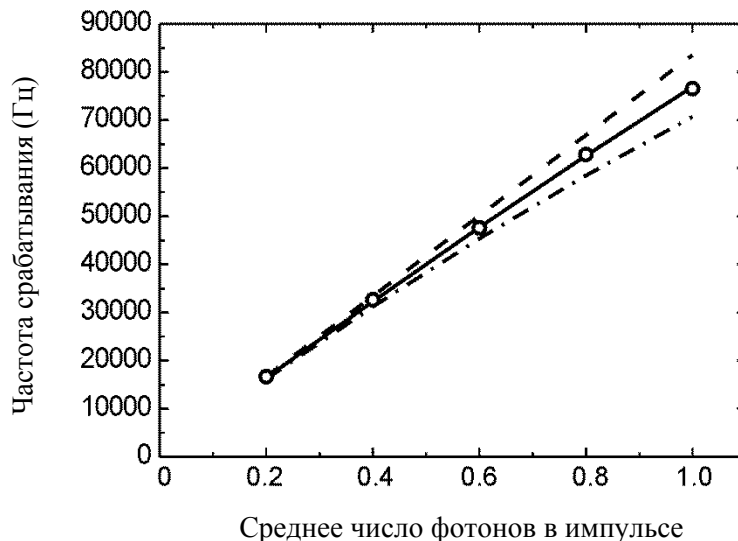


Рис. 3. Экспериментальная (кружки) и теоретическая (сплошная линия) зависимости частоты срабатываний фотодетектора I от среднего числа фотонов в импульсе. Штриховая и штрихпунктирная линии построены для фотодетектора, различающего число зарегистрированных фотонов (см. текст)

Fig. 3. Experimental (circles) and theoretical (solid curve) dependences of the frequency of clicks of photodetector I on the mean photon number per laser pulse. The dashed and dash-dotted lines are drawn for a photodetector that resolves the number of detected photons (see text)

Вторая кривая (штрихпунктирная линия) построена по формуле $P_{\text{det}}(1) \cdot f$, где $P_{\text{det}}(1)$ – вероятность регистрации одного фотона (4) при той же эффективности регистрации.

Аналогичная экспериментальная зависимость была получена и для фотодетектора II.

Далее показаны результаты экспериментов, в которых участвовали оба фотодетектора. Полуволновая пластинка выставлялась под углом $22,5^\circ$ таким образом, чтобы на фотодетекторы попадало излучение одинаковой мощности. Управляющая программа подсчитывала отдельно частоту событий, в которых срабатывал только один фотодетектор и в которых срабатывали одновременно оба фотодетектора за один лазерный импульс. Эффективность регистрации фотодетекторов выставлялась одинаковой по равенству частот срабатывания каждого из них. Как и в предыдущих экспериментах с одним фотодетектором, для того чтобы избежать насыщения при больших частотах срабатывания фотодетекторов, измерения для каждого значения среднего числа фотонов в импульсе проводились при уменьшенных частотах лазерных импульсов.

На рис. 4 представлены экспериментальная и теоретическая зависимости частоты срабатывания только одного из двух фотодетекторов от среднего числа фотонов в импульсе. Видно, что экспериментальные данные (кружки) и расчет (сплошная линия), сделанный по формуле $\bar{P}_{2\text{det}}(1) \cdot f$, где $\bar{P}_{2\text{det}}(1)$ – вероятность срабатывания одного из двух детекторов (7), хорошо совпадают.

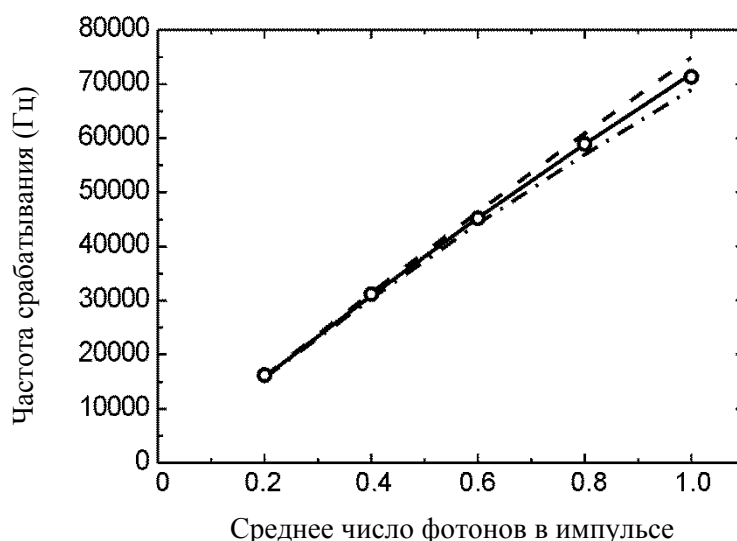


Рис. 4. Экспериментальная (кружки) и теоретическая (сплошная линия) зависимости частоты срабатывания только одного из двух фотодетекторов от среднего числа фотонов в импульсе. Штриховая линия построена по формуле (13), штрихпунктирная – для фотодетектора, различающего число зарегистрированных фотонов (см. текст)

Fig. 4. Experimental (circles) and theoretical (solid curve) dependences of the frequency of clicks of only one of two photodetectors on the mean photon number per laser pulse. The dashed line is drawn according to equation (13), and the dash-dotted line is drawn for a photodetector that resolves the number of detected photons (see text)

Частота лазерных импульсов f составляет 500 кГц, эффективность регистрации обоих фотодетекторов 16,2 %. Штриховой линией для сравнения показана теоретическая зависимость частоты срабатывания одиночного фотодетектора без разрешения числа регистрируемых фотонов, построенная по формуле (13), при той же эффективности регистрации. Штрихпунк-

тирная линия построена по формуле $P_{\text{det}}(1) \cdot f$, где $P_{\text{det}}(1)$ – вероятность регистрации одного фотона фотодетектором, различающим число зарегистрированных фотонов (4), при той же эффективности регистрации.

На рис. 5 представлены экспериментальная и теоретическая зависимости частоты одновременного срабатывания двух фотодетекторов от среднего числа фотонов в импульсе. Также видно, что экспериментальные данные (кружки) и расчет (сплошная линия), сделанный по формуле $\bar{P}_{2\text{det}}(2) \cdot f$, где $\bar{P}_{2\text{det}}(2)$ – вероятность одновременного срабатывания двух детекторов (8), хорошо совпадают. Частота лазерных импульсов f составляет 500 кГц, эффективность регистрации обоих фотодетекторов 16,2 %. Штриховая линия отображает зависимость частоты регистрации двух фотонов фотодетектором, различающим число зарегистрированных фотонов, построенную по формуле $P_{\text{det}}(2) \cdot f$, где $P_{\text{det}}(2)$ – вероятность регистрации двух фотонов (5) при той же эффективности регистрации.

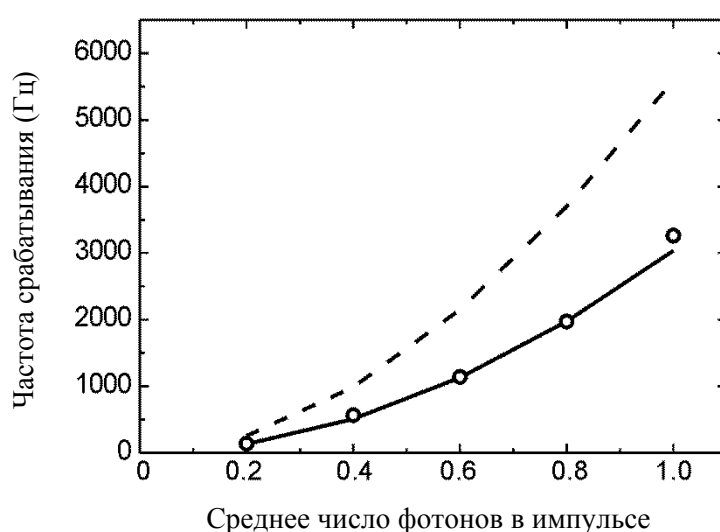


Рис. 5. Экспериментальная (кружки) и теоретическая (сплошная линия) зависимости частоты одновременного срабатывания двух фотодетекторов от среднего числа фотонов в импульсе. Штриховая линия построена для фотодетектора, различающего число зарегистрированных фотонов (см. текст)

Fig. 5. Experimental (circles) and theoretical (solid curve) dependences of the frequency of simultaneous clicks of both photodetectors on the mean photon number per laser pulse. The dashed line is drawn for a photodetector that resolves the number of detected photons (see text)

Обсуждение результатов

В наших экспериментах среднее число фотонов в лазерном импульсе выставлялось косвенно по средней мощности импульсного излучения, измеренной до ослабителя быстрым калиброванным фотоприемником 3 (см. рис. 1). Кроме быстрого фотоприемника, для измерения среднего числа фотонов на импульс может быть использован и обычный детектор одиночных фотонов с известной эффективностью регистрации. Тогда среднее число фотонов в импульсе может быть выставлено напрямую по частоте срабатывания фотодетектора в соответствии с формулой (13).

При атаке с делением числа фотонов для квантового канала с коэффициентом пропускания $T > T_0$ из формулы (2) максимальное количество информации, которое Ева может перехватить без внесения ошибки в квантовый ключ, определяется отношением числа многофо-

тонных импульсов, от которых Ева может отделить по одному фотону, к общему числу импульсов с фотонами. Поэтому чем больше среднее число фотонов в импульсе, тем больше информации получает Ева. Следовательно, Алиса и Боб должны выбрать среднее число фотонов в импульсе таким образом, чтобы оно было наименьшим и в то же время с учетом коэффициента пропускания канала обеспечивало достаточную скорость генерации квантового ключа.

После того как Ева применит атаку с делением числа фотонов непосредственно после Алисы, до Боба дойдет меньшее количество как однофотонных импульсов, так и двухфотонных. Уменьшение общего количества импульсов с фотонами будет сигнализировать Бобу либо об ухудшении пропускания канала, либо об атаке с делением числа фотонов, и может быть обнаружено с помощью даже одного фотодетектора, не различающего число зарегистрированных фотонов. Однако для того чтобы различить случаи ухудшения пропускания канала и атаки с делением числа фотонов, потребуется сравнить количество «пустых», однофотонных и двухфотонных импульсов с распределением Пуассона (3). Для этого потребуется либо фотодетектор, различающий число зарегистрированных фотонов, либо как минимум два обычных фотодетектора.

Как было показано экспериментально и теоретически в предыдущем разделе, вероятность зарегистрировать двухфотонный импульс по одновременному срабатыванию двух обычных фотодетекторов меньше вероятности зарегистрировать двухфотонный импульс фотодетектором, обладающим разрешением по числу зарегистрированных фотонов, в два раза (см. рис. 5). При обнаружении атаки с делением числа фотонов данное уменьшение вероятности не играет существенной роли, так как кратность уменьшения регистрации одно- и двухфотонных импульсов с атакой и без атаки не меняется.

При использовании протокола BB84 можно даже не использовать отдельную контрольную систему из двух фотодетекторов, поскольку такая же система лежит в основе приемного узла. Для этого можно просто измерять вероятности срабатывания только одного из фотодетекторов и одновременного срабатывания двух фотодетекторов и сравнивать их с расчетами по формулам (7) и (8).

Кроме того, как обсуждается в статье [11], Ева может отделять по одному фотону, начиная не с двухфотонных, а с трехфотонных импульсов. Тогда количество информации, которое она получит, уменьшится в несколько раз, но зато такую атаку будет труднее отследить. Это произойдет потому, что теперь на входе Боба сильно изменится число трехфотонных импульсов, в то время как число двухфотонных импульсов радикально не поменяется. В этом случае контрольный фотодетектор с разрешением по числу фотонов будет обладать несомненным преимуществом перед системой из двух обычных фотодетекторов. Выходом из данной ситуации может стать добавление в контрольную систему из двух фотодетекторов третьего фотодетектора.

Заключение

Проведенные нами экспериментальные и теоретические исследования показали, что система из двух обычных детекторов одиночных фотонов в некоторых случаях может заменить фотодетектор, способный различать число зарегистрированных фотонов, для обнаружения классической атаки с делением числа фотонов по изменению распределения числа фотонов в импульсе в квантовом канале с коэффициентом пропускания $T > T_0$ из формулы (2). Вероятность обнаружения двухфотонного импульса для системы из двух обычных фотодетекторов и фотодетектора, различающего число зарегистрированных фотонов, отличается всего в два раза. Данный метод удобен тем, что не требует внесения дополнительных элементов в приемный узел, и может быть реализован программными методами, сравнивающими вероятности срабатывания только одного из детекторов и одновременного срабатывания двух детекторов с расчетами по формулам (7) и (8). Ограничением данного метода может

стать случай, когда Ева отделяет по одному фотону от импульсов, начиная не с двухфотонных, а с трехфотонных импульсов.

Список литературы / References

1. **Gisin N., Ribordy G., Tittel W., Zbinden H.** Quantum cryptography. *Rev. of Mod. Phys.*, 2002, vol. 74, p. 145–195.
2. **Wooters W. K., Zurek W. H.** A Single Quantum Cannot Be Cloned. *Nature*, 1982, vol. 299, p. 802–803.
3. **Bennet C. H., Brassard G.** Quantum cryptography: public key distribution and coin tossing. In: Proc. of IEEE Inter. Conf. on Comput. Sys. and Sign. Proces. Bangalore, India, 1984, p. 175–179.
4. **Bennet C. H., Bessette F., Brassard G., Salvail L.** Experimental quantum cryptography. *J. Cryptology*, 1992, vol. 5, p. 3–28.
5. **Dusek M., Haderka O., Hendrych M.** Generalized beam-splitting attack in quantum cryptography with dim coherent states. *Opt. Commun.*, 1999, vol. 169, p. 103–108.
6. **Liang L., Lin G. W., Hao Y. M., Niu Y. P., Gong S. Q.** Quantum non-demolition measurement of small photon numbers using stored light. *Phys. Rev. A*, 2014, vol. 90, p. 055801.
7. **Scarani V., Acin A., Ribordy G., Gisin N.** Quantum Cryptography Protocols Robust against Photon Number Splitting Attacks for Weak Laser Pulse Implementations. *Phys. Rev. Lett.*, 2004, vol. 92, p. 057901.
8. **Acin A., Gisin N., Scarani V.** Coherent-pulse implementations of quantum cryptography protocols resistant to photon-number-splitting attacks. *Phys. Rev. A*, 2004, vol. 69, p. 012309.
9. **Stucki D., Brunner N., Gisin N., Scarani V., Zbinden H.** Fast and simple one-way quantum key distribution. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, vol. 87, p. 194108.
10. **Hwang Won-Young.** Quantum Key Distribution with High Loss: Toward Global Secure Communication. *Phys. Rev. Lett.*, 2003, vol. 91, p. 057901.
11. **Gaidash A., Egorov V., Gleim A.** Revealing beam-splitting attack in a quantum cryptography system with a photon-number-resolving detector. *Journal of the Optical Society of America B*, 2016, vol. 33, p. 1451–1455.
12. **Lita A. E., Miller A. J., Sae Woo Nam.** Counting near-infrared single-photons with 95 % efficiency. *Optics Express*, 2008, vol. 16, p. 3032–3040.
13. **Kalashnikov D. A., Si Hui Tan, Chekhova M. V., Krivitsky L. A.** Accessing photon bunching with a photon number resolving multi-pixel detector. *Optics Express*, 2011, vol. 19, p. 9352–9363.
14. **Achilles D., Silberhorn C., Sliwa C., Banaszek K., Walmsley I. A.** Fiber-assisted detection with photon number resolution. *Optics Letters*, 2003, vol. 28, p. 2387–2389.
15. **Calsamiglia J., Barnett S. M., Lutkenhaus N.** Conditional beam-splitting attack on quantum key distribution. *Phys. Rev. A*, 2001, vol. 65, p. 012312.
16. **Третьяков Д. Б., Коляко А. В., Плешков А. С., Энтин В. М., Рябцев И. И., Неизвестный И. Г.** Генерация квантового ключа в однофотонных системах связи // *Автометрия*. 2016. Т. 52. С. 44–54.
Tretyakov D. B., Kolyako A. V., Pleshkov A. S., Entin V. M., Ryabtsev I. I., Neizvestny I. G. Quantum Key Distribution in Single-Photon Communication System. *Optoelectronics, Instrumentation and Data Processing*, 2016, vol. 52, no. 5, p. 453–461. (in Russ.)
17. **Рябцев И. И., Третьяков Д. Б., Коляко А. В., Плешков А. С., Энтин В. М., Неизвестный И. Г., Латышев А. В., Асеев А. Л.** Элементная база квантовой информатики II:

Квантовые коммуникации с одиночными фотонами // Микроэлектроника. 2017. Т. 46. С. 131–141.

Ryabtsev I. I., Tretyakov D. B., Kolyako A. V., Pleshkov A. S., Entin V. M., Neizvestny I. G., Latyshev A. V., Aseev A. L. Element Base of Quantum Informatics II: Quantum Communications with Single Photons. *Russian Microelectronics*, 2017, vol. 46, no. 2, p. 121–130. (in Russ.)

*Материал поступил в редколлегию
Received
08.11.2018*

Сведения об авторах / Information about the Authors

Третьяков Денис Борисович, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия); Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Denis B. Tretyakov, Candidate of Science (Physics and Mathematics), Senior Researcher, A. V. Rzhzanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Novosibirsk State University (2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)
dtret@isp.nsc.ru

Коляко Александр Владимирович, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия); Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия); Институт лазерной физики СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 15Б, Новосибирск, 630090, Россия)

Aleksandr V. Kolyako, A. V. Rzhzanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Novosibirsk State University (2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Institute of Laser Physics SB RAS (15B Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)
kolyako@isp.nsc.ru

Плешков Александр Сергеевич, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия); Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия); Институт лазерной физики СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 15Б, Новосибирск, 630090, Россия)

Aleksandr S. Pleshkov, A. V. Rzhzanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Novosibirsk State University (2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Institute of Laser Physics SB RAS (15B Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)
pleshkov@isp.nsc.ru

Энтин Василий Матвеевич, кандидат физико-математических наук, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия); Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Vasiliy M. Entin, Candidate of Science (Physics and Mathematics), A. V. Rzhhanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Novosibirsk State University (2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

ventin@isp.nsc.ru

Рябцев Игорь Ильич, доктор физико-математических наук, член-корреспондент РАН, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия); Новосибирский государственный университет (ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия)

Igor I. Ryabtsev, Doctor of Science (Physics and Mathematics), Corresponding Member of RAS, A. V. Rzhhanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Novosibirsk State University (2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

ryabtsev@isp.nsc.ru

Неизвестный Игорь Георгиевич, доктор физико-математических наук, член-корреспондент РАН, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия); Новосибирский государственный технический университет (пр. К. Маркса, 20, Новосибирск, 630073, Россия)

Igor G. Neizvestny, Doctor of Science (Physics and Mathematics), Corresponding Member of RAS, A. V. Rzhhanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation); Novosibirsk State Technical University (20 K. Marx Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

neizv@isp.nsc.ru

От редколлегии

С 28 мая по 1 июня 2018 г. на базе Института физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН в новосибирском Академгородке проведены конференция и школа молодых ученых по актуальным проблемам спектроскопии комбинационного рассеяния света (с участием иностранных ученых) «Комбинационное рассеяние – 90 лет исследований». Конференция была приурочена к очередному юбилею открытия явления комбинационного рассеяния света.

Продолжаем начатую в предыдущем номере журнала (см. Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 3) публикацию расширенных тезисов наиболее интересных из представленных на этой конференции докладов.

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-106-110

**Complex for Nanoscale Researches
by Using TERS, SNOM, BLS, and SPM Techniques**

J. Jersch, S. Demokritov

*Institute of Applied Physics, University of Muenster
Muenster, Germany*

Abstract

We will focus in on our recent developed Complex for nanoscale research with TERS (Tip Enhanced Raman Scattering), SNOM (Scanning Nearfield Optical Microscopy), BLS (Brillouin Light Scattering) and SPM (Scanning Probe Microscopy) techniques, designed in Laboratory of Nonlinear Magneto dynamic (Head Prof. Dr. S. O. Demokritov) in Institute for Applied Physics and Center for Nonlinear Science, University of Muenster. The Complex, built on base of SPM NTEGRA Spectra C (NTMDT) and 6-pass Tandem-Fabry-Perot-Interferometer (JRS Scientific Instruments), designed for nanotechnology research, mainly on spintronic nanostructures.

Keywords

nanotechnology, scanning probe microscopy, Raman spectroscopy, spin dynamics

For citation

Jersch J., Demokritov S. Complex for Nanoscale Researches by Using TERS, SNOM, BLS, and SPM Techniques. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 106–110. DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-106-110

**Комплекс для наноисследований с использованием методов
зондово-усиленного комбинационного рассеяния (TERS),
сканирующей ближнеполевой оптической микроскопии (SNOM),
спектроскопии Бриллюэновского рассеяния (BLS)
и сканирующей зондовой микроскопии (SPM)**

И. Г. Ерш, С. О. Демокритов

*Институт прикладной физики, Университет г. Мюнстера
Мюнстер, Германия*

Аннотация

Мы сосредоточимся на нашем недавно разработанном Комплексе для наноисследований с использованием методов зондово-усиленного комбинационного рассеяния (TERS), сканирующей ближнеполевой оптической микроскопии (SNOM), спектроскопии Бриллюэновского рассеяния (BLS) и сканирующей зондовой микроскопии (SPM), разработанном в лаборатории нелинейной магнетодинамики (зав. проф., д-р С. О. Демокритов) в Институте прикладной физики университета г. Мюнстера. Комплекс, построенный на основе многофункционального СЗМ ИНТЕГРА Спектра С компании НТМДТ (SPM NTEGRA Spectra C) и 6-проходного Фабри-Перо-тандем-интерферометра (JRS Scientific Instruments), предназначен для нанотехнологических исследований, в основном на наноструктурах для спинтроники.

Ключевые слова

нанотехнологии, сканирующая зондовая микроскопия, рамановская спектроскопия, спиновая динамика

Experimental

The NTEGRA Spectra (NT-MDT) ¹ successfully integrate SPM techniques with optical microscopy and spectroscopy techniques. A number of basic and advanced SPM modes (AFM, MFM,

¹ <https://www.ntmdt-si.com/products/afm-raman-nano-ir-systems/ntegra-spectra-ii>

STM, Kelvin, SThM, SNOM etc.) are supported providing extensive information about the sample surface physical properties. Integration of SPM with confocal Raman / fluorescence microscopy provide the widest range of additional information about the sample. Simultaneously measured AFM, MFM, SThM and Raman maps of exactly the same sample area provide complementary information about sample physical properties (Topography, Magnetic, Temperature) and chemical composition (Raman).

Furthermore, NTEGRA Spectra with the help of Tip Enhanced Raman Scattering (TERS) allows carrying out spectroscopy / microscopy with nanometer scale resolution. Specially prepared AFM or SNOM probes (nanoantennas) can be used for TERS to enhance and localize light at the nanometer scale area near the tip apex.

The related to Raman Technique, BLS Technique (Scattering of Photons on Magnon quanta in our structures) based on Multi-Pass-Tandem-Fabry-Perot Interferometer² is an established method for studying magnetization dynamics in magnetic layer systems, with very high optical quality (resolution in sub-MHz region, damping of higher harmonics better than 10^6). This part of the Complex allows magnon (spin wave) detection with sub micrometer resolution in standard light microscopy design. In combination with SNOM probe the resolution of approximately 50nm is achieved. The probe used is an industrial (WITec GmbH, Nascatec GmbH, Germany, or NTMDT SNOM Tip³) silicon cantilever based hollow pyramidal aluminum tip with a small (50 nm or 100 nm) aperture at the apex to focus the input laser light.

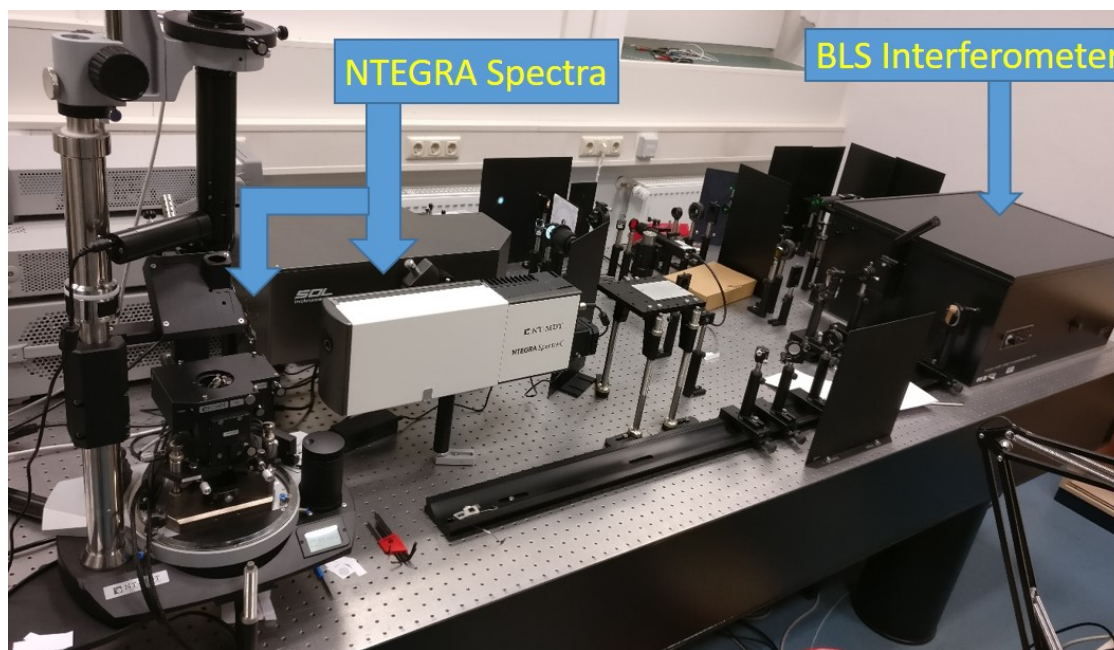


Fig. 1. The Complex for nanoscale research setup on an optical table (table dimension $3\,000 \times 1\,200$ mm)

Furthermore, we modified by FIB technique this SNOM tip, as shown in Fig. 2. A nanoscale Al features on the apex of the pyramidal tip allows higher sensitivity due to tip enhancement and improve the AFM and optical properties of the tip in TERS and SNOM.

² JRS Scientific Instruments Tandem-Fabry-Perot Interferometer TFP-1, Operators Manual, www.jrs-si.ch (2001).

³ <http://www.ntmdt-tips.com/products/group/snom-cantilevers-new>

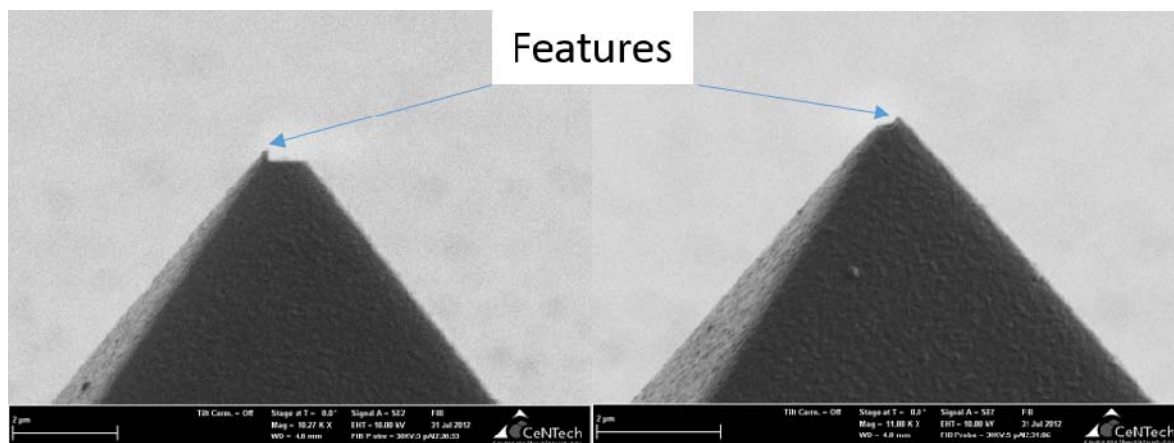


Fig. 2. Modified pyramidal SNOM Tips with features (Apex radius of the features approx. 30 nm)

Applications

Further, we present some measurements carried out on the device. For example [1], we study organic field-effect transistors (OFETs) (essential components for the realization of recyclable integrated circuits). Fig. 3 shows Raman spectra on pentacene (this highly conjugated compound is an organic semiconductor) islands of organic FETs. The signal at approx. 500 $1/\text{cm}$ is from the Si base, around 1500 $1/\text{cm}$ – pentacene.

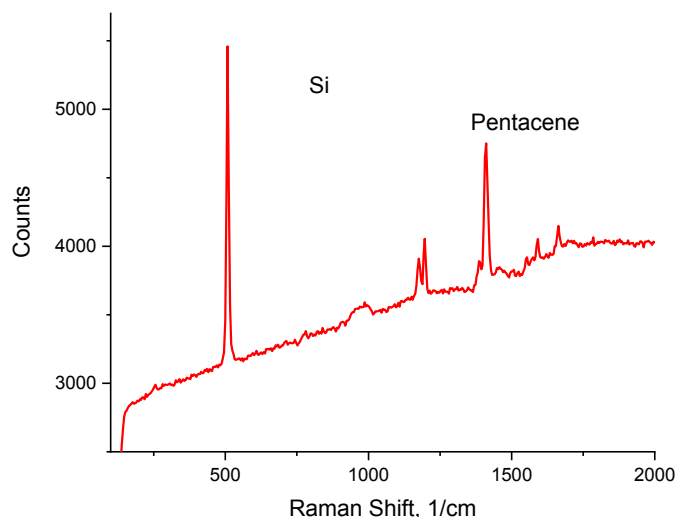


Fig. 3. Raman signal on organic pentacene island

In one of the first application [2], we report on two-dimensional mapping of edge modes in elliptical magnetic elements. Elliptical elements with lateral dimensions of $1.3 \times 2.4 \mu\text{m}^2$ generated by e-beam lithography and ion etching from a 20 nm thick film of $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (Permalloy) were located on top of a microwave microstrip transmission line used for the excitation of spin dynamics. The static uniform magnetic field H is applied along the long axis of the ellipses and is perpendicular to the dynamic magnetic field h as shown in the image below Fig. 4.

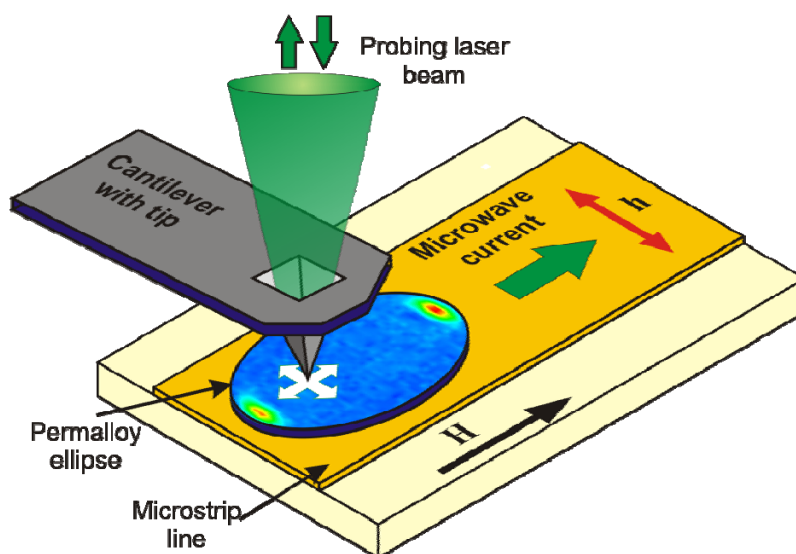


Fig. 4. Experimental setup with pyramidal SNOM-TERS tip

We show (for the first time) that the spatial resolution of this technique is below 55 nm (Fig. 5). Using the approach we found that with increasing applied magnetic field, H , the mode width scales as $1/H$ in agreement with a straightforward qualitative model and can be as small as 85 nm.

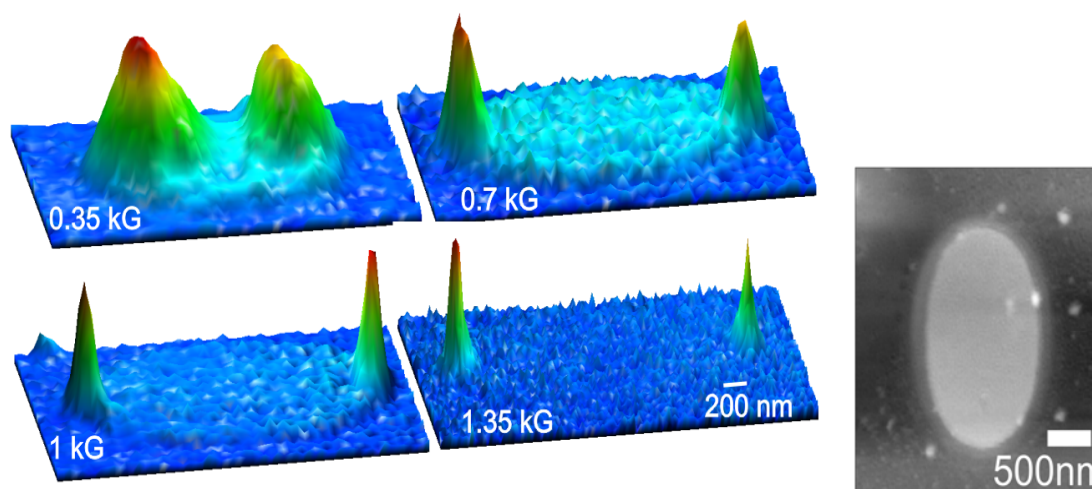


Fig. 5. Successive images of the magnon edge modes intensity in increasing magnetic field and the simultaneously topography scan of the ellipse

Conclusion

A successful demonstration of modified to a research complex, commercially available sophisticated equipment, was performed. It succeeded with a SNOM tip, inherently having a low optical transmission to detect weak Raman scattering on magnons. A high spatial and spectral resolution as well as optical sensitivity thanks to TERS effect shows, that the complex is a promising tool for

a wide field of applications in nanotechnology. The complex can also form a basis for sustainable research in various modern physical branches.

References

1. **Deyang Ji, Johann Jersch, and Harald Fuchs.** Holey Contacts: A New Approach to Enhance Charge Injection through Low-Cost Nanopore-Structured Silver Electrodes in Bottom-Gate Bottom-Contact (BGBC) Organic Field-Effect Transistors. *Adv. Electron. Mater.*, 2016, 1600215, p. 1–7. <https://doi.org/10.1002/aelm.201600215>
2. **Jersch J., Demidov V. E., Fuchs H., Rott K., Krzysteczko P., Münchenberger J., Reiss G., Demokritov S. O.** Mapping of localized spin-wave excitations by near-field Brillouin light scattering. *Appl. Phys. Lett.*, 2010, vol. 97, p. 152502.

Received
14.08.2018

Information about the Authors / Сведения об авторах

Johann Jersch, Institute of Applied Physics, University of Muenster (2/4 Correns Str., DE48149 Muenster, Germany)

Ерш Иван Г., Институт прикладной физики, Университет г. Мюнстера (Корренс-Штрассе, 2/4, Мюнстер, 48149, Германия)
jersch@uni-muenster.de

Sergey Demokritov, Institute of Applied Physics, University of Muenster (2/4 Correns Str., DE48149 Muenster, Germany)

Демокритов Сергей О., Институт прикладной физики, Университет г. Мюнстера (Корренс-Штрассе, 2/4, Мюнстер, 48149, Германия)
demokrit@uni-muenster.de

Разделение вкладов КР и люминесценции в спектрах хромофоров в ближнем поле у поверхности с плазмонными свойствами

Н. Д. Стрекаль¹, В. Ф. Аскирка¹, С. А. Маскевич²

¹ Гродненский государственный университет им. Янки Купалы
Гродно, Беларусь

² Международный экологический институт им. А. Д. Сахарова БГУ
Минск, Беларусь

Аннотация

Наблюдаемый эффект разделения вкладов КР и люминесценции при резонансном возбуждении хромофоров, осажденных непосредственно на поверхности плазмонных пленок или плазмонных кристаллов, обсуждается в рамках влияния размеров наночастиц и спектральной отстройки между положением 0-0 перехода в хромофорах и максимумом полосы резонансного возбуждения локализованных плазмонов. Разделение вкладов КР и флуоресценции хромофоров в первом адсорбционном слое обобщается введением размерно-спектрального фактора.

Ключевые слова

комбинационное рассеяние, гигантское комбинационное рассеяние, флуоресценция, хромофор, ближнее поле

Благодарности

Работа выполнена при финансовой поддержке МО РБ в рамках государственных программ «Конвергенция», «Электроника и фотоника», «Физическое материаловедение, новые материалы и технологии». Образцы плазмонных кристаллов и их АСМ-изображения были любезно предоставлены С. В. Гапоненко. Атомно-силовой микроскоп Nanotechnology Р4-SPM AFM/STM был использован для анализа размеров частиц на поверхности плазмонных пленок и любезно предоставлен И. Ф. Свекло

Для цитирования

Стрекаль Н. Д., Аскирка В. Ф., Маскевич С. А. Разделение вкладов КР и люминесценции в спектрах хромофоров в ближнем поле у поверхности с плазмонными свойствами // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 4. С. 111–116. DOI 10.25205/ 2541-9447-2018-13-4-111-116

Selection of Raman or Fluorescence Contributions in Chromophores Spectra Near the Surface with Plasmon Properties

N. D. Strekal¹, V. F. Askirka¹, S. A. Maskevich²

¹ Yanka Kupala Grodno State University
Grodno, Belarus

² International Sacharov Ecological Institute BSU
Minsk, Belarus

Abstract

The observed effect of Raman and fluorescence contribution separation under resonance excitation of chromophores, deposited directly on the surface of plasmonic films or plasmonic crystals is discussed in the frame of influence of nanoparticles sizes and spectral detuning between the frequency of 0-0 transfer of chromophores and resonance excitation of localized plasmons. The contribution of chromophores Raman scattering and fluorescence in the first adsorption layer is discussed in the frame of a size-spectral factor.

Keywords

Raman scattering, surface-enhanced Raman scattering, fluorescence, chromophore, near-field, dressed photon

Acknowledgements

This work was realized with the financial support of the Ministry of Education of the Republic of Belarus in the frame of the state programs “Convergence”, “Electronics and Photonics”, “Physical Materials Science, New Materials and Technologies”. Samples of plasmon crystals and their AFM images were kindly provided by S. Gaponenko. The atomic force microscope Nanotechnology P4-SPM AFM/STM was used to analyze the size of particles on the surface of plasmon films and was kindly provided by I. F. Sveklo

For citation

Strekal N. D., Askirka V. F., Maskevich S. A. Selection of Raman or Fluorescence Contributions in Chromophores Spectra Near the Surface with Plasmon Properties. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 111–116. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-111-116

Явление усиления электромагнитного поля на интерфейсе «благородный металл – диэлектрик» является ответственным за многие оптические явления. К таким явлениям относятся гигантское комбинационное рассеяние (ГКР) света, генерация второй гармоники, усиленная поверхностью флуоресценция, фотохимия и другие [1]. Общим в них является возбуждение коллективных осцилляций электронов проводимости в металле – так называемых локализованных плазмонов (ЛП) и поверхностных плазмон-поляритонов (ППП). Выделяют три основных типа наноплазмонных структур, с помощью которых можно наблюдать указанные явления: плазмонные кристаллы [2], наночастицы металлов с плазмонным резонансом (далее плазмонные наночастицы) [3] и плазмонные пленки [4]. Плазмонные кристаллы представляют собой периодические решетки на поверхности металла, на которых при специальных условиях могут быть возбуждены ППП, плазмонные наночастицы – коллоидные наночастицы металлов, в которых могут резонансно возбуждаться только ЛП, плазмонные пленки – тонкие (по сравнению с длиной волны света) нанотекстурированные, квазипериодические пленки металлов, в которых под действием света могут быть возбуждены как ППП, так и ЛП. Наша работа посвящена уникальным свойствам плазмонных пленок золота (ППЗ) и плазмонных кристаллов золота (ПКЗ), на поверхности которых благодаря тюнингу размеров частиц металла возникает возможность наблюдать либо гигантское резонансное КР (ГРКР) без флуоресцентного фона, либо усиленную флуоресценцию для хромофоров в ближнем поле плазмонных структур, т. е. осажденных в первом адсорбционном слое, непосредственно на их поверхности. Причем общепринятой является закономерность, при которой при непосредственной адсорбции хромофоров на плазмонные структуры сигнал флуоресценции потушен, а величина тушения определяется размерами наночастиц [5].

На рис. 1 и 2 приведены изображения поверхности ППЗ и ПКЗ, полученные с помощью АСМ и просвечивающей электронной микроскопии соответственно. На этих рисунках представлены также спектры вторичного свечения хромофора (митоксантрон – МИТ), осажденного на поверхности указанных плазмонных образцов в отсутствие каких-либо интерфейсных слоев. Выбор хромофора и длины волны возбуждения (632,8 нм гелий-неонового лазера) осуществлялся исходя из условий резонанса: в ППЗ и ПКЗ эффективно возбуждаются плазмонные резонансы в красно-оранжевой области спектра, где МИТ, в свою очередь, эффективно поглощает свет. В отсутствие подложек с плазмонными свойствами такой подход в выборе резонансного возбуждения обеспечивает регистрацию резонансного КР (РКР), одним из недостатков которого является наличие в спектре РКР значительного флуоресцентного фона, затрудняющего идентификацию колебательных полос хромофора.

С применением ППЗ и ПКЗ, обладающих выраженными плазмонными свойствами, обеспечивается возможность селективно регистрировать качественно разные сигналы анализируемого адсорбированного хромофора: либо это ГРКР без флуоресцентного фона, но с хорошо выраженными колебательными полосами МИТ (спектры 1 на рис. 1 и 2), либо это флуоресцентный сигнал с минимальным числом очень слабых колебательных полос (спектры 2 на рис. 1 и 2). Определяющим фактором в случае обоих типов используемых плазмонных образцов является размер и форма частиц металла, а значит, относительный вклад сечений рассеяния или поглощения света. Действительно, среднестатистические размеры частиц

(радиус кривизны) на ППЗ (1 и 2 на рис. 1) различаются в 2,5 раза, а размеры наноболочек золота на поверхности ПКЗ (1 и 2 на рис. 2) – в 1,9 раза [6].

Так как адсорбция МИТ осуществлялась непосредственно на поверхность плазмонных образцов, то отсутствие флуоресцентного фона (спектры 1 на рис. 1 и 2) не может быть связано с эффектом тушения флуоресценции, поскольку, наоборот, проявление исключительно флуоресцентного сигнала (спектры 2 на рис. 1 и 2) имеет место при одинаковых условиях сорбции, одинаковых резонансных условиях возбуждения. И, наконец, разделение вкладов усиленной флуоресценции и ГРКР не может быть обусловлено конкуренцией процессов усиления и тушения, поскольку и флуоресценция, и ГРКР наблюдаются на рис. 1 и 2 для одних и тех же пар потенциального акцептора (плазмонная подложка) и донора (адсорбированный хромофор). Различаются только размеры и форма частиц металла как в случае ППЗ, так и в случае ПКЗ. Проявление выявленных корреляций распространяется также на флуоресцирующие наночастицы CdSe/ZnS, коллоидные пленки золота и другие системы [7; 8].

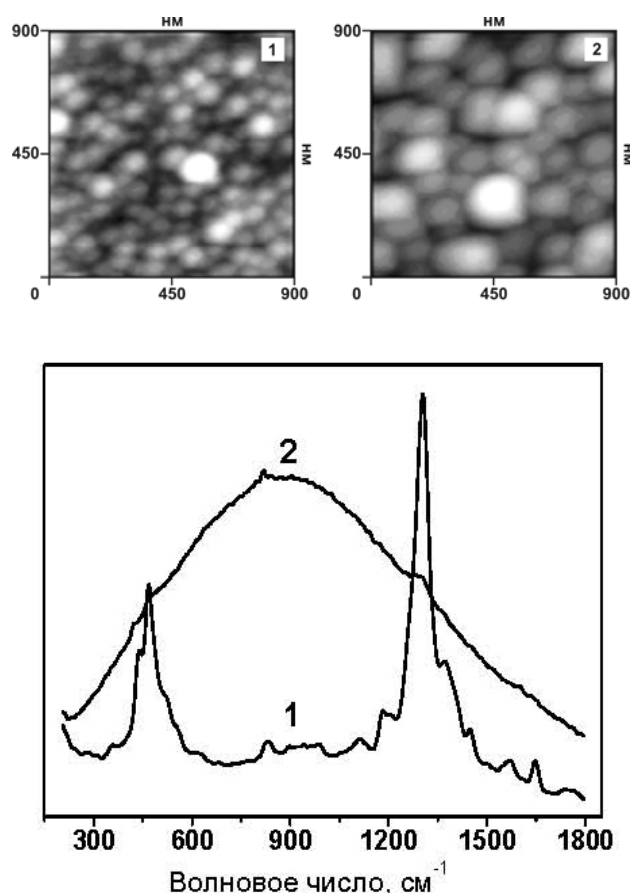


Рис. 1. Полученные с помощью атомно-силового микроскопа изображения поверхности ППЗ с диаметрами кривизны особенностей около 80 нм (1) и 200 нм (2) и соответствующие спектры вторичного свечения МИТ, осажденного на их поверхности (спектры 1 и 2); $\lambda_{\text{возб}} = 633$ нм

Fig. 1. AFM images of the PFG with features diameter curvature of about 80 nm (1) and 200 nm (2) and respective spectra of the secondary emission of the MIT, deposited on their surface (spectra 1 and 2); $\lambda_{\text{exc}} = 633$ nm

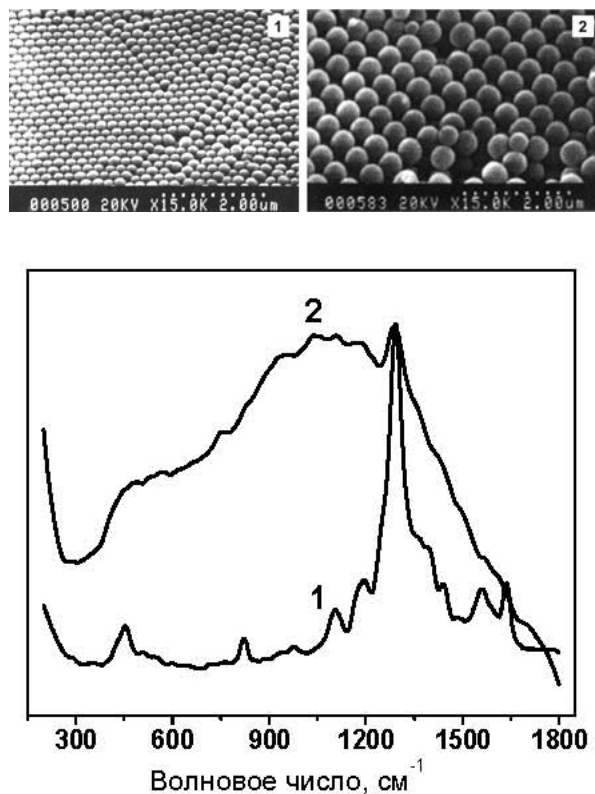


Рис. 2. Полученные с помощью сканирующего электронного микроскопа изображения поверхности ПКЗ с диаметрами коллоидов 270 нм (1) и 530 нм (2) и соответствующие спектры вторичного свечения МИТ, осажденного на их поверхности (спектры 1 и 2); $\lambda_{\text{возб}} = 633$ нм

Fig. 2. SEM images of the PCG with colloids diameter curvature of 270 nm (1) and 530 nm (2) and respective spectra of the secondary emission of the MIT, deposited on their surface (spectra 1 and 2); $\lambda_{\text{exc}} = 633$ nm

Механизм селективного увеличения сечений КР или флуоресценции основывается на резонансном возбуждении ЛП и хромофоров и зависит от двух факторов – спектрального и размерного. Спектральный фактор определяется величиной спектральной отстройки (разности) $\Delta\nu$ между частотой 0-0 перехода в хромофоре и частотой максимума полосы резонансного возбуждения ЛП (рис. 3).

На рис. 3 представлены: диаграмма Франка – Кондона для МИТ (1), нормированные спектры поглощения и флуоресценции водного раствора МИТ (2), спектры поглощения ППЗ (3), а также зависимость интенсивности плазмон-зависимой флуоресценции (ПЗФ) МИТ от положения максимума полосы ЛП (4). Совмещение диаграммы 1 и зависимости 4 (см. рис. 3) демонстрирует максимальную интенсивность ПЗФ при минимальной спектральной отстройке. Обобщение наших многочисленных экспериментальных данных (в том числе и для других хромофоров) позволяет сделать вывод о том, что при $\Delta\nu \rightarrow 0$ имеет место резонанс с чисто электронным переходом и формируется спектр ПЗФ. При $\Delta\nu \geq 250$ мэВ имеет место резонанс с системой колебательных подуровней хромофора и формируется спектр РГКР или ГКР.

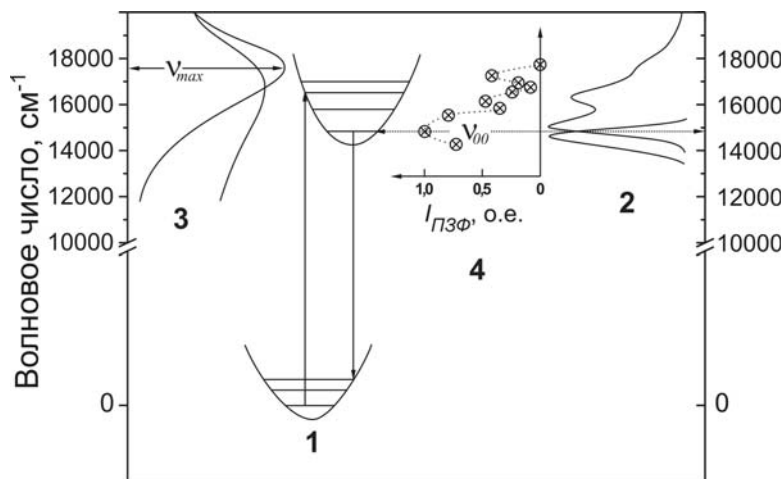


Рис. 3. Совмещенные по шкале волновых чисел: диаграмма электронно-колебательных состояний МИТ (1), нормированные спектры поглощения и флуоресценции микромолярного водного раствора МИТ (2), спектры поглощения ППЗ (3), зависимость интенсивности ПЗФ МИТ от положения максимума полосы ЛП (4)

Fig. 3. Combined on a scale of wave numbers: the diagram of electron-vibrational states of MIT (1), normalized absorption and fluorescence spectra of a micromolar aqueous solution of MIT (2), absorption spectra of the PFG (3), the dependence of the intensity of the PDF of MIT on the position of the LP band maximum (4)

Сечение экстинкции наночастиц, как известно, является суммой сечения поглощения и сечения рассеяния. ПКЗ и особенно ППЗ характеризуются разнообразием частиц по размерам и форме. Преимущественный вклад сечения поглощения для меньших наночастиц определяет их ключевую роль в процессах взаимодействия в области ближнего оптического поля, а сечения рассеяния для больших наночастиц – в процессах распространения сигнала в дальнее поле. На основании этих данных и представленных выше результатов можно сформулировать так называемый размерный фактор, который определяет форму спектра вторичного свечения хромофоров. При этом размер наночастиц является ключевым параметром как для переноса энергии электронного возбуждения между наночастицами и хромофорами в ближнем поле, так и для диссипации энергии в дальнее оптическое поле.

Список литературы / References

1. **Ponath H.-E.** Nonlinear Surface Electromagnetic Phenomena. Amsterdam, North-Holland, 1991, 654 p.
2. **Stewart M. E. et al.** Quantitative multispectral biosensing and 1D imaging using quasi-3D plasmonic crystals. *PNAS*, 2006, no. 103, p. 17143–17148.
3. **Shultz D. A.** Plasmon resonant particles for biological detection. *Curr. Opin. Biotechnol.*, 2003, no. 14, p. 13–22.
4. **Strekal N. D. et al.** Features of the Secondary Emission Enhancement Near Plasmonic Gold Film. *Plasmonics*, 2008, no. 4, p. 1–7.
5. **Xue C. et al.** Size- and shape-dependent fluorescence quenching of gold nanoparticles on perylene dye. *Adv. Optical Mater.*, 2013, no. 1, p. 581–587.
6. **Ponyavina A. N., Kachan S. M., Sil'vanovich N. I.** Statistical theory of multiple scattering of waves applied to three-dimensional layered photonic crystals. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2004, no. 21, p. 1866–1875.

7. **Kulakovich O. et al.** Enhanced Luminescence of CdSe Quantum Dots on Gold Colloids. *Nano Letters*, 2002, no. 2 (12), p. 1449–1452.
8. **Ianoul A., Strekal N., Maskevich S.** Imaging Nanometer Scale Optical Heterogeneities in Phospholipid Monolayers Deposited on Metal Island Films. *JNN*, 2006, no. 6, p. 1–5.

Материал поступил в редколлегию

Received
04.09.2018

Сведения об авторах / Information about the Authors

Стрекаль Наталья Дмитриевна, доктор физико-математических наук, профессор кафедры общей физики, Гродненский государственный университет им. Янки Купалы (ул. Ожешко, 22, Гродно, 230023, Республика Беларусь)

Natalia D. Strekal, Doctor of Science (Physics and Mathematics), Professor, Yanka Kupala State University of Grodno (22 Ozheshko Str., Grodno, 230023, Belarus)

nat@grsu.by

Аскирка Валентин Федорович, магистр естественных наук, старший преподаватель кафедры общей физики, Гродненский государственный университет им. Янки Купалы (ул. Ожешко, 22, Гродно, 230023, Республика Беларусь)

Valentin F. Askirka, master of natural sciences, senior lecturer of the general physics department, Yanka Kupala State University of Grodno (22 Ozheshko Str., Grodno, 230023, Belarus)

vaskirka@grsu.by

Маскевич Сергей Александрович, доктор физико-математических наук, профессор, директор Международного государственного экологического института им. А. Д. Сахарова (ул. Долгобродская, 23, Минск, 220070, Беларусь)

Sergey A. Maskevich, Doctor of Science (Physics and Mathematics), Professor, Director, International Sakharov Ecological Institute BSU (23 Dolgobrodskaya Str., Minsk, 220070, Belarus)

sergei.maskevich@gmail.com

Люминесценция одиночных квантовых точек InAs и AlInAs

В. А. Гайслер, И. А. Дерезов, А. В. Гайслер, Д. В. Дмитриев

*Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН
Новосибирск, Россия*

Аннотация

Исследована система квантовых точек на основе твердых растворов $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ / $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$. Использование широкозонных твердых растворов $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ в качестве основы квантовых точек позволяет существенно расширить спектральный диапазон излучения в коротковолновую область, включая участок длин волн вблизи 770 нм, представляющий интерес для разработки аэрокосмических систем квантовой криптографии. Методом криогенной микрофотолюминесценции изучены оптические характеристики одиночных $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ квантовых точек, выращенных по механизму Странского-Крастанова. С использованием интерферометра Хэнбери Брауна – Твисса исследована статистика излучения экситонных состояний одиночных квантовых точек. Функция парных фотонных корреляций отчетливо демонстрирует субпуассоновский характер статистики излучения, что является прямым подтверждением возможности создания излучателей одиночных фотонов на основе $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ квантовых точек. На участке длин волн вблизи 770 нм исследована тонкая структура экситонных состояний квантовых точек. Показано, что величина расщепления экситонных состояний сравнима с естественной шириной экситонных линий, что представляет большой интерес для разработки излучателей пар запутанных фотонов на основе $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ квантовых точек.

Ключевые слова

полупроводниковые квантовые точки, экситон, биэкситон, тонкая структура экситонных состояний, субпуассоновская статистика, излучатели одиночных фотонов, излучатели фотонных пар, запутанных по поляризации

Для цитирования

Гайслер В. А., Дерезов И. А., Гайслер А. В., Дмитриев Д. В. Люминесценция одиночных квантовых точек InAs и AlInAs // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 4. С. 117–125. DOI 10.25205/ 2541-9447-2018-13-4-117-125

Luminescence of InAs and AlInAs Single Quantum Dots

V. A. Gaisler, I. A. Derebezov, A. V. Gaisler, D. V. Dmitriev

*A. V. Rzhanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS
Novosibirsk, Russian Federation*

Abstract

A system of quantum dots on the basis of $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}/\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ solid solutions has been studied. The usage of broadband $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ solid solutions as the basis of quantum dots makes it possible to expand considerably the spectral emission range into the short-wave region, including the wavelength region near 770 nm being of interest for the design of aerospace systems of quantum cryptography. The optical characteristics of single $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ quantum dots grown according to the Stranski-Krastanov mechanism are studied by the cryogenic microphotoluminescence method. Hanbury Brown and Twiss experiment has been carried out to measure the photon statistics. Photon correlation function demonstrates a clear photon antibunching effect, what is a direct evidence of single photon emission by $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ single quantum dots. The fine structure of exciton states of quantum dots is studied in the wavelength region near 770 nm. It is shown that the splitting of exciton states is comparable with the natural width of exciton lines, which is of great interest for the design of emitters of pairs of entangled photons on the basis of $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ quantum dots.

Keywords

semiconductor quantum dots, exciton, biexciton, fine structure splitting, subpoisson statistic, single photon emitters, emitters of entangled photon pairs

© В. А. Гайслер, И. А. Дерезов, А. В. Гайслер, Д. В. Дмитриев, 2018

For citation

Gaisler V. A., Derebezov I. A., Gaisler A. V., Dmitriev D. V. Luminescence of InAs and AlInAs Single Quantum Dots. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 117–125. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-117-125

Излучатели одиночных фотонов и излучатели фотонных пар, запутанных по поляризации, являются ключевыми элементами разрабатываемых квантовых оптических информационных систем и систем квантовой криптографии [1; 2]. Одним из перспективных вариантов практической реализации данных излучателей является использование самоорганизованных полупроводниковых квантовых точек [3–7]. На основе одиночных полупроводниковых квантовых точек разрабатываются эффективные полностью твердотельные излучатели одиночных фотонов как с оптической, так и с токовой накачкой [8–10]. Одиночные квантовые точки могут являться и излучателем пар запутанных фотонов, что происходит в процессе каскадной рекомбинации биэкситона и экситона в случае, если экситонные состояния вырождены по энергии или же их расщепление ΔE_{FS} не превышает естественную ширину экситонных уровней $\Gamma_X = \hbar/\tau_X$, где τ_X – время жизни экситона [7; 11–14]. В этом случае излучается пара фотонов, запутанных по поляризации [7; 11].

В настоящее время наиболее изученной является система InAs квантовых точек, уникальной особенностью которой является широкий спектральный диапазон, достигающий ~ 400 нм и включающий в себя первый и второй телекоммуникационные стандарты ($\sim 0,9, 1,3$ мкм). С использованием одиночных InAs квантовых точек продемонстрировано однофотонное излучение и излучение пар запутанных фотонов на длинах волн вблизи первого телекоммуникационного стандарта [5; 7; 8–16].

Расширение спектрального диапазона излучения квантовых точек в коротковолновую область представляет интерес как для исследований физики новых низкоразмерных полупроводниковых систем, так и для создания источников излучения систем атмосферной или аэрокосмической квантовой криптографии. Оптимальным участком длин волн для данных систем признан участок вблизи 770 нм [1], что обусловлено максимальной чувствительностью кремниевых фотоприемников в данном диапазоне, минимальным поглощением атмосферного слоя и минимальными флуктуациями локального показателя преломления воздушной среды, что необходимо для сохранения поляризации фотонов.

В данной работе исследованы механизмы формирования и оптические характеристики квантовых точек на основе твердых растворов $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ / $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$. Использование широкозонных твердых растворов $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ в качестве основы квантовых точек позволяет существенно расширить спектральный диапазон излучения в коротковолновую область, включая участок длин волн вблизи 770 нм, представляющий интерес для разработки аэрокосмических систем квантовой криптографии. С использованием интерферометра Хэнбери Брауна-Твисса установлен субпуассоновский характер статистики излучения экситонных состояний, что является прямым подтверждением возможности создания излучателей одиночных фотонов на основе $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ квантовых точек. На участке длин волн вблизи 770 нм исследована тонкая структура экситонных состояний квантовых точек. Показано, что для субансамбля $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ квантовых точек выполняется условие $\Delta E_{FS} \approx \Gamma_X$, необходимое для генерации пар запутанных фотонов.

Исследованные структуры выращивались на установке молекулярно-лучевой эпитаксии «Riber C21» на подложках GaAs с ориентацией (001). Были изучены $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ / $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ квантовые точки с составом в интервале $x = 0\text{--}0,3$ с шагом 0,05, при этом состав слоев $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ задавался согласно $y \approx 1,7 \cdot x$. Слои $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ квантовых точек выращивались по механизму Странского-Крастанова при температуре $T = 505^\circ\text{C}$ [3–7]. На поверхности $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ выращивался слой $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ критической толщины (~ 2 монослоев (МС)), по достижении которой начинал формироваться массив самоорганизованных $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ квантовых

точек. Скорость роста $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ слоев составляла 0,045 МС/с. Момент перехода от двумерного механизма роста к трехмерному контролировался методом дифракции быстрых электронов. По достижении критической толщины процесс роста $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ прекращался, и в течение времени τ_{GI} формировался массив $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ квантовых точек по механизму Оствальда [19–22], после чего слой $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ КТ зарастивался $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$. Время ростовой паузы $\tau_{GI} = 10$ с.

Структуры $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As} / \text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ квантовых точек исследовались методами макро- и микрофотолюминесценции, площадь пятна возбуждающего лазера на поверхности структуры составляла 3 000 и 3 μm^2 соответственно. Для возбуждения люминесценции использовалось излучение Nd:YAG лазера с длиной волны 532 нм, работающего в непрерывном режиме. Люминесценция регистрировалась с помощью однократного монохроматора, оснащенного охлаждаемым Ge-pin фотодиодом (макролюминесценция), или с использованием тройного монохроматора «TriVista-555» с охлаждаемой матрицей Si фотоприемников (микролюминесценция).

Интерферометр Хэнбери Брауна-Твисса был собран по классической схеме [5; 7]. Излучение квантовой точки, проходя первый монохроматор «TriVista-555», направлялось на светоделительную неполяризующую призму «50/50 CCM1-BS014», которая разделяла падающий световой поток строго поровну. Излучение в каждом из каналов регистрировалось счетчиками фотонов на основе Si лавинных фотодиодов «PerkinElmer SPCM-AQRH-15». Статистика излучения квантовых точек анализировалась с использованием счетчика совпадений «PicoHarp 300».

На рис. 1, а приведены спектры макролюминесценции трех структур, содержащих $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As} / \text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ квантовые точки. На рис. 1, б горизонтальными отрезками обозначен спектральный диапазон излучения $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As} / \text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ квантовых точек различного состава при $T = 295$ К. Представленные данные демонстрируют существенное расширение спектрального диапазона излучения квантовых точек в коротковолновую область (до 200 нм), включая участок длин волн вблизи 770 нм, представляющий интерес для разработки атмосферных систем квантовой криптографии. Данные, приведенные на рис. 1, были получены на участках исследуемых структур, содержащих массивы $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As} / \text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ КТ высокой плотности ($d \geq 10^{10} \text{ см}^{-2}$).

Для исследования характеристик одиночных квантовых точек требуются области с низкой плотностью $d \leq 10^8 \text{ см}^{-2}$. В работе для решения этой задачи использовался следующий подход. Рост слоя $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ осуществлялся без вращения подложки. Это задавало существенный градиент скорости роста данного слоя по поверхности структуры. В итоге, согласно данным атомно-силовой микроскопии, структура содержала участки квантовых точек различной плотности в диапазоне от нулевой до предельно высокой $d \approx 10^{11} \text{ см}^{-2}$.

Наличие областей с низкой плотностью квантовых точек на подготовленных структурах позволяет уверенно адресоваться к одиночным квантовым точкам и исследовать их оптические характеристики с использованием методики микрофотолюминесценции. В данной работе при исследовании люминесценции одиночных квантовых точек наибольшее внимание уделялось участку длин волн вблизи 770 нм, наиболее подробно были исследованы области с низкой плотностью квантовых точек структуры $\text{Al}_{0,1}\text{In}_{0,9}\text{As} / \text{Al}_{0,24}\text{Ga}_{0,76}\text{As}$. Интерпретация пиков люминесценции одиночных квантовых точек проводилась с использованием зависимостей интенсивностей пиков от мощности излучения возбуждающего лазера. При наименьших мощностях возбуждения в спектрах люминесценции в первую очередь проявляются пики экситонов X, и зависимость их интенсивности от мощности линейна. При больших мощностях в спектрах появляются пики биэкситонов XX, интенсивность которых возрастает по квадратичному закону от плотности мощности лазера [5; 7].

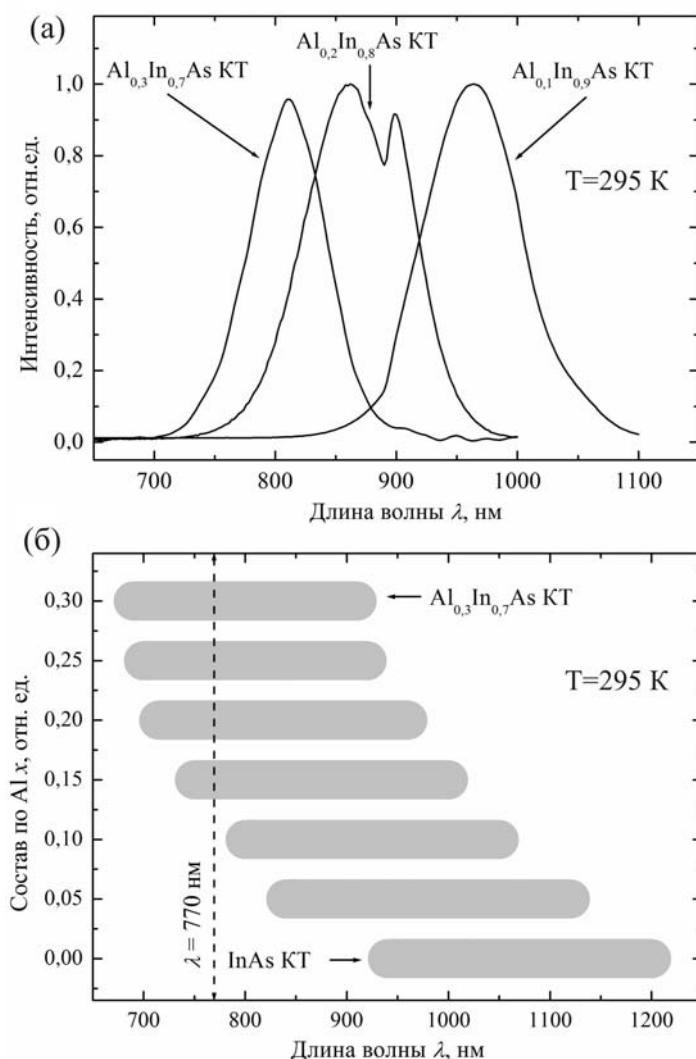


Рис. 1. Спектры фотолуминесценции трех структур, содержащих $\text{Al}_{0.1}\text{In}_{0.9}\text{As}$, $\text{Al}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ и $\text{Al}_{0.3}\text{In}_{0.7}\text{As}$ квантовые точки (а). Спектральный диапазон излучения $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ / $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ квантовых точек различного состава x от 0 до 0,3 (б)

Fig. 1. Photoluminescence spectra of three structures containing $\text{Al}_{0.1}\text{In}_{0.9}\text{As}$, $\text{Al}_{0.2}\text{In}_{0.8}\text{As}$ and $\text{Al}_{0.3}\text{In}_{0.7}\text{As}$ QDs (a). Spectral emission range of $\text{Al}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$ / $\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{As}$ QDs with different compositions x from 0 to 0.3 (b)

Статистика излучения квантовых точек анализировалась на основе измерения парных фотонных корреляций, получаемых с помощью интерферометра Хэнбери Брауна-Твисса. Нами измерялся коррелятор второго порядка, или коррелятор интенсивностей I :

$$g^2(\tau) = \frac{\langle I_1(t)I_2(t+\tau) \rangle}{\langle I_1(t) \rangle \langle I_2(t) \rangle}. \quad (1)$$

В (1) угловые скобки означают усреднение по ансамблю, τ – время задержки в регистрируемой паре фотонов, задаваемое электронным блоком интерферометра Хэнбери Брауна-Твисса.

При пуассоновской статистике излучения $g^2(\tau) = 1$, что означает полное отсутствие корреляции излучения фотонов [5; 7]. Для суперпуассоновского излучения, где проявляется эффект группировки (bunching) фотонов, $1 < g^2(\tau) < 2$. При субпуассоновской статистике излучения (разгруппировка фотонов (antibunching)) $g^2(\tau) < 1$. В идеальном случае, когда рассматриваются однофотонные Фоковские состояния и задержка регистрации пар фотонов $\tau = 0$, интерферометр Хэнбери Брауна-Твисса не зарегистрирует совпадений: $g^2(0) = 0$.

На вставке рис. 2, а приведен участок спектра излучения квантовых точек, выделяемый первым монохроматором «TriVista555», который был исследован на интерферометре Хэнбери Брауна-Твисса. Как видно из рисунка, в спектре доминирует один пик с длиной волны $\lambda \approx 770$ нм, относящийся к рекомбинации экситонного состояния одиночной квантовой точки $\text{Al}_{0,1}\text{In}_{0,9}\text{As} / \text{Al}_{0,24}\text{Ga}_{0,76}\text{As}$. Необходимо отметить, что наряду с этим пиком в спектре также проявляются менее интенсивные пики, относящиеся, предположительно, к биэкситонным и трионным состояниям данной квантовой точки или других квантовых точек.

На рис. 2, а представлена зависимость $g^2(\tau)$, измеренная для данного спектрального участка излучения. При $\tau = 0$ зависимость $g^2(\tau)$ имеет ярко выраженный минимум, $g^2(0) \approx 0,46$, что указывает на субпуассоновский тип статистики излучения. Конечное быстродействие счетчиков фотонов, шумы Si лавинных фотодиодов, используемых в интерферометре Хэнбери Брауна-Твисса, а также проявление других квантовых точек являются причинами того, что при $\tau = 0$ $g^2(0) > 0$.

На зависимости $g^2(\tau)$ слева и справа от точки $\tau = 0$ проявляются участки с $g^2(\tau) > 1$ (суперпуассоновская статистика излучения). Этот эффект, предположительно, может быть объяснен проявлением биэкситонных и трионных состояний исследуемой квантовой точки, излучение которых скоррелировано с излучением экситонного состояния.

В идеальных квантовых точках оптически активные экситоны, образованные основными электронными и дырочными состояниями с моментами $(+1/2; -3/2)$ и $(-1/2; +3/2)$, вырождены по энергии. В реальных квантовых точках это вырождение снимается за счет отклонения формы от идеальной, а также влияния пьезопотенциала, индуцированного встроенными механическими напряжениями [5; 7]. Величина расщепления экситонных уровней ΔE_{FS} определяется набором факторов – как, например, степень отклонения формы квантовых точек от идеальной и влияние пьезопотенциала, значение которого возрастает с увеличением размера квантовых точек [7; 15; 16]. При ΔE_{FS} , значительно превосходящих Γ_X , излучение экситона и биэкситона линейно поляризовано вдоль кристаллографических направлений $[110]$ и $[1\bar{1}0]$. Соответственно, спектры люминесценции, записанные для поляризаций вдоль направлений $[110]$ и $[1\bar{1}0]$, будут содержать пики экситонов $X[110]$, $X[1\bar{1}0]$ и биэкситонов $XX[110]$, $XX[1\bar{1}0]$, смещенных друг относительно друга, на величину ΔE_{FS} , что позволяет непосредственно из спектров излучения определять параметр расщепления экситонных состояний ΔE_{FS} . В данной работе величина ΔE_{FS} определялась как разница энергий фотонов $X[110]$ и $X[1\bar{1}0]$, отвечающих экситонной рекомбинации в квантовой точке.

Как отмечалось, идеальные квантовые точки с вырожденными по энергии экситонными состояниями ($\Delta E_{FS} = 0$) и квантовые точки с малым расщеплением экситонных состояний ($\Delta E_{FS} \approx \Gamma_X = \hbar/\tau_X$) могут быть источниками пар запутанных фотонов [7]. При выполнении этих условий в процессе каскадной рекомбинации биэкситона и экситона излучаются пары фотонов, запутанных по поляризации. Согласно литературным данным время жизни экситона τ_X при криогенных температурах составляет $\sim 10^{-9}$ с [5–7; 23], что задает ширину экс-

тонного пика Γ_X на уровне 10^{-6} эВ. Таким образом, для разработки излучателей фотонных пар представляют интерес квантовые точки, в которых величина ΔE_{FS} не превышает нескольких микроэлектронвольт. Для поиска квантовых точек, отвечающих данному требованию, погрешность определения ΔE_{FS} должна быть также на уровне единиц микроэлектронвольт.

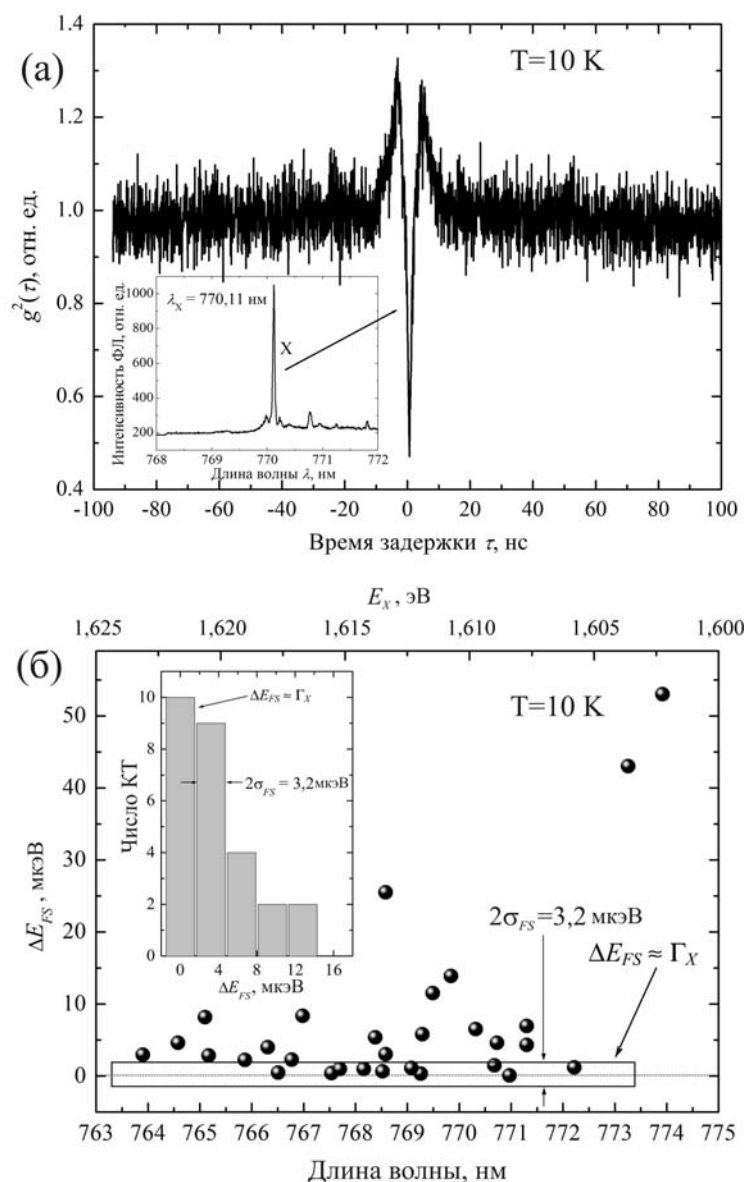


Рис. 2. Функция парных фотонных корреляций $g^2(\tau)$, на вставке участок спектра излучения $\text{Al}_{0.1}\text{In}_{0.9}\text{As}/\text{Al}_{0.24}\text{Ga}_{0.76}\text{As}$ квантовой точки, исследуемый с использованием интерферометра Хэнбери Брауна-Твисса (а). Расщепление экситонных состояний ΔE_{FS} для 30 $\text{Al}_{0.1}\text{In}_{0.9}\text{As}/\text{Al}_{0.24}\text{Ga}_{0.76}\text{As}$ КТ (б). В прямоугольной рамке выделены экспериментальные точки, для которых ΔE_{FS} сравнимо с естественной шириной экситонных состояний

Fig. 2. Second-order correlation measurement $g^2(t)$, the inset displays a micro-photoluminescence spectrum of a $\text{Al}_{0.1}\text{In}_{0.9}\text{As}/\text{Al}_{0.24}\text{Ga}_{0.76}\text{As}$ QD (a). Splitting of exciton states for 30 $\text{Al}_{0.1}\text{In}_{0.9}/\text{Al}_{0.24}\text{Ga}_{0.76}\text{As}$ QDs. The inset shows the histogram of the number of QDs versus for the interval from 0 to 16 μeV ; the column width is twice the measurement error 3.2 μeV , comparable with the natural width of exciton levels (b)

В работе для увеличения точности определения параметра ΔE_{FS} экспериментальные контуры пиков люминесценции аппроксимировались контурами Лоренца. Максимум контура Лоренца принимался за максимум пика. С использованием данной процедуры погрешность в определении параметра ΔE_{FS} составляла $\sigma_{FS} = \pm 1,6$ мкэВ, что сравнимо с естественной шириной экситонных пиков Γ_X .

В диапазоне длин волн 770 ± 5 нм были исследованы характеристики 30 одиночных квантовых точек системы $Al_{0,1}In_{0,9}As$ / $Al_{0,24}Ga_{0,76}As$. Полученные экспериментальные данные по параметру ΔE_{FS} для этих квантовых точек представлены на рис. 2, б. Из рисунка видно, что в ряде квантовых точек расщепление экситонных состояний значительно, и максимальная зарегистрированная величина составляет $\Delta E_{FS} \approx 50$ мкэВ. При этом большая часть квантовых точек характеризуется $\Delta E_{FS} \leq 10$ мкэВ. И, наконец, примерно для 30 % исследованных $Al_{0,1}In_{0,9}As$ / $Al_{0,24}Ga_{0,76}As$ квантовых точек выполняется условие $\Delta E_{FS} \approx \Gamma_X$. На рис. 2, б эта группа квантовых точек отмечена прямоугольной рамкой. На вставке рис. 2, б приведена гистограмма распределения числа квантовых точек от ΔE_{FS} для интервала ΔE_{FS} от $-1,6$ до 16 мкэВ, ширина столбца равна удвоенной погрешности измерений $3,2$ мкэВ, сравнимой с естественной шириной экситонных уровней Γ_X . Как видно из гистограммы, максимум распределения приходится на квантовые точки с $\Delta E_{FS} = 0 \pm 1,6$ мкэВ. Очевидно, что данная выборка квантовых точек представляет большой интерес для создания излучателей фотонных пар на основе $Al_xIn_{1-x}As$ квантовых точек.

Таким образом, в данной работе исследована система квантовых точек на основе твердых растворов $Al_xIn_{1-x}As$ / $Al_yGa_{1-y}As$. Использование широкозонных твердых растворов $Al_xIn_{1-x}As$ в качестве основы КТ позволило существенно расширить спектральный диапазон излучения в коротковолновую область, включая участок длин волн вблизи 770 нм, представляющий интерес для разработки аэрокосмических систем квантовой криптографии.

С использованием интерферометра Хэнбери Брауна-Твисса установлен субпуассоновский характер статистики излучения экситонных состояний, что является прямым подтверждением возможности создания излучателей одиночных фотонов на основе $Al_xIn_{1-x}As$ квантовых точек.

Методом криогенной микрофотолюминесценции изучены оптические характеристики одиночных $Al_xIn_{1-x}As$ КТ. На участке длин волн вблизи 770 нм исследована тонкая структура экситонных состояний квантовых точек и показано, что величина расщепления экситонных состояний сравнима с естественной шириной экситонных линий, что представляет большой интерес для разработки излучателей пар запутанных фотонов на основе $Al_xIn_{1-x}As$ квантовых точек.

Список литературы / References

1. **Gisin N., Ribordy G., Tittel W., Zbinden H.** Quantum cryptography. *Reviews of Modern Physics*, 2002, vol. 74, no. 1, p. 145–195.
2. **Bouwmeester D., Ekert A. K., Zeilinger A.** The Physics of Quantum Information. Berlin, Springer, 2000, 314 p.
3. **Bimberg D., Grundmann M., Ledentsov N.** Quantum Dot Heterostructures. Chichester, John Wiley & Sons, 1999. 328 p.
4. Semiconductor Nanostructures. Ed. by D. Bimberg. Berlin, Springer-Verlag, 2008, 357 p.
5. Single Quantum Dots, Fundamentals, Applications and New Concepts. Ed. by P. Michler. Berlin, Springer-Verlag, 2003, 347 p.
6. Self-Assembled Quantum Dots. Ed. by Z. M. Wang. New York, Springer Science + Business Media, LLC, 2008, 463 p.

7. Single Semiconductor Quantum Dots. Ed. by P. Michler. Berlin, Springer-Verlag, 2009, 389 p.
8. **Lochmann A., Stock E., Schulz O. et al.** Electrically driven single quantum dot polarized single photon emitter. *Electron. Lett.*, 2009, vol. 45, no. 13, p. 566–567.
9. **Bimberg D., Stock E., Lochmann A. et al.** Quantum dots for single – and entangled – photon emitters. *IEEE Photon. Journ.*, 2009. vol. 1, no. 1, p. 58–68.
10. **Heindel T., Kessler C., Rau M. et al.** Quantum key distribution using quantum dot single – photon emitting diodes in the red and near infrared spectral range. *New Journ. Phys.*, 2012, no. 14, p. 083001.
11. **Benson O., Santori C., Pelton M., Yamamoto Y.** Regulated and entangled photons from a single quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, vol. 84, no. 11, p. 2513–2516.
12. **Stevenson R. M., Young R. J., Atkinson P. et al.** A semiconductor source of triggered entangled photon pairs. *Nature*, 2006, no. 439, p. 179–182.
13. **Mohan A., Felici M., Gallo P. et al.** Polarization-entangled photons produced with high-symmetry site-controlled quantum dots. *Nature Photon*, 2010, no. 4, p. 302–306.
14. **Stevenson R. M., Salter C. L., Nilsson J. et al.** Indistinguishable entangled photons generated by a light-emitting diode. *Phys. Rev. Lett.*, 2012, vol. 108, no. 4, p. 040503.
15. **Seguin R., Schliwa A., Germann T. D. et al.** Control of fine-structure splitting and excitonic binding energies in selected individual InAs / GaAs quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, no. 89, p. 263109.
16. **Seguin R., Schliwa A., Rodt S. et al.** Quantum-dot size dependence of exciton fine-structure splitting. *Physica E*, 2006, no. 32, p. 101–103.
17. **Walls D. F., Milburn G. J.** Quantum Optics. Berlin, Springer-Verlag, 2008, 437 p.
18. **Grundmann M.** The Physics of Semiconductors. Heidelberg, Springer, 2010, 864 p.
19. **Li L. H., Chauvin N., Patriarche G., Alloing B., Fiore A.** Growth – interruption – induced low – density InAs quantum dots on GaAs. *J. Appl. Phys.*, 2008, no. 104, p. 083508.
20. **Krzyzewski T. J., Jones T. S.** Ripening and annealing effects in InAs / GaAs (001) quantum dot formation. *J. Appl. Phys.*, 2004, no. 96, p. 668–674.
21. **Muller-Kirsch L., Heitz R., Pohl U. W., Bimberg D.** Temporal evolution of GaSb / GaAs quantum dot formation. *Appl. Phys. Lett.*, 2001, no. 79, p. 1027–1029.
22. **Pohl U. W., Potschke K., Schliwa A. et al.** Evolution of a multimodal distribution of self-organized InAs / GaAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, 2005, no. 72, p. 245332.
23. **Mano T., Abbarchi M., Kuroda T. et al.** Self-Assembly of Symmetric GaAs Quantum Dots on (111)A Substrates: Suppression of Fine-Structure Splitting. *Appl. Phys. Express*, 2010, no. 3, p. 065203.

Материал поступил в редколлегию
Received
14.08.2018

Сведения об авторах / Information about the Authors

Гайслер Владимир Анатольевич, доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия)

Vladimir A. Gaisler, Doctor of Science (Physics and Mathematics), A. V. Rzhanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

vahvah55@mail.ru

Деребзов Илья Александрович, кандидат физико-математических наук, младший научный сотрудник, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия)

Ilya A. Derebezov, Candidate of Science (Physics and Mathematics), A. V. Rzhanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

Гайслер Алексей Владимирович, кандидат физико-математических наук, младший научный сотрудник, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия)

Aleksey V. Gaisler, Candidate of Science (Physics and Mathematics), A. V. Rzhanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

Дмитриев Дмитрий Владимирович, младший научный сотрудник, Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН (пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия)

Dmitriy V. Dmitriev, A. V. Rzhanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS (13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

УДК 543.424.2; 549.212
DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-126-130

Структурные особенности природных углеродистых веществ разного генезиса по данным спектроскопии комбинационного рассеяния света

Т. Н. Мороз, С. В. Горяйнов, В. А. Пономарчук

*Институт геологии и минералогии им. В. С. Соболева СО РАН
Новосибирск, Россия*

Аннотация

Методом неразрушающей спектроскопии комбинационного рассеяния света изучены структурные характеристики природных углеродистых веществ и их взаимосвязь с температурой образования, сорбционными свойствами в породах с различной концентрацией углерода. Параметры КР спектров первого порядка, а именно, положение и ширины полос позволили разделить образцы разного генезиса. Показаны вариации степени структурного разупорядочения графитов и углеродистых веществ как в пределах одного месторождения, так и в образцах разных месторождений.

Ключевые слова

графит, углеродистое вещество, комбинационное рассеяние

Благодарности

Работа выполнена в рамках государственного задания, проект № 0330-2016-00170020, при частичной поддержке РФФИ, проект № 18-17-00120

Для цитирования

Мороз Т. Н., Горяйнов С. В., Пономарчук В. А. Структурные особенности природных углеродистых веществ разного генезиса по данным спектроскопии комбинационного рассеяния света // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 4. С. 126–130. DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-126-130

Structural Peculiarities of Natural Carbonaceous Materials: Raman Spectroscopy Data

T. N. Moroz, S. V. Goryainov, V. A. Ponomarchuk

*Sobolev Institute of Geology and Mineralogy SB RAS
Novosibirsk, Russian Federation*

Abstract

The structural characteristics of natural carbonaceous materials and their relationship with the formation temperature, sorption properties in rocks with different carbon concentrations studied by the method of nondestructive Raman spectroscopy. Parameters of Raman spectra of the first order, namely, the position and width of the bands, made it possible to separate samples of different genesis. The carbonaceous materials are substantially differed in their structural order both in samples obtained from the same deposit and, to a greater extend, in samples obtained from different deposits.

Keywords

natural graphite, carbonaceous materials, Raman spectra

Acknowledgements

The work was conducted within the governmental task, project no. 0330-2016-00170020. The partial support of the Russian Science Foundation, project no. 18-17-00120, is gratefully acknowledged

For citation

Moroz T. N., Goryainov S. V., Ponomarchuk V. A. Structural Peculiarities of Natural Carbonaceous Materials: Raman Spectroscopy Data. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 126–130. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-126-130

© Т. Н. Мороз, С. В. Горяйнов, В. А. Пономарчук, 2018

ISSN 2541-9447

Сибирский физический журнал. 2018. Том 13, № 4
Siberian Journal of Physics, 2018, vol. 13, no. 4

Преимущества метода неразрушающей КР спектроскопии при исследовании различных модификаций углерода в макро-, микро- и наносоединениях сделали его одним из наиболее востребованных и традиционных в мировой практике [1–3]. Сведения о КР спектрах природных углеродистых веществ и графитов из месторождений различных типов в отечественной литературе немногочисленны, тогда как в зарубежной литературе в последние десятилетия вопросам определения методом КР спектроскопии степени графитизации и влияния на нее различных факторов посвящено множество работ [4–7]. Микро-КР спектроскопия позволяет исследовать УВ непосредственно в породе, что обусловило ее широкое применение в науках о Земле. Наиболее информативными параметрами КР спектра являются положение и ширина полос графита G и дефектной полосы D1 (рис. 1). Изучение черносланцевых пород из золоторудных месторождений России и Казахстана показало, что более упорядоченный графитизированный материал находится в месторождениях Маломыр и Сухой Лог (Россия), где углерод диффундировал в мусковитовую матрицу, а разупорядоченный и менее упорядоченный – в Суздальском месторождении [8; 9]. Руды черносланцевых месторождений относятся к упорным, и извлекаемость металлов из них зависит от состояния углеродистого вещества, с увеличением упорядоченности которого сорбционная активность материала ослабевает. КР метод как метод определения структурного состояния УВ может быть использован для отбора перспективных для извлечения золота и платины пород на золоторудных черносланцевых месторождениях.

Более подробное изучение образцов из месторождений Верхне-Селемджинской структурно-металлогенической зоны Амурской области (Маломыр, Селемджинск) в сравнении с графитами из магматических пород Талнаха [10], ультрамафических пород из офиолитов Оспы, месторождения Ботогол, Восточные Саяны (Россия), мраморов Байкала (остров Ольтрек) показало, что богатые углеродом фазы имеют разную степень графитизации как в пределах одного месторождения, так, в большей степени, в породах разного генезиса (рис. 2).

Происхождение углеродистых веществ (УВ) зависит от множества параметров, таких как температура, давление, каталитические примеси, литология вмещающих пород, время, тип углеродных и органических источников. Помимо УВ в микро- и наношкале зафиксированы минералы и минеральные ассоциации, которые находятся в тесном сростании с УВ. В одном из образцов был зафиксирован нонтронит – высокожелезистый глинистый минерал (рис. 3, вставка), что, вероятно, обусловило необычную морфологию графита в некоторых точках

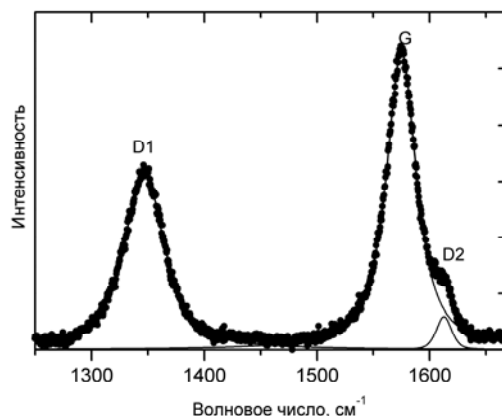


Рис. 1. Разложение КР спектра углеродистого вещества на полосу графита и дефектные полосы D1 и D2

Fig. 1. The deconvolved of the first order Raman spectrum of a carbonaceous matter into a graphite G band and defect D1 and D2 bands

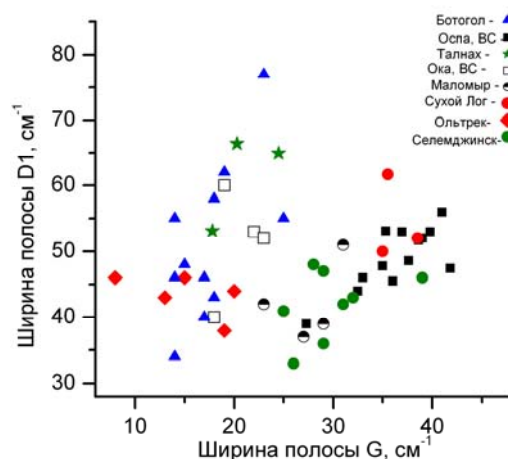


Рис. 2. Соотношение ширины (полная ширина на половине высоты) полосы G к ширине полосы D1 в КР спектрах образцов из разных месторождений. ВС – Восточная Сибирь

Fig. 2. Correlation between the peak width (FWHM) of the G band and the peak width of the D1 band in the spectra for samples from different deposits. BC – Eastern Siberia

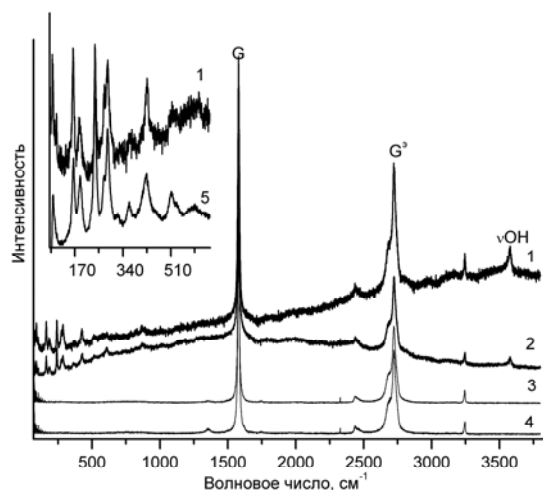


Рис. 3. КР спектры образцов из мраморов острова Ольтрек, Байкал

Fig. 3. Raman spectra of samples from marbles of Oltrek island, Baikal

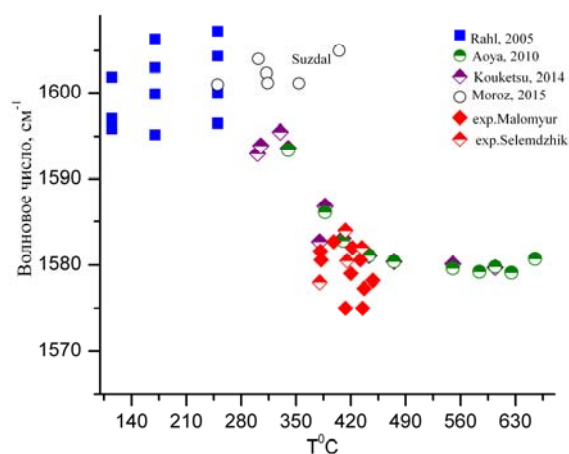


Рис. 4. Зависимость положения полосы G от температуры по литературным и экспериментальным (exp.) данным

Fig. 4. Correlation between the position of G band and the metamorphic temperature from experimental and referenced data

(рис. 3, кривые 1, 2), так как известно, что использование нонтронита при синтезе многослойных углеродных нанотрубок ведет к формированию нанотрубок разной формы [11]. В других точках мы наблюдали КР спектры первого и второго порядка высокоупорядоченного графита (рис. 3, кривые 3, 4). Во многих породах УВ диффундирует в минеральную матрицу и имеет довольно низкую концентрацию, что не мешает определить их характеристики методом микро-КР спектроскопии.

Перспективно применение КР спектроскопии в качестве геотермометра углеродистых веществ [12–14], так как при исследовании рудообразующих процессов и построении генетической модели рудных месторождений температура является ключевым параметром. Кристаллографические характеристики УВ меняются с изменением температуры метаморфизма от разупорядоченного материала при низких температурах до упорядоченного графита при высоких температурах.

Положение полосы G наиболее стабильно при съемке КР спектров УВ и при соблюдении соответствующего режима съемки (без перегрева образца) коррелирует с пиковыми температурами метаморфизма. На рис. 4 представлены результаты литературных данных, полученных при оценке температуры как по независимым от КР спектроскопии методам, так и по методу КР спектроскопии [12–14], и результаты наших исследований. Проведено определение методом КР спектроскопии пиковых температур метаморфизма в изученных породах, и получено соответствие полученных результатов с результатами исследования другими методами.

Список литературы / References

1. Ferrari A. C., Robertson J. Raman spectroscopy of amorphous, nanostructured, diamond-like carbon and nanodiamond. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, 2004, vol. 362, p. 2477–2512.
2. Мороз Т. Н., Федорова Е. Н., Жмодик С. М., Миронов А. Г., Рылов Г. М., Рагозин А. Л., Афанасьев А. Д., Зайковский В. И. Изучение различных модификаций углерода мето-

дом комбинационного рассеяния света // Химия в интересах устойчивого развития. 2000. Т. 8, № 1–2. С. 179–183.

Moroz T. N., Fedorova E. N., Zhmodik S. M., Mironov A. G., Rylov G. M., Ragozin A. L., Afanasyev A. D., Zaikovskiy V. I. Investigation of Various Carbon Modifications by Raman Spectroscopy. *Chemistry for Sustainable Development*, 2000, vol. 8, p. 43–47.

3. **Ryabenko A. G., Kiselev N. A., Hutchison J. L., Moroz T. N., Bukalov S. S., Mikhali-tsyn L. A., Loutfy R. O., Moravsky A. P.** Spectral Properties of Single-Walled Carbon Nano-tubes Encapsulating Fullerene. *Carbon*, 2007, vol. 45, p. 1492–1505.
4. **Wopenka B., Pasteris J. D.** Structural characterization of kerogens to granulite-facies graph-ite: Applicability of Raman microprobe spectroscopy. *Amer. Mineral.*, 1993, vol. 78, p. 533–557.
5. **Pasteris J. D., Wopenka B.** Raman spectra of graphite as indicators of degree of metamor-phism. *Can. Mineral.*, 1991, vol. 29, p. 1–10.
6. **Beyssac O., Goffe B., Chopin C., Rouzaud J. N.** Raman spectra of carbonaceous material in metasediments; a new geothermometer. *J. Metamorphic Geol.*, 2002, vol. 20, p. 859–871.
7. **Beyssac O., Lazzeri M.** Application of Raman spectroscopy to the study of graphitic carbons in the Earth Sciences. In: Applications of Raman Spectroscopy to Earth Sciences and Cultural Heritage. J. Dubessy, M.-C. Caumon and F. Rull (eds.). EMU Notes in Mineralogy, 2012, vol. 12, p. 415–454.
8. **Moroz T. N., Ponomarchuk V. A., Goryainov S. V., Palchik N. A., Edwards H. G. M., Zhmodik S. M.** Raman spectra of natural carbonaceous materials from a black shale for-mation. *J. Raman Spectroscopy*, 2015, vol. 46, no. 10, p. 959–963.
9. **Moroz T., Ponomarchuk V., Goryainov S., Kovalev K., Palchik N.** Graphite and graphite-like materials from black shale and magmatic ores: Raman spectroscopy data. In: Proceeding of 11th International Congress for Applied Mineralogy (ICAM), Springer Geochemistry / Min-eralogy. Ed. by F. Dong. Springer International Publishing Switzerland, 2015, p. 313–324.
10. **Ponomarchuk V. A., Titov A. T., Moroz T. N., Pyryaev A. N., Ponomarchuk A. V.** Hierar-chically porous graphene in natural graphitic globules from silicate magmatic rocks. *Nanosystems: Physics, Chemistry, Mathematics*, 2014, vol. 5, no. 1, p. 123–129.
11. **Kavecky S., Valuchova J., Caplovicova M., Heissler S., Saigalik P., Janek M.** Nontronites as catalyst for synthesis of carbon nanotubes by catalytic chemical vapor deposition. *Appl. Clay Sci.*, 2015, vol. 114, p. 170–178.
12. **Aoya M., Kouketsu Y., Endo S., Shimizu H., Mizukami T., Nakamura D., Wallis S.** Ex-tending the applicability of the Raman carbonaceous-material geothermometer using data from contact metamorphic rocks. *J. Metamorphic Geol.*, 2010, vol. 28, p. 895–914.
13. **Rahl J. M., Anderson K. M., Brandon M. T., Fassoulas C.** Raman spectroscopic carbona-ceous material thermometry of low-grade metamorphic rocks: Calibration and application to tectonic exhumation in Crete, Greece. *Earth and Planetary Science Letters*, 2005, vol. 240, p. 339–354.
14. **Kouketsu Yu., Mizukami T., Mori U., Endo S., Aoya M., Hara H., Nakamura D., Wallis S.** A new approach to develop the Raman carbonaceous material geothermometer for low-grade metamorphism using peak width. *Island Arc.*, 2014, vol. 23, p. 33–50.

Материал поступил в редколлегию

Received
05.10.2018

Сведения об авторах / Information about the Authors

Мороз Татьяна Николаевна, научный сотрудник, Институт геологии и минералогии им. В. С. Соболева СО РАН (пр. Академика Коптюга, 3, Новосибирск, 630090, Россия)

Tatyana N. Moroz, Researcher, Sobolev Institute of Geology and Mineralogy SB RAS (3 Academician Koptyug Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

moroz@igm.nsc.ru

Горайнов Сергей Владимирович, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, Институт геологии и минералогии им. В. С. Соболева СО РАН (пр. Академика Коптюга, 3, Новосибирск, 630090, Россия)

Sergey V. Goryainov, Candidate of Science (Physics and Mathematics), Senior Researcher, Sobolev Institute of Geology and Mineralogy SB RAS (3 Academician Koptyug Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

svg@igm.nsc.ru

Пономарчук Виктор Антонович, доктор геолого-минералогических наук, ведущий научный сотрудник, Институт геологии и минералогии им. В. С. Соболева СО РАН (пр. Академика Коптюга, 3, Новосибирск, 630090, Россия)

Victor A. Ponomarchuk, Doctor of Science (Geology and Mineralogy), Leading Researcher, Sobolev Institute of Geology and Mineralogy SB RAS (3 Academician Koptyug Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

ponomar@igm.nsc.ru

Исследование методом спектроскопии комбинационного рассеяния света сверхгидратации цеолита ломонтита при высоком давлении в различных водосодержащих средах

С. В. Горяйнов, У. О. Бородина

*Институт геологии и минералогии им. В. С. Соболева СО РАН
Новосибирск, Россия*

Аннотация

Сверхгидратация ломонтита изучена методом спектроскопии КР при сравнении сжатия в водной (до 9,3 ГПа) и водно-спиртовой (MEW – метанол / этанол / вода – 16 / 3 / 1) (до 5,8 ГПа) средах. Использовался Ca-Na-K-ломонтит из Ахалцихе (Грузия) $\{Ca_{2,73}Na_{1,44}K_{1,03}(H_2O)_n\} [Al_{7,93}Si_{16,07}O_{48}]$ с $12 < n < 18$ в зависимости от влажности и давления среды, где повышенное содержание соответствует сверхгидратированной фазе. Методом КР обнаружены: гетерогенное состояние Ca-Na-K-ломонтита в области $P = 0\text{--}2,2$ ГПа при сжатии в среде MEW, которое отсутствует при его сжатии в воде; нарастающее различие в зависимостях частот линий КР от давления (2,2–4,5 ГПа) при сравнении сжатия в воде и MEW, что может свидетельствовать о проникновении дополнительного количества воды в каналы при сжатии во льде VII; полиморфный переход в ломонтите при 4,5–4,8 ГПа и начало разупорядочения структуры ломонтита (выше 8 ГПа).

Ключевые слова

спектроскопия комбинационного рассеяния света, ломонтит, цеолиты, высокие давления

Благодарности

Работа поддержана государственным заданием (проект № 0330-2016-0004) и РФФИ (грант № 18-05-00966_a)

Для цитирования

Горяйнов С. В., Бородина У. О. Исследование методом спектроскопии комбинационного рассеяния света сверхгидратации цеолита ломонтита при высоком давлении в различных водосодержащих средах // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 4. С. 131–137. DOI 10.25205/ 2541-9447-2018-13-4-131-137

High Pressure Raman Study of Laumontite Overhydration in Different Water-Containing Media

S. V. Goryainov, U. O. Borodina

*Sobolev Institute of Geology and Mineralogy SB RAS
Novosibirsk, Russian Federation*

Abstract

Laumontite overhydration was studied using Raman spectroscopy. Compression in water (up to 9.3 GPa) and in water-alcohol medium (MEW – methanol / ethanol / water 16 / 3 / 1, up to 5.8 GPa) were compared. Sample Ca-Na-K-laumontite from Akhaltsikhe, Georgia was selected. The mineral formula is $\{Ca_{2.73}Na_{1.44}K_{1.03}(H_2O)_n\} [Al_{7.93}Si_{16.07}O_{48}]$, where $12 < n < 18$ depending on the humidity and pressure of the medium. By means of Raman spectroscopy, a heterogeneous state of Ca-Na-K-laumontite at $P = 0\text{--}2.2$ GPa in MEW medium was revealed, in contrast to compression in water. An increasing difference between wavenumber/pressure dependencies (2.2–4.5 GPa) related to compression in water and MEW can be ascribed to penetration of additional amount of water in crystal channels during compression in ice VII. A polymorphic transition in laumontite at 4.5–4.8 GPa was also detected. The onset of the disordering laumontite structure was observed at pressure above 8 GPa.

Keywords

Raman spectroscopy, laumontite, zeolites, high pressure

Acknowledgements

This work was supported by the state assignment (project no. 0330-2016-0004) and the Russian Foundation for Basic Research (grant no. 18-05-00966_a)

For citation

Goryainov S. V., Borodina U. O. High Pressure Raman Study of Laumontite Overhydration in Different Water-Containing Media. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 131–137. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-131-137

Цеолиты – микропористые структуры – при высоких давлениях могут переходить в сверхгидратированное состояние при сжатии в воде (водосодержащей среде), когда количество молекул H_2O в элементарной ячейке (эл. яч.) кристалла повышается по сравнению с исходным содержанием. Такой переход может происходить скачкообразно (как в натролите [1]) или монотонно (как в цеолите NaA [2; 3]), когда содержание H_2O нарастает с давлением. Отметим, что цеолит Са-ломонтит переходит в сверхгидратированное состояние по особой схеме уже при помещении в жидкую воду при 1 атм., когда содержание H_2O в эл. яч. (n) повышается до $18\text{H}_2\text{O}$ по сравнению с исходным содержанием на воздухе $12\text{H}_2\text{O}$ [4]. Предельное насыщение водой до $18\text{H}_2\text{O}$ достигается только в сверхгидратированном Са-ломонтите уже при 1 атм., тогда как в таковом Са-Na-K-ломонтите содержится меньше воды, $12 < n < 18$, причем n меняется с ростом P . Сверхгидратированный переход в ломонтите при высоких P (с шагом ~ 1 ГПа) был изучен рентгеноструктурным методом [4], тогда как КРС спектроскопия для этого ранее не применялась. Эти структурные исследования выявили эволюцию состояния H_2O в ломонтите с давлением, однако было невыясненным отличие при сжатии в различных водосодержащих средах.

В данной работе методом спектроскопии КР (Horiba Jobin Yvon LabRam HR800) проведено исследование поведения ломонтита при сжатии в водной (до 9,3 ГПа) и водно-спиртовой (MEW – метанол / этанол / вода 16 / 3 / 1) (до 5,8 ГПа) средах. Использовался ломонтит из Ахалцихе (Грузия) $\{\text{Ca}_{2,73}\text{Na}_{1,44}\text{K}_{1,03}(\text{H}_2\text{O})_n\} [\text{Al}_{7,93}\text{Si}_{16,07}\text{O}_{48}]$, где $12 < n < 18$ в зависимости от влажности, что включает как исходную, так и сверхгидратированную фазу.

Сравнительное изучение спектров КР ломонтита в двух средах выявило схожесть поведения (например, похожую барическую эволюцию спектров в области до 1200 см^{-1} , рис. 1) с заметным различием в области О-Н колебаний (рис. 2) и в зависимостях частот линий от P , что показано на рис. 3. КР линии демонстрируют постепенную эволюцию по интенсивности и частоте с увеличением давления (рис. 1–4). Например, соотношение интенсивностей двух интенсивных линий при 489 и 520 см^{-1} резко меняется в области $P \sim 2,8\text{--}4,4$ ГПа (см. рис. 1). В таблице даны основные параметры линий в спектре КР и их отнесение к определенным колебаниям. Можно выделить внутренние колебания в тетраэдрах TO_4 ($\text{T} = \text{Si}, \text{Al}$): деформационные О-Т-О моды лежат в области $450\text{--}720\text{ см}^{-1}$, а валентные Т-О – в области $900\text{--}1200\text{ см}^{-1}$.

При сжатии ломонтита в водно-спиртовой среде его спектры КР в области валентных О-Н колебаний значительно меняются при $P \sim 0\text{--}2,3$ ГПа (см. рис. 2). Пространственный анализ образца (с разрешением 2 мкм) обнаружил гетерогенную структуру в этом диапазоне давлений (некоторые спектры О-Н колебаний представлены на рис. 2).

На рис. 3 показана барическая зависимость частоты интенсивной КР-линии ломонтита при 489 см^{-1} , соответствующей «дышащему» колебанию четверных алюмосиликатных колец R4, при сжатии в воде и водно-спиртовой (MEW) среде. Барическая зависимость частоты линии при 489 см^{-1} демонстрирует отличие в поведении при сжатии в двух средах: наличие гетерогенной структуры при использовании MEW среды в области $0\text{--}2,2$ ГПа; нарастающее различие в области $2,2\text{--}4,5$ ГПа (см. рис. 3). Выполнив расчет динамики решетки ломонтита с использованием программы LADY (М. Б. Смирнов [5]), дана интерпретация линий КР (см. таблицу), и найдена форма колебаний для всех линий, например, для интенсивной линии 489 см^{-1} , определенная на рис. 5 как «дышащая» мода. Отметим, что такие «дышащие» моды (breathing modes) были найдены ранее в спектре цеолита натролита [5]. (Аналогичный термин используется для описания «радиально-дышащих» колебаний в углеродных нанотрубках [6].)

Рис. 1. КР спектры ломонтита при сжатии в водно-спиртовой (MEW) среде в области $70\text{--}780\text{ см}^{-1}$, записанные при увеличении и один – при уменьшении давления ($P = 0,6\text{ ГПа}$)

Fig. 1. Raman spectra of laumontite at compression in water-alcohol medium (MEW) in the range of $70\text{--}780\text{ см}^{-1}$, recorded at increasing pressure and one at decreasing pressure ($P = 0,6\text{ ГПа}$)

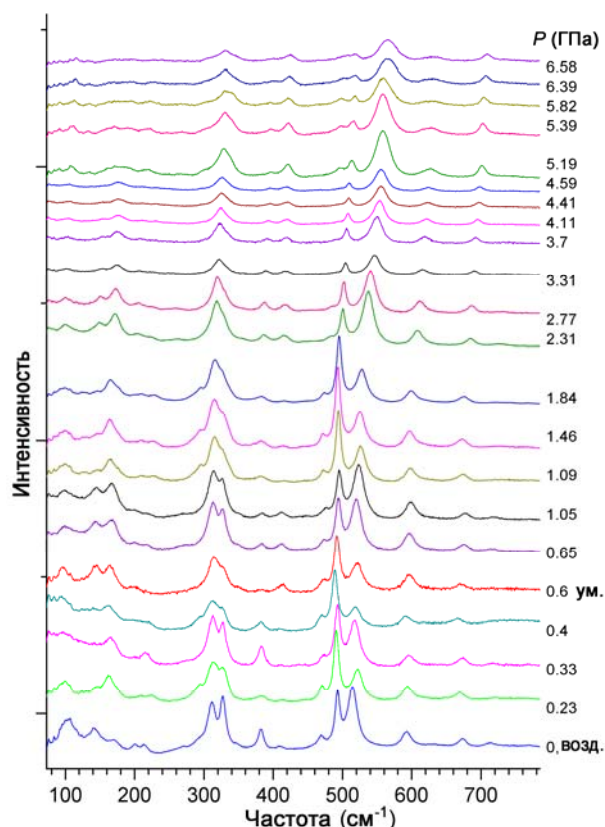
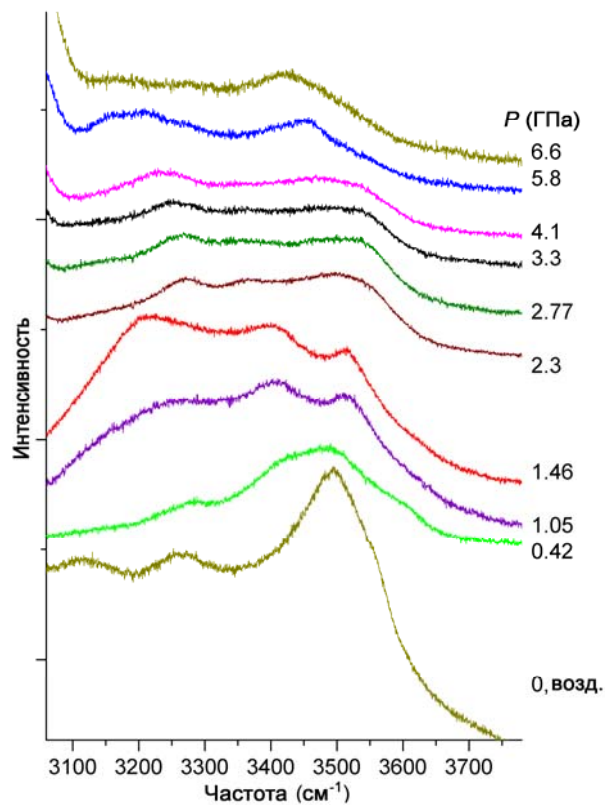


Рис. 2. КР спектры ломонтита при сжатии в водно-спиртовой (MEW) среде в области $3050\text{--}3770\text{ см}^{-1}$ валентных О-Н колебаний

Fig. 2. Raman spectra of laumontite at compression in water-alcohol medium (MEW) in the $3050\text{--}3770\text{ см}^{-1}$ range of the stretching O-H vibrations



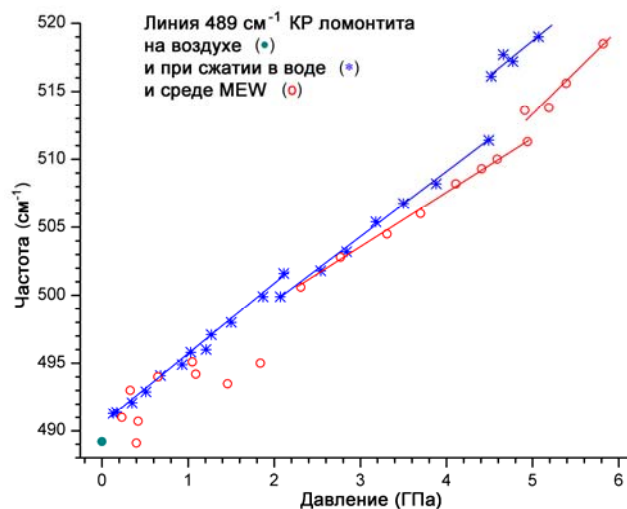


Рис. 3. Барическая зависимость частоты интенсивной линии КР ломонтита 489 см^{-1} при сжатии в воде и водно-спиртовой (MEW) среде

Fig. 3. Pressure dependence of the frequency of intensive 489 см^{-1} mode of laumontite at compression in water (stars) and water-alcohol MEW medium (circles)

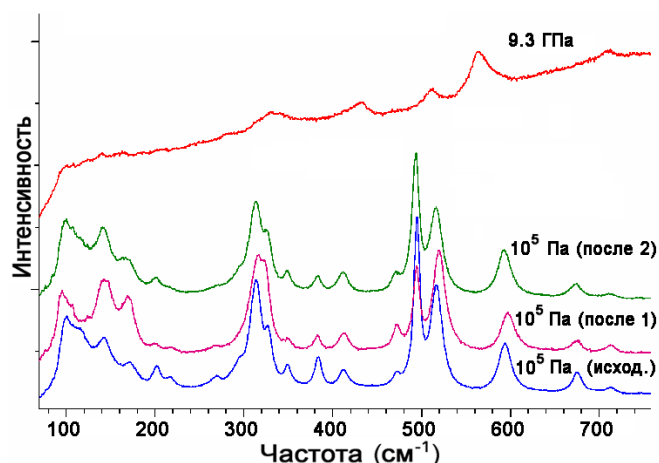


Рис. 4. КР спектры ломонтита: исходного, сжатого в воде при $9,3\text{ ГПа}$ (верхний спектр) и после снятия нагрузки при 1 атм. (10^5 Па) после 10 минут (после 1) и 40 минут (после 2)

Fig. 4. Raman spectra of laumontite: initial sample (lower spectrum); during compression in water medium at $9,3\text{ ГПа}$ (upper spectrum); after compression-decompression at 1 bar (10^5 Па) in 10 minutes («after 1») and 40 minutes («after 2»)

При сжатии ломонтита в воде при давлении выше 8 ГПа начинает нарастать разупорядочение структуры, причем это изменение обратимо вплоть до достигнутого $P = 9,3\text{ ГПа}$ (см. рис. 4). Переход в сверхгидратированное состояние ломонтита полностью обратим с некоторым временным гистерезисом после снятия давления, что доказывает сравнение спектров (после 1) и (после 2) с исходным спектром (см. рис. 4).

Интерпретация спектра КР ломонтита, записанного при комнатных условиях при 22 °С

Номер линии	ν , см ⁻¹	$\Delta\nu$, см ⁻¹	I/I_A	Симметрия	Интерпретация линий
1	107	28	482/9.4	B_g^+ A_g	тран. _x К ⁺ тран. Od + тран. TO ₄ тран. TO ₄ + тран. Ca + тран. К
2	142	30	372/8.64	A_g	тран. TO ₄ + деф. R4(O ₄)
3	171	22	330/5.7	A_g	тран. TO ₄ + деф. R4(O ₄) + тран. Ob + тран. Ca
4	201	14	150/1.6	B_g^+ A_g	тран. Od + тран. _{xz} К либр. TO ₄ + тран. Od + тран. _{xz} Ca + тран. _{xy} К
5	216	11.4	290/2.5	A_g	либр. TO ₄ + деф. R6(O ₆) + деф. R4(O ₄)
6	284	34	114/3	A_g	либр. TO ₄ + деф. R4(O ₄)
7	297	14	178/1.9	A_g	либр. TO ₄ + деф. R6(O ₆) + деф. R4(O ₄)
8	313	14	1069/11.6	A_g^+ A_g	либр. TO ₄ + деф. R6(O ₆) либр. TO ₄ + дыш. R6(O ₆)
9	329	10	1044/7.9	A_g	либр. TO ₄ + тран. _{xz} Ob + тран. _{xz} Ca
10	340	24	143/2.6	A_g	либр. TO ₄ + деф. R6(O ₆) + тран. _{xy} Oa
11	384	11	502/4.2	A_g	либр. TO ₄ + тран. _{xz} Ob + тран. _{xy} Oa
12	477	29	223/4.9	A_g	O-T-O деф. TO ₄ + тран. _{xz} Ob + тран. Oa
13	489	9.0	1245/13	A_g	O-T-O деф. TO ₄ + дыш. R4(O ₄)
14	520	18.5	1146/17	A_g	O-T-O деф. TO ₄ + тран. Od + тран. Ob + тран. Oa
15	594	15.2	242/2.8	A_g	O-T-O деф. TO ₄ + дыш. R4(O ₄ T ₄)
16	675	13.3	177/1.8	A_g	O-T-O деф. TO ₄ + тран. Oa + тран. Od
17	714	9.6	55/0.4	A_g	O-T-O деф. TO ₄ + T-O-T деф. {O4, O6, O1}
18	1022	28	74/1.6	A_g	сим. T-O вал. TO ₄ {O3, O2, O7, O4}
19	1076	21.4	142/2.3	A_g	сим. Al-O вал. AlO ₄ {O5, O2, O3}
20	1097	18	74/1	A_g	асим. T-O вал. TO ₄ {O2, O7, O5}
21	1110	22.5	96/1.6	A_g	асим. T-O вал. TO ₄ {O7, O3, O2}
22	3128	103	140/13	A_g	O-H вал. H ₂ O {Oa-Oa (2.75Å)}
23	3271 пл.	122	321/39	A_g	O-H вал. H ₂ O {Ob-Ob (2.77Å)}
24	3370 пл.	91	252/22	A_g	O-H вал. H ₂ O {O1-Ob (2.87Å)}
25	3445	93	506/44	A_g	O-H вал. H ₂ O {O5-Oc (2.91Å)}
26	3498	77	739/57	A_g	O-H вал. H ₂ O {O5-Oa (2.95Å), O4-Od (3Å)}
27	3552 пл.	58	392/21	A_g	O-H вал. H ₂ O {O7-Od (3.12Å), Oa-Ob (3.03Å)}
28	3602 пл.	51	99/5	A_g	O-H вал. H ₂ O {O2-Ob (3.19Å), O3-Oa (3.21Å)}

Приведены экспериментальные данные частот (ν , см⁻¹), ширины ($\Delta\nu$, см⁻¹), пиковых (I , отсчеты детектора) и интегральных нормированных интенсивностей линий (I_A , отн. ед.). Интерпретация линий выполнена на основании расчетов динамики решетки с использованием программы LADY [5]. Сокращения для типов колебаний: тран. – трансляционные, либр. – либрационные, кат. – катионов, деф. – деформационные, вал. – валентные, дыш. – «дышащие»; пл. – плечо линии; Oa-Od – 4 позиции молекул воды H₂O; O1-O7 – 7 атомов кислорода атомы, группы атомов и водородные связи (O1-H...Oj) с основными амплитудами и длинами связей.

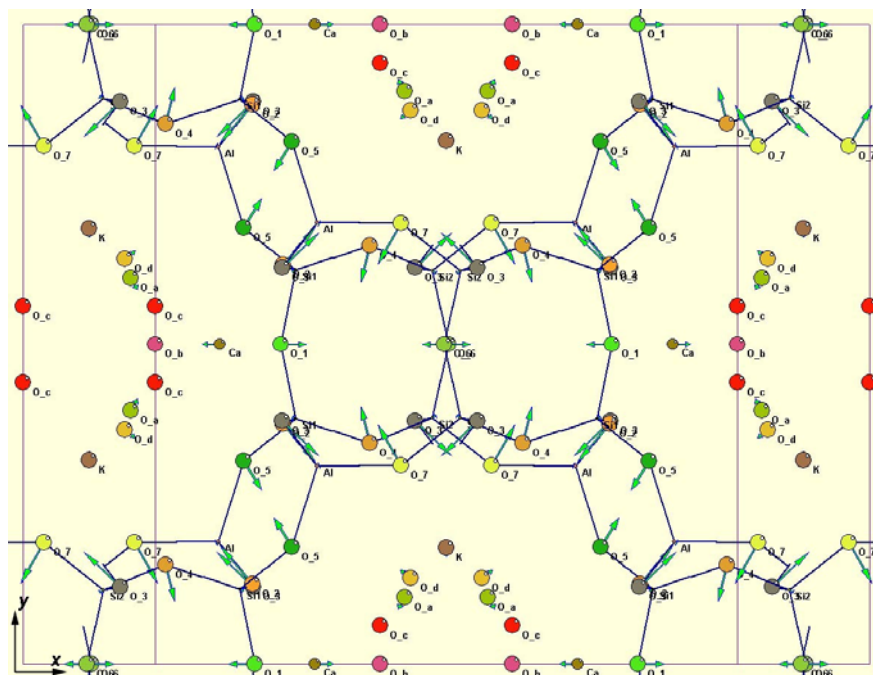


Рис. 5. Форма колебаний самой интенсивной КР линии ломонтита при 489 см^{-1} , которая является деформационным О-Т-О «дышащим» колебанием четверных алюмосиликатных колец R4 (в центре). Проекция (ху) моноклинной $C2/m$ ячейки ломонтита. Оа-Од – 4 позиции молекул H_2O

Fig. 5. Vibration shape of the most intensive laumontite Raman line at 489 cm^{-1} that is the bending O-T-O «breathing» vibration of four-membered aluminosilicate rings R4 (in the center). The XY projection of monoclinic $C2/m$ cell of laumontite is shown. Oa-Od are four sites of H_2O molecules

Таким образом, нами методом КР обнаружено:

- 1) гетерогенное состояние Ca-Na-K-ломонтита в области $P = 0\text{--}2,2\text{ ГПа}$ при сжатии в среде MEW, которое отсутствует при его сжатии в воде;
- 2) нарастающее различие в зависимостях частот линий КР от давления в области $2,2\text{--}4,5\text{ ГПа}$ при сравнении сжатия в воде и MEW, что может свидетельствовать о проникновении дополнительного количества воды в каналы при сжатии в воде (льде VII);
- 3) полиморфный переход в ломонтите при давлении $4,5\text{--}4,8\text{ ГПа}$ (для обеих сред);
- 4) при сжатии в воде выше 8 ГПа структура ломонтита начинает разупорядчиваться;
- 5) переход в сверхгидратированное состояние ломонтита полностью обратим с некоторым гистерезисом, который вызван низким коэффициентом диффузии H_2O в каналах ломонтита.

Список литературы / References

1. Seryotkin Y. V., Bakakin V. V., Fursenko B. A., Belitsky I. A., Joswig W., Radaelli P. G. Structural evolution of natrolite during over-hydration: a high-pressure neutron diffraction study. *Eur. J. Mineral.*, 2005, vol. 17, p. 305–313.
2. Goryainov S. V., Secco R. A., Huang Y., Likhacheva A. Y. Pressure-induced ionic conductivity of overhydrated zeolite NaA at different water / zeolite ratios. *Micropor. Mesopor. Mater.*, 2013, vol. 171, p. 125–130.

3. **Likhacheva A. Yu., Malyshev M. E., Manakov A. Yu., Goryainov S. V., Ancharov A. I.** Non-hydrostatic compression of zeolite NaA in water medium: connection to anomalous conductivity. *Z. Kristallogr.*, 2009, vol. 224, p. 137–143.
4. **Rashchenko S. V., Seryotkin Yu. V., Bakakin V. V.** An X-ray single crystal study of alkaline cations influence on laumontite hydration ability: II. Pressure-induced hydration of Na,K-rich laumontite. *Micropor. Mesopor. Mater.*, 2012, vol. 159, p. 126–131.
5. Goryainov S.V., Smirnov M.B. Raman spectra and lattice-dynamical calculations of natrolite // *Eur. J. Mineral.* 2001. Vol. 13. P. 507-519.
6. **Поносов Ю. С., Уймин М. А., Ермаков А. Е., Щеголева Н. Н., Мысик А. А.** Комбинированное рассеяние света и электронная микроскопия нанокомпозитов со структурой металлическое ядро – углеродная оболочка // *ФТТ*. 2013. Т. 55, вып. 7. С. 1425–1432.
Ponosov Yu. S., Uimin M. A., Ermakov A. E., Shchegoleva N. N., Mysik A. A. Raman light Scattering and electron microscopy of nanocomposites with structure of metal core – carbon shell structure. *Physics of the Solid State*, 2013, vol. 55, no. 7, p. 1528–1535.

Материал поступил в редколлегию

Received
01.10.2018

Сведения об авторах / Information about the Authors

Горайнов Сергей Владимирович, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, Институт геологии и минералогии им. В. С. Соболева СО РАН (пр. Академика Коптюга, 3, Новосибирск, 630090, Россия)

Sergey V. Goryainov, Candidate of Science (Physics and Mathematics), Senior Researcher, Sobolev Institute of Geology and Mineralogy SB RAS (3 Academician Koptyug Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

svg@igm.nsc.ru

Бородина Ульяна Олеговна, аспирант, инженер, Институт геологии и минералогии им. В. С. Соболева СО РАН (пр. Академика Коптюга, 3, Новосибирск, 630090, Россия)

Uliyana O. Borodina, Postgraduate Student, Engineer, Sobolev Institute of Geology and Mineralogy SB RAS (3 Academician Koptyug Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

BorodinaUO@igm.nsc.ru

УДК 538.911; 538.913
DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-138-143

Фононный спектр MeF_2 ($Me = Ca, Sr, Ba, Pb$) в кубической и орторомбической фазах: *ab initio* расчет

В. А. Чернышев, В. С. Рюмшин

Уральский федеральный университет
Екатеринбург, Россия

Аннотация

В рамках МО ЛКАО подхода с использованием гибридных DFT функционалов, учитывающих вклад нелокального обмена в формализме Хартри – Фока, проведено исследование кристаллической структуры и фононного спектра кристаллов MeF_2 ($Me = Ca, Sr, Ba, Pb$) как в кубической, так и в орторомбической фазе. Определены частоты и типы фундаментальных колебаний, активных в ИК и КР. Расчеты проводились в программе CRYSTAL14, предназначенной для моделирования периодических структур в рамках МО ЛКАО подхода.

Ключевые слова

фононные спектры, *ab initio* расчеты, гидростатическое сжатие

Благодарности

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки РФ, проект № 3.9534.2017/8.9. При расчетах был использован суперкомпьютер «Уран» ИММ УрО РАН

Для цитирования

Чернышев В. А., Рюмшин В. С. Фононный спектр MeF_2 ($Me = Ca, Sr, Ba, Pb$) в кубической и орторомбической фазах: *ab initio* расчет // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 4. С. 138–143. DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-138-143

Phonon Spectrum MeF_2 ($Me = Ca, Sr, Ba, Pb$) Cubic and Ortho Phase: *ab initio* Calculation

V. A. Chernyshev, V. S. Ryumshin

Ural Federal University
Ekaterinburg, Russian Federation

Abstract

Crystal structure and phonon spectrum of MeF_2 crystals ($Me = Ca, Sr, Ba, Pb$) in both cubic and orthorhombic phases have been investigated. The investigation have been done within the framework of the MO LCAO approach, using hybrid DFT functionals that take into account the contribution of nonlocal exchange in the Hartree – Fock formalism. The frequencies and types of IR and Raman modes are determined. Calculations were carried out in the program CRYSTAL14, designed to simulate periodic structures within the MO LCAO approach.

Keywords

phonon spectra, *ab initio* calculations, hydrostatic pressure

Acknowledgements

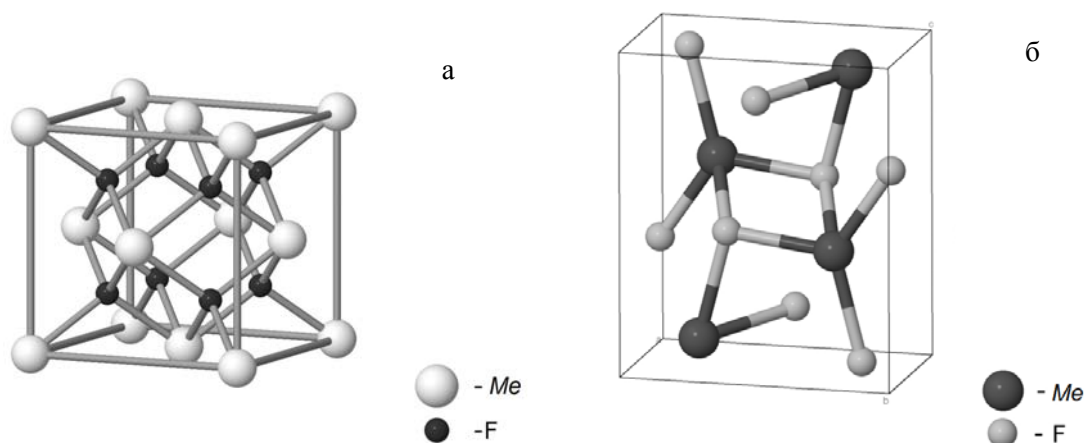
This study was supported by the Ministry of Education and Science of the Russian Federation (project no. 3.9534.2017/8.9). Supercomputer “Uran” of IMM UB RAS was used in the calculations

For citation

Chernyshev V. A., Ryumshin V. S. Phonon Spectrum MeF_2 ($Me = Ca, Sr, Ba, Pb$) Cubic and Ortho Phase: *ab initio* Calculation. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 4, p. 138–143. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-4-138-143

© В. А. Чернышев, В. С. Рюмшин, 2018

Интерес к флюоритам обусловлен их разнообразным применением, в частности как оптических материалов при активации редкоземельными ионами [1]. Под влиянием давления флюориты переходят из кубической (β -) в орторомбическую (α -) фазу [2; 3] (рис. 1, 2), в связи с этим представляет интерес исследование фононного спектра этих материалов как в кубической, так и в орторомбической фазе из первых принципов. *Ab initio* расчеты были проведены в рамках теории функционала плотности (DFT) с гибридным функционалом B3LYP [4], учитывающим как локальный, так и нелокальный (в формализме Хартри – Фока) обмен. С использованием гибридных функционалов удается хорошо описывать энергетическую зонную структуру и упругие свойства решетки соединений с ионной и ионно-ковалентной связью [5; 6]. Расчеты проводились в программе CRYSTAL14¹, предназначенной для моделирования периодических структур в рамках МО ЛКАО подхода. Для Me были использованы псевдопотенциалы DURAND и HAYWSC, доступные на сайте программы CRYSTAL. Для F был использован полноэлектронный базисный набор TZVP-типа [7]. В орторомбической фазе задавалась ориентация осей P_{nma} (возможные ориентации подробно рассмотрены в [8]). Фононные моды в Γ -точке: $\Gamma = 6A_g(R) + 3B_{1g}(R) + 6B_{2g}(R) + 3B_{3g}(R) + 3A_u + 6B_{1u}(IR) + 3B_{2u}(IR) + 6B_{3u}(IR)$. Из них три моды – B_{1u} , B_{2u} и B_{3u} – акустические.



Структура кубической (а) и орторомбической (б) фазы MeF_2
Structure of the cubic (a) and orthorhombic (b) phases

При расчетах удалось хорошо воспроизвести постоянные решетки кубической и орторомбической фаз MeF_2 (табл. 1, 2). Расчет дает несколько завышенное значение постоянной решетки для MeF_2 ($Me = Ca, Sr, Ba$) и при этом несколько заниженное для PbF_2 (см. табл. 1). PbF_2 обладает большей степенью ковалентности, чем MeF_2 . Возможно, увеличив в гибридном функционале долю обмена в формализме Хартри – Фока, удастся получить еще более точное описание его кристаллической структуры. Отметим, что, согласно экспериментальной работе [3], PbF_2 при нормальных условиях существует в орторомбической фазе, при повышении температуры переходит в кубическую фазу. Поэтому расчет кристаллической структуры PbF_2 проведен при $P = 0$ ГПа (см. табл. 2). Согласно расчетам, ширина запрещенной зоны в орторомбической фазе близка к кубической (табл. 3). Расчеты предсказывают для орторомбической фазы MeF_2 ($Me = Ca, Sr, Ba$) прямую Γ - Γ зону. Согласие частот фундамен-

¹ <http://www.crystal.unito.it/index.php>

тальных колебаний для кубической фазы MeF_2 ($Me = Ca, Sr, Ba$) (табл. 4) удовлетворительное. Результаты расчета упругих постоянных для орторомбической фазы приведены в табл. 5. Для орторомбической фазы был рассчитан фононный спектр в Γ -точке, определены интенсивности ИК и КР мод, из анализа рассчитанных векторов смещений охарактеризовано участие ионов в моде (табл. 6). Моды B_{2u} , B_{1g} , B_{3g} и A_u мода, не активная ни в ИК, ни в КР, характеризуются трансляционным движением ионов. В высокочастотной A_g моде движение фтора F2 также трансляционное.

Таблица 1

Постоянные решетки (кубическая фаза), Å

Table 1

Lattice constants (cubic phase), Å

CaF ₂		SrF ₂		BaF ₂		PbF ₂	
Расчет	Эксперимент [8]	Расчет	Эксперимент [8]	Расчет	Эксперимент [8]	Расчет	Эксперимент [9]
5,48	5,44	5,81	5,78	6,25	6,18	5,89	5,92

Таблица 2

Постоянные решетки (орторомбическая фаза), Å

Table 2

Lattice constants (orthorhombic phase), Å

	CaF ₂		PbF ₂	
	Расчет ($P = 8$ ГПа)	Эксперимент [2] ($P = 10,95$ ГПа)	Расчет ($P = 0$ ГПа)	Эксперимент [3] ($P = 0$ ГПа)
A	5,75	5,72	6,38	6,44
B	3,48	3,46	3,83	3,90
C	6,88	6,85	7,64	7,65

Таблица 3

Ширина запрещенной зоны, эВ

Table 3

Bandgap energy, eV

	CaF ₂		SrF ₂		BaF ₂	
	Расчет	Эксперимент [10]	Расчет	Эксперимент [10]	Расчет	Эксперимент [10]
Куб.	12,33	12,10	11,13	11,25	10,43	10,57
Орто	13,00 ($P = 12$ ГПа)		10,9 ($P = 8$ ГПа)		9,72 ($P = 3,5$ ГПа)	

Таблица 4

Частоты фундаментальных колебаний (кубическая фаза), cm^{-1}

Table 4

Fundamental frequencies (cubic phase), cm^{-1}

	CaF ₂		SrF ₂		BaF ₂	
	Расчет	Эксперимент [11; 12]	Расчет	Эксперимент [11; 12]	Расчет	Эксперимент [11; 12]
F _{1u}	305	268	232	227	194	189
F _{2g}	331	325	281	255	243	246

Таблица 5

Упругие постоянные, ГПа. Орторомбическая фаза

Table 5

Elastic constants, GPa. Orthorhombic phase

	C ₁₁	C ₂₂	C ₁₂	C ₁₃	C ₂₃	C ₃₃	C ₄₄	C ₅₅	C ₆₆
CaF ₂ (P = 12 ГПа)	215,2	228,4	97,9	103,2	115,9	266,1	45,9	71,5	75,4
PbF ₂ (P = 2 ГПа)	114,3	125,2	57,8	58,4	64,7	147,0	10,1	30,6	39,7

Таблица 6

Частоты фундаментальных колебаний,
орторомбическая фаза MeF_2 , cm^{-1}

Table 6

Fundamental frequencies (orthorhombic phase), cm^{-1}

Тип	Частота		Интенсивность		Ионы-участники
	CaF ₂	PbF ₂	CaF ₂	PbF ₂	
ИК-моды					
B _{1u}	165	69	76	84	F1, F2, <i>Me</i>
	285	143	232	788	F1, F2 ^S , <i>Me</i>
	329	173	252	198	F1 ^S , F2 ^S , <i>Me</i> ^w
	402	272	0,14	212	F1 ^S , F2 ^S , <i>Me</i> ^w
	460	340	449	38	F1 ^S , F2, <i>Me</i>
B _{2u}	286	125	584	1232	F1, F2 ^S , <i>Me</i> (трансл.)
	391	275	403	127	F1 ^S , F2, <i>Me</i> (трансл.)
B _{3u}	192	91	126	367	F1, F2 ^S , <i>Me</i>
	317	145	728	747	F1, F2 ^S , <i>Me</i>
	336	205	5	123	F1, F2 ^S , <i>Me</i>
	383	221	86	0.6	F1 ^S , F2, <i>Me</i>
	476	384	25	15	F1 ^S , F2, <i>Me</i>

Окончание табл. 6

Тип	Частота		Интенсивность						Ионы-участники
	CaF ₂	PbF ₂	CaF ₂			PbF ₂			
КР-моды									
			I_{tot}	I_{par}	I_{perp}	I_{tot}	I_{par}	I_{perp}	
A _g	172	66	366	251	114	916	898	18	F1 ^S , F2, Me ^S
	235	98	281	184	97	29	25	4	F1, F2, Me
	257	162	1000	792	208	356	343	13	F1, F2 ^S , Me
	300	192	711	407	304	1000	930	70	F1, F2 ^S , Me
	397,5	262	764	452	312	385	253	132	F1, F2, Me ^W
	454	281	800	471	329	346	202	144	F1, F2 ^W , Me
B _{1g}	195	62	95	54	41	69	39	30	F1, F2, Me ^S (трансл.)
	256	175	686	392	294	128	73	55	F1, F2 ^S , Me (трансл.)
	431	279	47	27	20	47	27	20	F1 ^S , F2, Me (трансл.)
B _{2g}	269	123	990	566	424	1,61	0,92	0,69	F1, F2, Me
	310	140	270	154	116	298	170	128	F1 ^W , F2, Me
	340	205	95	54	41	68	39	29	F1, F2 ^S , Me
	376	238	203	116	87	370	211	159	F1, F2 ^S , Me
	398,2	267	160	91	69	4,54	2,60	1,94	F1 ^S , F2, Me ^W
	459	344	196	112	84	17,14	9,79	7,34	F1 ^S , F2, Me ^W
B _{3g}	166	54	592	338	254	23	13	10	F1, F2, Me ^S (трансл.)
	287	206	101	58	43	229	131	98	F1 ^W , F2 ^S , Me ^W (трансл.)
	420	295	978	559	419	124	71	53	F1 ^S , F2 ^W , Me ^W (трансл.)
«Молчащая» мода									
A _u	111	30	–						F1 ^S , F2, Me ^S (трансл.)
	266	183	–						F1, F2 ^S , Me (трансл.)
	385	241	–						F1 ^S , F2 ^W , Me (трансл.)

Примечание. При $P = 12$ ГПа для CaF₂ и $P = 2$ ГПа для PbF₂. Интенсивность ИК-мод – в км/моль, КР-мод – в отн. ед. В последнем столбце «S» – сильное, «W» – слабое смещение иона в моде.

На уровне теории DFT/B3LYP в рамках МО ЛКАО подхода удается описать структуру и динамику решетки флюоритов MeF₂ как в кубической, так и в орторомбической фазе.

Список литературы / References

1. Vilejshikova E. V., Loiko P. A., Rachkovskay G. E., Zakharevich G. B., Yumashev K. V. Up-conversion luminescence in oxyfluoride glass-ceramics with PbF₂:(Yb³⁺, Eu³⁺, RE³⁺) (RE = Tm, Ho, or Er) nanocrystals. *Journal of Applied Spectroscopy*, 2016, vol. 83, no. 5, p. 1–7.
2. Dorfman S. M., Jiang F., Mao Z., Kubo A., Meng Y., Prakapenka V. B., Duffy T. S. Phase transitions and equations of state of alkaline earth fluorides CaF₂, SrF₂, and BaF₂ to Mbar pressures. *Phys. Rev. B*, 2010, vol. 81, p. 174121.
3. Haines J., Leger J. M., Schhulite O. High-pressure isosymmetric phase transition in orthorhombic lead fluoride. *Phys. Rev. B*, 1998, vol. 57, no. 13, p. 7551–7555.
4. Becke A. D. Density functional thermochemistry. III. The role of exact exchange. *J. Chem. Phys.*, 1993, vol. 98, no. 7, p. 5648–5652.

5. **Басалаев Ю. М., Гордиенок Н. И.** Энергетическая зонная структура кристаллов Be-(C, Si, Ge, Sn)-N₂ // Изв. вузов. Физика. 2017. Т. 60, вып. 5. С. 140–146.
Basalaev Yu. M., Gordienok N. I. Energy band structure of Be-(C, Si, Ge, Sn)-N₂ crystals. *Izvestiya Vysshikh Uchebnykh Zavedenii, Fizika*, 2017, vol. 60, no. 5, p. 140–146. (in Russ.)
6. **Корабельников Д. В., Журавлев Ю. Н.** Ab initio исследование упругих свойств хлоратов и перхлоратов // ФТТ. 2016. Т. 58, вып. 6. С. 1129–1134.
Korabelnikov D. V., Zhuravlev Yu. N. Ab initio investigations of the elastic properties of chlorates and perchlorates. *Fiz. Tverd. Tela*, 2016, vol. 58, no. 6, p. 1129–1134. (in Russ.)
7. **Peintinger M. F., Oliveira D. V., Bredow T.** Consistent Gaussian Basis Sets of Triple-Zeta Valence with Polarization Quality for Solid-State Calculations. *Journal of Computational Chemistry*, 2013, vol. 34, p. 451–459.
8. **Баженов А. В., Смирнова И. С., Фурсова Т. Н., Максимук М. Ю., Кулаков А. Б., Бдикин И. К.** Спектры оптических фононов монокристаллов PbF₂ // ФТТ. 2000. Т. 42, вып. 1. С. 40–48.
Bazhenov A. V., Smirnova I. S., Fursova T. N., Maksimuk M. Yu., Kulakov A. B., Bdi-kin I. K. Optical phonon spectra of PbF₂ single crystals. *Fiz. Tverd. Tela*, 2000, vol. 42, no. 1, p. 40–48. (in Russ.)
9. **Axe J. D.** Long-wave lattice dynamics of the fluorine structure. *Phys. Rev.*, 1965, vol. 139, no. 4a, p. 1215–1220.
10. **Жуков В. П., Зайнуллина В. М.** Расчеты из первых принципов электронной структуры кристаллов типа флюорита (CaF₂, BaF₂, SrF₂ и PbF₂) с френкелевскими дефектами. Анализ оптических и транспортных свойств // ФТТ. 1998. Т. 40, вып. 11. С. 2019–2025.
Zhukov V. P., Zainullina V. M. First-principles calculations of the electronic structure of fluorite-type crystals (CaF₂, BaF₂, SrF₂, and PbF₂) containing Frenkel defects. Analysis of optical and transport properties. *Fiz. Tverd. Tela*, 1998, vol. 40, no. 11, p. 2019–2025. (in Russ.)
11. **Denham P., Field G. R., Morse P. L. R., Wilkinson G. R., Price W. C.** Optical and dielectric properties and lattice dynamics of some fluorite structure ionic crystals. *Proc. Roy. Soc. Lond.*, 1970, vol. 317, no. 1528, p. 55–77.
12. **Lownders R. P.** Anharmonicity in the alkaline earth fluorides. *J. Phys. C.: Solid State Phys.*, 1971, vol. 4, no. 18, p. 3083–3094.

Материал поступил в редколлегию
Received
05.10.2018

Сведения об авторах / Information about the Authors

Чернышев Владимир Артурович, кандидат физико-математических наук, доцент, Уральский федеральный университет (ул. Мира, 19, Екатеринбург, 620002, Россия)

Vladimir A. Chernyshev, Candidate of Science (Physics and Mathematics), Docent, Ural Federal University (19 Mira Str., Ekaterinburg, 620002, Russian Federation)

vladimir.chernyshev@urfu.ru

Рюмшин Виталий Сергеевич, студент, Уральский федеральный университет (ул. Мира, 19, Екатеринбург, 620002, Россия)

Vitaliy S. Ryumshin, Student, Ural Federal University (19 Mira Str., Ekaterinburg, 620002, Russian Federation)

krios_two@mail.ru

«Сибирский физический журнал» публикует обзорные, оригинальные и дискуссионные статьи, посвященные научным исследованиям и методике преподавания физики в различных разделах науки, соответствующих направлениям подготовки на кафедрах физического факультета НГУ. Журнал издается на русском языке, однако возможна публикация статей иностранных авторов на английском языке.

1. Очередность публикации статей определяется их готовностью к печати. Рукописи, оформленные без соблюдения правил, к рассмотрению не принимаются.

Вне очереди печатаются краткие сообщения (не более четырех журнальных страниц), требующие срочной публикации и содержащие принципиально новые результаты научных исследований, проводимых в рамках тематики журнала.

Рекламные материалы публикуются при наличии гарантии оплаты, устанавливаемой по соглашению сторон.

2. В журнале печатаются результаты, ранее не опубликованные и не предназначенные к одновременной публикации в других изданиях. Публикация не должна нарушить авторского права других лиц или организаций.

Направляя свою рукопись в редакцию, авторы автоматически передают учредителям и редколлегии права на издание данной статьи на русском или английском языке и на ее распространение в России и за рубежом. При этом за авторами сохраняются все права как собственников данной рукописи. В частности, согласно международным соглашениям о передаче авторских прав за авторами остается право копировать опубликованную статью или ее часть для их собственного использования и распространения внутри учреждений, сотрудниками которых они являются. Копии, сделанные с соблюдением этих условий, должны сохранять знак авторского права, который появился в оригинальной опубликованной работе. Кроме того, авторы имеют право повторно использовать весь этот материал целиком или частично в компиляциях своих собственных работ или в учебниках, авторами которых они являются. В этих случаях достаточно включить полную ссылку на первоначально опубликованную статью.

3. Направлять рукописи в редакцию авторам рекомендуется по электронной почте либо приносить в редакцию электронную версию (в форматах MS WORD – *.doc, или *.docx, или *.rtf) на диске или флэш-памяти. Такая отправка исходных материалов значительно ускоряет процесс рецензирования.

Авторам предлагается посылать свои сообщения в наиболее сжатой форме, совместимой с ясностью изложения, в совершенно обработанном и окончательном виде, предпочтительно без формул и выкладок промежуточного характера и громоздких математических выражений. Не следует повторять в подписях к рисункам пояснений, уже содержащихся в тексте рукописи, а также представлять одни и те же результаты и в виде таблиц, и в виде графиков.

Рекомендованный объем присылаемых материалов: обзорные статьи – до 25-ти страниц, оригинальные материалы – до 12-ти страниц, краткие сообщения – до 4-х страниц. В любом случае объем рукописи должен быть логически оправданным.

Не рекомендуется предоставление электронных копий рукописей в формате LATEX. По техническим условиям издательства в этом случае рукопись будет преобразована редакцией в формат MS WORD, что может привести к значительному увеличению времени обработки рукописи и искажениям авторского текста.

Сокращений слов, кроме стандартных, применять нельзя. Все страницы рукописи должны быть пронумерованы.

4. При отправке файлов по электронной почте просим придерживаться следующих правил:

- указывать в поле subject (тема) название, номер журнала и фамилию автора;
- использовать attach (присоединение);
- в случае больших объемов информации возможно использование общеизвестных архиваторов (ARJ, ZIP, RAR);
- в состав электронной версии рукописи должны входить:

- ✓ файл, содержащий текст рукописи со вставленными в него рисунками;
- ✓ отдельные файлы с рисунками высокого качества;
- ✓ файл со сведениями об авторах (полностью фамилия, имя, отчество, ученые степень и звание, место работы, служебный адрес и телефон, адрес электронной почты для оперативной связи);
- ✓ файл с переводом на английский язык следующей информации: ФИО авторов, аффилиация, адрес, название статьи, аннотация, ключевые слова, подрисуночные подписи, названия таблиц.

Авторы вставляют рисунки и таблицы в текст рукописи так, как считают нужным. Рукопись обязательно должна быть подписана автором, а при наличии нескольких авторов – всеми соавторами.

Редакция обращает внимание авторов на возможность и целесообразность использования цветного графического материала.

5. В начале рукописи должны быть указаны индекс УДК, название статьи, инициалы и фамилии авторов, название и почтовый адрес учреждений, в которых выполнена работа, аннотация, содержащая основные результаты и выводы работы (в английском варианте не менее 1 000 знаков, русский вариант должен соответствовать английскому), ключевые слова, сведения о финансовой поддержке работы.

Например:

УДК 29.19.37; 47.03.08

Оценка конвективного массопереноса при импульсном лазерном нагреве поверхности стали

И. И. Иванов

*Институт теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН
Новосибирск, Россия*

Аннотация

Проведено численное моделирование процессов при легировании поверхностного слоя металла в подложке под воздействием импульсного лазерного излучения. С помощью предлагаемой математической модели, описывающей термо- и гидродинамические явления, рассматриваются процессы, включающие разогрев металла, его плавление, конвективный тепломассоперенос в расплаве и затвердевание после окончания импульса. По результатам численных экспериментов в зависимости от условий нагрева подложки определены два варианта формирования структуры течения в расплаве и распределения легирующего вещества.

Ключевые слова

термокапиллярная конвекция, конвективный тепломассоперенос, импульсное лазерное излучение, легирование металла, численное моделирование, поверхностно-активное вещество

Благодарности

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ, проект № 12345

Evaluation of Convective Mass Transfer during Pulsed Laser Heating of Steel Surface

I. I. Ivanov

*Khristianovich Institute of Theoretical and Applied Mechanics SB RAS
Novosibirsk, Russian Federation*

Abstract

Numerical modeling of the processes during the alloying of the substrate surface metal layer under pulsed laser radiation is carried out. The proposed mathematical model is used to consider the various processes, such as: heating, phase transition, heat and mass transfer in the molten metal, solidification of the melt. The surface of the substrate is covered with a layer of alloying substance that penetrates the melt. According to the results of numerical experiments, depending on the heating conditions of the substrate, two variants of the formation of the flow structure in the melt and the distribution of the alloying substance are determined.

Keywords

thermocapillary convection, convective heat and mass transfer, impulse laser radiation, metal alloying, numerical simulation, surface active component

Acknowledgements

This work was supported by the Russian Science Foundation, grant number 18-79-00138

Основной текст статьи**Список литературы / References (в порядке цитирования)**

Материал поступил в редколлегию

Received

06.06.2018

Сведения об авторе / Information about the Author

Иванов Иван Иванович, доктор физико-математических наук, старший научный сотрудник, Институт теоретической и прикладной механики им. С. А. Христиановича СО РАН (ул. Институтская, 4/1, Новосибирск, 630090, Россия)

Ivan I. Ivanov, Doctor of Science (Physics and Mathematics), Senior Researcher, Khristianovich Institute of Theoretical and Applied Mechanics SB RAS (4/1 Institutskaya Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation)

ivanov@itam.nsc.ru

ORCID 0000-0001-0005-0040

Подпись автора (авторов)

6. Параметры страницы: формат – А4; ориентация – книжная; поля (см): слева – 2,5; справа – 1; сверху – 2,5; снизу – 2,3; от края до нижнего колонтитула – 1,3.

7. Основной текст: стиль – «Обычный»: гарнитура (шрифт) Times New Roman (Сур), кегль (размер) 12 пунктов, абзацный отступ – 0,5 см, через 1,5 интервала, выравнивание – по ширине.

В тексте рукописи следует избегать аббревиатур, даже таких общепринятых, как ЭДС, ВТСП и т. п. Использование аббревиатур и простых химических формул в заголовках рукописей совершенно недопустимо. Следует писать: высокотемпературная сверхпроводимость, кремний, арсенид галлия и т. п., давая при необходимости соответствующую аббревиатуру или химическую формулу в тексте. Исключение могут составлять формулы сложных химических соединений. Каждое первое употребление аббревиатуры в тексте должно быть четко пояснено.

Не следует:

- производить табуляцию;
- разделять абзацы пустой строкой;
- использовать макросы, сохранять текст в виде шаблона и с установкой «только для чтения»;

- распределять текст по двум или более столбцам;
- расставлять принудительные переносы.

8. Таблицы должны иметь заголовки. В таблицах обязательно указываются единицы измерения величин.

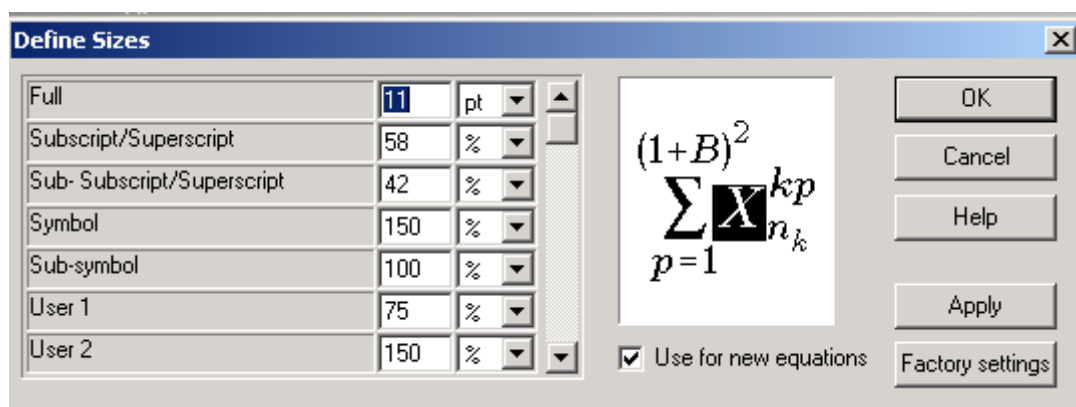
9. Число рисунков должно быть логически оправданным, качество – высоким. Файлы изображений должны находиться в том же каталоге, что и основной документ и иметь имена, соответствующие номерам рисунков в рукописи (например, 09.tif или 22a.jpg).

10. Подписи к рисункам в электронной версии рукописи выполняются под рисунками, точка в конце не ставится. Если имеется несколько рисунков, объединенных одной подписью, они обозначаются русскими строчными буквами: а, б, в...

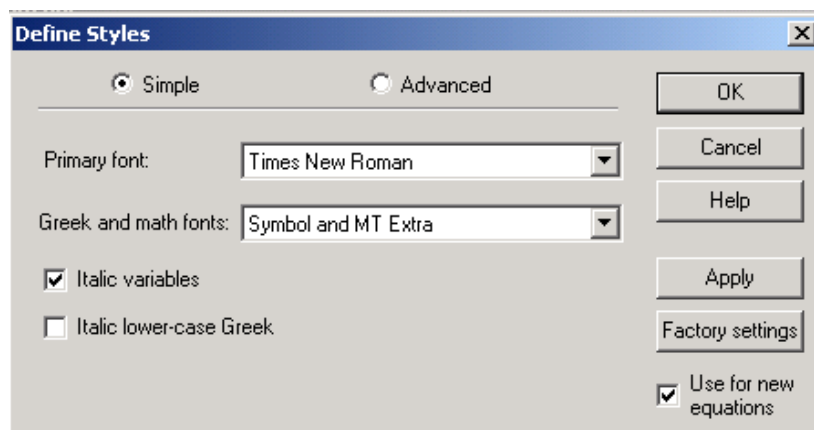
11. Формулы набираются в редакторе формул Microsoft Equation MathType в подбор к тексту или отдельной строкой по центру, **11 кеглем**.

Нумерация формул сквозная, в круглых скобках, прижатых к правому полю. Нумеровать следует только те формулы, на которые есть ссылки в тексте.

Настройки редактора формул



а



б

12. Библиографические ссылки. В тексте в квадратных скобках арабскими цифрами указывается порядковый номер научного труда в библиографическом списке, например: [2; 3], [4–6] и т. д. В конце рукописи помещается список литературы в порядке упоминания в рукописи. Ссылки на российские издания приводятся на русском языке и сопровождаются переводом на английский язык (в отдельной строке, но под тем же номером). Библиографическое описание публикации включает: фамилию и инициалы автора, полное название работы, а также издания, в котором опубликована (для статей), город, название издательства, год издания, том (для многотомных изданий), номер, выпуск (для периодических изданий), объем

публикации (количество страниц – для монографии, первая и последняя страницы – для статьи).

Ссылки на интернет-источники, базы данных и т. п. ресурсы, не поддающиеся библиографическому описанию, оформляются в виде примечаний (сносок).

13. В конце рукописи авторы могут поместить список использованных обозначений и сокращений.

14. Возвращение рукописи на доработку не означает, что рукопись уже принята к печати. Доработанный вариант необходимо прислать в редакцию в электронном виде с соблюдением всех требований вместе с ее начальной версией, рецензией и ответом на замечания рецензента не позднее двух месяцев со дня его отсылки. В противном случае первоначальная дата поступления рукописи при публикации не указывается.

15. Решение редакционной коллегии о принятии рукописи к печати или ее отклонении сообщается авторам.

В случае приема рукописи к публикации авторы должны прислать или передать в редакцию два бумажных экземпляра рукописи. Материалы печатаются на принтере на одной стороне стандартного (формат А4) листа белой бумаги. При этом тексты рукописи в бумажной и электронной версиях должны быть идентичными.

16. К рукописи прилагаются письмо от учреждения, в котором выполнена работа, и экспертное заключение о возможности ее опубликования в открытой печати. Если коллектив авторов включает сотрудников различных учреждений, необходимо представить направления от всех учреждений.

Сообщения, основанные на работах, выполненных в учреждении (учреждениях), должны содержать точное название и адрес учреждения (учреждений), публикуемые в статье.

17. После подготовки рукописи к печати редакция отправляет авторам электронную версию статьи с просьбой срочно сообщить в редакцию электронной почтой о замеченных опечатках для внесения исправлений в печатный текст.

18. После выхода журнала статьи размещаются на сайте физического факультета НГУ, а также на сайте Научной электронной библиотеки (elibrary.ru).

Адрес редакции

Физический факультет, к. 140 главного корпуса НГУ
ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090,
редакция «Сибирского физического журнала»

тел. +7 (383) 363 44 25
physics@vestnik.nsu.ru