## СОДЕРЖАНИЕ

### Том 85, номер 2, 2021

Новые материалы и технологии для систем безопасности	
Новое семейство плазменных возбуждений в частично экранированной двумерной электронной системе	
А. М. Зарезин, П. А. Гусихин, В. М. Муравьев, С. И. Губарев, И. В. Кукушкин	158
Релаксация плазменных возбуждений в двумерных электронных системах	
Н. Д. Семенов, И. В. Андреев, В. М. Муравьев, С. И. Губарев, И. В. Кукушкин	164
Наблюдение спинового резонанса двумерных электронов проводимости в бесконтактной геометрии	
А. Р. Хисамеева, А. В. Щепетильников, Ю. А. Нефёдов, И. В. Кукушкин	170
Исследование функционализированных аптамерами наночастиц серебра в качестве SERS-субстратов для селективного детектирования белков	
Д. А. Грибанев, Е. Г. Завьялова, А. С. Гамбарян, В. И. Кукушкин, Е. В. Рудакова, О. А. Амбарцумян	175
Изучение влияния морфологии металлических наночастиц на поверхности оксида кремния на оптические свойства SERS-подложек	
В. И. Кукушкин, А. С. Астраханцева, Е. Н. Морозова	182
Термализация триплетных магнитоэкситонов и спиновый транспорт в холловском диэлектрике	
А. В. Горбунов, А. С. Журавлев, Л. В. Кулик, В. Б. Тимофеев	190
Изучение частично поляризованной по спину двумерной электронной системы методом время-разрешенного магнито-оптического вращения Керра	
А. В. Ларионов, Э. Степанец-Хуссейн, Л. В. Кулик	196
Спиновое локально несжимаемое состояние дробного квантового эффекта Холла при $v=3/2$	
Л. В. Кулик, А. С. Журавлев	202
Кулоновские корреляции как первопричина ферромагнитного перехода в режиме квантового эффекта Холла с фактором заполнения 2	
А. Б. Ваньков, И. В. Кукушкин	206
Изготовление методом трехмерной фемтосекундной лазерной субмикронной литографии спиральных фазовых пластинок для формирования пучков фотонов с орбитальным угловым моментом	
А. А. Деменев, А. В. Ковальчук, Е. А. Полушкин, С. Ю. Шаповал	212
Гигантские оптические флуктуации в квантово-размерных электронных структурах	
А. Л. Парахонский, М. В. Лебедев, А. А. Дремин, В. В. Соловьев, И. В. Кукушкин	220
Термодинамика квантово-холловских ферромагнетиков	
Б. Д. Кайсин, И. В. Кукушкин	227
Экспресс-анализ природного газа и газовых смесей с помощью портативного КР спектрометра, соединенного с полым фотонно-кристаллическим световодом	
М. Н. Ханнанов, В. Е. Кирпичев	232
Резонансная фотолюминесценция в условиях дробного квантового эффекта Холла	
Е. И. Белозеров, А. С. Журавлев, Л. В. Кулик	238
Инжекционный полупроводниковый лазер с циркулярно-поляризованным излучением А. А. Максимов, Е. В. Филатов, И. И. Тартаковский	241
A. A. MUKCUMUO, D. D. YUMUMUO, M. M. LUMUUKUUCKUU	∠+1

A	R	Черненко.	A	C	Бпичкин

245

Волновые явления в неоднородных средах	
Пространственное и спектральное разделение каналов генерации излучения в мощных лазерных диодах	
А. Г. Ржанов	250
Определение скорости деградации мощного лазерного диода по зависимости спектра излучения от вариаций тока накачки	
В. В. Близнюк, В. А. Паршин, А. Г. Ржанов, А. Е. Тарасов	255
Нелинейная динамика позитронов в электромагнитных и гравитационных полях	
М. Г. Гапочка, В. И. Денисов, И. П. Денисова, А. Ф. Королев, Н. Н. Кошелев	261
Перемежаемость вблизи границы обобщенной синхронизации в системах со сложной топологией аттрактора	
В. А. Ханадеев, О. И. Москаленко, А. А. Короновский	265
Уточнение скоростей реакций пиролиза этана	
О. И. Топор, А. А. Белов, И. А. Федоров	270
Применение голографической интерферометрии для передачи информации через возмущенную океаническую среду	
В. М. Кузькин, М. Бади, С. А. Пересёлков, Е. С. Казначеева	276
Улучшение оценок погрешности для экспоненциально сходящихся квадратур	
В. С. Хохлачев, А. А. Белов, Н. Н. Калиткин	282
Автоматизированный метод расчета объемов газовой разгрузки мелководных метановых сипов по данным пассивной акустики	
И. Н. Иванова, А. А. Будников, Т. В. Малахова, Ю. А. Якимычев	289
Квантово-размерные объекты в виде ловушек экситонов и трионов и их роль при экситонном частичном блокировании мемристорных свойств тонких пленок оксида цинка	
И. И. Попов, А. В. Мороз, Д. В. Минеев, А. А. Гладышева, Н. И. Сушенцов	294
Двухквантовые транзиент-голограммы на экситонных уровнях полупроводниковых квантовых точек	
В. В. Самарцев, Т. Г. Митрофанова, О. Х. Хасанов	302

### **Contents**

### Vol. 85, No 2, 2021

New Materials and Technologies for Security Systems	
Novel plasma excitations in partially-gated two-dimensional electron systems	
A. M. Zarezin, P. A. Gusikhin, V. M. Muravev, S. I. Gubarev, I. V. Kukushkin	158
Relaxation of plasma excitations in two-dimensional electron systems	
N. D. Semenov, I. V. Andreev, V. M. Muravev, S. I. Gubarev, I. V. Kukushkin	164
Observation of spin resonance of two-dimensional electrons in contactless geometries	
A. R. Khisameeva, A. V. Shchepetilnikov, Yu. A. Nefyodov, I. V. Kukushkin	170
Investigation of aptamer-functionalized silver nanoparticles as SERS substrates for selective protein detection	
D. A. Gribanev, E. G. Zavyalova, A. S. Gambaryan, V. I. Kukushkin, E. V. Rudakova, O. A. Ambartsumyan	175
A study of the influence of the morphology of metal nanoparticles on the surface of silicon oxide on the optical properties of SERS substrates	
I. V. Kukushkin, A. S. Astrakhantseva, E. N. Morozova	182
Thermalization of triplet magnetoexcitons and spin transport in a Hall dielectric	
A. V. Gorbunov, A. S. Zhuravlev, L. V. Kulik, V. B. Timofeev	190
Study of a partly spin-polarized two-dimensional electron system by means of time-resolved magneto-optical Kerr rotation	
A. V. Larionov, E. Stepanets-Khussein, L. V. Kulik	196
Locally incompressible form of the fractional quantum Hall effect at $v = 3/2$	
L. V. Kulik, A. S. Zhuravlev	202
Coulomb correlations as a root for ferromagnetic transition in a quantum Hall state with filling factor 2	
A. B. Vankov, I. V. Kukushkin	206
The 3D femtosecond laser submicron lithography method of fabrication of spiral phase plates for creating photon beams with orbital angular momentum	
A. A. Demenev, A. V. Kovalchuk, E. A. Polushkin, S. Yu. Shapoval	212
Giant optical fluctuations in quantum-size electron systems	
A. L. Parakhonsky, M. V. Lebedev, A. A. Dremin, V. V. Solovyev, I. V. Kukushkin	220
Thermodynamics of quantum-hall ferromagnets	
B. D. Kaysin, I. V. Kukushkin	227
Express analysis of natural gas and gas mixtures using a portable Raman spectrometer connected to a hollow photonic crystal light guide	
M. N. Khannanov, V. E. Kirpichev	232
Resonant photoluminescence under conditions of the fractional quantum Hall effect E. I. Belozerov, A. S. Zhuravlev, L. V. Kulik	238
Electrically pumped semiconductor laser with circularly polarized radiation	
A. A. Maksimov, E. V. Filatov, I. I. Tartakovskii	241
Improved mechanical exfoliation technique for transition metals dichalcogenide structures	
A. V. Chernenko, A. S. Brichkin	245

### Wave Phenomena in Inhomogeneous Media

Spatial and spectral separation of radiation generation channels in high-power laser diodes	
A. G. Rzhanov	250
Determination of the degradation rate in a high-power laser diode by the radiation spectrum dependence from the bias current variations	
V. V. Bliznyuk, V. A. Parshin, A. G. Rzhanov, A. E. Tarasov	255
The nonlinear dynamics of positrons in the electromagnetic and gravitational fields	
M. G. Gapochka, V. I. Denisov, I. P. Denisova, A. F. Korolev, N. N. Koshelev	261
Intermittency near the boundary of generalized synchronization in systems with a complex topology of attractor	
V. A. Khanadeev, O. I. Moskalenko, A. A. Koronovskii	265
Refinement of reactivities of reactions describing ethane pyrolysis	
O. I. Topor, A. A. Belov, I. A. Fedorov	270
The application of the holographic interferometry for transmission of the information through perturbed ocean environment	
V. M. Kuz'kin, M. Badiey, S. A. Pereselkov, E. S. Kaznacheeva	276
Improvement of error estimates for exponentially convergent quadratures	
V. S. Khokhlachev, A. A. Belov, N. N. Kalitkin	282
Automated calculation method for the bubble gas flux using passive acoustics data of shallow-water methane seeps	
I. N. Ivanova, A. A. Budnikov, T. V. Malakhova, I. A. Iakimychev	289
Quantum-sized objects in the form of exciton and trion traps and their role in excitonic partial blocking of memristor properties of thin zinc oxide films	
I. I. Popov, A. V. Moroz, D. V. Mineev, A. A. Gladysheva, N. I. Sushentsov	294
Two-quantum transient holograms on the exciton levels of semiconductor quantum dots	
V. V. Samartsev, T. G. Mitrofanova, O. Kh. Khasanov	302

# Новые материалы и технологии для систем безопасности

Редактор тематического выпуска

Академик РАН И. В. Кукушкин

УЛК 538.9

# НОВОЕ СЕМЕЙСТВО ПЛАЗМЕННЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ В ЧАСТИЧНО ЭКРАНИРОВАННОЙ ДВУМЕРНОЙ ЭЛЕКТРОННОЙ СИСТЕМЕ

© 2021 г. А. М. Зарезин<sup>1, 2, \*</sup>, П. А. Гусихин<sup>1</sup>, В. М. Муравьев<sup>1</sup>, С. И. Губарев<sup>1</sup>, И. В. Кукушкин<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки "Институт физики твердого тела Российской академии наук", Черноголовка, Россия <sup>2</sup>Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования "Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет)", Долгопрудный, Россия

\*E-mail: zarezin.am@phystech.edu Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Исследовано микроволновое поглощение в частично экранированных двумерных электронных системах в GaAs/AlGaAs гетероструктурах. Обнаружено новое семейство плазменных возбуждений — "проксимити" плазмоны, связанные с наличием близкого затвора, частично экранирующего двумерную электронную систему. Измерены дисперсионные зависимости "проксимити" плазменных возбуждений для случаев затвора в форме полоски и в форме диска. Установлено, что экспериментальные данные отлично согласуются с разработанной теорией. Обнаружена особая "заряженная" мода — релятивистский плазмон, свойства которого зависят от внешней электрической цепи.

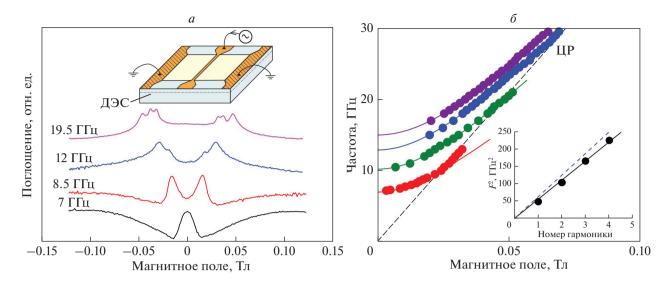
**DOI:** 10.31857/S0367676521020307

### **ВВЕДЕНИЕ**

Плазменные возбуждения в системах пониженной размерности обладают рядом уникальных свойств, являясь объектом теоретических и экспериментальных исследований на протяжении более чем 50 лет [1—7]. В отличие от трехмерных, двумерные (2D) плазменные возбуждения обладают бесщелевым законом дисперсии. Частоты низкоразмерных плазмонов можно менять в широком диапазоне, изменяя электронную концентрацию или прикладывая внешнее магнитное поле. Кроме того, частоты соответствующих плазменных возбуждений для типичных полупроводниковых структур лежат в ТГц и суб-ТГц диапазонах, представляя тем самым особый интерес для инженерных и технических приложений [8—13].

Диэлектрическое окружение двумерной электронной системы (ДЭС) оказывает существенное влияние на спектр 2D плазмонов. Так как в полупроводниковых структурах ДЭС находится близко к поверхности, диэлектрическое окружение может быть легко модифицировано. В частности, нанесение металлического затвора на поверхность полупроводниковой структуры приводит к изменению спектра 2D плазмонов с корневого на линейный [7, 14, 15].

Плазменные возбуждения в ДЭС были тщательно изучены теоретически и исследованы экспериментально как в случае неэкранированных ДЭС, так и для ДЭС, полностью экранированных металлическим затвором. Однако, несмотря на свою распространенность в реально исследуемых структурах, остался без внимания случай ДЭС, частично экранированной металлическим затвором. Совсем недавно в системах с данной конфигурацией был экспериментально обнаружен и исследован целый ряд различных плазменных возбуждений [16-19], до этого не наблюдавшихся. Для описания плазмонов в частично экранированных ДЭС была построена теория [19–21], отлично согласующаяся с экспериментом. Плазменные моды, связанные с близко расположенным металлическим затвором конечного размера, были названы "проксимити" плазмонами (proximity plasmons). Были исследованы ДЭС с затворами в форме полоски с большим отношением длины к ширине и в форме диска. Оказалось, что "проксимити" плазменные моды в частично экранированной ДЭС существенным образом отличаются от плазменных мод как в случае неэкранированной, так и в случае полностью экранированной ДЭС.



**Рис. 1.** Спектры микроволнового поглощения (*a*) для указанных частот в зависимости от величины приложенного магнитного поля. Спектры сдвинуты по вертикали для удобства. На вставке показан схематический вид образца. Магнитодисперсионная зависимость (*δ*) для первых четырех гармоник "проксимити" плазмона. Кружки — экспериментальные точки, кривые — подгонка формулой (1). Пунктирная линия — частота циклотронного резонанса (ЦР). На вставке показана зависимость квадрата резонансной частоты в нулевом магнитном поле от номера гармоники. Прямая линия — линейная полгонка, пунктирная линия — теория (2).

Стоит особо отметить, что в случае, когда металлический затвор и ДЭС электрически соединены, например, с помощью проводящей проволоки, наблюдается дополнительная низкочастотная плазменная мода [22, 23] — релятивистский плазмон. Установлено, что у данной моды гибридизация со светом проявляется сильнее, чем у обычных плазменных возбуждений. От остальных "проксимити" мод релятивистский плазмон отличается тем, что является "заряженной" плазменной модой [19]. То есть ДЭС теряет квазинейтральность в процессе таких колебаний за счет соединения с затвором.

Эксперименты проводились на GaAs/AlGaAs гетероструктурах с квантовой ямой шириной 30 нм. Концентрация двумерных электронов в квантовой яме для различных образцов состав $n_s = (2.4 - 2.5) \cdot 10^{11}$  см<sup>-2</sup>, подвижность ляла  $\mu = (4-5) \cdot 10^6 \text{ см}^2 \cdot \text{B}^{-1} \cdot \text{c}^{-1}$ . Расстояние от ДЭС до поверхности полупроводниковой подложки составляло h = 370 и 440 нм для различных образцов. Сверхвысокочастотное (СВЧ) излучение подводилось к образцу по согласованному коаксиальному кабелю. Измерения проводились в криостате со сверхпроводящим магнитом (B = 0-2 Тл) при температуре T = 4.2 K. Плазменные возбуждения детектировались с помощью оптической методики, основанной на высокой чувствительности спектра люминесценции двумерных электронов к резонансному нагреву ДЭС.

### "ПРОКСИМИТИ" ПЛАЗМОНЫ В ДЭС С ЗАТВОРОМ В ФОРМЕ ПОЛОСКИ

Схематический вид исследуемого образца показан на вставке к рис. 1а. ДЭС имеет прямоугольную форму, в центре мезы термически напылен металлический затвор с шириной W == 20 мкм и длиной L = 0.5 мм. По бокам ДЭС на расстоянии a = 200 мкм от затвора расположены металлические заземленные контакты. Для данного образца концентрация двумерных электронов составляла  $n_s = 2.4 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ , подвижность  $\mu = 4 \cdot 10^6 \text{ cm}^2 \cdot \text{ B}^{-1} \cdot \text{ c}^{-1},$  расстояние от ДЭС до поверхности полупроводниковой подложки h == 440 нм. Центральный металлический затвор на границах ДЭС расширяется и на расстоянии 100 мкм переходит в контакты, имеющие размеры 100 × 100 мкм<sup>2</sup>. СВЧ излучение подводилось непосредственно к центральному затвору по согласованному коаксиальному кабелю.

На рис. 1a показаны кривые интенсивности микроволнового поглощения для указанных частот в зависимости от магнитного поля, приложенного перпендикулярно поверхности образца. Наблюдается серия резонансных пиков, смещающихся в большие магнитные поля при увеличении частоты. По результатам аналогичных подробных измерений в частотном диапазоне от 1 до 30 ГГц на рис. 16, показывающем зависимость резонансной частоты от магнитного поля, положения пиков отмечены закрашенными кружка-

ми. Наблюдаются четыре плазменные моды, демонстрирующие положительную магнитодисперсию. Показанные экспериментальные точки описываются формулой (сплошные кривые на рис. 16):

$$\omega^2 = \omega_p^2 + \omega_c^2,\tag{1}$$

где  $\omega_p$  — плазменная частота в нулевом магнитном поле,  $\omega_c = \frac{eB}{m^*}$  — частота циклотронного резонанса (ЦР), e — заряд электрона,  $m^*$  — эффективная масса в GaAs. Следует, однако, учесть, что экспериментальные точки имеют немного отличный от теории наклон и пересекают прямую циклотронного резонанса (ЦР), что, предположительно, является проявлением эффектов запазлывания.

Согласно теоретическим выкладкам [20], частота "проксимити" плазменной моды с волновым вектором, направленным вдоль полоски затвора, в нулевом магнитном поле описывается формулой:

$$\omega_{pr} = \sqrt{\frac{2n_s e^2 h}{m^* \varepsilon \varepsilon_0} \frac{q}{W}},\tag{2}$$

где q — волновой вектор "проксимити" плазменного возбуждения, направленный вдоль полоски затвора,  $\epsilon_0$  – диэлектрическая постоянная,  $\varepsilon = 12.8$  — диэлектрическая проницаемость GaAs,  $n_{\rm s}$  — концентрация двумерных электронов, h расстояние от ДЭС до поверхности полупроводниковой структуры (до затвора). Стоит отметить, что, несмотря на кажущуюся аналогию, "проксимити" плазмон возбуждается в геометрии бесконечной в идеальном случае ДЭС, частично экранированной металлическим затвором. Экранированный плазмон возбуждается, в некотором смысле, в противоположной конфигурации ограниченной ДЭС, полностью экранированной затвором, бесконечным в латеральном направлении. Закон дисперсии (2) имеет корневой характер, отличаясь от линейной дисперсионной зависимости экранированного плазмона. В то же время, следует отметить, что формула (2) содержит особенности, характерные как для экранированного, так и для неэкранированного плазмонов, а именно, пропорциональности квадратному корню из расстояния от затвора до ДЭС и квадратному корню из волнового вектора, соответственно.

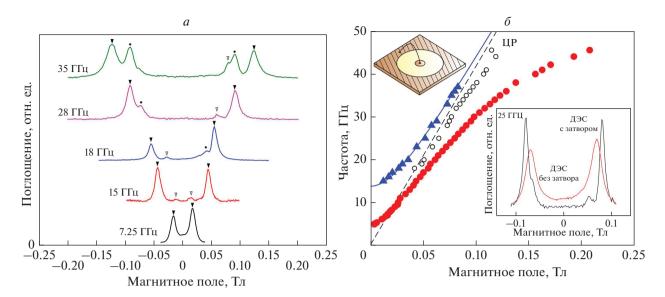
Чтобы удостовериться в том, что данные моды являются кратными гармониками "проксимити" плазмона, на вставке к рис. 16 показана зависимость квадрата резонансной частоты, полученной экстраполяцией формулы (1) к нулевому магнитному полю, от номера гармоники. В соответствии с формулой (2), данная зависимость имеет линейный характер, что подтверждает наблюдение первых четырех гармоник "проксимити" плазмо-

на. Пунктирная прямая показывает теоретическую зависимость (2) без подгоночных параметров. Видно, что теория хорошо соответствует экспериментальным точкам. Незначительное уменьшение частоты, по всей видимости, связано с проявлением эффектов запаздывания. Таким образом, на одном образце удалось пронаблюдать сразу четыре гармоники "проксимити" плазмона, что позволило однозначно идентифицировать их номера и установить дисперсионный закон данного плазменного возбуждений.

### "ПРОКСИМИТИ" ПЛАЗМОНЫ В ДЭС С ЗАТВОРОМ В ФОРМЕ ЛИСКА

Для дальнейшего исследования "проксимити" плазменных возбуждений был исследован образец, представляющий собой ДЭС в форме диска диаметром  $D=0.5\,$  мм, по периметру которой находился металлический контакт. Центральный затвор также имел форму диска и был соединен проволокой с периметрическим контактом. Концентрация двумерных электронов составляла  $n_s=2.5\cdot 10^{11}\,$  см $^{-2}$ , подвижность  $\mu=5\cdot 10^6\,$  см $^2\cdot B^{-1}\cdot c^{-1}$ , расстояние от ДЭС до поверхности полупроводниковой подложки  $h=370\,$  нм для образцов, рассмотренных в данном разделе. Были исследованы структуры с различными размерами затвора  $d=20,40,50,100\,$  мкм. Схематическое изображение образца показано на верхней вставке к рис.  $26.\,$ 

На рис. 2а показаны кривые интенсивности микроволнового поглощения для указанных частот в зависимости от магнитного поля. Наблюдаются три пика, по результатам более подробных измерений на рис. 26 показана зависимость резонансной частоты соответствующих пиков от магнитного поля. Резонансная частота возбуждения, положение которого обозначено закрашенными кружками на кривой микроволнового поглощения (рис. 2a) и полыми кружками на магнитодисперсионном графике (рис. 26), близка к частоте ЦР. Физическое происхождение данной моды не до конца понятно и, предположительно, связано с СВЧ откликом приконтактных областей ДЭС. В настоящей работе мы не будем останавливаться на этом вопросе. Наиболее высокочастотный пик обозначен полыми стрелками на рис. 2а и треугольниками на рис. 26. Для наиболее высокочастотного пика экспериментальные точки хорошо соответствуют зависимости (1). Соответствуюшая теоретическая кривая показана сплошной линией. Также наблюдается низкочастотное возбуждение, обозначенное закрашенными стрелками на рис. 2a и сплошными кружками на рис. 2b. Его резонансная частота в нулевом магнитном поле существенно ниже, чем у остальных возбуждений, ожидаемых в такой геометрии. Стоит отметить, что резонансная частота данной плазмен-



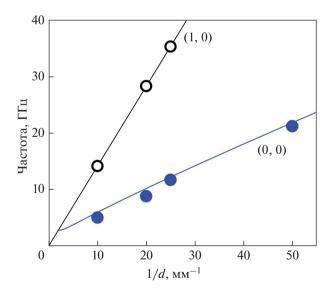
**Рис. 2.** Спектры микроволнового поглощения (a) в зависимости от величины приложенного магнитного поля. Магнитодисперсионная зависимость  $(\delta)$  для трех наблюдаемых мод, измеренная на образце с затвором в форме диска диаметром 100 мкм, схематически показанном на верхней вставке. Верхняя мода, соответствующая "проксимити" плазменному возбуждению с коэффициентом  $\Omega_{1,0}=2.4$ , обозначена закрашенными стрелками (a) и закрашенными треугольниками  $(\delta)$ . Мода, резонансная частота которой близка к частоте ЦР, обозначена закрашенными кружками (a) и полыми кружками  $(\delta)$ . Наиболее низкочастотная мода — релятивистский плазмон, обозначена полыми стрелками (a) и закрашенными кружками  $(\delta)$ . На нижней вставке к рисунку  $(\delta)$  показаны зависимости микроволнового поглощения от приложенного магнитного поля для образцов с центральным металлическим затвором и без него.

ной моды не стремится к частоте ЦР в больших магнитных полях, а асимптотически выходит на некоторое постоянное значение  $f_i$ .

На нижней вставке к рис. 26 показаны кривые микроволнового поглощения для образцов с центральным затвором и без него (размер и форма ДЭС одинаковые в обоих случаях) на частоте 25 ГГц. Видно, что при отсутствии центрального затвора наблюдается только мода, частота которой близка к частоте ЦР (полые кружки на рис. 26). Остальные две моды связаны с наличием центрального затвора и при его отсутствии не наблюдаются. Как будет показано далее, данные две моды (сплошные кружки и треугольники на рис. 26) относятся к семейству "проксимити" плазмонов. Экспериментальные зависимости резонансных частот данных мод в нулевом магнитном поле от обратного диаметра 1/d центрального затвора показаны на рис. 3 сплошными и полыми кружками для наиболее низкочастотной и высокочастотной наблюдаемых плазменных возбуждений, соответственно. Экспериментальные точки для высокочастотного возбуждения хорошо ложатся на линейную зависимость, в то время, как низкочастотная мода, предположительно, имеет более сложный дисперсионный закон.

В силу особенностей осесимметричной системы, в случае затвора в форме диска не наблюдается столь существенного изменения спектра при

переходе от полностью экранированной к частично экранированной металлическим затвором ДЭС. Дисперсионная зависимость "проксимити" плазмона в данном случае отличается только чис-



**Рис. 3.** Экспериментальная зависимость резонансной частоты "проксимити" (1,0) моды, показанной полыми кружками, и (0,0) моды, показанной сплошными кружками, в нулевом магнитном поле от обратного диаметра центрального затвора. Сплошные линии — теоретические зависимости (3)—(5).

ленным коэффициентом от аналогичной зависимости для экранированного плазмона [7], также имея линейный вид [21]:

$$\omega_{pr} = \Omega_{m,n} \cdot \sqrt{\frac{ne^2h}{m^*\varepsilon\varepsilon_0}} \cdot \frac{2}{d}.$$
 (3)

Коэффициент  $\Omega_{m,n}$  в данной формуле определяется из следующего уравнения:

$$\partial_{\Omega} J_{|m|}(\Omega) + |m| J_{|m|}(\Omega) / \Omega = 0, \tag{4}$$

где  $J_{|m|}-m$ -я функция Бесселя первого рода, а  $\Omega_{m,n}-(n+1)$ -й корень данного уравнения. Наиболее низкочастотной моде, описываемой уравнением (4), соответствует коэффициент  $\Omega_{1.0} = 2.4$ . Как будет показано далее, в семействе "проксимити" плазмонов присутствует более низкая по частоте мода, отвечающая индексам (0,0), коэффициент  $\Omega_{0.0}$  для которой задается похожим на (4) уравнением. Азимутальный и радиальный индексы т и п определяют число узлов осцилляций зарядовой плотности вдоль периметра затвора и в радиальном направлении, соответственно. Для сравнения, дисперсия аналогичной моды экранированного плазмона в диске описывается такой же формулой (3) с коэффициентом  $\Omega_{1.0}^{screened} = 1.8$ . Экспериментальные точки (полые кружки на рис. 3) отлично ложатся на теоретическую линейную дисперсионную зависимость (3), показанную сплошной линией, соответствуя (1,0) "проксимити" плазменной моде.

Рассмотрим оставшуюся наиболее низкочастотную моду. Как уже было отмечено ранее, она обладает необычным магнитополевым поведением и наблюдается на неожиданно низких частотах. Асимптотический выход резонансной частоты рассматриваемой моды на постоянное значение  $f_l = 61 \ \Gamma \Gamma \mu$  (за пределами частотного диапазона на рис. 26) в больших магнитных полях свидетельствует о наличии сильной гибридизации с фотонной модой внешнего резонатора [24, 25]. В работе [19] было показано, что соответствующий резонанс имеет аномально узкую ширину по частоте. Упомянутые особенности наблюдаемой низкочастотной моды позволяют отнести ее к релятивистским плазменным возбуждениям [22, 23]. Также уникальной особенностью релятивистского плазмона является возможность его наблюдения при условии  $\omega_p \tau < 1$ , где  $\tau$  — время релаксации двумерных электронов,  $\omega_p$  — резонансная частота плазменного возбуждений.

Стоит обратить внимание на то, что при постоянных геометрических параметрах системы на наиболее низкочастотную моду оказывает влияние проволока, соединяющая центральный металлический затвор с периметрическим контактом. В зависимости от длины и наличия данной

проволоки, наиболее низкочастотная из наблюдаемых плазменных мод — релятивистский плазмон, существенным образом модифицируется. В частности, данная мода не наблюдается, если отсутствует электрическое соединение центрального затвора и периметрического контакта ДЭС. Кроме того, и частота в нулевом магнитном поле, и асимптотическая частота релятивистского плазменного возбуждения  $f_l$  в большом магнитном поле в рассматриваемой геометрии уменьшаются при увеличении длины соединительной проволоки [19], демонстрируя тем самым сильную зависимость свойств рассматриваемой моды от внешней электрической цепи. Соединение металлического затвора и ДЭС посредством проволоки позволяет рассматривать ДЭС и затвор как обкладки конденсатора, попеременно заряжающиеся зарядами разного знака. При плазменных колебаниях данного типа ДЭС уже не является квазинейтральной. Таким образом, релятивистский плазмон является "заряженной" плазменной модой, что существенно отличает его от остальных типов плазменных возбуждений.

Будучи связанной с наличием центрального затвора, данная низкочастотная релятивистская мода также относится к семейству "проксимити" плазмонов. Она описывается азимутальным и радиальным индексами (0,0). Частота релятивистского плазмона в нулевом магнитном поле определяется выражением [19]:

$$J_0(\Omega) - \Omega \cdot J_1(\Omega) \cdot \ln(D/d) = 0, \tag{5}$$

полученным в приближении накоротко замкнутых центрального затвора и периметрического контакта ДЭС. Решением данного уравнения является коэффициент  $\Omega_{0,0}$ , определяющий посредством формулы (3) частоту релятивистского плазмона — (0,0) "проксимити" плазменной моды. Стоит отметить, что в уравнение (5) входит геометрический фактор — отношение диаметров центрального затвора и ДЭС, в отличие от уравнения (4). Приближенно дисперсионная зависимость релятивистского плазмона выражается следующей аналитической формулой [19]:

$$\omega_{rel} = \sqrt{\frac{2}{1/4 + \ln(D/d)}} \cdot \sqrt{\frac{ne^2 h}{m^* \epsilon \epsilon_0}} \cdot \frac{2}{d} \quad (D/d > 2). \quad (6)$$

В отличие от "проксимити" мод с ненулевыми индексами, закон дисперсии релятивистского (0,0) плазмона имеет более сложный нелинейный вид. Соответствующая теоретическая кривая, являющаяся результатом численного решения уравнения (5), показана сплошной линией, подписанной индексами (0,0) на рис. 3. Экспериментальные точки наиболее низкочастотного релятивистского плазменного возбуждения достаточно хорошо описываются соответствующей нелинейной дисперсионной зависимостью.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе представлено исследование "проксимити" плазменных мод. Рассмотрены системы, близкие к полупроводниковым НЕМТ-структурам (англ. НЕМТ – транзистор с высокой подвижностью электронов), представляющим собой ДЭС с затвором и контактами. На примере структур с затворами в форме полоски и диска показано, что в таких системах наблюдается новое семейство плазменных возбуждений, отличающееся по свойствам от плазмонов как в неэкранированных, так и в полностью экранированных ДЭС. Помимо этого, при электрическом соединении затвора и ДЭС наблюдается дополнительная низкочастотная мода – релятивистский плазмон. Данная мода также относится к семейству "проксимити" плазмонов и представляет собой "заряженную" моду. Стоит отметить, что на свойства релятивистского плазменного возбуждения оказывает сильное влияние внешняя электрическая цепь. Таким образом, проведенные исследования новых типов плазменных возбуждений потенциально могут стать основой для элементной базы ТГц электроники.

Авторы выражают благодарность Волкову В.А. и Заболотных А.А. Работа выполнена в рамках темы государственного задания ИФТТ РАН.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Stern F. // Phys. Rev. Lett. 1967. V. 18. No 14. Art. No 546.
- Grimes C.C., Adams G. // Phys. Rev. Lett. 1976. V. 36. No 3. Art. No 145.
- 3. Allen S.J. Jr., Tsui D.C., Logan R.A. // Phys. Rev. Lett. 1977. V. 38. No 17. Art. No 980.
- 4. *Theis T.N., Kotthaus J.P., Stiles P.J.* // Sol. St. Commun. 1977. V. 24. No 4. P. 273.
- 5. *Glattli D.C.*, *Andrei E.Y.*, *Deville G. et al.* // Phys. Rev. Lett. 1985. V. 54. No 15. Art. No 1710.
- Ando T., Fowler A.B., Stern F. // Rev. Mod. Phys. 1982.
   V. 54. No 2. Art. No 437.
- 7. Fetter A.L. // Phys. Rev. B. 1985. V. 32. No 12. Art. No 7676.

- 8. Zhang X.-C., Xu J. Introduction to THz wave photonics. N.Y.: Springer, 2010.
- 9. Муравьев В.М., Кукушкин И.В., Смет Ю., фон Клитцинг К. // Письма в ЖЭТФ. 2009. Т. 90. № 3. С. 216; Muravev V.M., Kukushkin I.V., Smet J., von Klitzing K. // JETP Lett. 2009. V. 90. No 3. P. 197.
- Muravev V.M., Kukushkin I.V. // Appl. Phys. Lett. 2012.
   V. 100. No 8. Art. No 082102.
- 11. *Муравьев В.М.*, *Соловьев В.В.*, Фортунатов А.А. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2016. Т. 103. № 12. С. 890; *Muravev V.M.*, *Solov'ev V.V.*, *Fortunatov A.A. et al.* // JETP Lett. 2016. V. 103. No 12. P. 891.
- 12. Muravev V.M., Fortunatov A.A., Dremin A.A., Kukush-kin I.V. // JETP Lett. 2016. V. 103. No 6. P. 380.
- 13. Shchepetilnikov A.V., Zarezin A.M., Muravev V.M. et al. // Opt. Engin. 2020. V. 59. No 6. Art. No 061617.
- 14. *Чаплик А.В.* // ЖЭТФ. 1972. Т. 62. № 2. С. 746; *Chaplik A.V.* // Sov. Phys. JETP. 1972. V. 35. No 2. P. 395.
- Muravev V.M., Jiang C., Kukushkin I.V. et al. // Phys. Rev. B. 2007. V. 75. No 19. Art. No 193307.
- Muravev V.M., Gusikhin P.A., Zarezin A.M. et al. // Phys. Rev. B. 2019. V. 99. No 24. Art. No 241406.
- 17. Muravev V.M., Zarezin A.M., Gusikhin P.A. et al. // Phys. Rev. B. 2019. V. 100. No 20. Art. No 205405.
- 18. Зарезин А.М., Гусихин П.А., Муравьев В.М., Кукушкин И.В. // Письма в ЖЭТФ. 2020. Т. 111. № 5. С. 316; Zarezin A.M., Gusikhin P.A., Muravev V.M., Kukushkin I.V. // JETP Lett. 2020. V. 111. No 5. P. 282.
- Muravev V.M., Gusikhin P.A., Zarezin A.M. et al. // Phys. Rev. B. 2020. V. 102. No 8. Art. No 081301.
- Zabolotnykh A.A., Volkov V.A. // Phys. Rev. B. 2019.
   V. 99. No 16. Art. No 165304.
- Zabolotnykh A.A., Volkov V.A. // Semiconductors. 2019.
   V. 53. No 14. P. 1870.
- 22. Гусихин П.А., Муравьев В.М., Кукушкин И.В. // Письма в ЖЭТФ. 2014. Т. 100. № 10. С. 732; Gusikh-in P.A., Muravev V.M., Kukushkin I.V. // JETP Lett. 2014. V. 100. № 10. P. 648.
- 23. *Muravev V.M., Gusikhin P.A., Andreev I.V., Kukush-kin I.V.* // Phys. Rev. Lett. 2015. V. 114. No 10. Art. No 106805.
- 24. *Mikhailov S.A.*, *Savostianova N.A.* // Phys. Rev. B. 2005. V. 83. No 7. Art. No 075309.
- 25. Muravev V.M., Andreev I.V., Kukushkin I.V. et al. // Phys. Rev. B. 2011. V. 71. No 3. Art. No 035320.

### Novel plasma excitations in partially-gated two-dimensional electron systems

### A. M. Zarezin<sup>a, b, \*</sup>, P. A. Gusikhin<sup>a</sup>, V. M. Muravev<sup>a</sup>, S. I. Gubarev<sup>a</sup>, I. V. Kukushkin<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia <sup>b</sup>Moscow Institute of Physics and Technology (National Research University), Dolgoprudnyi, 141701 Russia \*e-mail: zarezin.am@phystech.edu

Microwave absorption of the partially-gated two-dimensional electron systems in GaAs/AlGaAs heterostructures are investigated. Novel "proximity" plasma excitations are discovered. It is established that these plasma excitations are connected with metallic gate partially screening two-dimensional electron system. Dispersion lows in cases of strip and disk gates are measured. The experimental data are in excellent agreement with the developed theory. Moreover special "charged" mode is observed, which is called relativistic plasmon. The unique feature of this plasmon is dependence of its properties on the external electrical circuit. УЛК 538.9

# РЕЛАКСАЦИЯ ПЛАЗМЕННЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ В ДВУМЕРНЫХ ЭЛЕКТРОННЫХ СИСТЕМАХ

© 2021 г. Н. Д. Семенов<sup>1</sup>, И. В. Андреев<sup>1</sup>, В. М. Муравьев<sup>1, \*</sup>, С. И. Губарев<sup>1</sup>, И. В. Кукушкин<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки "Институт физики твердого тела Российской академии наук", Черноголовка, Россия \*E-mail: muravev@issp.ac.ru Поступила в редакцию 28.08.2020 г.

Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Исследованы процессы релаксации плазменных возбуждений в двумерных электронных системах (ДЭС) в гетероструктурах GaAs/AlGaAs. Изучено влияние радиационного и некогерентного столкновительного механизмов релаксации на ширину линии циклотронного магнитоплазменного резонанса (ЦР). Установлено, что ЦР возникает как чистый резонанс, который не гибридизуется с размерными магнитоплазменными возбуждениями. Показано, как вследствие взаимодействия когерентного излучательного и некогерентного столкновительного механизмов плазменной релаксации магнитоплазменные резонансы образуют тонкую структуру ЦР. Проведен сравнительный анализ циклотронного и транспортного времен релаксации в зависимости от температуры и концентрации основных носителей ДЭС. Продемонстрировано, что время циклотронной релаксации может превосходить транспортное при низких концентрациях.

#### **DOI:** 10.31857/S0367676521020253

### **ВВЕДЕНИЕ**

Плазменные возбуждения в двумерных электронных системах (ДЭС) являются достаточно удобными объектами для изучения явлений волновой оптики и эффектов взаимодействия света с веществом.

Для прикладных задач важно понимать механизмы, влияющие на релаксацию плазменных возбуждений. Ширина плазменного резонанса определяется суммой некогерентного столкновительного и излучательного вкладов  $\Delta \omega = \gamma + \Gamma$  [1–3], где второе слагаемое описывает когерентное дипольное переизлучение электромагнитных волн колеблющимися двумерными электронами.

В данной работе было проведено детальное исследование излучательного и столкновительного механизмов релаксации циклотронного магнитоплазменного возбуждения. Было показано, что отношение длины волны резонансного микроволнового излучения и латерального размера ДЭС определяет основной механизм релаксации магнитоплазменных возбуждений. В свою очередь это позволяет рассмотреть предельные случаи, где различные механизмы релаксации доминируют по отдельности.

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА И ОБРАЗЦЫ

Эксперименты проводились на наборе высококачественных одиночных квантовых ям GaAs/  $Al_xGa_{1-x}As$ . Электронная плотность  $n_s$  в разных образцах менялась в диапазоне от 0.02 до  $3.0 \times 10^{11}$  см<sup>-2</sup>. Из этих гетероструктур были изготовлены мезы в форме дисков.

Магнитоплазменные моды возбуждались в образце под действием микроволнового излучения в диапазоне частот  $1-250~\Gamma\Gamma$ ц. Использовались два различных подхода для возбуждения и детектирования микроволновых резонансов в образце.

В первом способе для возбуждения использовалась волноводная методика со свободно распространяющимся по прямоугольному тракту излучением. Образец помещался непосредственно внутрь волновода. При этом использовался оптический метод детектирования микроволнового поглощения [4, 5], основанный на высокой чувствительности спектра рекомбинантной фотолюминесценции ДЭС к разогреву.

Во втором способе использовалась так называемая копланарно-трансмиссионная методика [6, 7]: мезы в форме дисков размещались в щелях копланарного волновода (волновое сопротивле-

ние 50 Ом), литографически сформированного на поверхности образца. В такой схеме магнитоплазменные возбуждения возникают под действием поля, сконцентрированного в щелях трансмиссионной линии. Сигнал в диапазоне частот f = 0.1—40 ГГц подводится к линии по коаксиальному кабелю, присоединенному к генератору. Непосредственно измеряемой величиной являлось пропускание копланарного волновода, минимумы пропускания отвечают максимумам микроволнового поглощения в дисках ДЭС.

Эксперименты проводились в гелиевом криостате со сверхпроводящим магнитом при температурах образца T = 1.5 - 100 K.

### ИЗЛУЧАТЕЛЬНАЯ РЕЛАКСАЦИЯ В ДЭС

На рис. 1 изображена магнитодисперсия плазменных возбуждений в дисках ДЭС с диаметром d = 1 мм и электронной концентрацией  $n_s = 0.9 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ . При частотах меньше 20 ГГц наблюдается только один пик плазмонного резонанса, смещающийся в сторону больших магнитных полей с увеличением частоты. Этот пик отвечает циклотронной магнитоплазменной моде. Нижняя вставка к рис. 1 показывает, что в больших частотах возникают второй, а после и третий резонансные максимумы, соответствующие кратным гармоникам магнитоплазменного резонанса. При этом с увеличением частоты все моды значительно уширяются, а их частоты асимптотически стремятся к циклотронной частоте. Полученные магнитодисперсии хорошо описываются теоретической зависимостью, выведенной для дипольно-активных магнитоплазменных мод в дисках ДЭС в приближении эллиптического профиля электронной плотности [8, 9]:

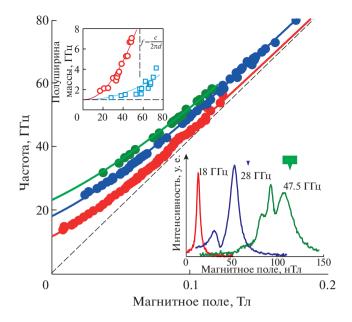
$$\omega = \frac{\omega_c}{2} + \sqrt{\omega_p^2 + \left(\frac{\omega_c}{2}\right)^2},\tag{1}$$

где  $\omega_p$  — плазменная частота в нулевом магнитном поле.

Вставка 2 на рис. 1 демонстрирует зависимость ширины линии от частоты для фундаментальной моды (круги) и ее второй гармоники (квадраты). Экспериментальные значения были получены из полуширины резонансов по магнитному полю

 $\Delta B$  и наклону  $\frac{\partial f}{\partial B}$  магнитодисперсионной зависимости как  $\Delta f = (\partial f/\partial B) \Delta B$ . Из рисунка видно, что в низких частотах ширины обеих гармоник стремятся к одному значению  $\Delta f = 1$  ГГц, что позволяет сделать вывод, что релаксация в этом случае связана с некогерентным столкновительным рас-

сеянием [10], т.е.  $\Delta \omega = \frac{1}{\tau}$ . Стремительный рост по-



**Рис. 1** Магнитодисперсия первых трех мод в диске d = 1 мм с электронной концентраций  $n_s = 0.9 \cdot 10^{11}$  см $^{-2}$ . Пунктирная линия соответствует циклотронной частоте в GaAs. На нижней вставке приведены интенсивности микроволнового поглощения ДЭС для возбуждающих частот 18, 28 и 47.5 ГГц. Верхняя вставка демонстрирует зависимость ширины линии от резонансной частоты для первой (круги) и второй (квадраты) магнитоплазменных мод.

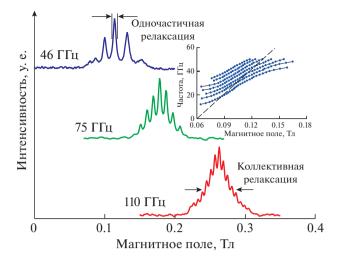
луширины линии наблюдается при  $f \sim c/nd$  (n- эффективный показатель преломления среды).

При значениях  $f=\frac{c}{2nd}$  первая мода пропадает совсем, а вторая продолжает уширение. Этот эффект можно соотнести с появлением второго слагаемого в полуширине линии:  $\Delta \omega = \gamma + \Gamma_{disk}$ , где  $\Gamma_{disk}$  отвечает за излучательный вклад когерентно осциллирующих электронов ДЭС. Имеет место оценка [1, 2, 11]  $\Gamma_{disk} \sim N\Gamma_0$ , где  $\Gamma_0$  — величина излучательного затухания одного электрона, а количество осциллирующих на одной частоте электронов в диске можно оценить через длину когерентности  $L_c$ :  $N \sim n_s L_c^2$ . Итого:

$$\Gamma_{disk} \sim \Gamma \frac{L_c^2}{\lambda^2}, \quad \lambda \gg L_c,$$
 (2)

$$\Gamma = \frac{\sigma_{xx} e}{2m^* \mu c \epsilon_0} \times \frac{1}{(1 + n_{GaAs})/2} = \frac{\sigma_{xx}}{(1 + n_{GaAs})/2c \epsilon_0} \gamma. (3)$$

Под  $\Gamma$  [3] понимается не зависящая от частоты излучательная полуширина линии в бесконечной ДЭС;  $n = (1 + n_{\text{GaAs}})/2 -$  эффективный показатель преломления среды. В данном экспери-



**Рис. 2.** Интенсивность микроволнового поглощения ДЭС в форме диска d=2.5 мм с электронной концентраций  $n_s=1.6\cdot 10^{11}~{\rm cm}^{-2}$  от магнитного поля. Для всех трех возбуждающих частот 46, 75 и 110 ГГц видно наложение узких размерных гармоник на широкую линию циклотронного резонанса. На вставке изображена магнитодисперсия группы магнитоплазменных возбуждений. Пунктирной линией обозначено положение циклотронной частоты.

менте  $\Delta f = \Gamma/2\pi = 7$  ГГц. Сплошными линиями на вставке к рис. 1 показаны квадратичные аппроксимации полуширины по формуле (2) с параметрами  $L_{c1}=d$  и  $L_{c2}=d/2$  соответственно. Видно, что с увеличением номера моды уменьшается пространственная когерентность. В нашем случае длины отличаются в два раза. При двукратном увеличении диаметра диска в два раза уменьшаются частоты, на которых начинает доминировать излучательный вклад. Отсюда следует, что для дисков основной механизм уширения линии определяется отношением [12] их диаметра к длине волны возбуждающего излучения  $d/\lambda$ . При  $d/\lambda \ll 1$  преимущественное влияние оказывает некогерентный столкновительный механизм релаксации, а при  $d/\lambda \ge 1$  — когерентный излучательный.

### ТОНКАЯ СТРУКТУРА ЦИКЛОТРОННОГО РЕЗОНАНСА

На вставке к рис. 2 представлены магнитодисперсии для образца с концентрацией электронов  $n_s=1.6\cdot 10^{11}~{\rm cm}^{-2}$  и диаметром мезы  $d=2.5~{\rm mm}$ . При таких размерах значительными становятся эффекты запаздывания, описывающиеся пара-

метром запаздывания  $A = \frac{\omega_p}{\omega_{ph}} \sim 1$ , где плазменная

[13]  $(\omega_n)$  и фотонная  $(\omega_{nh})$  частоты берутся для одного и того же значения волнового числа, определяемого размером ДЭС. В этом режиме наблюдается сильная гибридизация между плазмонными возбуждениями и фотонными модами в подложке, что приводит к пересечению линии циклотронного резонанса  $\omega_{\text{ЦР}} = \frac{eB}{m^*}$  (штриховая линия) более пологими магнитодисперсионными кривыми [14-16]. На рисунке продемонстрирована серия линий, соответствующая разным плазменным модам на частотах f < 50 ГГц. В этом диапазоне частот основной вклад в рассеяние вносит некогерентный столкновительный член  $\gamma > \Gamma_{disk}$ . Однако ситуация меняется с повышением частоты. В диапазоне до 100 ГГи наблюдается слияние нескольких магнитоплазменных резонансов (рис. 2). Центр огибающей с повышением частоты смещается в область больших магнитных полей и соответствует  $B_{\text{IIP}}$ . Это явление можно проинтерпретировать как наблюдение чистого (несмещенного) уширенного ( $\Delta \omega = \Gamma$ ) циклотронного резонанса, образованного узкими ( $\Delta \omega = 1/\tau$ ) магнитоплазменными возбуждениями. Последние формируют тонкую структуру [17] циклотронного резонанса. Таким образом можно сделать вывод, что циклотронный резонанс не гибридизуется с размерными модами. На частоте  $f = 110 \ \Gamma \Gamma$ ц отдельные резонансы уже достаточно размыты, что приводит к исчезновению тонкой структуры. Из этого следует два критерия для наблюдения эффекта: 1) когерентный излучательный вклад в рассеяние должен доминировать над одночастичным столкновительным  $\Gamma_{disk} \approx \Gamma > \gamma$  (что эквивалентно  $\sigma_{xx}/\epsilon_0 > c$ ), 2) расстояние между магнитоплазменными резонансами должно быть больше их ширин. Расстояние между частотами N и N+1 гармоник магнитоплазменного резонанса можно оценить из разложения формулы (2) при условии  $\omega \gg \omega_p$  до первого порядка малости и подставляя выражение для плазменной частоты:

$$\Delta\Omega = \frac{\omega_p^2 (N=1)}{2\omega_c} = \left(\frac{\sigma_{xy}}{c\epsilon_0}\right) \left(\frac{\omega_{ph}}{4\epsilon}\right), \tag{4}$$

$$\sigma_{xy} = \frac{en_s}{B},\tag{5}$$

$$\omega_p^2 = \frac{n_s e^2}{2m^* \epsilon \epsilon_0} q, (6)$$

где q — волновой вектор плазменной волны в ДЭС. Тогда второе условие  $\Delta\Omega > \gamma$  для наблюдения тонкой структуры соответствует ( $\sigma_{xy}/\epsilon_0 > c$ ).

### ИССЛЕДОВАНИЕ ВРЕМЕНИ РЕЛАКСАЦИИ ЦИКЛОТРОННОГО РЕЗОНАНСА

При описании процессов рассеяния в электронных системах во внешнем магнитном поле можно рассмотреть несколько каналов диссипации, и связанных с ними времен. Для случая некогерентной релаксации этими временами будут: полное квантовое, циклотронное и транспортное времена рассеяния. Первое можно оценить через  $au_{\mathrm{K}} = \left\lceil \int W_{pp} \cdot dp' \right\rceil^{-1}$ , где  $W_{pp'}$  — это вероятность рассеяния между состояниями с импульсами р и р'. При этом выражение для транспортного времени выглядит иначе:  $\tau_{\rm T} = \left[\int W_{pp'} (1-\cos\theta) dp'\right]^{-1}$ , где  $\theta$  — угол рассеяния. В зависимости от расстояния действия рассеивающего потенциала возможны различные соотношения между транспортным и полным квантовым временами [18]. Для короткодействующего потенциала  $\tau_{\rm K}/\tau_{\rm T}\approx 1$ (электрон-фононное рассеяние) и  $\tau_{\rm K}/\tau_{\rm T} \ll 1$  для дальнодействующего (потенциал донора). До сих пор во многих работах при оценке циклотронного времени рассеяния полагают  $\tau_{\text{HP}} = \tau_{\text{K}}$ . Это равенство не является до конца верным, что и будет продемонстрировано далее. В этой части работы исследуется именно соотношение между циклотронным и транспортным временем рассеяния.

Для исследования времени релаксации циклотронного резонанса изучалось микроволновое поглощение ДЭС в дисках диаметром d=1 мм в частотном диапазоне до 40 ГГц. В таком режиме ширина линии определяется в основном циклотронным временем релаксации  $\Delta \omega = 1/\tau_{\rm ЦP}$  (радиационным уширением в данном случае можно пренебречь, так как для используемого образца  $\Gamma/2\pi \approx 0.3$  ГГц, что сильно меньше чем минимальная резонансная полуширина  $\Delta f = 4$  ГГц). Для измерения зависимости ширины линии от температуры была выбрана частота возбуждающего сигнала f = 37 ГГц. Экспериментальные значения были получены из полуширины резонансов по магнитному полю  $\Delta R$  и наклону  $\frac{\partial f}{\partial t}$  маг-

сов по магнитному полю  $\Delta B$  и наклону  $\frac{\partial f}{\partial B}$  магнитодисперсионной зависимости. На рис. 3 изображена температурная зависимость времени релаксации для циклотронного резонанса (красные круги). Синими кругами показана температурная зависимость транспортного времени релаксации, вычисленного по формуле:

$$\tau_{\rm T} = \frac{m^*}{n_{\rm s}e^2 \rho_{xx}},\tag{7}$$

где  $\rho_{xx}$  — диагональная компонента тензора удельного сопротивления в нулевом магнитном поле.

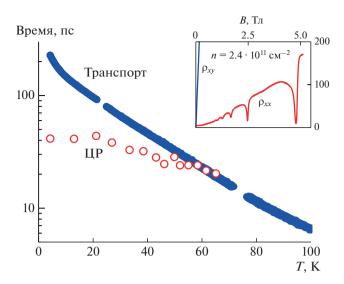
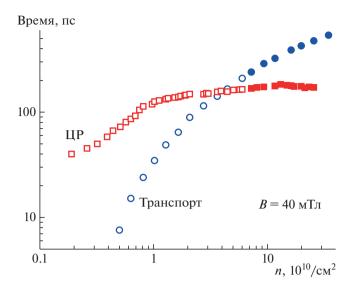


Рис. 3 Температурный зависимости циклотронного (ЦР) и транспортного (Транспорт) времен релаксации. На вставке представлены зависимости компонент тензора проводимости от магнитного поля, измеренные с помощью Холловской методики.

Транспортные измерения проводились в геометрии холловского мостика. Видно, что с ростом температуры время транспортной релаксации уменьшается и сравнивается с циклотронным. Этот случай хорошо описывается в приближении  $\tau_{\text{ЦР}} = \tau_{\text{K}}$ : при низких температурах электронное рассеяние в основном определяется дальнодействующим потенциалом донора ( $\tau_{\text{K}}/\tau_{\text{T}} \ll 1$ ), в то время как при повышении температур основной вклад вносит электрон-фононное рассеяние ( $\tau_{\text{K}}/\tau_{\text{T}} \approx 1$ ). Значимость последнего эффекта подтверждается вычислением квантового времени рассеяния ( $\tau_{\text{K}} \approx 1$ ) из осцилляций Шубникова—де Газа (вставка на рис. 3).

Для изучения зависимости времени релаксации от электронной концентрации в ДЭС была использована оптическая методика детектирования микроволнового поглощения. На рис. 4 представлена зависимость циклотронного и транспортного времен релаксации от электронной концентрации в диапазоне  $2 \cdot 10^9 - 3 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ . Видно, что с ростом концентрации время транспортной релаксации увеличивается вдвое, в то время как циклотронное меняется мало. При  $n_s > 4 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$  оно фиксируется вблизи значения  $\tau_{\rm K} \approx 150$  пс. Оказалось, что в области низких концентраций ( $n_s < 4 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ )  $\tau_{\rm ЦP}/\tau_{\rm T} > 1$ . Это обстоятельство нельзя объяснить в рамках приближения  $\tau_{\rm HP} \simeq \tau_{\rm K}$ , поскольку неэффективность ма-



**Рис. 4.** Зависимость циклотронного (квадраты) и транспортного (круги) времен релаксации от электронной концентрации фиксированном магнитном поле B=40 мТл. Контуры и закрашенные области соответствуют двум разным образцам.

лоуглового рассеяния электронов всегда приводит к  $\tau_{\rm K}/\tau_{\rm T} < 1$ . Возможно, что подобное поведение связано с локализацией носителей заряда, что приводит к различию в механизмах диссипации у разных групп. Приведенные методы измерений позволяют получить среднее время, куда взвешенно входят вклады разных типов релаксаций. Транспортная методика измеряет время релаксации только для делокализованных состояний с характерным пространственным расстоянием, сравнимым с размером образца (миллиметры). При этом циклотронное время релаксации определяется электронным рассеянием на характерных расстояниях сравнимых с радиусом циклотронной орбиты.

### **ЗАКЛЮЧЕНИЕ**

В данной работе были исследованы релаксации плазменных возбуждений в ДЭС. Показано, что вклад каждого из механизмов в ширину линии циклотронного магнитоплазменного резонанса определяется отношением  $d/\lambda$  длины волны возбуждающего излучения к размеру образца. Так в случае  $d/\lambda \ll 1$  преобладающим оказывается некогерентное столкновительное уширение, а при  $\frac{d}{\lambda} \ge 1$  — когерентное излучательное. Помимо этого установлено, что по своей природе циклотронный резонанс является чистым резонансом и не гибридизуется с размерными магнитоплазмен-

ными модами. При этом если когерентный излучательный вклад в рассеяние доминирует над одночастичным столкновительным, и выполнено условие  $(\sigma_{xy}/\varepsilon_0>c)$ , то наблюдается тонкая структура циклотронного резонанса: наложение на контур ЦР узких магнитоплазменными мод.

Для случая столкновительной релаксации произведен сравнительный анализ циклотронного и транспортного времен рассеяния. Экспериментально показано, что с повышением температуры транспортное время стремится к циклотронному, а при  $T>60~{\rm K}$  они совпадают. Малая зависимость времени релаксации от электронной концентрации отличает циклотронное время от транспортного и не описывается в рамках существующих теорий.

Работа выполнена в рамках темы государственного задания ИФТТ РАН.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Mikhailov S.A. // Phys. Rev. B 1996. V. 54. Art. No 10335.
- Mikhailov S.A. // Phys. Rev. B. 2004. V. 70. Art. No 165311.
- 3. Zhang Q., Arikawa T., Kato E. et al. // Phys. Rev. Lett. 2014. V. 113. Art. No 047601.
- 4. Ashkinadze B.M., Nazimov A., Cohen E. et al. // Phys. Stat. Sol. A. 1997. V. 164. P. 523.
- Kukushkin I.V., Smet J.H., von Klitzing K., Wegscheider W. // Nature (London). 2002. V. 415. P. 409.
- Engel L.W., Shahar D., Kurdak C., Tsui D.C. // Phys. Rev. Lett. 1993. V. 71. Art. No 2638.
- Andreev I.V., Muravev V.M., Smetnev D.V., Kukushkin I.V. // Phys. Rev. B. 2012. V. 86. Art. No 125315.
- 8. *Allen S.J., Stormer H.L., Hwang J.C.M.* // Phys. Rev. B.1983. V. 28. Art. No 4875.
- 9. Shikin V., Nazin S., Heitmann D., Demel T. // Phys. Rev. B. 1991. V. 43. Art. No 11903.
- Andreev I.V., Muravev V.M., Belyanin V.N., Kukushkin I.V. // Appl. Phys. Lett. 2014. V. 105. Art. No 202106.
- Leavitt R.P., Little J.W. // Phys. Rev. B. 1986. V. 34. Art. No 2450.
- 12. Андреев И.В., Муравьев В.М., Белянин В.Н. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2015. Т. 102. № 11—12. С. 938.
- 13. Stern F. // Phys. Rev. Lett. 1967. V. 18. P. 546.
- Kukushkin I.V., Smet J.H., Mikhailov S.A. et al. // Phys. Rev. Lett. 2003. V. 90. Art. No 156801.
- Kukushkin I.V., Muravev V.M., Smet J.H. et al. // Phys. Rev. B. 2006. V. 73. Art. No 113310.
- Mikhailov S.A., Savostianova N.A. // Phys. Rev. B. 2005. V. 71. Art. No 035320.
- 17. *Muravev V.M.*, *Andreev I.V.*, *Gubarev S.I. et al.* // Phys. Rev. B. 2016. V. 93. Art. No 041110.
- Masutomi R., Sasaki K., Yasuda I. et al. // Phys. Rev. Lett. 2011. V. 106. Art. No 196404.

# Relaxation of plasma excitations in two-dimensional electron systems N. D. Semenov<sup>a</sup>, I. V. Andreev<sup>a</sup>, V. M. Muravev<sup>a</sup>, \*, S. I. Gubarev<sup>a</sup>, I. V. Kukushkin<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia \*e-mail: muravev@issp.ac.ru

We investigate the relaxation processes of plasma excitations in two-dimensional electron systems (2DES) in GaAs/AlGaAs heterostructures. The influence of radiational and incoherent collisional relaxation mechanisms on the linewidth of cyclotron magnetoplasma resonance (CR) is studied. CR arises as a pure resonance that does not hybridize with dimensional magnetoplasma excitations. We demonstrate how magnetoplasma resonances form a CR's fine structure due to the interaction of coherent radiative and incoherent collisional mechanisms of two-dimensional plasma relaxation. Also, a comparative analysis of the dependencies of cyclotron and relaxation time on both temperature and electron density of the 2DES was carried out. It was demonstrated that the cyclotron relaxation time could exceed the transport time at low electron concentrations.

УЛК 538.9

# НАБЛЮДЕНИЕ СПИНОВОГО РЕЗОНАНСА ДВУМЕРНЫХ ЭЛЕКТРОНОВ ПРОВОДИМОСТИ В БЕСКОНТАКТНОЙ ГЕОМЕТРИИ

© 2021 г. А. Р. Хисамеева<sup>1, \*</sup>, А. В. Щепетильников<sup>1</sup>, Ю. А. Нефёдов<sup>1</sup>, И. В. Кукушкин<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки "Институт физики твердого тела Российской академии наук", Черноголовка, Россия

\*E-mail: akhisameeva@issp.ac.ru Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Электронный парамагнитный резонанс (ЭПР) в двумерной системе на основе гетероперехода ZnO/MgZnO наблюдался посредством двух принципиально различных бесконтактных методик. В первой геометрии спиновый резонанс детектировался в сигнале пропускания широкополосного копланарного волновода, нанесенного на поверхность образца. Во второй методике, ЭПР проявлялся в изменение мощности радиоволнового сигнала, проходящего через пару Т-образных антенн "излучатель/детектор", емкостно связанных с двумерным каналом. Было проведено сравнение полученных результатов с данными, измеренными стандартной транспортной методикой детектирования ЭПР.

**DOI:** 10.31857/S0367676521020150

Послелние лесятилетия исслелованиям спиновой степени свободы в низкоразмерных системах посвящается все больше работ не только с целью изучения фундаментальных физических явлений, но и для поиска потенциального прикладного применения. Вследствие прогресса в молекулярно-лучевой эпитаксии, селективно легированные полупроводниковые гетероструктуры оказались почти идеальными системами для таких исследований. Эксперименты продемонстрировали богатое разнообразие фундаментальных физических явлений, обусловленных спиновой степенью свободы, например: квантовый эффект Холла [1, 2], переход металл-изолятор [3, 4], скирмионные кристаллы [5], структуры с нетривиальной спиновой текстурой [6]. Перспектива прикладного применения в свою очередь связана с созданием элементов спиновой электроники, которые позволят обрабатывать и хранить информацию [7], а также проводить квантовые вычисления [8]. Актуальность данного направления приводит к поиску и исследованию материальных систем с новыми уникальными свойствами и разработке новых экспериментальных методик по изучению физики спина.

Одной из таких перспективных полупроводниковых структур является гетеропереход ZnO/MgZnO, который, в отличие от хорошо изученных GaAs/AlGaAs гетероструктур, характеризуется наличием относительно большой эффек-

тивной массы электронов ( $m^* \approx 0.3 m_0$ ), что приводит к доминированию кулоновской энергии над энергией Ферми. Данный факт открывает путь для исследования новых интересных явлений, связанных с сильным электрон-электронным взаимодействием [9–12]. Двумерная система в структуре ZnO/MgZnO формируется благодаря разнице значений внутренней электрической поляризации в ZnO и MgZnO [13]. Изменяя концентрацию Mg в MgZnO, можно варьировать ширину запрещенной зоны и степень поляризации в данном материале [14] и, как следствие, управлять двумерной плотностью электронов. С точки зрения прикладного применения, структуры ZnO/MgZnO обладают такими преимуществами как большая ширина запрещенной зоны (3.42 эВ), а следовательно, и большое значение электрического поля пробоя в сравнение с GaAs и Si, высокая скорость насыщения, химическая устойчивость.

В целях исследования спиновых свойств ДЭС наиболее эффективным методом является электронный парамагнитный резонанс [15, 16]. Стандартная методика детектирования, основанная на изменении добротности резонатора, не применима к ДЭС вследствие небольшого количества спинов [17]. В 1983 г. был предложен более эффективный метод [15], получивший широкое применение и основывающийся на высокой чувствительности продольного магнетосопротивле-

ния в режиме целочисленного квантового эффекта Холла к поглощению микроволнового излучения. В экспериментах электронный парамагнитный резонанс детектируется при фиксированной частоте микроволнового излучения как острый пик в магнитосопротивление образца. В рамках данной статьи были апробированы две принципиально различные бесконтактные методики для детектирования спинового резонанса электронов проводимости в ДЭС на основе гетероперехода ZnO/MgZnO. Их отличительной и важной особенностью является то, что к ДЭС не формировались омические контакты, а значит, образец не подвергался воздействию высокой температуры при термическом отжиге контактов. Более того, в измерениях не требовалось пропускать электрический ток через образцы, что могло бы приводить к разогреву образцов и влиять на исследуемые физические явления.

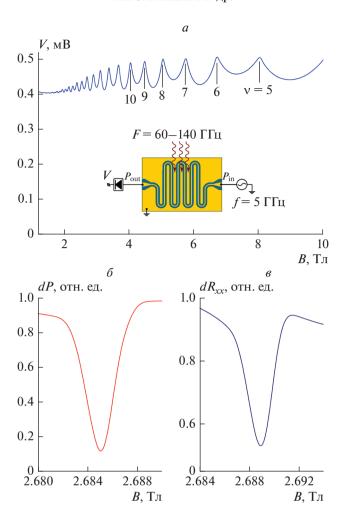
Исследования проводились на высококачественных гетеропереходах ZnO/MgZnO, в которых электронная плотность и подвижность составляли  $n_s = 9.8 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ и } \mu = 10^4 \text{ см}^2/(\text{B} \cdot \text{c})$ . Образцы погружались в полутораградусную камеру криостата с возможностью откачки паров <sup>4</sup>He, что позволяло достигать температуры T = 1.5 K. Измерения проводились в перпендикулярном поверхности образца магнитном поле до 10 Тл. В эксперименте использовались два источника микроволнового излучения. В качестве источника возбуждающего излучения использовался генератор микроволнового излучения с сопряженными блоками умножения частоты в диапазоне F = 60-140 ГГц. Данное СВЧ излучение доставлялось до образца посредством сверхразмерного волновода. В качестве источника зондирующего излучения использовался дополнительный генератор (до 20 ГГц). Данное излучение передавалось к образцу по коаксиальной линии.

В случае копланарно-трансмиссионной методики [18] поверхность образца пассивировалась слоем фоторезиста толщиной 1 мкм (рис. 1а). На поверхности фоторезиста был сформирован копланарный волновод в форме меандра, ширина щели составляла 30 мкм. Параметры волновода выбирались для обеспечения характеристического импеданса  $Z_0 = 50$  Ом. Сигнал от генератора зондирующего излучения подавался на центральный проводник, два боковых были заземлены. Проходящий сигнал создавал в щелях копланарного волновода высокочастотное электрическое поле, которое эффективно взаимодействовало с двумерными электронами, при этом излучение частично поглощалось. Для детектирования мощности СВЧсигнала на выходе копланарной линии применялся диод Шоттки. Мощность зондирующего излучения проходящего через копланарный волновод можно выразить как [19]:

$$P = P_{in} \exp(-\alpha \sigma_{xx}),$$

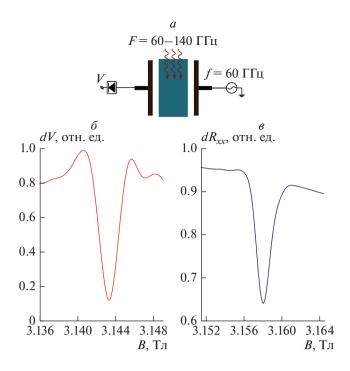
где  $P_{in}$  — мощность на входе копланарного волновода,  $\sigma_{xx}$  — действительная часть продольного сопротивления двумерного канала, а  $\alpha$  — коэффициент, определяемый в основном геометрическими размерами и диэлектрическими свойствами окружения. Таким образом, анализ поглощения копланарной линии позволяет изучать проводимость двумерного канала без необходимости формирования омического контакта к нему.

Зависимость напряжения V, измеряемого на выходе Шоттки диода, от магнитного поля показаны на рис. 1а при частоте зондирующего излучения, проходящего через копланарный волновод,  $f = 5 \Gamma \Gamma \mu$ . В области сильных магнитных полей осцилляции Шубникова-де Гааза хорошо разрешаются. Положения минимумов осцилляций точно соответствуют электронной концентрации, полученной для данной структуры из независимых транспортных измерений. При резонансном поглощении образцом возбуждающего излучения вблизи ЭПР проводимость двумерного канала и, как следствие, мощность зондирующего излучения на выходе копланарной линии резко изменялась. Таким образом, ЭПР может детектироваться как пик в сигнале пропускания зондирующего излучения (т.е., фактически, в напряжении, измеряемом на выходе Шоттки диода), при развороте магнитного поля и фиксированной частоте возбуждающего излучения. Для улучшения соотношения сигнал/шум применялась стандартная схема синхронного детектирования. Возбуждающее излучение модулировалось по амплитуде, а синхронный детектор был настроен на частоту данной амплитудной модуляции, брал сигнал с выхода диода Шоттки и таким образом измерял вариацию сигнала пропускания, обусловленную поглощением возбуждающего излучения двумерной электронной системой. На рис. 16 показан типичный пик ЭПР, измеренный таким способом, при частоте возбуждающего излучения  $F = 72.6 \ \Gamma \Gamma$ ц и частоте зондирующего излучения в 5 ГГц. Полученные данные демонстрируют, что бесконтактная копланарно-трансмиссионная методика может использоваться для исследования спинового резонанса двумерных электронов проводимости. Также на рис. 2в для сравнения показана кривая зависимости добавки  $\delta R_{xx}$  к сопротивлению образца для близкой частоты возбуждающего излучения  $F = 72.75 \Gamma \Gamma \mu$ . В обоих случаях резонансные линии совпадают по форме и ширине резонанса.



**Рис. 1.** Зависимость постоянного напряжения V на выходе диода Шоттки от магнитного поля B при T=1.5 К. Частота зондирующего излучения f=5 ГГц. Показаны положения нескольких минимумов Шубникова—де Гааза. Вставка: схематическое изображение экспериментальной установки (a). Типичный пик ЭПР в пропускании копланарного волновода при частоте возбуждающего излучения F=72.6 ГГц. Частота зондирующего излучения 5 ГГц (b). Характерный пик ЭПР в зависимости добавки к продольному сопротивлению образца dR от магнитного поля B при частоте возбуждающего излучения F=72.75 ГГц (a).

Вторая методика основывалась на детектировании ЭПР при анализе сигнала пропускания между двумя Т-образными антеннами, емкостно связанных с ДЭС [20, 21]. Схема экспериментальной установки изображена на рис. 2а. Образец с ДЭС имел прямоугольную форму и крепился на специальном держателе с жестко закрепленными планарными Т-образными антеннами. Расстояние между краем образца и каждой из антенн составляло не менее 0.5 мм. Генератор зондирующего излучения был подключен к одной из антенн по коаксиальной линии. Данная антенна служила излучателем в радиочастотном диапазоне. Вторая антенна соединялась с коаксиальным детектором для измерения сигнала пропускания. Частота зондирующего излучения составляла 60 МГц, и соответствовала оптимальной чувствительности коаксиального детектора в исследуемом диапазоне частот. При этом часть зондирующего излучения поглощалась двумерным каналом, а значит, сигнал пропускания зависел от проводимости структуры. По аналогии с копланарно-трансмиссионным подходом использовалась методика синхронного детектирования. На рис. 26 приведена характерная магнитополевая зависимость измеряемой синхронным детектором добавки к напряжению на выходе Шоттки диода, обусловленной поглощением возбуждающего излучения вблизи ЭПР. Для сравнения на соседней панели (рис. 1в) приведены данные для стандартной транспортной методики детектирования ЭПР, которые с хорошей точностью совпадают между собой по ширине и форме. Полученный результат демонстрирует, как и в случае копланарно-трансмиссионного подхода, возмож-



**Рис. 2.** Схематическое изображение экспериментальной методики (*a*). Магнитополевая зависимость вблизи ЭПР вариации выходного напряжении dV, обусловленного поглощением образцом возбуждающего излучения с частотой  $F = 85.1 \ \Gamma\Gamma$ ц ( $\delta$ ). Пик ЭПР, полученный с использованием транспортной методики для частоты  $F = 85.5 \ \Gamma\Gamma$ ц ( $\delta$ ).

ность применения предложенной методики не только для определения положения резонансного магнитного поля ЭПР, но и для анализа таких важных параметров как ширина и амплитуда спинового резонанса.

В заключение отметим, что, спиновый резонанс двумерных электронов был исследован в гетеропереходах ZnO/MgZnO в двух принципиально различных бесконтактных геометриях. В обоих подходах ЭПР наблюдался как острый пик в сигнале пропускания при фиксированной частоте возбуждающего излучения и развороте магнитного поля. В первом случае измерялось пропускание зондирующего излучения через копланарную линию, а во втором — через пару планарных Т-образных антенн. Было проведено сравнение полученных результатов с данными, полученными стандартной транспортной методикой детектирования ЭПР, которое показало, что две апробированные принципиально различные геометрии позволяют достоверно детектировать спиновый резонанс, а также исследовать другие важные параметры, такие как ширина и амплитуда.

Работа выполнена в рамках темы государственного задания ИФТТ РАН. Авторы благодарны J. Falson за предоставленные для исследования гетероструктуры.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Murakami S., Nagaosa N., Zhang S.C. // Science. 2013.
   V. 301. P. 1348.
- Koenig M., Wiedmann S., Bruene C. et al. // Science. 2007. V. 318. P. 766.
- 3. Murzin S.S., Dorozhkin S.I., Landwehr et al. // JETP Lett. 1998. V. 67. P. 113.
- Yaish Y., Prus O., Buchstab E. et al. // Phys. Rev. Lett. 2000. V. 84. P. 4954.
- Gervais G., Stoermer H.L., Tsui D.C. et al. // Phys. Rev. Lett. 2005. V. 94. Art. No 196803.
- Yu X.Z., Onose Y., Kanazawa N. et al. // Nature. 2010. V. 465. P. 901.
- Zutic I., Fabian J., Das Sarma S. // Rev. Mod. Phys. 2004. V. 76. P. 323.
- 8. Vandersypen L.M.K., Eriksson M.A. // Phys. Today. 2019. V. 72. P. 38.
- Kozlov V.E., Van'kov A.B., Gubarev S.I. et al. // Phys. Rev. B. 2015. V. 91. Art. No 085304.
- Solovyev V.V., Kukushkin I.V. // Phys. Rev. B. 2017.
   V. 96. Art. No 115131.
- Shchepetilnikov A.V., Frolov D.D., Nefyodov Yu.A. et al. // Phys. Rev. B. 2018. V. 98. Art. No 241302(R).
- Van'kov A.B., Kaysin B.D., Kukushkin I.V. // Phys. Rev. B. 2018. V. 98. Art. No 121412(R).
- 13. Betancourt J., Saavedra-Arias J.J., Burton J.D. et al. // Phys. Rev. B. 2013. V. 88. Art. No 085418.

- 14. *Tampo H., Shibata H., Maejima K. et al.* // Appl. Phys. Lett. 2008. V. 93. Art. No 202104.
- Stein D., v. Klitzing K., Weimann G. // Phys. Rev. Lett. 1983. V. 51. Art. No 130.
- Dobers M., v. Klitzing K., Weimann G. // Phys. Rev. B. 1988. V. 38. Art. No 5453.
- 17. Nestle N., Denninger G., Vidal M. et al. // Phys. Rev. B. 1997. V. 56. Art. No 4359.
- 18. Shchepetilnikov A.V., Khisameeva A.R., Nefyodov Yu.A. et al. // Phys. Rev. B. 2019. V. 100. Art. No 125425.
- Engel L. W., Shahar D., Kurdak C. et al. // Phys. Rev. Lett. 1993, V. 71, Art. No 2638.
- 20. Grodnensky I.M., Heitmann D., v. Klitzing K. et al. // Phys. Rev. B. 1991. V. 44. Art. No 1946(R).
- 21. Shchepetilnikov A.V., Khisameeva A.R., Nefyodov Yu.A. et al. // Phys. Rev. B. 2020. V. 102. Art. No 075445.

# Observation of spin resonance of two-dimensional electrons in contactless geometries

A. R. Khisameeva<sup>a, \*</sup>, A. V. Shchepetilnikov<sup>a</sup>, Yu. A. Nefyodov<sup>a</sup>, I. V. Kukushkin<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia \*e-mail: akhisameeva@issp.ac.ru

Electron spin resonance (ESR) in a two-dimensional system based on the ZnO/MgZnO heterojunction was observed using two different contactless techniques. The first method was based on detection of ESR in transmission signal of broadband coplanar waveguide deposited on the sample surface. In the second geometry, spin resonance was observed in rf power transmission between two T-shaped antennas, which were capacitively coupled to a two-dimensional system. The results were compared with the data obtained via the standard transport method for ESR detection.

УЛК 535.016

### ИССЛЕДОВАНИЕ ФУНКЦИОНАЛИЗИРОВАННЫХ АПТАМЕРАМИ НАНОЧАСТИЦ СЕРЕБРА В КАЧЕСТВЕ SERS-СУБСТРАТОВ ДЛЯ СЕЛЕКТИВНОГО ДЕТЕКТИРОВАНИЯ БЕЛКОВ

© 2021 г. Д. А. Грибанев<sup>1, \*</sup>, Е. Г. Завьялова<sup>2</sup>, А. С. Гамбарян<sup>3</sup>, В. И. Кукушкин<sup>1</sup>, Е. В. Рудакова<sup>4</sup>, О. А. Амбарцумян<sup>5</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики твердого тела Российской академии наук, Черноголовка, Россия 
<sup>2</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования 
"Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова", Химический факультет, Москва, Россия 
<sup>3</sup>Федеральное государственное бюджетное научное учреждение 
Федеральный научный центр исследований и разработки иммунобиологических препаратов 
имени М.П. Чумакова Российской академии наук, Москва, Россия 

<sup>4</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки 
"Институт физиологически активных веществ Российской академии наук", Москва, Россия 
<sup>5</sup>Закрытое акционерное общество "Южполиметалл-Холдинг", Москва, Россия

\*E-mail: digrib@gmail.com Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Разработаны методы количественного определения белков, рекомбинантного тромбина и гемагглютинина в составе вирусных частиц гриппа A, на основе эффекта SERS, возникающего на агрегатах наночастиц серебра, модифицированных аптамерами к тромбину и гемагглютинину, соответственно.

**DOI:** 10.31857/S0367676521020113

### **ВВЕДЕНИЕ**

Рамановская спектроскопия получила распространение в различных областях промышленности, агрокомплексе, биомедицинской сфере и криминалистике благодаря возможности быстрой оценки химического состава исследуемых объектов и создания уникальных баз спектральных данных. Однако методы объемной рамановской спектроскопии имеют ряд существенных ограничений для применения в медицине и биотехнологиях в связи с низкой чувствительностью метода. Явление поверхностно-усиленного рамановского рассеяния (SERS - Surface-Enhanced Raman Scattering) [1] позволяет повысить интенсивность сигнала рамановского рассеяния и, таким образом, расширить области применения SERS, включая прямое биомолекулярное количественное определение и биофизическую аналитику. На сегодняшний день в мировой практике используется два основных подхода повышения интенсивности сигнала рамановского рассеяния от исследуемых аналитов.

Первый подход основан на формировании бегущих поверхностных плазмон-поляритонов вблизи

поверхности твердотельных наноструктурированных металл-диэлектрических подложек [2]. Второй подход, реализованный в том числе и в данной работе, заключается в образовании локализованных плазмонов и "горячих точек" с высокой плотностью электромагнитного поля в растворах агрегатов металлических наночастиц [3]. Оба эти подхода имеют электромагнитную природу усиления интенсивности рамановского рассеяния, однако, они существенно отличаются по следующим параметрам: масштабу дальнодействия усиления электромагнитного поля, влиянию состава раствора на интенсивность сигнала. Таким образом, указанные методы усиления рамановского сигнала отличаются и по возможностям подстройки пика плазмонного поглощения под частоту лазерного возбуждения.

В настоящее время SERS-технология является перспективным аналитическим инструментом для биомолекулярного анализа малых молекул, макромолекулярных белков и даже таких крупных структур, как вирусы и клетки. Технология SERS позволяет осуществить прямое обнаружение молекул, без применения меток, за счет их

собственного спектра рамановского рассеяния, аналогичного "отпечатку пальца" [4, 5].

Для создания высокоэффективных сверхчувствительных биосенсоров на основе SERS необходимо преодолеть ограниченную стабильность, и, как следствие, низкую воспроизводимость SERS-систем [6], что успешно решается благодаря разработке новых субстратов. Коллоидные растворы серебра являются одним из наиболее распространенных высокоэффективных SERS-субстратов. Основная проблема данного типа субстратов связана с коллоидной стабильностью, поскольку эти системы часто склонны к необратимой неконтролируемой агрегации, особенно в многокомпонентных смесях [7].

Метод детекции белков с использованием растворов наночастиц благородных металлов в качестве SERS-субстрата основан на том, что большинство биополимеров, даже в малых концентрациях, способствуют разрушению агрегатов металлических НЧ. При этом белковые молекулы способствуют формированию вокруг НЧ "белковой короны" [8], а в случае вирусных частиц эффект разрушения агрегированных коллоидов наблюдается в большей степени за счет дополнительного взаимодействия НЧ с гликопротеинами на оболочке вируса [9].

Модификация поверхности наночастиц аптамерами на основе нуклеиновых кислот (далее — аптамеры), специфичными к определенному белку, обеспечивает селективную сорбцию соответствующего белка на наночастицах за счет специфических взаимодействий. Скорость и стабильность специфических и неспецифических взаимодействий отличается, что может быть использовано для детекции определенных белков в биологических жидкостях сложного состава.

В ходе настоящего исследования были синтезированы серебряные наночастицы по методу Н. Леопольда и Б. Лендла [10]. Для детекции тромбина наночастицы модифицировались карбоксилированным производным аптамера к тромбину ТВА<sub>15</sub> [11—13], а в качестве метки использовался аптамер 5'-tamra-TBA<sub>15</sub>. Для определения гемаглютинина на поверхности вирусных частиц гриппа А использовалось тиольное производное аптамера RHA0385, показавшее ранее свою специфичность к гемагглютининам (НА) на поверхности вирусных частиц гриппа А [14, 15], в качестве метки в этой системе использовался аптамер 5'-BDPFL-RHA0385.

### УСЛОВИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

Синтез серебряных наночастиц, модифицированных аптамерами

К водному раствору (9 мл), содержащему гидроксиламина гидрохлорид  $NH_2OH \cdot HCl$  (0.015 ммоль,

1.04 мг), гидроксид натрия NaOH (0.03 ммоль, 1.2 мг) при комнатной температуре и при интенсивном перемешивании быстро добавляли 1 мл водного раствора  $AgNO_3$  (0.01 ммоль, 1.08 г). После часа интенсивного перемешивания, к образовавшемуся коллоидному раствору серебра (AgNP. рН ~ 7) добавляли раствор соответствующего аптамера (0.1 мл 4 мкМ RHA0385-SH или 1 мл 7 мкМ ТВА<sub>15</sub>СООН). После добавления раствора аптамера RHA0385-SH реакционная смесь перемешивалась еще 1 ч, а в случае использования раствора аптамера ТВА<sub>15</sub>СООН реакционную смесь выдерживали сутки при комнатной температуре. К полученным смесям было добавлено соответствующее количество 0.2 М водного раствора буферного агента Tris-HCl (рН 7.5) до конечной концентрации 10 мМ и 0.1 мл 2 мкМ раствора аптамера, меченного SERS-активной меткой (ТВА<sub>15</sub>-tamra и RHA0385-BDPFL, cootbetctbehho).

Ниже приведены нуклеотидные последовательности используемых в работе аптамеров  $TBA_{15}$  и RHA0385.

TBA<sub>15</sub>-tamra: 5'-tamra-GGTTGGTGTG-GTTGG-3';

TBA<sub>15</sub>COOH: 5'-GGTTGGTGGTTGG-COOH-3';

RHA0385-SH: (5'-HS-(CH<sub>2</sub>)<sub>6</sub>-TTGGGGT-TATTTTGGGAGGGCGGGGGTT-3'); RHA0385-BDPFL: (5'-BodipyFL-TTGGGGT-TATTTTGGGAGGGCGGGGGTT-3').

На рис. 1 продемонстрированы структурные формулы и SERS-спектры меток tamra и BDPFL. SERS-спектры полученных растворов записывались на рамановском спектрометре ХИМЭКС-ПЕРТ-Т (ЗАО "Южполиметалл-Холдинг") с длиной волны лазерного излучения 532 нм, имеющим спектральное разрешение 5-8 см $^{-1}$ . Спектры поглощения были записаны в спектральном диапазоне 300-900 нм на микропланшетном спектрофлуориметре SPARK (Tecan Group Ltd.), и было измерено значение флуоресценции при  $\lambda_{ex} = 495 \pm 25$  нм и  $\lambda_{em} = 520 \pm 10$  нм.

### Определение тромбина

К серии аликвот по 0.2 мл, содержащих AgNP@TBA<sub>15</sub>COOH и TBA<sub>15</sub>-tamra с 10 мМ буфером Tris-HCl (pH 7.5), для медленного агрегирования HЧ добавляли по 0.2 мл буферного солевого раствора (10 мМ Tris-HCl + 140 мМ NaCl + 10 мМ KCl) и 0.1 мл буферного солевого раствора (10 мМ Tris-HCl + 20 мМ NaCl + 20 мМ NaCl + 20 мМ NaCl + 20 мМ NaCl + 20 мМ KCl), содержащего 20 мМ тромбина (свиной тромбин производства RayBiotech). Измерялись спектры SERS (при 20 меченых аптамеров (20 мн Тромбина (20 мн тромбина (20 мн после добавления тромбина (20 мн через 20 мин после добавления тромбина (20 мн через 20 мн после добавления тромбина (20 мн через 20 мин после добавления тромбина (20 мн через 20 мн после добавления тромбина (20 мн тромбина (20

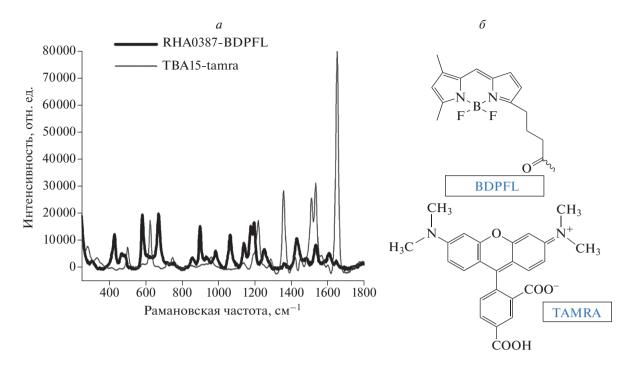


Рис. 1. Структурные формулы и SERS-спектры меток tamra и BDPFL.

бавления тромбина (I). Контрольные эксперименты проводились по аналогичному протоколу, однако в качестве контроля был использован раствор неспецифичного к  $TBA_{15}$ -аптамеру белка — бычьего сывороточного альбумина (BSA, Sigma Aldrich). На рис. 2a приведены зависимости  $I/I_0$  от концентрации (C) белка (сплошная линия — тромбин (PT), пунктирная — BSA). Через 0.5 ч полученные смеси переносили в микропланшеты и разбавляли в 2 раза соляным буферным раствором (10 мМ Tris-HCl + + 70 мМ NaCl + 5 мМ KCl), затем снимали спектры поглощения (300— 900 нм) и измеряли интенсивность флуоресценции при  $\lambda_{ex} = 495 \pm 25$  нм и  $\lambda_{em} = 520 \pm 10$  нм (рис. 26, 28).

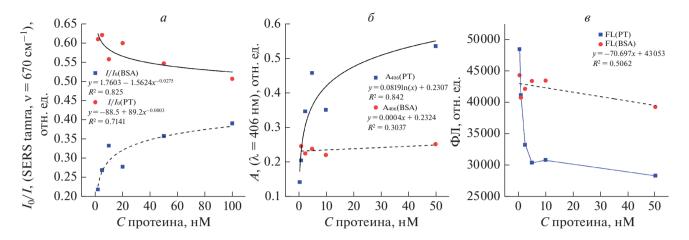
Определение гемагглютинина (HA) в системах, содержащих вирусные частицы гриппа A

К серии аликвот по 0.2 мл, содержащих AgNP@RHA0385-SHuRHA0385-BDPFLc 10 мМ буфером Tris-HCl (pH 7.5), для медленного агрегирования HЧ добавляли по 0.2 мл буферного солевого раствора (10 мМ Tris-HCl + 280 мМ NaCl + 20 мМ KCl) и 0.1 мл буферного солевого раствора (10 мМ Tris-HCl + 140 мМ NaCl + 10 мМ KCl), содержащего  $0-5 \cdot 10^7$  вирусных частиц гриппа А (A/H5N1/Ku-at; инактивированные вирусы гриппа были предоставлены д. б. н. А.С. Гамбарян). Далее были получены SERS-спектры (при  $\lambda_{ex} = 532$  нм) меченых аптамеров (RHA0385-BODIPYFL) в агрегатах серебряных НЧ до добавления вируса

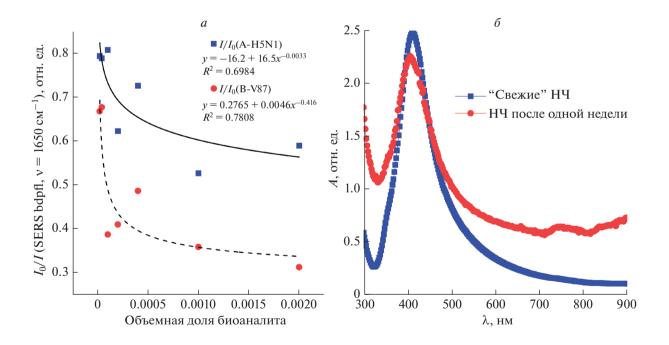
гриппа A (A/H5N1/Ku-at = A-H5N1) ( $I_0$ ) и через 10 мин после добавления вируса (I). Контрольные эксперименты проводились по аналогичному протоколу, однако в качестве контроля были использованы растворы вирусных частиц гриппа В (B/Victoria/87 = BV87). На рис. 3a приведены зависимости  $I/I_0$  от концентрации вирусных частиц (сплошная линия — вирус гриппа A-H5N1, пунктирная — вирус гриппа BV87). Через 0.5 ч полученные смеси переносили в микропланшеты и разбавляли в 2 раза соляным буферным раствором (10 мМ Tris-HCl + 140 мМ NaCl + 10 мМ KCl), снимали спектры поглощения (300—900 нм) и измеряли интенсивность флуоресценции при  $\lambda_{ex}$  =  $495 \pm 25$  нм и  $\lambda_{em}$  =  $520 \pm 10$  нм (рис. 4a, 46).

#### РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

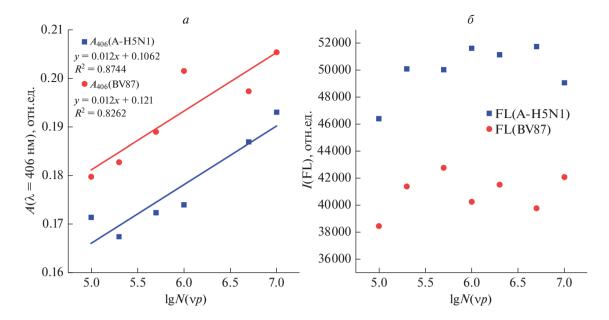
Основными достоинствами коллоидных растворов серебра, полученных восстановлением  $AgNO_3$  гидроксиламином, является однородность размера серебряных наночастиц (средний размер HY-23 нм) [10], отсутствие стабилизаторов (фактически двойной электрический слой на поверхности частиц образуют только катионы серебра и хлорид-анионы) и, как следствие, возможность модификации полученных AgNPs любыми стабилизаторами-непосредственно во время синтеза ("one-pot reaction"). Следует отметить, что полученные серебряные коллоиды обладают большим коэффициентом усиления по сравнению с серебряными коллоидами аналогичных форм и



**Рис. 2.** Зависимость отношения интенсивностей основной рамановской линии метки tamra (при  $v \sim 1650~{\rm cm}^{-1}$ ) аптамера  ${\rm TBA}_{15}$  до добавления белка  $I_0$  к агрегатам наночастиц AgNP@ ${\rm TBA}_{15}$ COOH и после добавления I от концентрации белка (в скобках указан белок BSA — бычий сывороточный альбумин, PT — свиной тромбин). Диапазон концентраций белков  $2-100~{\rm hM}$  (a). Зависимость поглощения системы "агрегаты наночастиц AgNP@ ${\rm TBA}_{15}$ COOH—белок" при  $\lambda = 406~{\rm hM}$  ( $A_{406}$ ) от концентрации белка (в скобках указан белок BSA — бычий сывороточный альбумин, PT — свиной тромбин) ( $\delta$ ). Зависимость значения флуоресценции системы "агрегаты наночастиц AgNP@ ${\rm TBA}_{15}$ COOH—белок" при  $\lambda_{ex} = 495 \pm 25~{\rm hM}$  и  $\lambda_{em} = 520 \pm 10~{\rm hM}$  (FL) от концентрации белка (в скобках указан белок BSA — бычий сывороточный альбумин, PT — свиной тромбин). Диапазон концентраций белков  $0.5-50~{\rm hM}$ . Среда —  $10~{\rm mM}$  TrisHCl +  $70~{\rm mM}$  NaCl +  $4.5~{\rm mM}$  KCl (pH 7.5) (a).



**Рис. 3.** Зависимость отношения интенсивностей основной рамановской линии метки BODIPYFL (при  $v \sim 670 \text{ см}^{-1}$ ) аптамера RHA0385 до добавления вирусов гриппа (А или В)  $I_0$  к агрегатам наночастиц AgNP@RHA0385-SH и после добавления I от объемной доли биоаналита в соляном буферном растворе (степени разбавления, где I — чистая аллантоисная жидкость, содержащая  $10^{10}$  вирусных частиц в 1 мл). Исследуемый диапазон концентраций вирусных частиц  $2 \times 10^5 - 2 \times 10^7$  частиц/мл). Среда — 10 мM Tris-HCl + 140 мM NaCl + 10 мM KCl (pH 7.5) (a). УФ-видимые-ближние ИК спектры свежеприготовленных (синий) растворов серебряных НЧ в воде, выдержанных в течении недели в темноте при  $25^{\circ}$ С (красный) (a).



**Рис. 4.** Зависимость поглощения системы при  $\lambda = 406$  нм ( $A_{406}$ ) (a). Зависимость интенсивности флуоресценции системы при  $\lambda_{ex} = 495 \pm 25$  нм и  $\lambda_{em} = 520 \pm 10$  нм ( $I_{fl}$ ) агрегатов AgNP@RHA0385-SH@VP<sub>flu</sub> от концентрации вирусных частиц  $\lg N(vp)$  гриппа A (A/H5N1/Ku-at = A-H5N1) или гриппа B (B/Victoria/87 = BV87). Диапазон концентраций вирусных частиц  $10^5 - 10^7$  частиц/мл. Среда - 10 мМTrisHCl + 140 мМ NaCl + 10 мМ KCl (pH 7.5) ( $\delta$ ).

размеров, полученных другими способами [16]. Более того, полученные коллоидные растворы демонстрируют низкую самоагрегацию с течением времени (рис. 36).

В экспериментах по определению белков в биологических жидкостях важно сохранение ионной силы (концентрации солей и буферных агентов) как до, так и после добавления аналита к раствору коллоидных НЧ. Так, в работе по детекции тромбина по спектрам двухфотонной флуоресценции ТВА<sub>15</sub>-модифицированных серебряных НЧ [12] трудно оценить, какой фактор сильнее влияет на степень агрегации НЧ (следовательно, и на рост сигнала флуоресценции) — удаление аптамера с поверхности и возрастающая степень агрегации или простое увеличение ионной силы при добавлении раствора тромбина в фетальной телячьей сыворотке (FCS), имеющей высокую концентрацию солей и, следовательно, высокую ионную силу.

Измерения белков проводились в более разбавленном растворе по сравнению с соляным буферным раствором, в котором исследовались вирусы, в связи с тем, что при высоких концентрациях солей сложнее было бы наблюдать разрушение агрегатов серебряных НЧ и, таким образом, оптические свойства систем НЧ-аптамер-белок изменялись бы в значительно меньших масштабах.

Как было показано ранее, SERS-сигнал в растворах НЧ является нестабильным и плохо воспроизводится, этот недостаток особенно сильно

проявляется в агрегированных путем увеличения ионной силы растворах серебряных НЧ. Иными словами, если добавить слишком много агрегирующего агента, коллоидные частицы быстро выпадут в осадок из раствора, и SERS не будет наблюдаться. В случае низкой концентрации соли невозможно достижение достаточного количества "горячих точек" в растворе и в результате SERS-сигнал также будет слаб [3]. Поскольку агрегация НЧ приводит к снижению стабильности коллоидной системы, состав и изменение ионной силы раствора необходимо тщательно контролировать для получения воспроизводимых SERSспектров [17]. Однако исследование влияния агрегирующих агентов и скорости их добавленияк растворам серебряных НЧ в биологических средах выходит за рамки данного исследования.

В настоящей работе предложен простой метод корректной оценки изменений SERS-сигналов при добавлении биоаналитов к раствору НЧ. В качестве изменяющегося параметра мы использовали не абсолютные, а относительные значения SERS-сигналов, т.е. отношение значения интенсивности основной Рамановской линии SERSметки после добавления раствора белка (или вируса) к аналогичному показателю до добавления аналита.

Для корректного построения зависимостей относительного SERS-сигнала от концентрации белка параллельно использовали и другие оптические методы, в частности для каждого образа

были получены спектры поглощения в диапазоне (300—900 нм) и значения флуоресценции при  $\lambda_{ex} = 495 \pm 25$  нм и  $\lambda_{em} = 520 \pm 10$  нм. Затем были построены соответствующие зависимости изменения величин поглощения и флуоресценции от концентрации белка и вирусных частиц.

Так, значения величин поглощения при  $\lambda=406$  нм системы "агрегаты наночастиц AgNP@TBA $_{15}$ COOH—белок" в присутствии специфичного к TBA $_{15}$ -аптамеру белка, тромбина, хорошо согласуются с зависимостями AgNP@citrate-protein [18] в диапазоне концентраций протеинов 0.5–50 нМ. В случае неспецифичного к данному аптамеру белка (BSA) похожей зависимости не наблюдается вследствие отсутствия взаимодействия аптамер-модифицированных НЧ с неспецифичным белком.

Кроме этого, необычным является и поведение интенсивности флуоресценции в этих системах. Похожая, но более чувствительная детекция тромбина флуоресцирующими аптамер-модифицированными серебряными нано-частицами была осуществлена в [19]. Однако в описываемой системе наночастицы серебра были конъюгированы с парамагнитными частицами (MPs-Ag), что позволяло разделять и концентрировать белки более эффективно.

Зависимость относительного значения SERSсигнала метки от концентрации белка в системе "агрегаты серебряных НЧ-аптамер-белок" также имеет различный характер для специфичного к ТВА<sub>15</sub>-аптамеру белку (тромбин-РТ) и для неспецифичного к  $TBA_{15}$ -аптамеру белку (BSA) (рис. 2a), что можно объяснить разной степенью взаимодействия НЧ, функционализированных аптамером, со специфичным и неспецифичным к данному аптамеру белком. Данное различие характера концентрационных зависимостей (снижение сигнала SERS в зависимости от концентрации белка) хорошо согласуется со степенью агрегации заряженных металлических НЧ в зависимости от наличия специфических взаимодействий агрегатов НЧ с полимерами в соляных буферах [20].

В случае смесей аптамер-модифицированных серебряных НЧ и идентично организованных вирусных частиц, различающихся лишь отдельными участками (эпитопами) поверхностных белков (гемагглютининов — НА) [21], обычные оптические методы (УФ-видимые-ближние ИК спектры) не позволяют выявить существенных различий (рис. 4a, 46) и, соответственно, не могут быть использованы для качественного и количественного анализа вирусных белков и, соответственно, вирусов. SERS-отклик таких систем является более специфичным (рис. 3a), как за счет различной степени взаимодействия аптамеров с SERS-активной меткой в агрегатах серебряных НЧ с вирусными липопротеинами, так и за счет различ-

ной степени разрушения агрегатов НЧ (как следствие, различное расстояние между отдельными НЧ и от НЧ до SERS-метки) по мере добавления вирусных частиц, содержащих на поверхности специфичный или неспецифичный к данному аптамеру белок.

Полученные в ходе настоящей работы устойчивые и воспроизводящиеся зависимости дают основания для разработки систем и протоколов селективной детекции белков и вирусов в биологических средах. В связи с этим основной задачей дальнейших исследований является оптимизация условий проведения аналогичных экспериментов (например, за счет изменения состава солевого буфера и/или дополнительной поверхностной модификации серебряных НЧ) с целью получения более чувствительных сенсоров к вирусам на основе растворов серебряных коллоидов.

#### **ЗАКЛЮЧЕНИЕ**

Обнаружен различный характер разрушения агрегатов аптамер-моди-фицированными серебряных НЧ в присутствии аптамер-специфичного белка, тромбина, и аптамер-неспецифичного альбумина. Получена концентрационная зависимость степени агрегации аптамер-модифицированных НЧ от концентрации каждого из указанных модельных белков. Это позволяет рассматривать аптамер-модифицированные коллоидные НЧ серебра в качестве перспективного субстрата для селективной SERS-детекции белков.

Для смесей аптамер-модифицированных серебряных НЧ и идентично организованных вирусных частиц, различающихся эпитопами поверхностных белков гемагглютининов, выявлены близкие по характеру зависимости SERS-сигнала от концентрации вирусов, которые, однако, заметно различаются по числовым значениям. Таким образом, как и в случае с детекцией белков, система модифицированных аптамерами коллоидных НЧ серебра позволяет в перспективе создать сенсорную платформу, специфичную к определенным типам вирусов.

Работа по детекции белков (тромбина и альбумина) выполнена за счет гранта Российского научного фонда № 19-72-30003.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Fleischmann M., Hendra P.J., McQuillan A.J. // Chem. Phys. Lett. 1974. V. 26. No 2. P. 163.
- 2. Ko H., Singamaneni S., Tsukruk V.V. // Small. 2008. V. 4. No 10. P. 1576.
- 3. Aroca R.F., Alvarez-Puebla R.A., Pieczonka N. et al. // Adv. Coll. Interf. Sci. 2005. V. 116. P. 45.
- Bruzas I., Lum W., Gorunmez Z. et al. // Analyst. 2018.
   V. 143. P. 3990.

- Joseph M.M., Narayanan N., Nair J.B. et al. // Biomaterials. 2018. V. 181. P. 140.
- Cialla D., März A., Böhme R. et al. // Anal. Bioanal. Chem. 2012. V. 403. P. 27.
- 7. Kahraman M., Mullen E.R., Korkmaz A. et al. // Nano-photon. 2017. V. 6. No 5. P. 831.
- 8. Banerjee V., Das K.P. // Colloids Surf. B. 2013. V. 111. P. 71
- 9. Elechiguerra J.L., Burt J.L., Morones J.R. et al. // J. Nanobiotech. 2005. V. 3. No 6. P. 1665.
- Leopold N., Lendl B. // J. Phys. Chem. B. 2003. V. 107. No 24. P. 5723.
- Yang C., Kim E., Pak Y. // Bull. Korean Chem. Soc. V. 33. No 11. P. 3597.
- 12. *Jiang C., Zhao T., Li S. et al.* // Appl. Mater. Interfaces. 2013. V. 5. No 21. Art. No 10853.

- 13. Zavyalova E., Golovin A., Pavlova G. et al. // Curr. Pharm. Des. 2016. V. 22. No 33. P. 5163.
- 14. Shiratori I., Akitomi J., Boltz D.A. et al. // Biochem. Biophys. Res. Commun. 2014. V. 443. No 1. P. 37.
- 15. Kukushkin V.I., Ivanov N.M., Novoseltseva A.A. et al. // PLoS ONE. 2019. V. 14. No 4. Art. No e0216247.
- 16. Canamares M.V., Garcia-Ramos J.V., Sanchez-Cortes S. et al. // J. Coll. Int. Sci. 2008. V. 326. P. 103.
- Yaffe N.R., Blanch E.W. // Vibrat. Spectrosc. 2008.
   V. 48. P. 196.
- Shrivastava S., Dash D. // Nano-Micro Lett. 2010. V. 2. P. 164.
- Li H., Qiang W., Wang C. et al. // Analyst. 2013. V. 138. P. 7376.
- 20. Lebovka N.I. // Adv. Polymer. Sci. 2012. V. 255. P. 57.
- 21. Chen R., Holmes E.C. // J. Mol. Evol. 2008. V. 66. P. 655.

# Investigation of aptamer-functionalized silver nanoparticles as SERS substrates for selective protein detection

D. A. Gribanev<sup>a, \*</sup>, E. G. Zavyalova<sup>b</sup>, A. S. Gambaryan<sup>c</sup>, V. I. Kukushkin<sup>a</sup>, E. V. Rudakova<sup>d</sup>, O. A. Ambartsumyan<sup>e</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia <sup>b</sup>Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119991 Russia

<sup>c</sup>Chumakov Federal Scientific Center for Research and Development of Immune-and-Biological Products of Russian Academy of Sciences, Moscow, 108819 Russia

<sup>d</sup>Institute of Physiologically Active Substances of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia <sup>e</sup>Yuzhpolymetal-Holding Group, Moscow, 117638 Russia

\*e-mail: digrib@gmail.com

Methods have been developed for the quantitative determination of proteins, recombinant thrombin and hemagglutinin in influenza A virus particles based on the SERS effect that occurs on aggregates of silver nanoparticles modified with aptamers to thrombin and hemagglutinin, respectively.

УЛК 535.016

### ИЗУЧЕНИЕ ВЛИЯНИЯ МОРФОЛОГИИ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ НАНОЧАСТИЦ НА ПОВЕРХНОСТИ ОКСИДА КРЕМНИЯ НА ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА SERS-ПОДЛОЖЕК

© 2021 г. В. И. Кукушкин<sup>1, \*</sup>, А. С. Астраханцева<sup>1, 2</sup>, Е. Н. Морозова<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки "Институт физики твердого тела Российской академии наук", Черноголовка, Россия <sup>2</sup>Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования "Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет)", Долгопрудный, Россия

> \*E-mail: kukushvi@mail.ru Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Продемонстрирована возможность подстройки плазмонного поглощения наноостровковых SERS-подложек под длину волны возбуждающего лазерного излучения в диапазоне длин волн 530—620 нм. Установлены характерные закономерности изменения оптических свойств SERS-подложек при изменении морфологии металлических наночастиц на поверхности оксида кремния

**DOI:** 10.31857/S0367676521020162

### **ВВЕДЕНИЕ**

В последние годы наблюдается стремительное развитие методов детектирования молекулярных объектов химического или биологического происхождения, основанных на эффектах SERS (surface enhanced Raman scattering – поверхностноусиленное рамановское рассеяние). Хотя это явление и было открыто достаточно давно (в 1974 г.) [1], но глобальные достижения в разработке методов высокочувствительного детектирования следовых количеств веществ, основанных на эффекте SERS, происходят именно в последние годы. Это связано с тем, что до недавнего времени стандартное устройство для исследования неупругого рассеяния света включало мощный лазер, тройной спектрометр и охлаждаемый матричный фотоприемник. Большие размеры и высокая стоимость таких приборов затрудняли широкое применение методов рамановской спектроскопии для экспресс-анализов. Однако в сфере научного приборостроения произошли радикальные изменения, которые позволили значительно уменьшить и удешевить все компоненты рамановских установок, что обеспечило прорыв в рамановском приборостроении и повлекло развитие методов SERS-идентифицирования химических [2] и биологических веществ [3-7] в низких концентрациях.

Для обеспечения высокой чувствительности SERS-методов сегодня используется множество подходов по созданию SERS-субстратов для "фокусировки" электромагнитного поля вблизи исследуемых молекулярных структур, таких как: химический метод синтеза коллоидных металлических частиц или сложных комплексов [8-10], методы вакуумного термического [6, 11] и магнетронного распыления материалов [12-14], атомно-слоевого осаждения [15], плазменного осаждения покрытий [16, 17], физико-химические методы с использованием плазмотравления и литографии [18, 19]. В результате возможно выращивание металлических или комбинированных металл-диэлектрических наноструктур на поверхности подложек или их синтез в объеме буферного раствора. Эти наноструктуры могут быть представлены в виде наносфер, нанокубов, треугольных и шестиугольных нанопирамид, нанопроволок, частиц грибовидной формы [19-22]. Однако недостатком большинства методов по созданию SERS-субстратов является отсутствие воспроизводимых размеров, морфологии наночастиц, зазоров между ними и, как следствие, сильные отличия в положениях пиков плазмонного резонанса и оптических откликах исследуемых молекул. На практике существует несколько типов подстройки пика плазмонного резонанса под длину волны лазерного излучения — это генерация дополнительных мод в многослойных структурах [23], комбинирование диэлектрического и плазмонного резонансов [18] и нагревание металлической поверхности после напыления.

В данной работе продемонстрировано насколько эффективно работают SERS-полложки на основе оксида кремния при возбуждении лазерным излучением с длиной волны 532 нм и насколько сильно изменяются латеральные размеры и толщина наночастиц, зазоры между ними и оптические свойства подложек в зависимости от номинальной толшины напыляемого слоя, вида металла и температурных режимов отжига после процессов напыления. В результате выполнения данной работы были оптимизированы SERSподложки, в которых, учитывая эффекты входного и выходного резонансов, подстроен высокодобротный контур плазмонного поглошения под длину волны возбуждающего излучения 532 нм и, тем самым, получены гигантские коэффициенты усиления рамановского рассеяния света  $\sim 10^8$  в области максимальной чувствительности кремниевых CCD-матриц.

### УСЛОВИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

С целью изучения влияния морфологии металлических наночастиц на оптические свойства SERS-структур были созданы наноструктурированные подложки с различными латеральными размерами, толщинами, формами и зазорами между наночастицами с помощью методов вакуумного термического напыления тонких пленок. Тонкие слои металла осаждались на кремниевую подложку, покрытую 300 нм слоем SiO<sub>2</sub>, с использованием системы вакуумного напыления NANO 38 (Kurt J. Lesker Company, США) с автоматическим контролем толщины при давлении в камере  $8 \cdot 10^{-7}$  Торр со скоростью напыления 0.4 Å/с. Кремниевые подложки покрывали тонкими пленками серебра или золота различной толщины и затем нагревали на плитке HP-20D-Set (Daihan Scientific, Южная Корея) с максимальной температурой нагрева 380°C.

При создании SERS-структур номинальная толщина серебра варьировалась от 40 до 150 Å (40, 60, 80, 100, 120 и 150 Å). Кроме этого были изготовлены SERS-подложки с толщиной золотого слоя 80 Å и с комбинацией слоев серебра (60 Å) и золота (20 Å). В процессе напыления металлических слоев столик с образцами приводился во вращение со скоростью 20 об./мин.

После напыления образцы отжигали на плитке при различных температурных режимах:

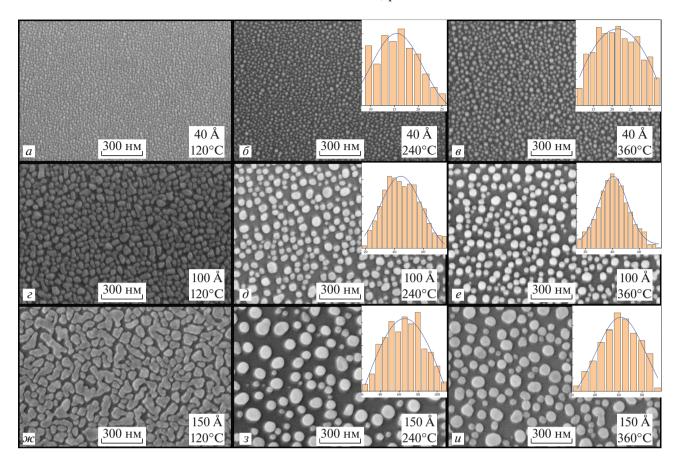
- режим 1: нагрев при 120°C, продолжительность 6 мин;
- режим 2: нагрев при температуре 120°C, продолжительность 20 мин;
- режим 3: нагрев при 240°C, продолжительность 6 мин;

- режим 4: нагрев при температуре 240°C, продолжительность 20 мин;
- режим 5: нагрев при  $360^{\circ}$ C, продолжительность 6 мин;
- режим 6: последовательный нагрев в течение 6 мин при каждой температуре: сначала 120°С, затем 180°С, затем 240°С. Между этапами нагрева подложку охлаждали до комнатной температуры;
- режим 7: последовательный нагрев в течение 20 мин при каждой температуре: сначала 120°С, затем 180°С, затем 240°С. Между этапами нагрева подложку охлаждали до комнатной температуры;
- режим 8: последовательный нагрев в течение 6 мин при каждой температуре: сначала 120°С, затем 180°С, потом 240°С, затем 300°С, в заключение 360°С. Между этапами нагрева подложку охлаждали до комнатной температуры;
- режим 9: последовательный нагрев в течение 6 мин при каждой температуре: сначала 120°C, затем 240°C, затем 360°C. Между этапами нагрева подложку охлаждали до комнатной температуры.
  - режим 10: без нагревания.

Для автоматического измерения SERS-сигнала от тестовых молекул использовался рамановский спектрометр EnSpectr SERS R532 (ООО "РамМикс", РФ) с длиной волны лазерного возбуждения 532 нм. Спектрометр имел разрешение 8 см<sup>-1</sup> и спектральный диапазон 120—3400 см<sup>-1</sup>. Мощность лазерного излучения составляла 30 мВт, диаметр пучка лазера 2 мм, что обеспечивало низкую плотность излучения, предотвращало разрушение молекул и позволяло регистрировать среднюю интенсивность на большой площади.

Для измерения спектров плазмонного поглощения SERS-подложек использовался спектрометр отражения белого света EnSpectr WL (OOO "РамМикс",  $P\Phi$ ).

Морфологию поверхности SERS-подложек изучали с помощью сканирующей электронной микроскопии с использованием электронного микроскопа Supra 50VP (Zeiss, Германия) со сверхвысоким разрешением 1.5 нм. Данные о морфологии наночастиц обрабатывались с помощью программного обеспечения SPIP 6.1.1 (Scanning Probe Image Processor) методом Image Metrology. Используя функцию "анализ частиц и пор", вычислялись размеры наночастиц на изображениях с электронного микроскопа. Диаметры наночастиц вычислялись исходя из предположения, что частица определенной плошади является окружностью с такой же площадью. Чтобы избежать учета ложно-определяемых наночастиц, в ручном режиме находились самые маленькие и самые большие гранулы и не учитывались кластеры, в которых невозможно идентифицировать отдельные гранулы. На основе нового сокращенного списка наночастиц была создана гистограмма распределе-



**Рис. 1.** СЭМ изображения  $(1.5 \times 1 \text{ мкм}^2)$  наночастиц серебра на поверхности оксида кремния, полученные при разных толщинах напыления: (a-e) 40 Å серебра, отжиг в течение 6 мин при 120, 240 и 360°C соответственно; (e-e) 100 Å серебра, отжиг в течение 6 мин при 120, 240 и 360°C соответственно; (m-u) 150 Å серебра, отжиг в течение 6 мин при 120, 240 и 360°C соответственно гистограммы распределения диаметров наночастиц серебра при соответствующих режимах отжига.

ния диаметров. Такая гистограмма была аппроксимирована функцией Гаусса.

При проведении экспериментов по изучению усиления интенсивности рамановского рассеяния при длине волны лазерного возбуждения 532 нм использовались репортерные молекулы вещества FITC (Fluorescein-5-isothiocyanate, CAS Number: 3326-32-7, Sigma, USA).

### РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Для изучения влияния морфологии металлических (золотых и серебряных) наночастиц на поверхности оксида кремния на оптические свойства SERS-подложек исследовались зависимости интенсивностей рамановского рассеяния света тестового вещества FITC на 475 и 1325 см $^{-1}$  ( $I_{475}$  и  $I_{1325}$ ), а также интенсивности фотолюминесценции этого вещества в точке локального максимума кривой люминесценции ( $I_{lum}$ ) и положения пика плазмонного резонанса ( $\lambda_{pe3}$ ) от средних ла-

теральных размеров ( $d_{HY}$ ), толщин и форм наночастиц, а также зазоров между ними.

В табл. 1 для каждого из режимов отжига подложек после напыления и для каждой толщины напыляемого металлического слоя приведены данные по оптическим свойствам подложек (интенсивностям оптических откликов тестового вещества FITC и положению пика плазмонного резонанса) и морфологии наночастиц (средние диаметры  $(d_{\text{нч}})$ , дисперсия диаметров  $(\sigma_{\text{нч}})$ , коэффициент заполнения поверхности металлическими наночастицами  $(K_{\text{заполнения}})$ ).

Были обнаружены следующие характерные закономерности:

1. При увеличении толщины напыления серебра (при фиксированном режиме отжига подложки) увеличивается средний латеральный размер наночастиц (рис. 1, 2a), дисперсия размеров и их высота, а коэффициент заполнения практически не изменяется. При температурных воздействиях на подложку после напыления малых толщин се-

**Таблица 1.** Зависимость оптических свойств SERS-подложек от морфологии металлических наночасти

	Оптические свойства SERS-подложек			Морфо	Морфология наночастиц		
Режимы	$I_{475}$ (отн. ед.)	$I_{1325}$ (отн. ед.)	$I_{\scriptscriptstyle{ m ЛЮМ}}$ (отн. ед.)	λ <sub>рез</sub> (нм)	d <sub>нч</sub> (нм)	о <sub>нч</sub> (нм)	<i>К</i> <sub>заполнения</sub> (%)
Без нагревания	4936	2457	14276	542	_	_	_
120°С, 6 мин	4975	2718	17251	551	_	_	_
120°С, 20 мин	5801	2826	17734	548	_	_	_
240°С, 6 мин	7927	3886	23467	545	15	11	34
240°С, 20 мин	6449	3305	15045	530	16	10	35
360°С, 6 мин	8743	4985	28665	555	21	9	40
120 + 180 + 240°С, 6 мин	8512	3347	22318	540	16	10	28
120 + 180 + 240°С, $20$ мин	5915	2940	21058	538	16	13	35
120 + 180 + 240 + 300 + 360°C, 6 мин	6720	3125	33998	541	18	12	34
120 + 240 + 360°С, 6 мин	5843	1890	40 60 6	554	15	7	26

Ag = 10лщина 00 $F$	Ag -	толщина	60	Å
---------------------	------	---------	----	---

	Оптичес	ские свойс	тва SERS-г	юдложек	Морфо	логия нан	очастиц
Режимы	<i>I</i> <sub>475</sub> (отн. ед.)	$I_{1325}$ (отн. ед.)	$I_{\scriptscriptstyle{ m ЛЮМ}}$ (отн. ед.)	λ <sub>рез</sub> (нм)	d <sub>нч</sub> (нм)	о <sub>нч</sub> (нм)	<i>К</i> <sub>заполнения</sub> (%)
Без нагревания	7210	3110	29970	571	_	_	_
120°С, 6 мин	13 2 2 5	5220	45550	562	_	_	_
120°С, 20 мин	11356	6041	40145	560	_	_	_
240°С, 6 мин	24167	11490	5432	556	24	14	36
240°С, 20 мин	4967	2326	14818	554	30	20	35
360°С, 6 мин	16448	8292	51996	569	28	14	43
120 + 180 + 240°С, 6 мин	1130	415	17460	555	28	13	37
120 + 180 + 240°C, 20 мин	4940	2430	15085	553	23	20	26
120 + 180 + 240 + 300 + 360°C, 6 мин	13185	6785	66640	557	34	22	29
120 + 240 + 360°С, 6 мин	16205	8747	66893	557	35	19	39

### $\mathrm{Ag}$ — толщина $80~\mathrm{\AA}$

	Оптичес	Оптические свойства SERS-подложек				Морфология наночастиц		
Режимы	<i>I</i> <sub>475</sub> (отн. ед.)	<i>I</i> <sub>1325</sub> (отн. ед.)	$I_{\scriptscriptstyle{ m ЛЮМ}}$ (отн. ед.)	λ <sub>рез</sub> (нм)	d <sub>нч</sub> (нм)	о <sub>нч</sub> (нм)	<i>К</i> <sub>заполнения</sub> (%)	
Без нагревания	4974	2522	32972	565	_	_	_	
120°С, 6 мин	9224	6344	54031	581	_	_	_	
120°С, 20 мин	8791	5117	54165	566	24	16	48	
240°С, 6 мин	22464	11697	98210	561	29	23	36	
240°С, 20 мин	11724	6017	68200	559	32	23	37	
360°С, 6 мин	26245	17825	79010	586	37	28	39	
120 + 180 + 240°С, 6 мин	21609	13884	80260	560	25	15	31	
120 + 180 + 240°С, 20 мин	13123	6045	45663	560	31	23	28	
120 + 180 + 240 + 300 + 360°C, 6 мин	18240	9769	44500	588	36	21	45	
120 + 240 + 360°С, 6 мин	18670	9454	37058	587	33	25	35	

Таблица 1. Продолжение

$ m Ag-$ толщина $ m 100~\AA$										
	Оптические свойства SERS-подложек Морфология нане									
Режимы	<i>I</i> <sub>475</sub> (отн. ед.)	$I_{1325}$ (отн. ед.)	$I_{\scriptscriptstyle{ m ЛЮМ}}$ (отн. ед.)	λ <sub>рез</sub> (нм)	d <sub>нч</sub> (нм)	о <sub>нч</sub> (нм)	<i>К</i> <sub>заполнения</sub> (%)			
Без нагревания	2746	1593	20464	600	_	_	_			
120°С, 6 мин	5807	3698	36633	604	_	_	_			
120°С, 20 мин	6691	3812	34886	619	33	21	43			
240°С, 6 мин	19202	14602	87268	579	44	30	39			
240°С, 20 мин	21045	12099	73968	565	39	24	37			
360°С, 6 мин	4363	3270	78115	616	40	21	48			
120 + 180 + 240°С, 6 мин	26006	18057	92402	567	41	27	38			
120 + 180 + 240°С, $20$ мин	22794	13627	82742	564	34	19	36			
120 + 180 + 240 + 300 + 360°С, 6 мин	24844	15600	117759	594	35	24	36			
120 + 240 + 360°С, 6 мин	26500	17375	120766	607	42	30	38			
	A	g — толщи	на 120 Å							

	Оптичес	Оптические свойства SERS-подложек			Морфология наночастиц		
Режимы	<i>I</i> <sub>475</sub> (отн. ед.)	$I_{1325}$ (отн. ед.)	$I_{\scriptscriptstyle{ m ЛЮМ}}$ (отн. ед.)	λ <sub>рез</sub> (нм)	d <sub>нч</sub> (нм)	σ <sub>нч</sub> (нм)	<i>К</i> <sub>заполнения</sub> (%)
Без нагревания	3645	1905	30025	617	_	_	_
120°С, 6 мин	4505	2192	43210	608	_	_	_
120°С, 20 мин	5463	2835	25150	609	_	_	_
240°С, 6 мин	12605	8885	87985	588	46	31	39
240°С, 20 мин	8290	7445	65495	579	46	26	38
360°С, 6 мин	8080	5095	55605	620	55	33	44
120 + 180 + 240°С, 6 мин	15750	9750	95892	598	48	33	35
120 + 180 + 240°C, 20 мин	4433	3042	69235	592	45	30	38
120 + 180 + 240 + 300 + 360°C, 6 мин	25966	15018	125489	615	50	24	44
120 + 240 + 360 °С, 6 мин	37757	26119	169397	613	53	33	42

### Ag — толщина 150 Å

	Оптические свойства SERS-подложек				Морфология наночастиц		
Режимы	<i>I</i> <sub>475</sub> (отн. ед.)	$I_{1325}$ (отн. ед.)	$I_{\scriptscriptstyle{ m ЛЮМ}}$ (отн. ед.)	λ <sub>рез</sub> (нм)	d <sub>нч</sub> (нм)	о <sub>нч</sub> (нм)	<i>К</i> <sub>заполнения</sub> (%)
Без нагревания	2686	1225	14756	583	_	_	_
120°С, 6 мин	4050	2030	25750	635	_	_	_
120°С, 20 мин	3369	1637	20900	631	_	_	_
240°С, 6 мин	73100	47300	246 500	610	66	41	31
240°С, 20 мин	41115	30550	130000	610	65	44	35
360°С, 6 мин	9220	6925	63200	623	61	43	41
120 + 180 + 240°С, 6 мин	7564	4248	71165	608	54	36	39
120 + 180 + 240°C, 20 мин	7616	4274	71500	604	63	56	35
120 + 180 + 240 + 300 + 360°C, 6 мин	62870	29275	118890	618	77	41	32
120 + 240 + 360°С, 6 мин	51500	25600	176200	612	77	63	34

Таблица 1. Продолжение

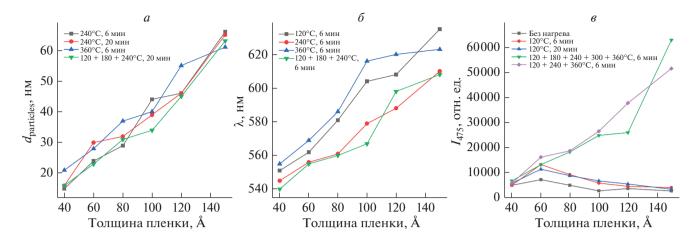
Ag — толщина 60 Å, Au — толщина 20 Å							
	Оптические свойства SERS-подложек				Морфология наночастиц		
Режимы	<i>I</i> <sub>475</sub> (отн. ед.)	<i>I</i> <sub>1325</sub> (отн. ед.)	$I_{\scriptscriptstyle{ m ЛЮМ}}$ (отн. ед.)	λ <sub>рез</sub> (нм)	d <sub>нч</sub> (нм)	о <sub>нч</sub> (нм)	<i>К</i> <sub>заполнения</sub> (%)
Без нагревания	180	102	553	596	_	_	_
120°С, 6 мин	406	249	1310	604	_	_	_
120°С, 20 мин	258	123	901	600	_	_	_
240°С, 6 мин	2179	1037	19792	569	29	17	40
240°С, 20 мин	673	361	9339	565	27	16	35
360°С, 6 мин	1102	816	9840	623	36	25	42
120 + 180 + 240°С, 6 мин	3881	1791	28269	548	28	23	43
120 + 180 + 240°C, 20 мин	753	373	8945	564	28	17	37
120 + 180 + 240 + 300 + 360°С, 6 мин	740	570	9325	602	41	21	39
120 + 240 + 360°С, 6 мин	850	607	11570	608	36	23	48

ребра (40 Å) на ее поверхности формируются маленькие наночастицы с характерными латеральными размерами около 15 нм, высотой 7 нм и дисперсией латеральных размеров порядка 10 нм. При больших толщинах напыления серебра (150 Å) образуются крупные наночастицы, размеры которых в плоскости подложки составляют около 70 нм, высотой 36 нм при дисперсии латеральных размеров 45 нм.

- 2. Подложки, не подвергающиеся термическому отжигу (при любой толщине металлического слоя), фактически представляют собой тонкую металлическую пленку без одиночных локализованных гранул, поэтому они имеют малый коэффициент усиления.
- 3. При увеличении толщины напыления серебра пик плазмонного поглощения SERS-подложек сдвигается в красную спектральную область с характерной "скоростью" 0.5 нм/Å (рис. 26). Этот сдвиг вызван изменением форм наночастиц переходом от круглых наночастиц к эллипсоидным [24].
- 4. Ширина контура плазмонного поглощения SERS-подложек определяется дисперсией размеров металлических наночастиц.
- 5. При возбуждении зеленым лазерным излучением с длиной волны 532 нм наиболее эффективно усиливающими SERS-подложками оказываются подложки с пиком плазмонного поглощения, лежащим в красной спектральной области 610—620 нм (табл. 1). Это вызвано комбинацией усилений на частоте лазерного излучения (входной резонанс) и на частоте рамановского рассеяния света (выходной резонанс).
- 6. При слабых режимах нагревания и при его отсутствии наблюдается локальный максимум интенсивности SERS в зависимости от толщины

напыленного серебра в точке 60 Å (рис. 2в). Этот оптимум на толщине 60 Å, с одной стороны, связан с формированием однородных пленок при больших толщинах серебра в случае слабых режимов температурного отжига, при которых эффективность возбуждения поверхностных плазмон-поляритонов низкая. А с другой стороны, он вызван образованием тонких гранул серебра вытянутой формы (этот факт обуславливает формирование низкодобротного контура плазмонного поглощения, сдвинутого относительно частоты лазерного излучения в "красную" спектральную область) при малых напыляемых толщинах в случае слабых режимов температурного отжига.

- 7. При сильных режимах нагревания зафиксирована растущая зависимость интенсивности SERS от толщины напыленного серебра (рис.  $2\theta$ ). При этом при увеличении толщины напыления увеличиваются латеральные размеры наночастиц и их высота, а коэффициент заполнения поверхности металлом практически не изменяется. Таким образом, если сравнивать подложки с тонкими слоями напыления и толстыми (при больших дозах температурного отжига), то в первом случае наблюдается большое количество маленьких серебряных наночастиц с маленькими зазорами, а во втором - малое количество крупных серебряных наночастиц с большими зазорами. Факт того, что коэффициент усиления для подложек второго типа значительно выше, свидетельствует о дальнодействующем механизме усиления SERS. Это подтверждается данными литературы [25].
- 8. Наибольший коэффициент усиления интенсивности рамановского рассеяния ( $\sim 10^8$ ) имели SERS-подложки с толщиной напыления серебра 150 Å при следующих режимах отжига: а  $240^{\circ}$ C, 6 мин; б  $240^{\circ}$ C, 20 мин; в 120 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 + 180 +



**Рис. 2.** Зависимость среднего латерального размера наночастиц серебра ( $d_{particles}$ ) от толщины напыленного слоя серебра при режимах отжига: 240°C в течение 6 мин; 240°C в течение 20 мин; 360°C в течение 6 мин; 120, 180, 240°C в течение 20 мин (a). Зависимость пика плазмонного поглощения SERS-подложек ( $\lambda$ ) от толщины напыленного слоя серебра при режимах отжига: 120°C в течение 6 мин; 240°C в течение 6 мин; 360°C в течение 6 мин; 120, 180, 240°C в течение 6 мин (a). Зависимость интенсивности рамановского рассеяния света тестового вещества FITC на 475 см $^{-1}$  (a) от толщины напыленного слоя серебра при режимах отжига: без нагрева; 120°C в течение 6 мин; 120°C в течение 20 мин; 120, 180, 240, 300, 360°C в течение 6 мин; 120, 240, 360°C в течение 6 мин (a).

+240 + 300 + 360°C, 6 мин; r - 120 + 240 + 360°C, 6 мин.

9. Золотые и серебряно-золотые подложки не показали значительного усиления сигнала оптического отклика от тестовых молекул FITC, т. к. в оптическом частотном диапазоне в золоте наблюдается рост мнимой части диэлектрической проницаемости из-за возникновения межзонных переходов [26]. Это является одной из причин затухания поверхностных плазмон-поляритонов.

Таким образом, была продемонстрирована возможность управления оптическими свойствами SERS-подложек за счет изменения морфологии металлических наночастиц при разных режимах температурного отжига подложек после напыления различных толщин металла на поверхность диэлектрической основы SiO<sub>2</sub>. Это чрезвычайно важно для создания недорогих и воспроизводимых SERS-сенсоров, эффективно работающих на различных длинах волн лазерного возбуждения. Если говорить о коммерческих воспроизводимых SERS-субстратах, то в первую очередь стоит упомянуть твердотельные периодические SERS-подложки, полученные с использованием процессов литографии [18], которые имеют минимальный неконтролируемый разброс параметров линейных размеров структурных элементов и зазоров между этими элементами и, тем самым, являются воспроизводимыми и контролируемыми при производстве. Однако электронная литография – это длинный и дорогой процесс, который не позволяет выпускать партии подложек и поэтому не может быть основой для массового создания SERS-чипов. А создавать SERS-структуры, эффективно работающие под лазерным возбуждением с длиной волны в диапазоне 500—650 нм, с использованием фотолитографии не представляется возможным, т.к. этот процесс не может обеспечивать создание структурных элементов и зазоров между ними на поверхности подложек с размерами ниже дифракционного предела (~300 нм). Поэтому для использования наиболее распространенных рамановских спектрометров с длинами волн возбуждающего излучения, лежащего в диапазоне 500—650 нм, с целью SERS-идентификации молекулярных соединений необходимо уметь точно подстраивать плазмонный резонанс SERS-подложек под длину волны лазера.

В данной работе было показано, как, изменяя морфологию наноостровковых SERS-подложек с помощью методов вакуумного термического напыления и температурного отжига, становится возможным контролировано, воспроизводимо и эффективно подстраивать положение и ширину контура плазмонного резонанса подложек под входное усиление (на частоте лазерного возбуждения) и выходное усиление (на частоте рамановского рассеяния света).

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Показана возможность получения методом вакуумного термического напыления с использованием термического отжига SERS-подложек с различной морфологией металлических наночастиц, определяющей их оптические свойства. Методами оптической спектроскопии установлены закономерности в изменении оптических свойств SERS-

подложек при изменении латеральных размеров, высот, форм и зазоров между наночастицами. Пролемонстрирована возможность точной полстройки пика плазмонного поглощения SERS-подложки под длину волны возбуждающего лазерного излучения. Подтвержден дальнодействующий механизм усиления SERS, обусловленный возникновением поверхностных плазмон-поляритонных волн [25], а не образованием "горячих точек" в зазорах между наночастицами. Результаты данной работы имеют большую прикладную значимость, так как разработка эффективных SERS-подложек для простого и дешевого серийного производства является важной задачей для внедрения SERS-технологий в различные области промышленности. науки и народного хозяйства.

Авторы выражают благодарность Центру коллективного пользования научным оборудованием ИФТТ РАН в части исследований с использованием сканирующей электронной микроскопии. Исследование выполнено за счет гранта Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 20-04-60077).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Fleischmann M., Hendra P.J., McQuillan A.J. // Chem. Phys. Lett. 1974. V. 26. P. 163.
- Yang L., Ma L., Chen G. et al. // Chem. Eur. J. 2010.
   V. 16. Art. No 12683.
- Sha M.Y., Xu H., Penn S.G. et al. // Nanomedicine. 2007. V. 2. P. 725.
- Chon H., Lee S., Son S.W. et al. // Anal. Chem. 2009.
   V. 8. P. 3029.
- Wang J., Wu X., Wang C. et al. // ACS Appl. Mater. Interfaces. 2016. V. 31. Art. No 19958.
- 6. Kukushkin V.I., Ivanov N.M., Novoseltseva A.A. et al. // PLoS ONE. 2019. V. 14. Art. No e0216247.

- Lopez A., Lovato F., Oh S.H. et al. // Talanta. 2015.
   V. 146. P. 388.
- 8. Jiang T., Wang X., Zhou J. et al. // Nanoscale. 2016. V. 9. P. 4908.
- 9. Kim K., Lee H.B., Lee J.W. et al. // Langmuir. 2008. V. 24. Art. No 7178.
- 10. Kristavchuk O.V., Nikiforov I.V., Kukushkin V.I. et al. // Colloid J. 2017. V. 79. P. 637.
- 11. Yu M., Huang Z., Liu Z. et al. // Sens. Actuators B. 2018. V. 262. P. 845.
- 12. Paulchamy N., Pal A.K., Dhanasingh B.M. // Opt. Mater. 2019. V. 97. Art. No 109381.
- 13. *Tang L., Liu Y., Liuet G. et al.* // Nanoscale Res. Lett. 2019. V. 14. P. 94.
- Borges J., Ferreira C.G., Fernandes J.P.C. et al. // J. Phys. D. 2018. V. 51. Art. No 205102.
- Mahurin S.M., John J., Sepaniak M.J. et al. // Appl. Spectrosc. 2011. V. 65. P. 417.
- Kuzminova A., Subr M., Kylian O. et al. // Vacuum. 2019. V. 170. Art. No 108951.
- 17. Okeil S., Schneider J.J., Beilstein J. // Nanotechnol. 2018. V. 9. P. 2813.
- 18. Fedotova J.V., Kukushkin V.I., Solovyev V.V. et al. // Opt. Expr. 2019. V. 27. Art. No 32578.
- 19. Netzer N.L., Qiu C., Zhang Y. et al. // Chem. Commun. 2011. V. 34. Art. No 9606.
- Charles D.E., Aherne D., Gara M. et al. // ACS Nano. 2010. V. 1. P. 55.
- 21. Lee K.E., Hesketh A.V., Kelly T.L. // Phys. Chem. Chem. Phys. 2014. V. 24. Art. No 12407.
- Zhang C., Jiang S.Z., Yang C. et al. // Sci. Rep. 2016.
   V. 6. Art. No 25243.
- 23. *Grishina Y.V., Kukushkin V.I., Solovyev V.V. et al.* // Opt. Expr. 2018. V. 26. № 17. Art. No 22519.
- 24. *Huang X., Neretina S., El-Sayed M.A.* // Adv. Mater. 2009. V. 21. No 48. Art. No 4880.
- 25. *Кукушкин В.И., Ваньков А.Б., Кукушкин И.В.* // Письма в ЖЭТФ. 2013. Т. 98. № 2. С. 72.
- Johnson P.B., Christy R.W. // Phys. Rev. B. 1972. V. 6. P. 4370.

# A study of the influence of the morphology of metal nanoparticles on the surface of silicon oxide on the optical properties of SERS substrates

V. I. Kukushkin<sup>a, \*</sup>, A. S. Astrakhantseva<sup>a, b</sup>, E. N. Morozova<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia

<sup>b</sup>Moscow Institute of Physics and Technology (National Research University), Dolgoprudnyi, 141701 Russia

\*e-mail: kukushvi@mail.ru

The possibility of adjusting the plasmon absorption of nanostructured SERS substrates to the wavelength of exciting laser radiation in the 530–620 nm wavelength range is demonstrated. The characteristic regularities of changes in the optical properties of SERS substrates with changes in the morphology of metal nanoparticles on the surface of silicon oxide are established.

УЛК 538.915

# ТЕРМАЛИЗАЦИЯ ТРИПЛЕТНЫХ МАГНИТОЭКСИТОНОВ И СПИНОВЫЙ ТРАНСПОРТ В ХОЛЛОВСКОМ ДИЭЛЕКТРИКЕ

© 2021 г. А. В. Горбунов<sup>1, \*</sup>, А. С. Журавлев<sup>1</sup>, Л. В. Кулик<sup>1</sup>, В. Б. Тимофеев<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки "Институт физики твердого тела Российской академии наук", Черноголовка, Россия \*E-mail: gorbunov@issp.ac.ru

> Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Обнаружено, что термализация триплетных спин-флип магнитоэкситонов в квантово-холловском диэлектрике является процессом, беспрецедентно длительным для трансляционно-инвариантных неравновесных электронных систем. Показано, что магнитофермионный конденсат — состояние, отличительной характеристикой которого является способность быстро переносить спин на макроскопические расстояния, формируется из спин-флип экситонов с обобщенными импульсами порядка обратной магнитной длины.

**DOI:** 10.31857/S0367676521020101

# **ВВЕДЕНИЕ**

В квантово-холловском диэлектрике (фактор электронного заполнения v = 2) нижайшее по энергии возбуждение - это триплетный циклотронный магнитоэкситон (ТЦМЭ) или спинфлип (spin-flip) экситон, состоящий из электронной вакансии (ферми-дырки) на полностью занятом нулевом уровне Ландау и возбужденного электрона с перевернутым спином на пустом первом уровне Ландау [1, 2]. Спин-флип экситон имеет необычную дисперсионную зависимость: минимум его энергии находится не при нулевом обобщенном импульсе, q = 0, а в области значений вблизи обратной магнитной длины,  $q \approx 1/l_B$  [3]. В поле 4 Тл магнитная длина  $l_B = \sqrt{c\hbar/eB} \approx 10^{-6}$  см, т.е. для релаксации необходимо отдать довольно большой импульс. Кроме того, ТЦМЭ оптически не активен: его излучательная рекомбинация запрещена по спину. Согласно теоретическим оценкам, при температуре  $T \le 0.25 \text{ K}$  характерное время релаксации такого спин-флип экситона путем испускания высокочастотных акустических фононов составляет ~1 с [4]. В высококачественной GaAs/AlGaAs-гетероструктуре с квантовой ямой (КЯ) шириной 25 нм экспериментально измеренное время жизни ТЦМЭ достигает  $\approx 1$  мс при T == 0.45 К [5]. За счет столь большого времени жизни удается создать ансамбль ТЦМЭ с плотностью  $n_{ex}$  ≥  $10^{10}$  см<sup>-2</sup> с помощью довольно слабого фотовозбуждения, не способного перегреть исследуемую систему. ТЦМЭ представляет собой композитный бозон со спином S=1, и при температурах  $T \le 1$  К создание столь плотного бозонного ансамбля приводит к формированию в холловском изоляторе — чисто фермионной системе — нового необычного состояния — магнитофермионного конденсата (МФК) [5]. МФК — это первый экспериментальный пример конденсации композитных бозонов не в обычном пространстве, как в случае электрон-дырочной жидкости в объемных полупроводниках [6], и не в импульсном пространстве, как в случае атомных бозе-конденсатов [7], а в пространстве обобщенных импульсов — величин, зависящих как от пространственных координат, так и от их градиентов [8].

Отличительной особенностью МФК является способность быстро растекаться на макроскопические расстояния, ограниченные лишь размерами исследуемого образца [5, 9]. Прямые эксперименты показывают, что транспортная длина ТЦМЭ в конденсированном состоянии увеличивается, по крайней мере, на три порядка величины по сравнению с длиной диффузии магнитоэкситонов в газовой фазе [9]. Из-за имеющейся электрон-дырочной симметрии пространственное перемещение ТЦМЭ не связано с переносом заряда или массы, а только с переносом энергии и спина. Эксперименты по измерению скорости растекания ТЦМЭ из пятна фотовозбуждения в объем квантово-холловского изолятора [10] показали, что она может достигать ~103 см/с. Столь высокие скорости переноса спина делают квантово-холловский диэлектрик перспективным объектом для быстрой передачи сигналов в спиновой подсистеме.

В работе [10] были выдвинуты предположения о динамике релаксации ТЦМЭ в нижайшее энергетическое состояние на основе исследований кинетики резонансного отражения света. Как уже упоминалось, спин-флип экситон является "темным" и в дипольном приближении не взаимодействует со светом. Но для его детектирования можно использовать резонансное отражение света, соответствующего переходу "0-0" из валентной зоны на нулевой уровень Ландау, где находится ферми-дырка, входящая в состав ТЦМЭ, либо переходу "1-1" на первый уровень Ландау, где сидит возбужденный электрон. В равновесии переход "0-0" невозможен, поскольку все состояния на нулевом уровне заняты – ферми-дырки отсутствуют. При фотовозбуждении ситуация становится неравновесной, появляются ферми-дырки и возникает резонансное поглощение фотонов с соответствующей энергией. В эксперименте проще регистрировать резонансное отражение, которое сводится к поглощению и переизлучению резонансного фотона. Фотоиндуцированное резонансное отражение (ФРО) было успешно использовано для детектирования ТЦМЭ в работе [11]. Существенным недостатком измерений ФРО является то, что эта методика учитывает лишь общее количество фотовозбужденных ферми-дырок и не позволяет определить, какой обобщенный импульс имеют ТЦМЭ, в состав которых входят детектируемые фермиевские дырки. Если же речь идет о конденсации ТЦМЭ в одно или в несколько квантовых состояний, то вопросы о величине обобщенного импульса магнитоэкситонов и о том, каким образом этот импульс приобретается электронной системой, являются ключевыми для понимания того, как устроено возникающее конденсированное состояние.

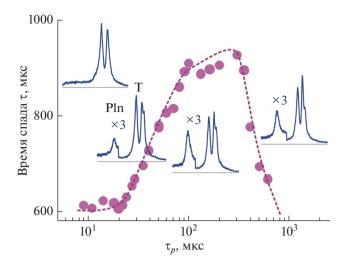
В данной работе проведены одновременные измерения ФРО и фотолюминесценции (ФЛ) в двумерной электронной системе (2D-ЭС) в присутствии плотного ансамбля фотовозбужденных ТЦМЭ. В результате удалось определить величины обобщенного импульса "темных" спин-флип экситонов в конденсированном и газообразном состоянии. Обнаружено, что термализация ТЦМЭ является далеко не тривиальным и беспрецедентно длительным для трансляционно-инвариантных неравновесных электронных систем процессом. Оказалось, что одиночный спин-флип экситон с нулевым обобщенным импульсом, по-видимому. вообще не сможет релаксировать в нижайшее энергетическое состояние, несмотря на то, что его время жизни может достигать значений ~1 мс. Связано это с принципиальной невозможностью одновременного выполнения законов сохранения энергии и импульса в процессе испускания акустических фононов одиночным триплетным магнитоэкситоном. Только лишь включение двухэкситонных механизмов рассеяния, эффективность которых возрастает при достаточно высокой плотности магнитоэкситонного ансамбля, приводит к быстрой термализации магнитоэкситонов и образованию магнитофермионного конденсата. В работе показано, что само конденсированное состояние формируется из магнитоэкситонов с обобщенными импульсами порядка обратной магнитной длины.

# МЕТОДЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследовалась гетероструктура, содержащая одиночную, симметрично легированную, квантовую яму GaAs/AlGaAs шириной 31 нм с концентрацией электронов в 2D канале  $1.8 \cdot 10^{11}$  см<sup>-2</sup> и темновой подвижностью более  $1.5 \cdot 10^7 \, \text{cm}^2 / \text{B} \cdot \text{c}$ . Симметричное легирование необходимо, чтобы минимизировать проникновение волновой функции электронов проводимости в барьер и уменьшить вклад в релаксацию возбужденных электронов случайного потенциала на гетерограницах КЯ и примесных состояний в барьере. Образец размером ≈3 × 3 мм помещался во вставку с жидким <sup>3</sup>Не, которая, в свою очередь, устанавливалась в <sup>4</sup>Не-криостат со сверхпроводящим соленоидом. Оптические измерения проводились при температуре 0.45 К в магнитном поле вблизи 4.2 Тл, которое соответствовало формированию холловского изолятора при факторе заполнения v = 2.

Эксперименты проводились с помощью двух многомодовых кварцевых световодов Ø400 мкм с числовой апертурой 0.39. Один световод служил одновременно для нерезонансной накачки неравновесных ТЦМЭ и резонансного зондирования двумерной электронной системы. Размер пятна накачки/зондирования ≈1 мм. С помощью второго световода собирались как отраженный свет, так и излучение ФЛ и передавались на входную щель решеточного спектрометра с охлаждаемой ПЗС камерой либо на лавинный фотодиод в режиме счета фотонов, подключенный к фотонному счетчику со стробированием во времени. Для формирования ансамбля неравновесных ТЦМЭ использовался лазерный диод (длина волны излучения  $\approx 780$  нм при спектральной ширине  $\approx 10$  нм), а для контроля резонансного отражения - перестраиваемый непрерывный лазер с шириной линии 1 МГц. Для подавления сигнала отражения от поверхности образца использовалась пара скрещенных сетчатых линейных поляризаторов, помещенных в жидкий гелий между торцами световодов и исследуемым образцом.

Модулирование тока лазерного диода с помощью генератора прямоугольных импульсов позволяло измерять  $\tau$  — время спада сигнала ФРО из пятна фотовозбуждения после окончания импульса накачки. Увеличение длительности импульса



**Рис. 1.** Зависимость времени спада  $\tau$  сигнала ФРО для ТЦМЭ от длительности импульса фотовозбуждения  $\tau_p$ . На вставках — спектры ФЛ, измеренные при  $\tau_p = 10, 30, 100$  и 1000 мкс.

пульса накачки  $\tau_p$  либо пиковой мощности  $P_p$  приводило к возрастанию плотности магнитоэкситонов, накачиваемых за один импульс. Период следования импульсов  $T_p$  выбирался таким, чтобы превысить все характерные переходные и релаксационные процессы в исследуемой системе, и составлял десятки миллисекунд.

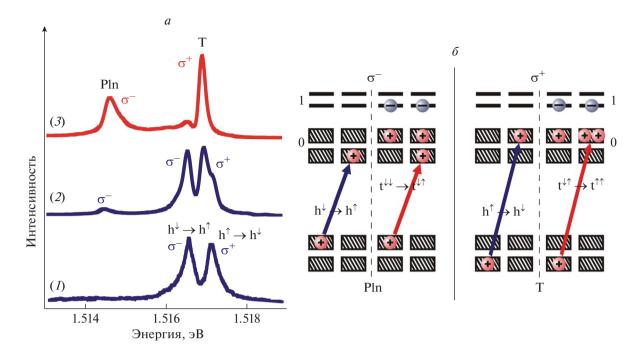
Дополнительно были проведены измерения спектров ФЛ с пространственным разрешением в  $^3$ Не-магнитокриостате с оптическим окном. Для мониторинга обобщенного импульса ТЦМЭ, утекающих из области фотовозбуждения, была применена схема эксперимента с двумя пятнами нерезонансной лазерной накачки диаметром  $d_{pump} = d_{probe} \approx 20$  мкм, разнесенными друг от друга на расстояние  $D \approx 200$  мкм. Одно из пятен использовалось для фотовозбуждения 2DЭС с мощностью  $P_{pump}$ , другое — для регистрации ФЛ при мощности  $P_{nrobe}$ , меньшей, по крайней мере, на порядок.

# ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты измерений времени спада сигнала ФРО  $\tau$  в зависимости от длительности импульса накачки  $\tau_p$  при фиксированной пиковой мощности  $P_p$  показаны на рис. 1. На кривой можно выделить три характерных участка. Первый соответствует низкому уровню возбуждения системы: концентрация ТЦМЭ составляет менее 1% от плотности квантов магнитного потока. В этом случае время  $\tau$  слабо зависит от длительности импульса фотовозбуждения, составляя  $\approx$ 600 мкс. На втором участке наблюдается рост  $\tau$  приблизи-

тельно на 300 мкс, а на третьем – резкое падение. Здесь следует отметить, что при измерениях ФРО нельзя определить, за счет чего спадает сигнал после окончания импульса накачки. Это может быть связано как с релаксацией неравновесных спин-флип экситонов в основное состояние, так и с их уходом из пятна фотовозбуждения. В том и другом случае фиксируется уменьшение в пятне накачки/зондирования числа ферми-дырок, входящих в состав ТЦМЭ. Чтобы понять природу поведения ТЦМЭ в пятне фотовозбуждения в зависимости от накачиваемой экситонной плотности, были проведены одновременные измерения спектров ФЛ 2D-ЭC, из которых можно определить функцию распределения ТЦМЭ по обобщенным импульсам.

Как было показано ранее в работе [12], при малых концентрациях спин-флип магнитоэкситонов в спектре ФЛ исследуемой 2D-ЭC доминируют две одночастичные линии: одна в поляризации  $\sigma^-$ , а другая — в поляризации  $\sigma^+$  (см. спектр (1) на рис. 2а). Эти линии отвечают излучательной рекомбинации электронов с проекциями спина +1/2 и -1/2 с тяжелыми дырками валентной зоны с проекциями спина -3/2 и +3/2, соответственно. По мере накопления ТЦМЭ в спектре ФЛ появляются две дополнительные линии (см. спектры (2) и (3) на рис. 2a), отвечающие рекомбинации из трехчастичных комплексов, составной частью которых оказывается триплетный спин-флип магнитоэкситон. Одна из этих линий (линия Pln) проявляется в  $\sigma^-$ -поляризации и имеет значительный энергетический сдвиг в сторону меньших энергий. Другая дополнительная линия (линия Т) наблюдается в  $\sigma^+$ -поляризации и сдвинута гораздо меньше по сравнению с одночастичным переходом. В работе [12] было также показано, что оптические переходы в трехчастичных трансляционно-инвариантных комплексах разрешены, если эти переходы идут в симметрийно разрешенном канале. Одиночная фотовозбужденная тяжелая дырка в валентной зоне связывается в трионное состояние с ТЦМЭ, а затем в рамках однофотонного процесса переходит из валентной зоны в состояние ферми-дырки на нулевом уровне Ландау зоны проводимости. Этот процесс идет без изменения внутренних степеней свободы трионного состояния. Конечным состоянием процесса излучательной рекомбинации является либо синглетное по ферми-дыркам состояние в σ--поляризации, либо триплетное состояние в  $\sigma^+$ -поляризации (см. схемы на рис. 26). Различие в свойствах этих двух состояний проистекает из того факта, что в σ--поляризации спиновые квантовые числа одной из ферми-дырок и возбужденного электрона совпадают. Возбужденный электрон может занять состояние ферми-дырки, передавая избыточную энергию другому электрону, а это есть не что иное, как маг-



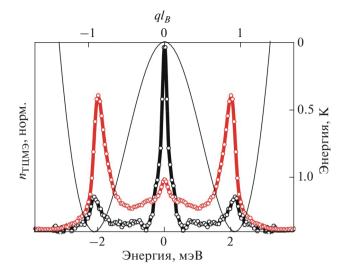
**Рис. 2.** Спектры  $\Phi \Pi$ : (*1*) импульсное фотовозбуждение,  $\tau_p = 10$  мкс,  $P_p = 100$  мкВт; стационарное фотовозбуждение с двумя разнесенными пятнами накачки при  $P_{probe} = 3$  мкВт,  $P_{pump} = 0$  (*2*);  $P_{probe} = 3$  мкВт,  $P_{pump} = 150$  мкВт (*3*). Схема оптических переходов для двух направлений циркулярной поляризации (*6*).

нитоплазмон в присутствии дополнительной ферми-дырки или плазмарон [13]. Электрон, входящий в трион, не может участвовать в плазменных колебаниях. Энергия триона не несет информации об обобщенном импульсе входящего в него магнитоэкситона, что объясняется малой дисперсией магнитоэкситонов по сравнению с характерной шириной линии ФЛ триона. Фактически, интенсивность линии триона учитывает полную плотность магнитоэкситонов в пятне возбуждения/зондирования. Спектр ФЛ плазмарона, напротив, несет информацию как о полном числе магнитоэкситонов, так и о функции распределения плазмаронов по энергиям, из которой, в свою очередь, следует функция распределения входящих в плазмарон магнитоэкситонов по обобщенным импульсам, которые они имели к моменту формирования плазмарона [12, 14]. Таким образом, несмотря на то, что "темные" триплетные спин-флип экситоны не являются оптически активными, их наличие можно детектировать косвенным методом — через модификацию спектров ФЛ, отвечающих оптически активным каналам рекомбинации. Иными словами, оптические переходы с участием трехчастичных комплексов являются "сигнальными метками" на появление в области зондирования триплетных спиновых магнитоэкситонов.

На вставках на рис. 1 видно, что в условиях малых плотностей фотовозбуждения число ТЦМЭ с

большими обобщенными импульсами мало – линия плазмарона отсутствует. При увеличении экситонной плотности начинается процесс рассеяния ТШМЭ с импульсами  $a \approx 0$  в область минимума дисперсионной зависимости — линия плазмарона с импульсами ТЦМЭ  $q \approx 1/l_B$  растет быстрее, чем линия триона. Поскольку этот процесс начинается с некоторой критической длительности импульса накачки (т.е. с критической плотности ТЦМЭ), естественно предположить, что спин-флип экситоны за время жизни не успевают термализоваться и заполнить энергетические состояния вблизи минимума дисперсионной зависимости. Это дает оценку снизу на время внутридолинной релаксации магнитоэкситонов – не менее 600 мкс. Причина такой медленной внутридолинной релаксации состоит в невозможности одновременного удовлетворения законам сохранения энергии и импульса при испускании акустического фонона. Конкретные значения времени релаксации связаны с параметрами гетероструктуры.

Процесс рассеяния ТЦМЭ в нижайшее энергетическое состояние сопровождается появлением в спектрах ФЛ линии плазмарона, что сигнализирует о заполнении магнитоэкситонных состояний вблизи минимума дисперсионной зависимости. При этом время релаксации ТЦМЭ в основное состояние, измеренное с помощью резонансного отражения, увеличивается (второй участок на зависимости  $\tau(\tau_p)$ , рис. 1). Это очевидный результат, так



**Рис. 3.** Распределение плазмаронов по энергиям (нижняя шкала) и импульсам (верхняя шкала) для двух режимов стационарного фотовозбуждения, соответствующих спектрам (2) (черная кривая) и (3) (красная кривая) на рис. 2. Тонкая линия — дисперсия триплетных магнитоэкситонов, рассчитанная в соответствии с результатами работы [3].

как в процессе релаксации в основное состояние спин-флип экситоны должны, помимо энергии, отдать большой импульс  $q \approx 1/l_R$ . Наиболее интересным является поведение спектров ФЛ в режиме, когда ТЦМЭ начинают уходить из пятна возбуждения. В этом случае время жизни т, измеренное с помощью ФРО, резко уменьшается. Одновременно наблюдается дисбаланс в общем числе накачиваемых в пятно возбуждения ТЦМЭ, измеряемом с помощью линии триона, и числе ТЦМЭ с обобщенным импульсом  $q \approx 1/l_R$ , измеряемом с помощью линии плазмарона. Общее число накачиваемых ТЦМЭ растет, а число ТЦМЭ с импульсами порядка обратной магнитной длины уменьшается. Таким образом, очевидно, что из пятна возбуждения уходят не все фотовозбужденные ТЦМЭ, а только ТЦМЭ с обобщенным импульсом  $q \approx 1/l_R$ .

Дополнительная экспериментальная проверка этого, ключевого для описания свойств спинфлип экситонов, утверждения была произведена путем измерения спектров  $\Phi \Pi$  не в самом пятне возбуждения, а в области, удаленной от него на расстояние  $D \approx 200$  мкм. При увеличении плотности мощности фотовозбуждения интенсивность линии плазмарона в пространственно удаленной области растет до тех пор, пока интегральная интенсивность линии плазмарона не приблизится к интегральной интенсивности линии триона. Это означает, что практически все спин-флип экситоны, пришедшие в область регистрации из пятна возбуждения, имеют обобщенный им-

пульс  $q \approx 1/l_B$ . Вычитая с соответствующим весом спектр ФЛ равновесной 2D-ЭС из спектров ФЛ 2D-ЭС в удаленной от точки возбуждения области, можно получить распределение по обобщенным импульсам неравновесных магнитоэкситонов (рис. 3). Из приведенных функций распределения  $n_{\text{ТЦМЭ}}(q)$  в отсутствии и при наличии удаленного фотовозбуждения становится очевидным, что именно магнитоэкситоны с импульсами порядка обратной магнитной длины принимают участие в магнитоэкситонном транспорте.

# ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложен экспериментальный метод построения функции распределения спин-флип магнитоэкситонов по обобщенным импульсам, что является существенным шагом в понимании физики "темных"" триплетных магнитоэкситонов и магнитофермионного конденсата, учитывая диапазон вариации обобщенного импульса от 0 до более, чем  $10^6$  см $^{-1}$ . Показано, что перенос магнитоэкситонной плотности на большие расстояния осуществляется не всеми магнитоэкситонами, а только теми, импульс которых близок к обратной магнитной длине. Таким образом, можно сделать вывод о том, что магнитофермионный конденсат формируется из магнитоэкситонов с дипольным моментом порядка магнитной длины, умноженной на элементарный электронный заряд. Из-за невозможности удовлетворить законам сохранения энергии и импульса одновременно в ансамбле неравновесных магнитоэкситонов не происходит полной термализации. Релаксация в нижайшее энергетическое состояние протекает за счет двухэкситонных процессов, которые становятся заметными по достижению неравновесным ансамблем магнитоэкситонов некоторой критической плотности. Вследствие сверхдлинных времен термализации ансамбль магнитоэкситонов является существенно неравновесным. Он разбивается на надконденсатные магнитоэкситоны с обобщенными импульсами  $q \approx 0$ , доля которых определяется не только внешней температурой, но и динамикой фотовозбуждения, двухэкситонной внутридолинной релаксацией и транспортом магнитоэкситонов из пятна возбуждения, и на магнитоэкситоны с импульсами  $q \approx 1/l_B$ , которые участвуют в формировании магнито фермионного конденсата и в экситонном транспорте (т.е. и в переносе спина) на макроскопические расстояния. Таким образом, фотовозбужденная система магнитоэкситонов существенно отличается от системы непрямых в импульсном пространстве экситонов в объемных полупроводниках, таких, как Ge и Si, где долгоживущие экситоны термализуются за времена жизни [15]. Примером неравновесной бозе-системы, близкой к системе спин-флип магнитоэкситонов, следует рассматривать параметрически накачиваемые бозе-эйнштейновские конденсаты магнонов в пленках железо-иттриевого граната [16].

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект № 16-12-10075).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Dickmann S., Kukushkin I.V. // Phys. Rev. B. 2005. V. 71. Art. No 241310.
- Kulik L.V., Kukushkin I.V., Dickmann S. et al. // Phys. Rev. B. 2005. V. 72. Art. No 073304.
- Kallin C., Halperin B.I. // Phys. Rev. B. 1985. V. 31. P. 3635.
- Dickmann S. // Phys. Rev. Lett. 2013. V. 110. Art. No 166801.
- 5. Kulik L.V., Zhuravlev A.S., Dickmann S. et al. // Nat. Commun. 2016. V. 7. Art. No 13499.
- 6. Keldysh L.V. // Contemp. Phys. 1986. V. 27. P. 395.

- 7. Anglin J.R., Ketterle W. // Nature. 2002. V. 416. P. 211.
- Avron J.E., Herbst I.W., Simon B. // Ann. Phys. 1978.
   V. 114. P. 431.
- 9. Kulik L.V., Kuznetsov V.A., Zhuravlev A.S. et al. // Sci. Rep. 2018. V. 8. Art. No 10948.
- 10. *Kulik L.V., Gorbunov A.V., Zhuravlev A.S. et al.* // Appl. Phys. Lett. 2019. V. 114. Art. No 062403.
- 11. Kulik L.V., Gorbunov A.V., Zhuravlev A.S. et al. // Sci. Rep. 2015. V. 5. Art. No 10354.
- Zhuravlev A.S., Kuznetsov V.A., Kulik L.V. et al. // Phys. Rev. Lett. 2016. V. 117. Art. No 196802.
- Heidin L., Lundqvist B.I., Lundqvist S. // Sol. St. Commun. 1967. V. 5. P. 237.
- Kuznetsov V.A., Kulik L.V., Velikanov M.D. et al. // Phys. Rev. B. 2018. V. 98. Art. No 205303.
- Кукушкин И.В., Кулаковский В.Д., Тимофеев В.Б. // Письма в ЖЭТФ. 1981. Т. 34. № 1. С. 36.
- Demokritov S.O., Demidov V.E., Dzyapko O. et al. // Nature. 2006 V. 443. P. 430.

# Thermalization of triplet magnetoexcitons and spin transport in a Hall dielectric

A. V. Gorbunov<sup>a, \*</sup>, A. S. Zhuravlev<sup>a</sup>, L. V. Kulik<sup>a</sup>, V. B. Timofeev<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia \*e-mail: gorbunov@issp.ac.ru

It was found that the thermalization of triplet spin-flip magnetoexcitons in a quantum Hall dielectric is an unprecedentedly long process for translation-invariant nonequilibrium electronic systems. The magnetofermionic condensate, a state characterized by the ability to rapidly transfer spin over macroscopic distances, is formed by the spin-flip excitons with generalized momenta of the order of the reciprocal magnetic length.

УЛК 538.9

# ИЗУЧЕНИЕ ЧАСТИЧНО ПОЛЯРИЗОВАННОЙ ПО СПИНУ ДВУМЕРНОЙ ЭЛЕКТРОННОЙ СИСТЕМЫ МЕТОДОМ ВРЕМЯ-РАЗРЕШЕННОГО МАГНИТО-ОПТИЧЕСКОГО ВРАШЕНИЯ КЕРРА

© 2021 г. А. В. Ларионов<sup>1, \*</sup>, Э. Степанец-Хуссейн<sup>2</sup>, Л. В. Кулик<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки "Институт физики твердого тела Российской академии наук", Черноголовка, Россия

<sup>2</sup>Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования "Национальный исследовательский университет "Высшая школа экономики", Москва, Россия

\*E-mail: larionov@issp.ac.ru
Поступила в редакцию 28.08.2020 г.
После доработки 25.09.2020 г.
Принята к публикации 28.10.2020 г.

С помощью методики время-разрешенного керровского вращения исследована спин-деполяризованная электронная система с фактором заполнения v=1 в GaAs квантовой яме. При температурах выше 5 К обнаружен переход из нового спин-коррелированного состояния в состояние с низкой спиновой жесткостью, характерной для одночастичной электронной системы. Выделен нелинейный вклад в затухание ларморовских осцилляций, возникающий при низких температурах, когда спинспиновые корелляции определяют основное состояние двумерной электронной системы. Оценены параметры флуктуирующего магнитного поля, действующего на отдельные электронные спины.

#### **DOI:** 10.31857/S0367676521020198

# **ВВЕДЕНИЕ**

В последнее время большое внимание научной общественности уделяется областям технологических приложений, использующих манипулирование спиновой степенью свободы. В случае двумерных электронных систем (2D-ЭС) в магнитном поле, квантово-холловский ферромагнетик до сих пор являлся наиболее изученным спиновым объектом. Открытым вопросом на настоящий момент остается описание основного состоянием холловского ферромагнетика при конечных температурах, когда происходит сильная спиновая деполяризация. Важный шаг в изучении свойств спин-деполяризованных состояний был связан с попыткой адресоваться к спиновой жесткости, определяемой величиной обменного взаимодействия между соседними спинами, с помощью методики время-разрешенного керровского вращения. Идея этой экспериментальной методики состоит в импульсном отклонении полного спина электронной системы от его равновесного направления на малый угол и последующем исследовании динамики спиновой прецессии вокруг направления внешнего магнитного поля.

Ранее в работе [1] была предложена модель, описывающая время сбоя фазы когерентной прецессии электронов вследствие пространственных флуктуаций эффективного д-фактора электронов. При низких температурах существенный вклад в эффективное магнитное поле, приводящее к флуктуациям д-фактора электронов, также вносят ядерные спины. Два эти вклада можно объединить в один, считая, что на электронные спины действует эффективное флуктуирующее магнитное поле, определяемое локальным эффективным д-фактором отдельного электрона и контактным взаимодействием этого электрона с локальным полем ядерной подсистемы. В пренебрежении обменным взаимодействием между электронами коллективная прецессия 2D-ЭС распадается на локальные прецессии отдельных спинов с индивидуальной ларморовской частотой, определяемой локальным значением флуктуирующего магнитного поля. В свою очередь спиновая жесткость, связанная с многочастичным обменным взаимодействием, заставляет отдельные спины быть сонаправленными, таким образом, препятствуя дефазировке и, соответственно, затуханию

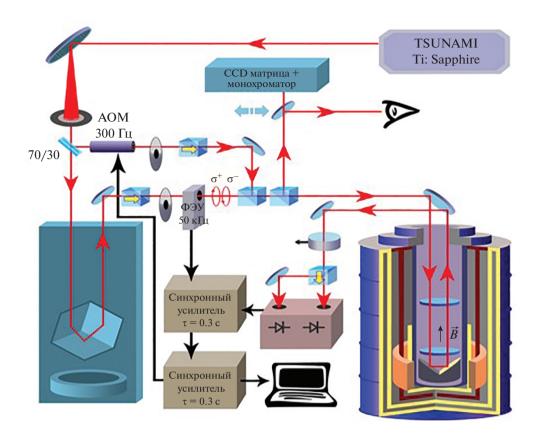


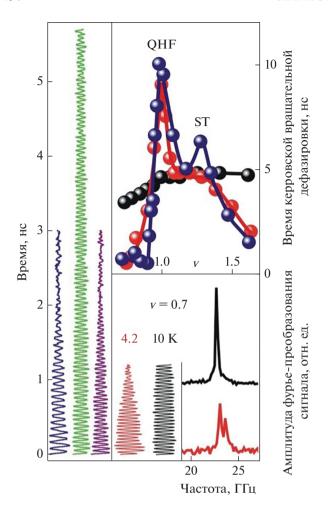
Рис. 1. Схема экспериментальной установки время-разрешенного магнито-оптического вращения Керра.

коллективной прецессии 2D-ЭС с общей для всех электронов ларморовской частотой.

Было показано, что при фиксированной температуре отклонение фактора заполнения от величины, соответствующей квантово-холловскому ферромагнетику, приводит к спиновой деполяризации 2D-ЭС и сопровождается скачкообразным уменьшением спиновой жесткости. В представленной работе мы на примере квантово-холловского ферромагнетика исследуем то, как ведет себя спиновая жесткость в условиях спиновой деполяризации, вызванной увеличением электронной температуры. Оказывается, что даже когда 2D-ЭС сильно деполяризована (спиновая поляризация мало отличается от одночастичной) локальная спиновая жесткость 2D-ЭC остается столь же высокой, что и в спин поляризованном состоянии, что подразумевает существование спин деполяризованной, но, в то же самое время, сильно спинкоррелированной новой электронной фазы.

# ИССЛЕДУЕМЫЕ ОБРАЗЦЫ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ТЕХНИКА

Были исследованы высококачественные GaAs/ AlGaAs гетероструктуры с одиночной квантовой ямой шириной 18 нм, содержащей высокоподвижный 2D электронный газ (транспортная подвижность ( $\mu \sim 5 \cdot 10^6 \text{ см}^2 \cdot \text{B}^{-1} \cdot \text{c}^{-1}$ ) с темновой концентрацией электронов  $n_s \sim 0.6 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ . Спиновую динамику двумерного электронного газа изучали с помощью метода время-разрешенного спинового эффекта вращения Керра (рис. 1). Подробное описание установки можно найти в [3]. С помощью циркулярно-поляризованного импульса накачки в исследуемом образце создавалась спиновая ориентация двумерных электронов вблизи основного состояния электронной системы (нижайший спиновый подуровень Ландау), которую регистрировали по углу поворота плоскости поляризации отраженного от образца линейно поляризованного пучка зондирования с помощью специального балансного фотодетектора. Измерения керровского сигнала проводили в спектрально вырожденном режиме, при котором длина волны накачивающего и зондирующего лазерных пучков совпадала. Средняя мощность накачки составляла величину порядка 0.5 мВт, размер лазерного пятна был порядка 30 мкм. При регистрации сигнала керровского вращения использовали двойное синхронное детектирование, позволявшее эффективно подавлять паразитный рассе-



**Рис. 2.** Слева показана временная динамика керровского сигнала при  $T=0.6~\rm K$  в зависимости от фактора заполнения. Вверху представлено время спиновой дефазировки как функция фактора заполнения при  $T=0.6,\ 4.2\ u\ 10~\rm Tn$  (синие, красный и черные точки, соответственно). Внизу изображена динамика керровского сигнала, а также его фурье преобразование при  $T=4.2\ u\ 10~\rm K$ , измеренные в состоянии с малой спиновой жесткостью при v=0.7.

янный лазерный свет от поверхности гетероструктуры. Для этого осуществляли дополнительную (амплитудную) модуляцию пробного пучка с некоторой частотой, и на этой частоте модуляции регистрировали сигнал керровского вращения. Температурные измерения в магнитном поле проводили в криостате со сверхпроводящим соленоидом (критическое поле 10.2 Тл), содержащим вставку для конденсации изотопа гелия <sup>3</sup>Не. Конструкция вставки позволяла плавно менять температуру в диапазоне от 0.6 до 15 К. Держатель образца содержал оптическое окно, через которое заводилось лазерное фотовозбуждение внутрь криостата и собирался полезный сигнал. Исследуемый образец монтировался в держателе таким

образом, что наклон плоскости квантовой ямы к направлению вектора магнитной индукции составлял 45 град. Это позволяло проводить измерения при различных факторах заполнения, а наличие продольной компоненты магнитного поля приводило к когерентной ларморовской прецессии электронов.

# ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖЛЕНИЕ

Лля исслелования изменения спиновой жесткости 2D-ЭС в окрестности фактора заполнения v = 1 нами были измерены сигналы время-разрешенного керровского вращения при различных факторах заполнения и температурах электронной системы T = 0.6, 4.2 и 10 K (рис. 2). Время затухания спиновой прецессии не отличается при T = 0.6 и 4.2 K, что подразумевает практически одинаковую спиновую жесткость 2D-ЭС. Зависимости времен затухания от фактора заполнения также совпадают в этих двух случаях, за исключением дополнительного максимума на низкотемпературной зависимости, связанной с возбуждениями спин-текстурной жидкости [2]. Для сравнения показана зависимость времени затухания, измеренная при 10 К, которая представляет собой слабую монотонную зависимость от фактора заполнения, достигающую максимума на факторе заполнения v = 1, и константу, не зависящую от фактора заполнения при v > 1.

Рост времени затухания при повышении температуры в окрестности фактора заполнения v=1связан с уменьшением флуктуаций д-фактора электронов. При низкой температуре добавляется вклад пространственных флуктуаций эффективного магнитного поля, действующего на электроны, от неравновесной поляризации ядерных спинов. Эти флуктуации не только существенно укорачивают время затухания сигнала керровского вращения, но и приводят к появлению дополнительных пиков в фурье образе сигнала керровского вращения, соответствующих дополнительному эффективному магнитному полю на уровне 0.1 Тл (подробное этот эффект обсуждается в [3]). Таким образом, пространственные флуктуации дфактора и эффективного магнитного поля, действующего на электроны со стороны ядерных спинов через контактное взаимодействие, усиливаются при понижении температуры, что приводит к более быстрому затуханию спиновой прецессии 2D-ЭС.

Установлено, что спиновая жесткость на факторе заполнения v=1 выживает при столь высоких температурах (до 5 K), при которых 2D-ЭС практически полностью деполяризована (порядка 20%). Это означает, что холловский ферромагне-

тик в процессе нагрева перед тем, как превратится в парамагнетик, переходит через дополнительное промежуточное фазовое состояние, характеризующееся высокой спиновой жесткостью и большой корреляционной длиной спин-спиновых корреляций, сравнимых с аналогичными в холловском ферромагнитном состоянии, но малой средней по образцу спиновой поляризацией. Сравнение спиновой жесткости в спин-текстурной жидкости и в новой фазе подразумевает, что новая фаза не может быть спин-текстурной жидкостью (СТЖ). Указанным свойствам, удовлетворяет система спинов, состоящая из текстур с большой корреляционной длиной (слабым изменением направления спина между соседними спинами). Такие текстуры не несут топологического заряда. и число перевернутых спинов в них не квантовано (может оказаться существенно меньше единицы). Однако они обладают высокой спиновой жесткостью даже при значительной, как в GaAs, зеемановской энергии.

Спиновая динамика электронов вблизи фактора заполнения v = 1 имеет сложный характер и не описывается простой экспоненциальной зависимостью. Как уже упоминалось, время затухания когерентной спиновой прецессии 2D-ЭC определяется пространственными флуктуациями эффективного д-фактора электронов и пространственными флуктуациями спина ядерной подсистемы полупроводника, в котором сформирована 2D-ЭС (при гелиевых температурах вклад от ядерных спинов во флуктуирующее магнитное поле, испытываемое электронными спинами, становится доминирующим). Таким образом, затухание амплитуды ларморовских осцилляций в сигнале керровского вращения от времени определяется статистикой флуктуаций эффективного магнитного поля, действующего на электронные спины. Оказывается, что теоретическая разница между различными статистическими флуктуационными моделями невелика (она столь мала, что ее практически невозможно установить из существующих экспериментальных данных) [4]. Поэтому, без утраты общности, можно предположить наличие гауссового беспорядка в 2D-ЭC:  $G(r) = \Delta_g^2 \exp(-r^2/\Lambda^2)$ . Здесь G(r) — корреляционная функция, описывающая флуктуации случайного потенциала, которая зависит от двух параметров  $\Delta_g$  и  $\Lambda$ , амплитуды и корреляционной длины флуктуаций, соответственно. Воспользуемся выводами и обозначениями из [4] для дальнейшего описания системы ( $\Delta_{g}$  выразим в единицах  $\mu_{\it B} \it B$ ). При выбранных предположениях амплитуда ларморовских осцилляций сигнала керровского вращения будет уменьшаться со временем как  $S_+(t) = S_{perp}(0) \exp(-i \varepsilon_z t) [1 + \mathrm{Re} f_a(t)]$ , где

Re 
$$f_a = -(t/T_2)\{(2/\pi)\arctan(2t/\tau_0) - (\tau_0/2\pi t)\ln[1 + (2t/\tau_0)^2]\}$$
 (1)

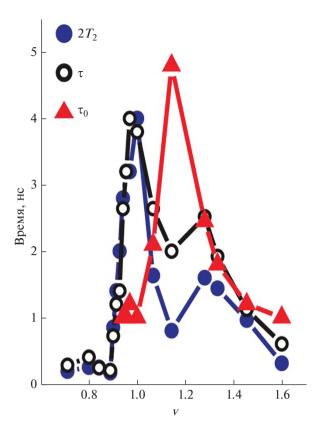
$$1/T_2 = \pi \tau_0 (\Delta_g/2)^2,$$
 (2)

$$\tau_0 = M_x (\Lambda/l_B)^2.(3) \tag{3}$$

Здесь  $l_B$  — магнитная длина,  $\varepsilon_z$  — ларморовская частота осцилляций, а величина  $\hbar/M_x$  определяет спиновую жесткость системы; например, в холловском ферромагнетике она варьируется от 1 до 2 мэВ для стандартных 2D-ЭС в GaAs/AlGaAs квантовых ямах. Зависимость амплитуды колебаний от времени не является экспоненциальной, как было принято считать. Характеристические времена  $T_2$  и  $\tau_0$  отвечают за линейный и нелинейный вклады в зависимость амплитуды ларморовских осцилляций сигнала керровского вращения. Из формулы (2) следует, что произведение двух характеристических времен является универсальной для любой спин-поляризованной электронной системы величиной, не зависящей от спиновой жесткости 2ДЭС и определяемой исключительно одночастичным механизмом затухания керровского сигнала:  $T_2 \tau_0 = (4/\pi) \Delta_g^{-2}$ .

Результат аппроксимации для характеристических времен  $T_2$  и  $\tau_0$  с использованием формул (1)—(3) показан на рис. З вместе со стандартной зависимостью уменьшения амплитуды ларморовских осцилляций сигнала керровского вращения в e раз (время  $\tau$ ). Видно, что эмпирическая и точная зависимости практически точно совпадают в широком диапазоне факторов заполнения в окрестности холловского ферромагнетика, что свидетельствует о близком к линейному уменьшению амплитуды ларморовских осцилляций.

Значительные нелинейности в исследуемой зависимости проявляются только в области формирования спин-текстурной жидкости [2] и точно на факторе заполнения v = 1 (рис. 3). Во временном поведении амплитуды затухания керровского сигнала сначала наблюдается участок в 1-2 нс с постоянным значением амплитуды, после чего происходит линейный спад, как это предсказано в работе [4]. Тем не менее, произведение характеристических времен  $2T_2$  и  $\tau_0$  во всей исследуемой области факторов заполнения остается практически неизменным, что позволяет оценить амплитуду флуктуаций эффективного магнитного поля  $(\Delta_{\rho})$ . Эффективная амплитуда флуктуаций эффективного магнитного поля (ларморовской частоты), измеренная из фурье образа биений ларморовских осцилляций составляет 0.003 мэВ, что



**Рис. 3.** Качественный вид зависимости характеристических времен  $2T_2$  и  $\tau_0$  от фактора заполнения 2D-ЭС (ошибка подгонки не превышает полутора раз от абсолютной величины). Для сравнения показано эмпирическое время и  $\tau$ , при котором амплитуда ларморовских осцилляций уменьшается в e раз (точки). Линии проведены для удобства читателя.

вполне согласуется со средней амплитудой флуктуаций ларморовской частоты 0.0015, полученных аппроксимацией кривых затухания амплитуды ларморовских осцилляций сигнала керровского вращения. Корреляционная длина флуктуаций может быть оценена из известной энергии спиновой волны в холловском ферромагнетике (1-2 мэВ в зависимости от электронной концентрации и ширины квантовой ямы) [4]. В нашем случае она составляет приблизительно 300 нм, что неплохо согласуется с длиной волны возбуждающего и регистрирующего лазерного излучения в объеме GaAs — 225 нм (диэлектрическая проницаемость GaAs выбрана 12.9). Длина когерентности используемого лазера достаточно велика, поэтому даже при однородной засветке на образце возникают неоднородности интенсивности на масштабе длины волны света. Данные неоднородности влияют на спины ядер из-за контактного взаимодействия двумерной электронной системы ядерными спинами. Поскольку поляризация ядер осуществляется лазерным пучком, то полученная оценка выглядит вполне разумной при учете уменьшения диэлектрической проницаемости в плоскости квантовой мы из-за близости к поверхности гетероструктуры.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

При помощи методики время-разрешенного керровского вращения исследована спин деполяризованная электронная система на факторе заполнения v = 1. Обнаружена новая сильно коррелированная фаза в спин деполяризованной 2D-ЭC, не имеющая очевидных аналогов в других состояниях 2D-ЭС. Новая фаза характеризуется высокой степенью спиновой деполяризации и большой спиновой жесткостью, на порядок превышающую спиновую жесткость CTЖ в GaAs. Переход из нового спин-коррелированного состояния в состояние с низкой спиновой жесткостью, характерной для одночастичной электронной системы, происходит пороговым образом по температуре, что, возможно, указывает на связь новой фазы с топологическими фазами Березинского-Костерлица-Таулесса. Также, исследовалась структура сигнала керровского вращения от 2D-ЭC в квантующем магнитном поле, и было показано, что в полном согласии с микроскопической теорией работы [4] затухание коллективной спиновой прецессии 2D-ЭС не имеет экспоненциального или линейного вида. Сделана попытка распространить результаты теоретической работы на область факторов заполнения, формально теорией не описываемую, и получить оценки на амплитуду флуктуаций магнитного поля, действующего на отдельные спины, а также на корреляционную длину этих флуктуаций. Экспериментальные оценки находятся в разумном согласии с ожидаемыми значениями. Экспериментальные результаты дают основание полагать, что методика время-разрешенного керровского вращения для коллективных спиновых состояний 2D-ЭС может оказаться столь же информативной, что и магнитотранспортные методики для исследования коллективных зарядовых состояний 2D-ЭС. Авторы выражают благодарность С.М. Дикману за плодотворные обсуждения и замечания.

Работа выполнена в рамках темы государственного задания ИФТТ РАН.

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. *Larionov A.V., Kulik L.V., Dickmann S., Kukushkin I.V.* // Phys. Rev. B. 2015. V. 92. Art. No 165417.
- Kulik L.V., Zhuravlev A.S., Kirpichev V.E. et al. // Phys. Rev. B. 2013. V. 87. Art. No 045316.
- 3. Larionov A.V., Stepanets-Khussein E., Kulik L.V. et al. // Sci. Rep. 2000. V. 10. Art. No 2270.
- 4. *Dickmann S.* // J. Phys. Cond. Matt. 2020. V. 32. Art. No 015603.

# Study of a partly spin-polarized two-dimensional electron system by means of time-resolved magneto-optical Kerr rotation

A. V. Larionov<sup>a, \*</sup>, E. Stepanets-Khussein<sup>b</sup>, L. V. Kulik<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia

<sup>b</sup>National Research University "Higher School of Economics", Moscow, 141700 Russia

\*e-mail: larionov@issp.ac.ru

A spin-depolarized electron system with a filling factor v = 1 in a GaAs quantum well is investigated by means of the time-resolved Kerr rotation technique. At temperatures above 5 K, a transition from a new spin-correlated state to a state with a low spin stiffness characteristic of a single-particle electron system was observed. A nonlinear contribution to the Larmor oscillations decay, which arises at low temperatures, when spin-spin correlations determine the ground state of a two-dimensional electron system, is highlighted. Estimates of the parameters of the fluctuating magnetic field acting on individual electron spins are performed.

УЛК 535.2

# СПИНОВОЕ ЛОКАЛЬНО НЕСЖИМАЕМОЕ СОСТОЯНИЕ ДРОБНОГО КВАНТОВОГО ЭФФЕКТА ХОЛЛА ПРИ *v* = 3/2

© 2021 г. Л. В. Кулик<sup>1, \*</sup>, А. С. Журавлев<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки "Институт физики твердого тела Российской академии наук", Черноголовка, Россия \*E-mail: kulik@issp.ac.ru

Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Экспериментально исследованы нейтральные возбуждения в двумерной электронной системе с орбитальным и спиновым квантовым числом 1 в окрестности фактора заполнения 3/2. Обнаружено, что при v=3/2 наблюдается гигантское уменьшение скорости релаксации возбуждений в основное состояние, несмотря на то, что количество свободных мест в основном состоянии, подходящих для релаксации возбуждений, макроскопически велико. Показано, что нейтральные возбуждения с орбитальным и спиновым квантовым числом 1 в состоянии 3/2 являются примером топологически защищенного возбуждения с различными спиновыми упорядочениями в основном и возбужденных состояниях, а само состояние 3/2 является примером локально несжимаемого дробного состояния квантового эффекта Холла, которое не является ни лафлинской жидкостью, ни целочисленным состоянием композитных фермионов.

#### **DOI:** 10.31857/S0367676521020174

# **ВВЕДЕНИЕ**

В течение последних нескольких лет авторами работы развивались оригинальные оптические методы создания спиновых возбуждений в двумерной электронной системе (2D-ЭC) и мониторинга их релаксации в основное состояние [1]. Из информации о том, как релаксируют спиновые возбуждения, можно сделать заключения о том, как локально устроена спиновая плотность в основном состоянии [2]. В представленной работе обсуждаются эксперименты по релаксации спиновых возбуждений в окрестности фактора заполнений 3/2. Одним из наиболее интересных результатов является доказательство того, что фактор заполнения 3/2 является особой точкой для основного состояния двумерной электронной системы в GaAs/AlGaAs гетероструктурах, в окрестности которой ее спиновые свойства меняются кардинально. Таким образом, нарушается фундаментальная электрон-дырочная симметрия, что существенно ограничивает класс возможных волновых функций, описывающих дробное состояние 3/2, и, по-видимому, закрывает вопрос о возможности использования этого дробного состояния для построения топологического квантового компьютера. Кроме того, данный факт находится в противоречии с картиной, подтверждаемой прямыми измерениями средней по образцу спиновой поляризации (симметричной по обе стороны от фактора заполнения 3/2), в которой 3/2 является исходной точкой для иерархии уровней Ландау композитных фермионов [3]. Таким образом, дробное состояние 3/2 является уникальным физическим объектом, не аналогичным ни спинполяризованному состоянию 5/2, ни частично поляризованному по спину состоянию композитных фермионов 1/2, для которого электрон-дырочная симметрия выполняется с точностью до подмешивания электронных состояний с вышележащих уровней Ландау.

## УСЛОВИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

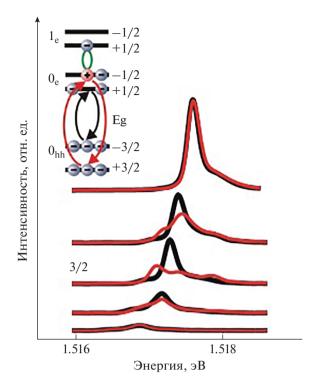
Эксперименты проводили на высококачественных гетероструктурах с симметрично легированными одиночными квантовыми ямами GaAs/AlGaAs с концентрацией электронов в двумерном канале от  $1.8 \cdot 10^{11}$  до  $2.6 \cdot 10^{11}$  см $^{-2}$  и подвижностью более  $(1.5-4.0) \cdot 10^7$  см $^2 \cdot B^{-1} \cdot c^{-1}$ . Симметричное легирование требовалось для минимизации проникновения электронной волновой функции в барьер квантовой ямы. Ширины квантовых ям составляли 30-40 нм. Поскольку имеется качественное совпадение экспериментальных результатов для различных гетероструктур, мы сосредоточимся на результатах, полученных для гетероструктур с шириной квантовой ямы 31 нм и концентрацией  $2 \cdot 10^{11}$  см $^{-2}$ . Рассмат-

риваемые образцы помещались в криостат с жидким  $^3$ He, который, в свою очередь, помещался в криостат со сверхпроводящим соленоидом. Оптические измерения проводились в диапазоне температур  $0.45-1.5~{\rm K}.$ 

В экспериментах использовали методику с двумя световодами [4]. Один световод служил для непрерывного резонансного и нерезонансного фотовозбуждения 2D-ЭС. Размер фотовозбужденного пятна составлял 1 мм<sup>2</sup>. Второй световод использовалось для сбора сигнала резонансного отражения и сигнала фотолюминесценции от пятна фотовозбуждения, а также для передачи регистрируемых сигналов на входную щель спектрометра, оснащенного ССО-камерой. Широкополосный лазерный диод (длина волны возбуждения 780 нм и спектральная ширина 10 нм) использовался в качестве оптического источника для формирования неравновесного ансамбля спиновых возбуждений и сигнала фотолюминесценции, тогда как резонансное отражение было получено с помощью перестраиваемого диодного лазера "TOptica" со спектральной полосой 20 кГц. Время релаксации возбуждений измерялось во временном диапазоне 1-1000 мкс путем модуляции накачки лазерного диода с помощью генератора импульсов. Плотность фотовозбуждения варьировалась в пределах  $1-100 \text{ мкВт/мм}^2$ , что не приводило к перегреву 2D-ЭС. Следует отметить, что резонансное отражение само по себе не связано с образованием возбуждений, однако сигналы резонансного отражения 2D-ЭС и фотолюминесценции спектрально перекрываются. Для измерения спектров фотолюминесценции резонансное возбуждение отключалось. Паразитное отражение от поверхностей гетероструктуры фильтровалось скрещенными линейными поляризаторами, помещенными между световодами и исследуемым образцом. Поскольку в магнитном поле поглощается и испускается только циркулярно поляризованное излучение, сигнал резонансного отражения от 2D-ЭС проходит через линейный поляризатор собирающего оптического волокна, в то время как сигнал паразитного нерезонансного отражения линейно поляризованного лазерного луча от поверхностей гетероструктуры подавляется.

#### РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

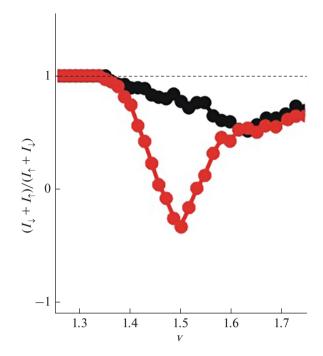
При коэффициентах заполнения ниже и выше 3/2 (1.3 и 1.7) сигналы отражения (*RR*) и фотоиндуцированного отражения (*PRR*) [4] совпадают (рис. 1). Это ожидаемый результат, так как 2D-ЭС имеет только частичную спин-поляризацию [3], и существует макроскопическое количество свободных мест для релаксации возбужденного электрона на нулевой уровень Ландау без переворота спина и с испусканием фотона с циклотронной энергией. В этом случае 2D-ЭС переходит в воз-



**Рис. 1.** Спектры резонансного отражения (*RR*) (черные линии) и фотоиндуцированного резонансного отражения (*PRR*) (красные линии) при различных факторах заполнения 2D-ЭС в окрестности v = 3/2, измеренные с мощностью фотовозбуждения 100 мкВт/мм<sup>2</sup>. Примеры процессов *RR* и *PRR* показаны на диаграмме.

бужденное спиновое состояние, из которого он так же легко релаксирует в основное состояние с испусканием фотона электронного спинового резонанса. Эти релаксационные процессы лежат в наносекундном временном диапазоне [5], поэтому невозможно накопить какое-либо значительное количество возбуждений с такими короткими временами жизни и плотностью фотовозбуждения, используемой в эксперименте.

С уменьшением фактора заполнения 2D-ЭС количество незанятых мест на нулевом уровне Ландау увеличивается и соответственно возрастают сигналы RR и PRR. Однако принципиальный интерес представляет не абсолютная величина сигнала отражения, а распределение свободных узлов между двумя спиновыми состояниями на нулевом уровне Ландау:  $\alpha = (I_{\downarrow} - I_{\uparrow})/(I_{\downarrow} + I_{\uparrow})$  (рис. 2). Соотношение пустых мест на верхнем и нижнем спиновых подуровнях Ландау монотонно убывает от коэффициента заполнения 1.6 до коэффициента заполнения 1. При факторе заполнения 1 нижний спиновый подуровень Ландау почти полностью заполнен, а верхний спиновый подуровень Ландау практически пуст (холловский ферромагнетик). Следовательно, наблюдаемая картина отражения КР распределения пустых



**Рис. 2.** Величина  $\alpha = (I_{\downarrow} - I_{\uparrow})/(I_{\downarrow} + I_{\uparrow})$ , измеряемая по интегральной интенсивности резонансного отражения (*RR*) (черные точки) и фотоиндуцированного резонансного отражения (*PRR*) (красные точки), как функция фактора заполнения.

мест между двумя спин-подуровнями является естественной.

Неожиданным является то, что сигнал *PRR* при нерезонансном возбуждении не равен нулю в окрестности фактора заполнения 3/2 (рис. 2). Измеренное время жизни неравновесных спиновых возбуждений достигает значений более 10 мкс, что лишь на порядок меньше времени жизни аналогичных возбуждений в холловском диэлектрике при коэффициенте заполнения 2. Следует иметь в виду, что при коэффициенте заполнения 2 электронная система находится в несжимаемом целочисленном квантовом состоянии Холла с большой запрещенной зоной на уровне Ферми, в то время как состояние 3/2 является холловским проводником без запрещенной зоны. Даже в несжимаемом состоянии холловского ферромагнетика при v = 1 релаксация возбуждений с орбитальным и спиновым квантовым числом 1 происходит намного быстрее, чем при факторе заполнения 3/2. Это происходит, несмотря на то, что количество пустых мест на нижнем спиновом подуровне в холловском ферромагнетике намного меньше, чем в состоянии 3/2.

Знание зависимостей плотности неравновесных возбуждений от плотности фотовозбуждения и времени релаксации возбуждений, полученных из исследований холловского диэлектрика v=2 [6, 7], позволяет оценить неравновесную плот-

ность возбуждений с орбитальным и спиновым квантовым числом 1 при факторе заполнения 3/2. При максимально допустимой плотности фотовозбуждения, не вызывающей перегрева электронной системы, 100 мкВт/мм<sup>2</sup>, это значение составляет менее 1 процента от общего количества квантов магнитного потока на одном уровне Ландау. Из рис. 2 грубая оценка переворотов спина в основном состоянии 2D-ЭC составляет около 25 на каждый возбужденный электрон; т.е. формирование одного спинового возбуждения с орбитальным и спиновым квантовым числом 1 сопровождается перестройкой десятков спинов в основном состоянии. Соответственно, релаксация в основное состояние также сопровождается десятками переворотов спина и перестройкой спиновой текстуры. Несмотря на металлическую проводимость 2D-ЭС при v = 3/2, можно утверждать, что электроны в основном состоянии объединены в спиновые текстуры. Спиновые упорядочения в основном и возбужденном состояниях топологически несовместимы. Как следствие, вблизи фотовозбужденного электрона возникает физическое явление, подобное несжимаемости 2D-ЭС (локальная несжимаемость), что является причиной огромных экспериментальных времен релаксации возбужденных электронов.

Наши эксперименты качественно подтверждают транспортные измерения латерально-ограниченного 2D- $\Theta$ С при v = 3/2 [8, 9]. Квантование холловской проводимости, обнаруженная Чжаном, Фу и соавторами, может происходить из-за локальной несжимаемости и соизмеримости параметров ограничивающего потенциала проводника с размером одной или нескольких спиновых текстур. Ток заряда при 3/2 осуществляется не отдельными электронами, а спиновыми текстурами. Когда размер сужения холловского проводника становится соизмеримым с размером спиновой текстуры, транспорт в объеме 2D-ЭС прекращается, и остается только транспорт по краевым каналам. Таким образом, дробное состояние 3/2 в пространственно ограниченной геометрии является примером локально несжимаемого дробного состояния, которое не является ни лафлинской жидкостью, ни целочисленным состоянием композитных фермионов.

# ЗАКЛЮЧЕНИЕ

С помощью оптических методов исследованы возбужденные состояния с орбитальным и спиновым квантовым числом 1 вблизи дробного состояния квантового эффекта Холла при v=3/2. Обнаружено сильное уменьшение скорости релаксации возбуждений. Показано, что при изменении спинового числа электронной системы на единицу и пространственном перераспределении электронной плотности за счет изменения орби-

тального квантового числа возбужденного электрона спиновое квантовое число основного состояния изменяется на несколько десятков. Это означает, что электроны объединены в спиновые текстуры, причем спиновые конфигурации текстур различны в возбужденном и основном состояниях.

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Kulik L.V., Gorbunov A.V., Zhuravlev A.S. et al. // Sci. Rep. 2015. V. 5. Art. No 10354.
- Kulik L.V., Kuznetsov V.A., Zhuravlev A.S. et al. // Sci. Rep. 2018. V. 8. Art. No 10948.
- Tiemann L., Gamez G., Kumada N., Muraki K. // Science. 2012. V. 335. P. 828.

- 4. Кулик Л.В., Горбунов А.В., Дикман С.М., Тимофеев В.Б. // УФН. 2019. Т. 189. № 9. С. 955; Kulik L.V., Gorbunov A.V., Dickmann S.M., Timofeev V.B. // Phys. Usp. 2019. V. 62. P. 869.
- Журавлев А.С., Кулик Л.В., Кузнецов В.А. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2018. Т. 108. С. 440.
- Kulik L.V., Zhuravlev A.S., Dickmann S. et al. // Nat. Commun. 2016. V. 7. Art. No 13499.
- 7. Kulik L.V., Gorbunov A.V., Zhuravlev A.S. et al. // Sci. Rep. 2015. V. 5. Art. No 10354.
- 8. *Zhang Y.* The physicochemical properties of secondary organic materials. PhD thesis. Cambridge: Harvard University, 2009. P. 125.
- 9. Fu H., Wu Y., Zhang R. // Nat. Commun. 2019. V. 10. P. 4351.

# Locally incompressible form of the fractional quantum Hall effect at v = 3/2

L. V. Kulik<sup>a, \*</sup>, A. S. Zhuravlev<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia \*e-mail: kulik@issp.ac.ru

We studied neutral excitations in a two-dimensional electron gas with an orbital momentum 1 and spin projection over the magnetic field axis 1 in the vicinity of a filling factor of 3/2. It is shown that in the vicinity of 3/2, a significant increase in the relaxation time ( $\tau=13\,\mu s$ ) for the excitations to the ground state is exhibited even though the number of vacancies in the lowest energy level is macroscopically large. The decrease in the relaxation rate is related to the spin texture transformation in the ground state induced by spin flips and electron density rearrangement. Based on the experimental data we believe that the 3/2 state is an example of a locally incompressible fractional quantum Hall state.

УЛК 535.2

# КУЛОНОВСКИЕ КОРРЕЛЯЦИИ КАК ПЕРВОПРИЧИНА ФЕРРОМАГНИТНОГО ПЕРЕХОДА В РЕЖИМЕ КВАНТОВОГО ЭФФЕКТА ХОЛЛА С ФАКТОРОМ ЗАПОЛНЕНИЯ 2

© 2021 г. А. Б. Ваньков<sup>1, \*</sup>, И. В. Кукушкин<sup>1</sup>

 $^{1}$ Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики твердого тела Российской академии наук, Черноголовка, Россия

\*E-mail: vankov@issp.ac.ru

Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Исследована взаимосвязь спектра низкоэнергетических коллективных возбуждений в двумерных ферми-жидкостях и фазового перехода парамагнетик—ферромагнетик в режиме квантового эффекта Холла с фактором заполнения v=2. Экспериментально и теоретически показано, что смягчение энергии коллективных спин-флип возбуждений сопутствует спонтанному переключению спиновой конфигурации системы из парамагнитной в ферромагнитную.

# **DOI:** 10.31857/S0367676521020290

# **ВВЕДЕНИЕ**

Интерес к исследованию двумерных электронных систем в квантующем магнитном поле не снижается уже несколько десятилетий после открытия целочисленного и дробного квантового эффекта Холла (КЭХ). Эти необычные явления обязаны своим существованием специфической топологии двумерных систем в сочетании с высокой степенью чистоты, достигаемой в современных гетероструктурах. Благодаря этому последовательности состояний КЭХ были обнаружены во множестве различных полупроводниковых материалов. Ключевые проявления КЭХ, такие как плато в магнитосопротивлении  $\rho_{xy}$  и одновременно с ними минимумы сопротивления  $\rho_{xx}$ , являются универсальными и общими для всех квантово-холловских систем. Общепризнано, что для описания явления целочисленного КЭХ пригодна одночастичная модель, в которой энергетическая щель образуется при заполнении электронами целого числа уровней Ландау. Однако одночастичные модели разрабатывались и апробировались на электронных системах с достаточно слабым кулоновским взаимодействием. Этот критерий можно выразить через безразмерный параметр Вигнера—Зейтса  $r_s \ll 1$ . Тем интереснее оказалось наблюдать и исследовать аспекты КЭХ на двумерных системах нового типа, где это условие заведомо не выполняется. В структурах MgZnO/ZnO двумерная электронная система состоит из сравнительно тяжелых, сильно взаимодействующих фермионов, так что параметр  $r_s$  достигает значений 5—15 для практически реализуемых гетероструктур с высокой электронной подвижностью [1]. Квантовый эффект Холла наблюдается все равно, несмотря на несостоятельность существующих моделей теоретического описания. Одночастичный механизм уже неактуален, поскольку электрон-электронное взаимодействие приводит к эффекту смешивания уровней Ландау, перераспределению частиц по нескольким уровням, в результате чего энергетические щели в состояниях КЭХ могут изменяться, либо вообще пропадать. Закрытие щелей состояний целочисленного КЭХ проявлялось прежде в магнитотранспортных экспериментах в полупроводниковых системах GaAs, Si/SiGe, AlAs и некоторых других как исчезновение минимумов сопротивления  $\rho_{xx}$  при наклонных ориентациях магнитного поля [2-5]. Однако если в материалах с относительно слабым кулоновским взаимодействием этот эффект был связан с пересечением одночастичных спиновых подуровней Ландау при соответствии угла наклона магнитного поля

условию 
$$\frac{E_z}{\hbar\omega_c}=\frac{g^*m^*}{\cos\Theta}=j$$
 ( $j$  — целое число), то в

ZnO в некотором диапазоне электронных концентраций это происходило даже без привлечения геометрического фактора [6]. Внешние симптомы происходящих изменений в состояниях целочисленного  $K\ni X$  при  $v\ge 2$  были охарактеризованы как

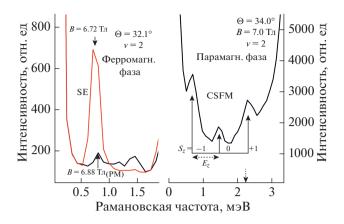
фазовый переход между Изинговыми холловскими ферромагнетиками со скачкообразным изменением спиновой поляризации ДЭС. При этом параметры спинового и циклотронного расщепления уровней Ландау в ZnO оказываются многократно перенормированными относительно зонных параметров этих материалов. Механизм этой ферми-жидкостной перенормировки параметров системы неизвестен, также как неизвестен масштаб энергетических щелей, определяющих устойчивость данных состояний. В этом контексте исключительно информативны магнитооптические исследования двумерных электронных систем, которые позволяют одновременно зондировать как структуру основного состояния, так и энергетический спектр возбужденных состояний посредством неупругого рассеяния света (НРС).

В настоящей работе проведены исследования серии гетероструктур MgZnO/ZnO с двумерными электронными системами различной концентрации. Методом неупругого рассеяния света исследовано поведение низкоэнергетических спинфлип возбуждений в обеих фазах состояния КЭХ v = 2 в зависимости от электронной концентрации, угла наклона магнитного поля. Приведены и описаны спектральные признаки ферромагнитной и парамагнитной фаз, воспроизведена фазовая диаграмма ферромагнитного перехода при v = 2. Экспериментально исследовано поведение энергетической щели циклотронных спин-флип магнитоэкситонов, отвечающих за устойчивость парамагнитной фазы. При уменьшении электронной концентрации эта щель обнаруживает тенденцию к смягчению. Этот факт согласуется с расчетами спектра коллективных возбуждений в парамагнитной фазе, который выполнен с помощью процедуры точной диагонализации гамильтониана для конечного числа электронов. Таким образом, объясняется неустойчивость парамагнитной фазы к лавинообразному спин-флип переходу.

# ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ТЕХНИКА И ОБРАЗЦЫ

Для исследований были использованы структуры с одиночным гетеропереходом MgZnO/ZnO, выращенные методом молекулярно пучковой эпитаксии. Концентрации двумерных электронных систем ДЭС  $n_s$  находились в диапазоне от  $1.14 \cdot 10^{11}$  до  $4.5 \cdot 10^{11}$  см<sup>-2</sup>, а электронные подвижности на всех образцах кроме одного превышали  $4 \cdot 10^5$  см<sup>2</sup>/В · с.

Оптические измерения проводились при температуре 0.35 K в криостате откачки паров <sup>3</sup>He. Образцы были установлены на вращательной подвижке для плавного изменения их ориентации



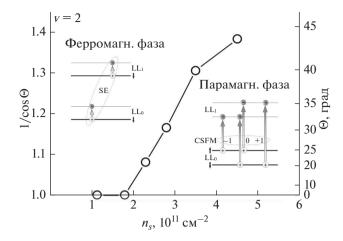
**Рис. 1.** Характерные спектры HPC на спиновых возбуждениях ферромагнитной (a) и парамагнитной ( $\delta$ ) фаз KЭX v=2.

по отношению к магнитному полю. Приложенное магнитное поле перестраивалось в диапазоне от 0 до 15 Тл для достижения фактора заполнения v=2 в каждом из образцов. Оптический доступ к образцам осуществлялся посредством двух кварцевых световодов, а для фотовозбуждения использовался перестраиваемый лазерный источник в диапазоне длин волн от 365 до 368 нм вблизи прямых межзонных оптических переходов ZnO. Детально оптическая схема и методика измерения спектров двумерной фотолюминесценции и неупругого рассеяния света в гетероструктурах MgZnO/ZnO рассмотрены в [7].

# РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Методическим инструментом исследования спиновой конфигурации холловских ферромагнетиков здесь служило неупругое рассение на внутриподзонных спин-флип возбуждениях.

В поляризованном по спину (ферромагнитном) состоянии v = 2 нижайшим по энергии коллективным возбуждением является спиновой экситон (SE) — волна из одиночных спин-флип переходов в пределах одного уровня Ландау (см. диаграмму переходов слева на рис. 2). Его энергия определена зеемановским расщеплением уровней, оно не имеет существенных каналов распада и потому имеет исключительно малую спектральную ширину. Наконец, его спектральная интенсивность пропорциональна степени спиновой поляризации [8] и потому может использоваться в качестве индикатора ферромагнитной фазы при фазовых переходах. На рис. 1а изображены спектры SE для одного из образцов в окрестности фактора заполнения v = 2 при ориентации магнитного поля, соответствующей условию ферро-



**Рис. 2.** Фазовая диаграмма состояния n=2 в координатах "электронная концентрация/угол наклона магнитного поля". Приведены диаграммы спин-флип магнитоэкситонов в ферромагнитном и парамагнитном состояниях.

магнитной неустойчивости. Диапазон магнитных полей, в котором происходит фазовый переход, весьма узок и составляет <0.15 Тл. Показанные на рис. 1а спектры записаны непосредственно за границами переходного диапазона и отвечают предельным фазовым состояниям с различной спиновой конфигурацией. Из сравнения спектров видно, что интенсивность спинового экситона меняется более чем на порядок для случая v = 2 ввиду контрастного перехода ДЭС из неполяризованной по спину парамагнитной (РМ) конфигурации в ферромагнитную (FM). Совершенно иную структуру имеют коллективные возбуждения в парамагнитной фазе v = 2. Там одинаково заполнены состояния электронов на уровнях Ландау с противоположными проекциями спина. Все нижайшие по энергии магнитоэкситоны связаны со спинфлип переходами электронов на следующий уровень Ландау. Такие возбуждения имеют три спиновых компоненты (см. диаграмму переходов справа на рис. 2) и называются циклотронными спин-флип магнитоэкситонами (CSFM). Спиновая симметрия основного состояния гарантирует невозмущенный вклад от Зеемановской энергии в расщепление CSFM. Этот симметрийный аргумент является ключевым для идентификации спектральных линий неупругого рассеяния света, соответствующих данному коллективному возбуждению. На рис. 16 показан спектр неупругого рассеяния на трех компонентах возбуждения CSFM. Расщепление компонент соответствует Зеемановской энергии с эффективным фактором  $g^* = 1.98 \pm 0.03$  для зоны проводимости ZnO.

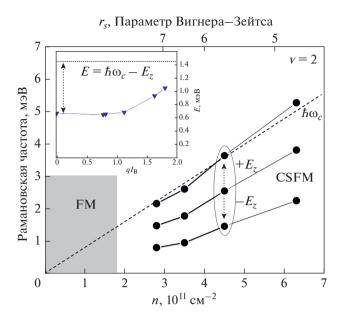
Аналогичным образом были подобраны экспериментальные условия для наблюдения спектральных признаков обеих фаз FM и PM вблизи v = 2 в других образцах с концентрациями в диапазоне  $1.14 \cdot 10^{11}$  до  $4.5 \cdot 10^{11}$  см $^{-2}$ . В каждом из них был определен критический угол наклона магнитного поля. Полученная зависимость угла от концентрации ДЭС  $n_s$  построена на рис. 2. Из данных можно сделать вывод, что критический угол для ферромагнитной неустойчивости есть функция концентрации, причем при уменьшении концентрации (соответственно, увеличении безразмерного параметра взаимодействия Вигнера—Зейтса  $r_s$ ) величина угла уменьшается. При концентрациях же ниже  $1.8 \cdot 10^{11} \, \text{см}^{-2}$  уже не требуется наклонять магнитное поле для достижения ферромагнитного перехода - корреляции в электронной системе приводят к перестройке спиновой конфигурации без искусственного увеличения параметра Зеемановского расщепления. Полученная критическая точка по концентрации согласуется с данными из магнитотранспортных исследований [6]. Чисто эмпирически можно трактовать возникновение ферромагнитной неустойчивости в терминах пересечения спиновых уровней Ландау, но только с перенормированными параметрами спинового и орбитального расщеплений (см. вставку к рис. 1).

Помимо признаков спиновой конфигурации, оказалось возможным прозондировать энергетическую щель, характеризующую устойчивость парамагнитного состояния v=2. Для этого потребовалось проследить структуру энергии нижайшей спиновой компоненты CSFM и выяснить обстоятельства ее обнуления. В энергии этого возбуждения помимо одночастичных вкладов есть значительный корреляционный вклад, понижающий его энергию

$$E_{CSFM}(k) = \hbar \omega_c + E_z \delta S_z - \Delta E_{corr}(k). \tag{1}$$

Существенно, что триплет CSFM оказывается сдвинут как единое целое ниже циклотронной энергии. Отрицательный корреляционный сдвиг составляет значительную долю величины  $\hbar\omega_c$  в зоне проводимости. Энергия нижайшей спиновой компоненты триплета CSFM уменьшена еще и на величину Зеемановского вклада.

Наиболее значимым наблюдением является зависимость энергии возбуждения CSFM ( $S_z = -1$ ) при изменении концентрации электронов  $n_s$  при условии нормальной ориентации магнитного поля (рис. 3). Видно, что она имеет тенденцию к смягчению. Ввиду экспериментального ограничения по минимальному детектируемому Рамановскому сдвигу, оказалось невозможно точно дойти до концентрации, соответствующей ферро-

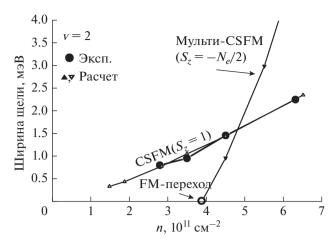


**Рис. 3.** Зависимость энергии возбуждений CSFM в парамагнитной фазе v=2 как функция электронной концентрации. Затененная область  $n_s < 1.8 \cdot 10^{11} \ {\rm cm}^{-2}$  соответствует ферромагнитной фазе.

магнитному переходу. Однако из наклона графика рис. 36 можно оценить ее как  $(1-2) \cdot 10^{11}$  см $^{-2}$ . Качественно понятно, что смягчение возбуждения CSFM должно приводить к самопроизвольному переключению спиновой конфигурации основного состояния за счет заполнения нижней спиновой компоненты первого уровня Ландау. Возможным реализациям этого механизма и теоретическим оценкам критических параметров системы посвящено дальнейшее обсуждение.

# РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

Отрицательный корреляционный сдвиг спинтриплетных возбуждений наблюдался и ранее [9] в двумерных системах на основе GaAs с относительно слабым кулоновским взаимодействием  $r_{s} < 1$ , но величина сдвига была существенно меньше циклотронной энергии и не зависела от концентрации. Для материальных параметров GaAs-гетероструктур это поведение кулоновского вклада было учтено в рамках теории возмущений второго порядка по параметру  $r_s$ , а величина корреляционной энергии составила долю величины эффективного Ридберга. Аналогичный подход к расчету кулоновских поправок в исследуемых ДЭС на основе ZnO не оправдан ввиду больших значений параметра  $r_s \gg 1$ . В результате, оценки корреляционной энергии по теории возмущений



**Рис. 4.** Зависимость энергетической щели парамагнитного состояния v=2 от концентрации  $n_s$ . Показаны значения энергии CSFM, взятые из эксперимента. Также показаны расчетные энергии CSFM в ротонном минимуме дисперсии и также энергия мульти-CSFM-комплексов.

расходятся с экспериментом. В этих обстоятельствах более уместно вычислять корреляционные энергии посредством точной диагонализации гамильтониана системы с малым числом электронов.

Расчет проводился для  $N_e = 20$  электронов для концентраций, соответствующих эксперименту. Для вычисления нижайших по энергии возбуждений CSFM использовался базис актуальных состояний на трех уровнях Ландау. Использовались одночастичные параметры циклотнонной и Зеемановской щелей. Фильтруя возбужденные состояния системы по спиновому квантовому числу, была рассчитана дисперсия CSFM ( $S_z = -1$ ) в диапазоне безразмерных импульсов  $q\ell_{B} \sim 0-2$ . Пример расчетной дисперсионной зависимости приведен на вставке к рис. 3. Ключевой момент состоит в том, что помимо отрицательного энергетического сдвига при  $q\ell_B=0$ , вырисовывается ротонный минимум при  $q\ell_B \sim 1$ , дополнительно понижающий энергию возбуждения. Возбужденные состояния в ротонном минимуме не детектируются методом неупругого рассеяния по причине малости передаваемого импульса, однако при уменьшении концентрации  $n_s$  формально именно они первыми достигают нулевой энергии и предопределяют ферромагнитную неустойчивость. На графике рис. 4 пустые треугольные символы маркируют зависимость расчетной энергии CSFM  $(S_z = -1)$  в ротонном минимуме, а крупными круглыми стволами - экспериментальные значения энергии CSFM. Из графика видно, что эти

возбуждения могут достичь нулевой отметки энергии приблизительно при  $n_s \sim 5 \cdot 10^{10}$  см<sup>-2</sup>.

Вырисовывающийся механизм ферромагнитной неустойчивости через смягчение CSFM в ротонном минимуме, тем не менее, оказывается не самым выгодным - учет многоэкситонных вкладов способен дополнительно понизить энергию возбужденного состояния. Дело в том, что определенные комбинации таких магнитоэкситонов могут взаимодействовать аттрактивно, т.е. имеют отрицательную добавку к суммарной энергии комплексов [10]. Расчетная дисперсия CSFM в диапазоне  $q\ell_R \sim 0$ —1 весьма пологая, и поэтому плотность состояний таких магнитоэкситонов велика, что способствует созданию многоэкситонных комплексов. По этой причине были также проведены расчеты спектра возбужденных состояний с многократными спин-флип переходами. В разных диапазонах электронной концентрации  $n_{\rm s}$ нижайшее по энергии состояние может быть для разного количества перевернутых спинов, поскольку всегда имеет место конкуренция между положительными циклотронными и отрицательными корреляционными вкладами. Однако при подходе к точке неустойчивости со стороны парамагнитной фазы, самой энергетически выгодной стала мультиэкситонная комбинация, вовлекающая сразу весь коллектив электронов (показано закрашенными треугольными символами на рис. 4). Следовательно, ферромагнитная неустойчивость происходит в результате конкуренции между энергией парамагнитного состояния и когерентного состояния с рождением мульти-CSFM возбуждений. Расчетные значения для критической концентрации несколько превышают экспериментальные данные, что не изменяет ответа по существу, а лишь является проявлением погрешности счета в дискретных моделях.

# ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В заключение, используя неупругое рассеяние света на структурах MgZnO/ZnO, содержащих двумерные электронные системы, мы исследовали и построили фазовую диаграмму состояния КЭХ при v=2, в которой реализуются режимы с ферромагнитным, либо парамагнитным упорядочением. Установлено, что ферромагнитная фаза может возникать как в наклонном магнитном поле, за счет увеличения одночастичной Зеемановской энергии, так и за счет чистой конкуренции многочастичных энергетических вкладов в ферромагнитном и парамагнитном состояниях. При концентрациях  $n_s < 1.8 \cdot 10^{11}$  см $^{-2}$  основное состояние КЭХ с v=2 уже всегда ферромагнитное.

Был исследован механизм ферромагнитной неустойчивости посредством смягчения нижайших по энергии циклотронных спин-флип магнитоэкситонов. Экспериментально установлено, что энергия нижайшей спиновой компоненты CSFM значительно ниже циклотронной энергии за счет отрицательного корреляционного вклада. При уменьшении параметра электронной концентрации энергия этого возбуждения стремится к нулю. Однако из эксперимента также следует, что в точке ферромагнитной неустойчивости одиночные CSFM еще имеют ненулевую энергию. В результате численного моделирования методом точной диагонализации установлено, что энергетическая щель состояния  $K \ni X v = 2$  закрывается в результате смягчения не одиночного CSFM, а мульти-CSFM комплексов. В результате такого когерентного сочетания коллективных возбуждений происходит лавинообразный переворот спина в системе и резкий ферромагнитный переход.

Таким образом, в терминах многоэкситонных корреляций качественно объясняется ранее обнаруженная ферромагнитная неустойчивость при v=2 в сильновзаимодействующих двумерных электронных системах на основе ZnO.

Работа выполнена в рамках темы государственного задания ИФТТ РАН.

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Falson J., Kozuka Y., Smet J.H. et al. // Appl. Phys. Lett. 2015. V. 107. Art. No 082102.
- Maryenko D., Falson J., Kozuka Y. et al. // Phys. Rev. B. 2014. V. 90. Art. No 245303.
- 3. *De Poortere T.P., Tutuc E., Shayegan M. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2003. V. 91. Art. No 216802.
- 4. *Jaroszy'nski J., Andrearczyk T., Karczewski G. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2002. V. 89. Art. No 266802.
- Chokomakoua J.C., Goel N., Chung S.J. et al. // Phys. Rev. B. 2004. V. 69. Art. No 235315.
- Falson J., Maryenko D., Friess B. et al. // Nat. Phys. 2015. V. 11. P. 347.
- 7. Van'kov A.B., Kaysin B.D., Kirpichev V.E. et al. // Phys. Rev. B. 2016. V. 94. Art. No 155204.
- 8. *Ваньков А.Б.*, *Кайсин Б.Д.*, *Кукушкин И.В.* // Письма в ЖЭТФ. 2019. Т. 110. № 4. С. 268.
- Kulik L.V., Kukushkin L.V., Dickmann S. et al. // Phys. Rev. B. 2005. V. 72. Art. No 073304.
- Dickmann S., Kulik L.V., Kuznetsov V.A. // Phys. Rev. B. 2019. V. 100. Art. No 155304.

# Coulomb correlations as a root for ferromagnetic transition in a quantum Hall state with filling factor 2

A. B. Vankov<sup>a, \*</sup>, I. V. Kukushkin<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia \*e-mail: vankov@issp.ac.ru

The relationship between the spectrum of low-energy collective excitations in two-dimensional Fermi liquids and the paramagnet—ferromagnet phase transition in the regime of the quantum Hall effect with a filling factor v=2 is investigated. It has been shown experimentally and theoretically that the softening of the energy of collective spin-flip excitations accompanies the spontaneous switching of the spin configuration of the system from paramagnetic to ferromagnetic.

УЛК 535.423

# ИЗГОТОВЛЕНИЕ МЕТОДОМ ТРЕХМЕРНОЙ ФЕМТОСЕКУНДНОЙ ЛАЗЕРНОЙ СУБМИКРОННОЙ ЛИТОГРАФИИ СПИРАЛЬНЫХ ФАЗОВЫХ ПЛАСТИНОК ДЛЯ ФОРМИРОВАНИЯ ПУЧКОВ ФОТОНОВ С ОРБИТАЛЬНЫМ УГЛОВЫМ МОМЕНТОМ

© 2021 г. А. А. Деменев<sup>1, \*</sup>, А. В. Ковальчук<sup>2</sup>, Е. А. Полушкин<sup>2</sup>, С. Ю. Шаповал<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики твердого тела Российской академии наук, Черноголовка, Россия <sup>2</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов Российской академии наук, Черноголовка, Россия

\*E-mail: demenev@issp.ac.ru Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Методом трехмерной фемтосекундной лазерной субмикронной литографии изготовлена спиральная фазовая пластинка с топологическим зарядом, равным 1. Для проверки вихревых свойств сформированного лазерного пучка разработана и собрана оптическая схема на базе интерферометра Майкельсона. Оптические измерения подтвердили, что спиральная фазовая пластинка создает оптический лазерный вихрь с нормированным орбитальным угловым моментом |m|=1. Отработан метод изготовления и тестирования спиральных фазовых пластинок, передающих лазерному полю необходимую величину орбитального углового момента.

**DOI:** 10.31857/S0367676521020083

# **ВВЕДЕНИЕ**

Неравновесные фазовые переходы встречаются в широком классе многочастичных систем в физике конденсированного состояния, но, при этом, демонстрируют интригующую универсальность в теоретическом описании и, поэтому в настоящее время интенсивно изучаются. Физика неравновесных переходов оказывается существенно более богатой, чем в случае равновесных систем, в частности, динамический переход от неупорядоченной фазы к фазе с параметром порядка сопровождается образованием в системе различных топологических дефектов, таких как, например, квантовые вихри, полувихри или пары вихрей [1-3]. Данные дефекты характеризуются изменением фазы конденсатной волновой функции  $(B\Phi)$  по замкнутому контуру вокруг топологической особенности кратным 2π, т.е. обладают квантованной проекцией орбитального углового момента (ОУМ), равной  $m \cdot \hbar$ , где  $m \in \mathbb{Z}$ . Образование и размножение подобных дефектов играет важнейшую роль в формировании когерентного макрозаполненного конденсатного состояния. Как было показано, например, в работах [4, 5], в физическую систему можно внести орбитальный

угловой момент через взаимодействие с лазерным полем, обладающим нужным значением проекции ОУМ. В связи с этим надо отметить перспективное направление применения состояний фотонного поля с ОУМ — микроманепулирование [6—8]. Данное направление подразумевает оптический захват и управление объектами микронного размера с помощью света с ОУМ без теплового контакта. Таким образом, создание лазерного поля с требуемыми параметрами орбитального момента и пространственного распределения является важной задачей при исследовании динамики многочастичных систем.

На текущий момент генерация и исследование электромагнитных (ЭМ) полей с ОУМ представляет собой обширный и быстроразвивающийся раздел квантовой оптики, включающий и относительно новое направление — нанофотонику [9—12]. ВФ состояний электромагнитного поля, включающих квантовое число *m*, образуют ортогональный базис, поэтому величину проекции ОУМ фотона (наряду с поляризацией, временной формой лазерных импульсов и т.д.) можно использовать как канал передачи информации в технологиях коммуникации будущего.

Для кодирования и передачи информации могут потребоваться лазерные поля с большими значениями *m*. Одной из ключевых задач нанофотоники является создание компактных структур на основе микролазеров, излучающих световое поле с заданным ОУМ с возможностью их интеграции в логические схемы.

В работе [13] впервые было показано, что можно создать лазерное поле, обладающее ненулевой проекцией ОУМ на направление распространения (ось Z), а также был предложен метод его генерации. В дальнейшем, пучки фотонов с ненулевой проекцией ОУМ будем называть закрученными или вихревыми, по аналогии с терминами из работы [14]. В настоящее время экспериментально проверено, что для большинства случаев генерации закрученных лазерных пучков можно пользоваться параксиальным приближением, когда Z-проекция полного момента импульса фотона в лазерном пучке складывается из проекций спинового момента и ОУМ и равна (в единицах  $\hbar$ )  $J_Z = L_Z + S_Z$ , где  $L_Z = m \in \mathbb{Z}$ ,  $S_Z = \pm 1$ . Следовательно, компоненты проекции полного момента можно независимо и контролируемо менять с помощью линейных оптических элементов. Также поскольку для параксиального поля ОУМ полностью определяется своей проекцией на ось Z(остальные проекции равны нулю), в дальнейшем будем говорить об ОУМ на фотон лазерного пучка при этом имея ввиду инвариант распространения ЭМ поля — нормированную (на мощность лазерного пучка) проекцию  $L_Z$ .

Существует несколько методов создания вихревого пучка фотонов для оптического диапазона: голографический метод, использование спиральных фазовых пластинок, систем цилиндрических линз, *q*-пластинок и пространственных модуляторов света [14-22]. Наиболее популярными являются голографический метод и использование вихревых пластинок. В голографическом методе, с помощью компьютера моделируется и создается голограмма с "вилочковой" особенностью, например, порядка |m|. Тогда падающая ЭМ волна испытывает дифракцию на "вилочковой" голограмме с образованием трех пучков, распространяющихся в направлении порядков дифракции: 0 (фотоны с m = 0) и  $N = \pm |m|$  (2 пучка фотонов с  $|m_1 = +|m|$  и  $|m_2 = -|m|$ ). Преобразование плоского фронта в вихревой с использованием спиральной фазовой пластинки (СФП) происходит вследствие линейной зависимости ее оптической толщины  $L(\rho,\phi)=L(\phi)=L_{\phi}$  от полярного

угла  $\phi$ :  $\frac{2\pi(n-1)}{\lambda_0}\cdot L_\phi=|\eta|\phi$ , где n- показатель преломления материала пластинки,  $\eta-$  топологиче-

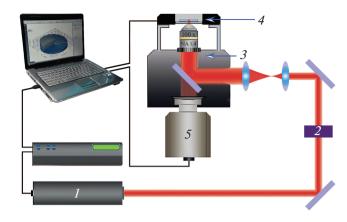
ский заряд (ТЗ) СФП, принимающий целочисленные значения (в дальнейшем подразумевается модуль ТЗ), а  $\lambda_0$  — длина волны в вакууме. При обходе по полному кругу разность фаз плоских волн меняется на  $2\pi\eta$ , и поверхность постоянной фазы ЭМ волны на выходе из пластинки будет иметь форму геликоида с пространственным периодом  $\eta\lambda_0$ . Спиральная фазовая пластинка формирует только один вихревой пучок фотонов, распространяющийся в направлении падающего пучка. Если ось СФП совмещена с направлением распространения и "центром масс" падающего Гауссового пучка, тогда нормированный ОУМ вихревого ЭМ поля будет равен топологическому заряду пластинки  $m = \eta$  [23].

Целью данной работы было создание с помощью метода 3D фемтосекундной лазерной субмикронной литографии (two-photon polymerization based 3D submicron printing technology, в дальнейшем будем называть 2PP-3D-SmP-метод) спиральной фазовой пластинки с единичным топологическим зарядом  $\eta = 1$ , формирующей оптический лазерный вихрь с ОУМ на фотон равным |m| = 1. Для получения лазерного поля с большими  $\tilde{m}$  в едином цикле 2PP-3D-SmP-методом изготавливается структура из  $N_{\rm SPP}$  последовательно расположенных СФП (ПСФП) с топологическим зарядом  $\eta_1$  для каждой, тогда  $\tilde{m} \cong N_{SPP} \eta_1$ . Обсуждаются перспективы изготовления ПСФП микронных размеров (~10 мкм) в диаметре для последующего согласования с полупроводниковым экситон-поляритонным микрорезонатором.

# АППАРАТНЫЕ И ПРОГРАММНЫЕ МЕТОДЫ ИЗГОТОВЛЕНИЯ СПИРАЛЬНОЙ ФАЗОВОЙ ПЛАСТИНКИ

Для изготовления СФП использовалась установка 3D лазерной литографии "Photonic Professional GT" фирмы "Nanoscribe". Схема установки представлена на рис. 1. Одним из основных элементов литографа является фемтосекундный лазер с длиной волны 780 нм. Луч лазера проходит через оптическую систему, в которой присутствует акусто-оптический модулятор (АОМ), позволяющий изменять мощность проходящего через него луча. Затем, луч фокусируется через иммерсионный объектив инвертированного микроскопа на создаваемый образец, который в свою очередь, закреплен на пьезоэлектрическом 3-х осевом манипуляторе.

Для работы на этом оборудовании используются позитивные и негативные фоторезисты, экспонирование которых осуществляется ультрафиолетовым светом. Такие фоторезисты инертны к свету длиной волны 780 нм. Следовательно, луч



**Рис. 1.** Схема установки 3D фемтосекундной лазерной субмикронной литографии "Photonic Professional GT": 1 — фемтосекундный лазер с длиной волны 780 нм; 2 — акусто-оптический модулятор; 3 — инвертированный микроскоп; 4 — пьезоэлектрический 3D манипулятор; 5 — ПЗС-камера.

фемтосекундного лазера может проходить через объем фоторезиста, не вызывая в нем процессов сшивки или деструкции, характерных для экспонирования. В месте фокусировки лазерного луча образуется область с высокой плотностью фотонов. В этой области возрастает вероятность протекания процесса двухфотонного поглощения [24], в результате которого происходит локальное экспонирование фоторезиста. Данную область принято называть - воксель (по аналогии с "пиксель" для двумерных объектов). Эта область имеет не сферическую форму, а форму вытянутого эллипсоида. Размеры этой области зависят от мощности лазерного излучения и составляют ≈0.1 мкм в диаметре и ≈1 мкм в высоте эллипсоида. Так как объект экспонирования закреплен на пьезоэлектрическом манипуляторе, то перемещая его в трех направлениях во время засветки лазером, можно формировать 3-х мерные структуры в объеме фоторезиста, прорисовывая их вокселем.

Экспонирование объема объекта производится управляющей программой. В большинстве применений используется послойное сканирование. Для минимизации рафности (сглаживания) поверхности объекта, экспонирование конечных слоев производится с заглублением вокселя в объем уже экспонированного фоторезиста. Таким образом, конечные слои экспонируются верхним сегментом вокселя. Минимальный размер объектов, которые можно создать на 3D микропринтере — тридцать нанометров. Главным преимуществом "Photonic Professional GT" является возможность реализации экспонирования фоторезиста на заданной глубине. Особо необходимо отметить, что при таком процессе полностью исключается экс-

понирование верхнего слоя фоторезиста, через который проходит пучок света.

Микропринтер оборудован системой распознавания интерфейса подложка—фоторезист, что позволяет компенсировать как погрешности поверхности подложки, так и погрешность ее наклона к горизонтальной плоскости. Перед началом процесса экспонирования производится сканирование и запоминание интерфейса по всей площади образца. Система распознавания интерфейса позволяет создавать структуры, основания которых параллельны поверхности подложки.

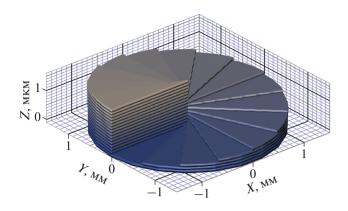
Рабочая область обеспечивается характеристиками пьезоэлектрического манипулятора и составляет ( $300 \times 300 \times 300$  мкм). Точность позиционирования  $\approx 5$  нм. Для создания структур с размерами, выходящими за рамки рабочей области пьезоэлектрического манипулятора, или для мультиплицирования микроструктур используется механический манипулятор, позволяющий работать на области ( $100 \times 100$  мм). Точность механического манипулятора составляет  $\approx 1.5$  мкм.

В данной работе мы применили 3D микропринтер "Photonic Professional GT" для изготовления СФП с единичным топологическим зарядом, рассчитанной на длину волны  $\lambda_0=800$  нм. Геометрические параметры СФП рассчитывается на заданную длину волны  $\lambda_0$  фазово-модулируемого лазера. Коэффициент преломления материала фазовой пластинки  $n(\lambda_0)$  находится из полуэмпирического уравнения Селлмейера:

$$n^2 - 1 = \frac{A\lambda_0^2}{\lambda_0^2 - B},\tag{1}$$

где A = 0.01364 и B = 1.2662 для полимеризованного фоторезиста марки "IP-Dip", производимого фирмой "Nanoscribe". После определения основных геометрических параметров СФП в программе "Система автоматизированного проектирования" (САПР) была создана ее 3-х мерная модель, представленная на рис. 2. Так как структура экспонируется послойно от подложки и толщина слоя определена, то реальная структура получается ступенчатой формы, как это представлено на рис. 2. Как было показано в работах [16, 25], эффективность конверсии с использованием СФП единичного заряда лазерного поля в состояние с |m| = 1 достигает  $\approx 78\%$  уже для 16 угловых секторов, дальнейшее увеличение количества секторов не приводит к существенному улучшению эффективности (до 79%). В качестве подложки использовалось кварцевое стекло диаметром 24 мм и толщиной 170 мкм.

В результате проделанной работы, мы получили СФП радиусом 1500 мкм. Пластина состоит из



**Рис. 2.** Трехмерная модель спиральной фазовой пластинки для изготовления на установке "Photonic Professional GT". "Ступени" обусловлены спецификой экспонирования — слой за слоем (для наглядности пропорции не сохранены).

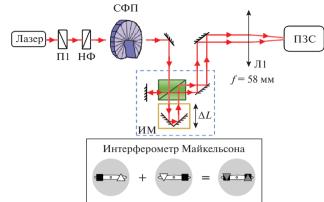
16 угловых секторов постоянной толщины  $\Delta = 103.7$  нм в направлении Z (рис. 2). Первый сектор — это основание общей подложки, которое принимается за ноль отсчета фазы световой волны. Толщину пластинки при обходе по кругу можно представить как  $L_i = (i-1) \cdot \Delta$ , где i — номер сектора. Общая (рабочая) толщина СФП составляет  $1555 \pm 15$  нм. Учитывая, что из (1) коэффициент преломления полимеризованного фоторезиста на длине волны  $\lambda_0 = 800$  нм равен 1.5145, находим сдвиг фазы, соответствующий обходу по углу  $\phi$  на  $2\pi$ :

$$\Delta \varphi = \frac{2\pi L_{16} \cdot [n(\lambda_0) - 1]}{\lambda_0} = 2\pi \cdot (1 \pm 0.01). \tag{2}$$

Таким образом, получившаяся СФП имеет топологический заряд, равный единице, и при правильной установке в оптическую систему [23] будет формировать оптический лазерный вихрь с ОУМ на фотон равным  $|m| \cong 1$ .

# РЕЗУЛЬТАТЫ ТЕСТИРОВАНИЯ СПИРАЛЬНОЙ ФАЗОВОЙ ПЛАСТИНКИ

Для тестирования изготовленной СФП была собрана оптическая схема, представленная на рис. 3. Фотонный пучок от пикосекундного лазера ( $\tau = 1.5$  пс) пропускался через комбинацию поляризатора (П1) и полуволновой пластинки приобретая линейную поляризацию. Далее в оптическую схему встраивались две линзы (не показаны на рис. 3) для вариации диаметра пучка, который подбирался таким образом, чтобы полностью заполнить активную площадь пластинки. Линейно-поляризованный пучок фотонов с  $\lambda_0 = 800$  нм пропускался через СФП и приобретал ОУМ на



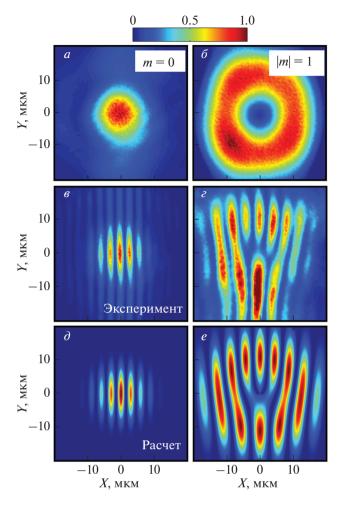
**Рис. 3.** Схема экспериментальной оптической установки для тестирования спиральной фазовой пластинки. Лазер — пикосекундный лазер ( $\tau = 1.5$  пс) с длиной волны 800 нм;  $\Pi 1$  — линейный поляризатор;  $H\Phi$  — градиентный фильтр;  $C\Phi\Pi$  — спиральная фазовая пластинка; ИM — пространственно-инвертирующий интерферометр Майкельсона;  $\Pi 1$  — фокусирующая на детектор линза;  $\Pi 3C$  —  $\Pi 3C$ -камера.

фотон, равный *m*, равный ее топологическому заряду [23, 26, 27]. Как было показано, например, в работе [28] распределение ЭМ поля после дифракции Гауссового пучка на СФП в дальней зоне (эксперимент проводился в данных условиях) имеет довольно сложное аналитическое выражение. Однако, с высокой точностью, его удается аппроксимировать модой Лагерра—Гаусса порядка (*m*, 0) [16, 22, 28]. Тогда формируемое фокусирующей линзой (Л1) в плоскости ПЗС-детектора пространственное распределение напряженности электрического поля можно записать как

$$E(\rho, \varphi) \simeq LG_0^m(\rho, \varphi) = \left(\frac{\sqrt{2}\rho}{w_0}\right)^{|m|} \times \exp\left(\frac{-\rho^2}{w_0^2}\right) \exp(-im\varphi) = E_0^m(\rho) \exp(-im\varphi),$$
(3)

здесь  $(\rho, \phi)$  — полярные координаты в плоскости детектора,  $w_0/\sqrt{2}$  — перетяжка лазерного пучка в плоскости детектора.

На рис. 4a и 46 представлены экспериментально полученные пространственные распределения интенсивности лазерного поля  $I = |E(\rho, \phi)|^2$  для m = 0 (без СФП) и при пропускании через спиральную пластинку, соответственно. Пространственное разрешение оптической схемы составляло  $\approx 1$  мкм. Как можно видеть из рис. 4a, без пластинки радиальное распределение интенсивности имеет гауссову форму с шириной на половине высоты  $\approx 10$  мкм. Внесение в лазерный пучок вихревой пластинки



**Рис. 4.** Экспериментально реализованные пространственные распределения интенсивности лазерного поля в плоскости матрицы детектора: без спиральной фазовой пластинки (a); со спиральной фазовой пластинкой, помещенной соосно с лазерным пучком ( $\delta$ ). Пространственные распределения интенсивности оптического поля, состоящего из двух интерферирующих когерентных лазерных пучков одинаковой интенсивности и радиуса, с противоположными нормированными ОУМ (m и -m) для двух значений m (e-e). Случай m = 0: e – эксперимент; d – расчет,  $\Delta L$  =0. Для каждого распределения приведена нормированная интенсивность.

кардинально меняет распределение I, теперь вблизи центра пятна фокусировки (ось вихревой пластинки совмещена с "центром масс" Гауссова пучка) интенсивность обращается в нуль. Как видно на рис.  $4\sigma$  измеренное распределение интенсивности качественно согласуется с распределением, ожидаемым для моды Лагерра—Гаусса  $\left|E_0^m\left(\rho\right)\right|^2$ . Слабая зависимость I от полярного угла (рис.  $4\sigma$ ), наблюдаемая в эксперименте, связана с

точностью совмещения осей лазерного пучка и вихревой пластинки и попадания в нормаль к поверхности С $\Phi\Pi$ , т.е. не связана с качеством пластинки и на дальнейшие результаты не оказывает существенного влияния.

Спиральная фазовая пластинка была изготовлена с таким расчетом, чтобы создавать закрученный пучок фотонов с нормированным ОУМ,  $|m| = \eta = 1$ . Для проверки вихревых свойств лазерного пучка в оптическую схему (рис. 3) встраивался интерферометр Майкельсона с призмой в одном из плеч [29], выполняющей зеркальное отражение изображения относительно своей оси. В этом случае, на выходе из интерферометра приготавливалось поле в когерентной суперпозиции двух лазерных пучков одинаковой интенсивности и радиуса, с противоположными значениями ОУМ на фотон,  $m_1 = +m$  и  $m_2 = -m$ , с пространственным распределением ЭМ поля в фокальной плоскости линзы:

$$E_{\Sigma}^{\text{calc}}(\rho, \varphi) = E_0^m(\rho) \exp(-im\varphi) [\exp(2im\varphi) + 1].$$
 (4)

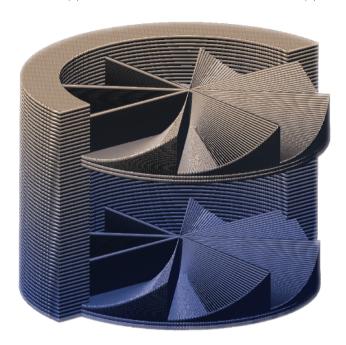
Тогда, с учетом интерференции пучком, распределение интенсивности лазерного поля в плоскости ПЗС-камеры запишется в виде:

$$I_{\Sigma}^{\text{calc}}(\rho, \varphi) = 2 \left| E_{0}^{m}(\rho) \right|^{2} \times \left[ 1 + \cos \left( 2 \left| m \right| \varphi + \frac{2\pi}{\Lambda} \rho \cos \varphi + \frac{2\pi}{\lambda_{0}} \Delta L + \pi \right) \right],$$
 (5)

где  $\Lambda$  — период интерференционной картины,  $\Delta L$  — разность оптических длин плеч интерферометра.

Для контроля экспериментально получаемого распределения интенсивности ЭМ поля лазера в плоскости детектора и определения величины приобретаемого фотоном ОУМ выполнялось численное моделирование пространственного распределения  $\left|E_{\Sigma}^{\rm calc}\left(\rho,\phi\right)\right|^2$  для оптического поля, состоящего из двух интерферирующих когерентных лазерных пучков одинаковой интенсивности и радиуса, с противоположными проекциями ОУМ, для разных значений m.

На рис. 4s—4e приведены экспериментально полученные и рассчитанные пространственные распределения интенсивностей для случая m=0 (e, d) и |m|=1 (e, e). Как видно из рис. 4e и 4d, в случае m=0 лазерное пятно фокусировки, имеющее гауссову форму, модулируется интерференцией с периодом  $\Lambda_0 \approx 3$  мкм. В тоже время, рассчитанное распределение I для закрученного пучка фотонов с |m|=1 (рис. 4e) демонстрирует интерференционную картину (с периодом  $\Lambda_1 \approx 5$  мкм) с "вилочкой" относительно центра вихря, поскольку в фазе выражения (5) появляется член  $2\varphi$ . Эмпирически,



**Рис. 5.** Трехмерная модель оптической структуры, состоящей из двух 8-секционных СФП. Топологический заряд каждой секции  $\eta$ . Топологический заряд оптической структуры равен  $16\eta$ .

по виду "вилочковой" особенности, можно определить значение |m|:  $|m| = N_{max}/2$ , здесь  $N_{max}$  — число максимумов I, исходящих из центра "вилки", не считая лежащих на прямой X=0.

Пространственное распределение интенсивности лазера, пропущенного через СФП и интерферометр Майкельсона показано на рис. 4г. Как видно из рисунка, в измеренном распределении Iтакже наблюдается характерная "вилочковая" особенность и сравнение структуры и количества интерференционных полос в расчете и эксперименте демонстрирует качественное согласие, что позволяет утверждать, что вихревая пластинка может приготавливать лазерное поле с нормированным ОУМ |m| = 1. В действительности, примененная интерференционная методика показывает, что СФП имеет топологический заряд равный 1, и, как уже было сказано выше, в идеальном случае фотон приобретает ОУМ,  $|m| = \eta = 1$ . Однако, как продемонстрировано в работах [23, 26], смещение оси СФП относительно оси Гауссова пучка и несовпадение размеров пучка и активной площади СФП уменьшают ОУМ на фотон. Наши оценки погрешностей позволяют говорить, что при лучшей юстировке схемы с помощью изготовленной СФП можно получить лазерный вихрь с нормированным ОУМ из интервала:  $|m| \in [0.9, 1]$ .

Как было сказано во Введении, важной задачей является повышение значения ОУМ на фотон для закрученных лазерных пучков. Одним из путей увеличения нормированного ОУМ являет-

ся последовательное расположение нескольких СФП на оси распространения лазерного пучка. В этом отношении 2PP-3D-SmP-метод обладает важным преимуществом: в едином цикле можно формировать объемную структуру перемещаясь вокселем в 3-х направлениях. В качестве примера на рис. 5 показан эскиз объемной структуры для изготовления на 3D микропринтере "Photonic Professional GT". Структура состоит и двух последовательно расположенных СФП с восемью секциями в каждой. Если топологический заряд каждой секции равен η, тогда ТЗ всей структуры  $\eta_{\Sigma} = 16\eta$ , и приобретаемый фотоном ОУМ  $\simeq 16\eta$ . Подобным образом, если изготовить ПСФПструктуру из  $N_{\it SPP}$  последовательно расположенных СФП с M секциями в каждой, то  $|m_{\Sigma}| \simeq N_{SPP} M \eta$ .

Исходя из возможностей 2PP-3D-SmP-метода можно оценить достижимые значения для  $\{N_{SPP}, M, \eta\}$  при изготовлении ПСФП как миллиметровых, так и микронных размеров в диаметре. Оценки проводились для  $\lambda_0=800$  нм и 16 угловых слоев на секцию. В обоих случаях значение  $N_{SPP}$  не должно существенно превышать 10, поскольку уже заметно падает интенсивность прошедшего лазера (по оценкам, для  $N_{SPP}=10$  коэффициент пропускания структуры  $\leq 0.5$ ). Также в обоих случаях заряд  $\eta \leq 2$  или 3 чтобы при переходе между слоями не было значительного скачка разности фаз ЭМ волн. Исходя из размеров и точности позиционирования вокселя можно найти, что

для диаметра СФП в 10 мкм (мкм-ПСФП) значение M не превышает 5, для диаметра в 1мм (мм-ПСФП) значение M не превышает 500. Таким образом, 2PP-3D-SmP-метод позволяет напечатать мм-ПСФП с  $|m_{\Sigma}|$  не больше  $10^4$ , и мкм-ПСФП с  $|m_{\Sigma}|$  не больше  $10^2$ .

Для спиральной пластинки как самостоятельного оптического элемента значения ~ 104 для нормированного ОУМ уже были недавно получены с помощью спирального фазового зеркала [30]. В тоже время в области создания микроисточников, генерирующих закрученные фотоны, значения для ОУМ в 10<sup>2</sup> существенно превосходят текущие достижения для микролазеров. В связи с этим мы планируем изготовить мкм-ПСФП для дальнейшего согласования с полупроводниковыми микрорезонаторами (МР). Микрорезонаторы формирующие экситонные поляритоны в активной области, как нам кажется, являются очень перспективными объектами для нанофотоники. Экситон-поляритоны в МР являются эффективными излучателями света [31], с богатой многочастичной физикой [3, 32], а помещение в активную область МР слоев дихалькогенидов переходных металлов [33] или специальных органических соединений [34] позволяет организовать сильную экситонфотонную связь уже при комнатной температуре.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В рамках представленной работы с помощью 2PP-3D-SmP-метода была изготовлена спиральная фазовая пластинка для создания закрученного лазерного пучка с ненулевой проекцией ОУМ. Использование интерференционной методики показало, что спиральная пластинка формирует оптический лазерный вихрь с ОУМ на фотон  $|m| \cong 1$ , что подтверждает эффективность данного метода литографии для создания сложных 3D структур, одной из которых является спиральная фазовая пластинка.

Работа выполнена в рамках темы государственного задания ИФТТ РАН и ИПТМ РАН № 075-00920-20-00.

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. *Kevrekidis P.G., Frantzeskakis D.J., Carretero-Gonzalez R.* Emergent nonlinear phenomena in Bose-Einstein condensates. Springer series on atomic, optical, and plasma physics. Berlin: Springer-Verlag, 2008. 405 p.
- Cross M.C., Hohenberg P.C. // Rev. Mod. Phys. 1993.
   V. 65. P. 851.
- 3. *Bramati A., Modugno M.* Physics of quantum fluids. Berlin: Springer-Verlag, 2013. 405 p.

- 4. Andersen M.F., Ryu C., Clade P. et al. // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 97. Art. No 170406.
- 5. Krizhanovskii D.N., Whittaker D.M., Bradley R.A. et al. // Phys. Rev. Lett. 2010. V. 104. Art. No 126402.
- Rykov M.A., Skidanov R.V. // Appl. Opt. 2014. V. 53. P. 156.
- 7. *Ковалев А.А., Котляр В.В., Порфирьев А.П.* // Комп. опт. 2016. Т. 40. № 3. С. 305.
- 8. Zhu R., Avsievich T., Popov A., Meglinski I. // Cells. 2020. V. 9. P. 545.
- 9. Cai X., Wang J., Strain M.J. et al. // Science. 2012. V. 338. P. 363.
- Li H., Phillips D.B., Wang X. et al. // Optica. 2015. V. 2. P. 547.
- Miao P., Zhang Z., Sun J. et al. // Science. 2016. V. 353. P. 464.
- Xie Z., Lei T., Li F. et al. // Light Sci. Appl. 2018. V. 7. Art. No 18001.
- 13. Allen L., Beijersbergen M.W., Spreeuw R.J.C., Woerdman J.P. // Rhys. Rev. A. 1992. V. 45. Art. No 8185.
- Князев Б.А., Сербо В.Г. // УФН. 2018. Т. 188. С. 508;
   Кпуаzev В.А., Serbo V.G. // Phys. Usp. 2018. V. 61.
   P. 449.
- 15. Beijersbergen M., Allen L., Van der Veen H., Woerdman J. // Opt. Comm. 1993. V. 96. P. 123.
- 16. Beijersbergen M., Coerwinkel R., Kristensen M., Woerdman J. // Opt. Comm. 1994. V. 112. P. 321.
- 17. *Marrucci L., Manzo C., Paparo D.* // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 96. Art. No 163905.
- 18. *Padgett M., Allen L.* // J. Opt. B. Opt. 2002. V. 4. P. S17.
- 19. *Saleh B.E.A.*, *Teich M.C.* Fundamentals of Photonics. N.J.: Wiley Intersci. 2019. 1520 p.
- 20. Алексеев А.Н., Алексеев К.Н., Бородавка О.С., и др. // Письма в ЖТФ. 1998. Т. 17. С. 68; Alekseev A.N., Alekseev K.N., Borodavka O.S. et al. // Tech. Phys. Lett. 1998. V. 24. P. 694.
- 21. *Nagali E., Sciarrino F.* Manipulation of photonic orbital angular momentum for quantum information processing. Rijeka: IntechOpen, 2012. 30 p.
- 22. *Allen L., Barnett S.M., Padgett M.J.* Optical angular momentum. IOP Publishing Ltd and individual contributors, 2003. 300 p.
- 23. *Котляр В.В., Ковалев А.А.* // Комп. опт. 2018. Т. 42. № 2. С. 212.
- 24. Witzgall G., Vrijen R., Yablonovitch E. et al. // Opt. Lett. 1998. V. 23. P. 1745.
- Sueda K., Miyaji G., Miyanaga N., Nakatsuka M. // Opt. Expr. 2004. V. 12. No 15. P. 3548.
- 26. Котляр В.В., Ковалев А.А., Порфирьев А.П. // Комп. опт. 2020. Т. 44. № 2. С. 145.
- 27. Котляр В.В., Ковалев А.А., Порфирьев А.П. // Комп. опт. 2017. Т. 41.  $\mathbb{N}_2$  3. С. 330.
- 28. Kotlyar V.V., Almazov A.A., Khonina S.N. et al. // JOSA A. 2005. V. 22. No 5. P. 849.
- 29. *Roumpos G.* Phase fluctuations in microcavity exciton polariton condensation. (Doctoral dissertation). Stanford: Stanford University, 2011. 157 p.

- Fickler R., Campbell G., Buchler B. et al. // Proc. Natl. Acad. Sci. USA. 2016. V. 113. Art. No 13642.
- 31. Schneider C., Rahimi-Iman A., Kim N.Y. et al. // Nature. 2013. V. 497. P. 348.
- Rahimi-Iman A. Polariton physics: from dynamic Bose-Einstein condensates in strongly-coupled light matter systems to polariton lasers. Springer series in op-
- tical sciences. Springer Nature Switzerland AG, 2020. 295 p.
- 33. Flatten L., He Z., Coles D. et al. // Sci. Rep. 2016. V. 6. Art. No 33134.
- Dusel M., Berzold S., Egorov O.A. et al. // Nat. Commun. 2020. V. 11. Art. No 2863.

# The 3D femtosecond laser submicron lithography method of fabrication of spiral phase plates for creating photon beams with orbital angular momentum

A. A. Demenev<sup>a, \*</sup>, A. V. Kovalchuk<sup>b</sup>, E. A. Polushkin<sup>b</sup>, S. Yu. Shapoval<sup>b</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia <sup>b</sup>Institute of Microelectronics Technology and High Purity Materials of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia

\*e-mail: demenev@issp.ac.ru

A spiral phase plate with a topological charge equal to 1 was fabricated using a 3D femtosecond laser submicron lithography technique. To check the vortex properties of the formed laser beam, an optical scheme based on a Michelson interferometer was developed and assembled. The optical measurements confirmed that the spiral phase plate forms an optical laser vortex with the normalized orbital angular momentum |m|=1. The method of fabrication and testing of spiral phase plates, which transmit the required value of orbital angular momentum to a laser field, is worked through.

УДК 530.645:535.2/.3:621.315.592

# ГИГАНТСКИЕ ОПТИЧЕСКИЕ ФЛУКТУАЦИИ В КВАНТОВО-РАЗМЕРНЫХ ЭЛЕКТРОННЫХ СТРУКТУРАХ

© 2021 г. А. Л. Парахонский<sup>1, \*</sup>, М. В. Лебедев<sup>1, 2</sup>, А. А. Дремин<sup>1</sup>, В. В. Соловьев<sup>1</sup>, И. В. Кукушкин<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики твердого тела Российской академии наук, Черноголовка, Россия <sup>2</sup>Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования "Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет)", Долгопрудный, Россия

\*E-mail: alpar@issp.ac.ru
Поступила в редакцию 28.08.2020 г.
После доработки 25.09.2020 г.
Принята к публикации 28.10.2020 г.

Показано, что изучение свойств гигантских оптических флуктуаций в структурах с GaAs/AlGaAs квантовыми ямами в условиях квантового эффекта Холла важно для понимания микроскопической природы флуктуаций квантовых жидкостей. Результаты исследований статистики фотоотсчетов, а также спектрально-корреляционных характеристик фотолюминесценции двумерных электронов позволяют говорить о возможности возникновения в таких системах особого упорядоченного состояния электронной жидкости.

**DOI:** 10.31857/S0367676521020216

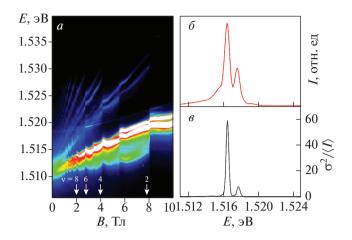
# **ВВЕДЕНИЕ**

Опубликованный нами цикл работ [1-11], касающихся гигантских оптических флуктуаций  $(\Gamma O \Phi)$  в структурах с GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As квантовыми ямами (КЯ) в режиме квантового эффекта Холла (КЭХ), продемонстрировал принципиальную возможность получения данных о свойствах электронной жидкости из флуктуаций оптического отклика квантово-механической системы. Выявлены условия в квазидвумерной (2D) электронной системе, определяющие согласованное протекание процессов излучательной рекомбинации на макроскопических расстояниях. Надо отметить то обстоятельство, что до сих пор низкоразмерные электронные структуры не исследовались системно в аспекте флуктуаций как источник оптического излучения. Между тем, поскольку в таком оптическом сигнале могут проявляться собственные времена квантовой динамики электронной подсистемы, целесообразно изучать флуктуации источника излучения, например, вблизи фазовых переходов, критических точек [12], а также краевые и/или контактные явления в таких объектах [13]. В условиях макроскопического квантового явления, каким является  $K \ni X$  (постоянная Планка hвходит в явном виде в холловское сопротивление  $\rho_{xy}$ ), окрестности минимумов продольного сопротивления  $\rho_{xx}$  можно рассматривать с точки зрения состояния системы вблизи критической точки. В таком режиме и возникает эффект ГОФ, при котором статистические акты фотолюминесценции (ФЛ) 2D электронов обнаруживают существенную взаимозависимость. Отношение дисперсии к средней интенсивности излучения  $\sigma^2/\langle I \rangle$  иногда на порядки превышает пуассоновский шум [1]. Это характерно для целых четных факторов у заполнения уровней Ландау (УЛ) при температурах  $T \approx 1.5 - 2.8$  K, а также для v = 1 и дробных v при более низких T [5]. Здесь, v = $= n_s h/(eB)$ ,  $n_s$  — концентрация электронов в 2D слое, e — заряд электрона, B — индукция магнитного поля. Микроскопическая теория ГОФ пока не создана и требует дополнительных методологических усилий для получения непосредственной информации о внутренних механизмах и детального описания переходов. Наблюдаемая картина с учетом вытекающих из нее предположений на данный момент выглядит так. При непрерывном фотовозбуждении (ФВ) 2D системы лазером с энергией фотонов, превышающей энергию уровней исследуемых электронных состояний в GaAs KЯ, но ниже высоты энергетического барьера  $Al_xGa_{1-x}As$ , с

изменением B происходит выравнивание  $n_s$  по всей освещенной поверхности образца за счет обмена электронами между соседними областями 2D канала по мере приближения к так называемой точке однородности электронной плотности  $(B = B_u)$ . В этой точке локальные концентрации 2D электронов совпадают с высокой точностью [2] и случайный потенциал примесей перестает экранироваться (холловский диэлектрик). Это однородное состояние неустойчиво и система совершает спонтанные переходы между диэлектрическим и проводящим состоянием. Малые флуктуации электронной плотности в условиях ФВ вызывают флуктуационные переходы металлдиэлектрик и гигантские флуктуации ФЛ 2D электронов. Этот эффект наиболее ярко выражен при v = 2 в структуре с одиночной квантовой ямой (ОКЯ). При  $B > B_{\mu}$  и большом пятне  $\Phi B$  (см. ниже) система, по-видимому, разбивается на макроскопические домены, внутри которых продолжает сохраняться фактор заполнения v = 2 за счет перераспределения электронов, в то время как в пространстве между доменами v < 2. С ростом В площади доменов уменьшаются, и макроскопические пространственные корреляции между излучением различных точек образца постепенно исчезают. Изменение локального фактора заполнения интересно для оценки масштабов энергии в 2D системе и с точки зрения особенностей кинетики рекомбинации. Известно, что в магнитооптических экспериментах квантование циклотронного движения электронов приводит к осцилляциям термодинамических и кинетических характеристик 2D систем [14]. Принимая во внимание это обстоятельство, логично ожидать подобное влияние на параметры ГОФ, например, на переход между сжимаемой проводящей и несжимаемой диэлектрической фазами и на корреляционные характеристики.

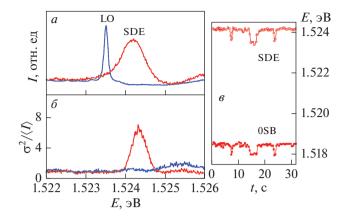
# МАГНИТООПТИЧЕСКАЯ МЕТОДОЛОГИЯ И АНАЛИЗ ГОФ

Для определения степени и характера связи элементов 2D системы в условиях ГОФ мы провели большой цикл экспериментов с применением ряда методов и разных групп образцов [5, 11]. Эффект ГОФ впервые был обнаружен в условиях КЭХ в ОКЯ GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As (x=0.3) n-типа шириной I=25 нм, концентрацией  $n_{\rm s}=3.8\cdot10^{11}$  см<sup>-2</sup> и подвижностью  $\mu=1.3\cdot10^6$  см<sup>2</sup> · В<sup>-1</sup> · с<sup>-1</sup> [1]. Подвод возбуждающего излучения осуществлялся через световод, являющийся одновременно собирающим и установленный непосредственно у поверхности образца (размер пятна света около 1 мм) (рис. 1). Впоследствии использовались и другие схемы измерения ГОФ, позволяющие ра-



**Рис. 1.** Спектры ФЛ в диапазоне B = 0-10 Тл в цветовой шкале (тон от черного к белому соответствует I от нуля до максимума). Факторы заполнения v = 8, 6, 4 и 2 проявляются в резких скачках в спектральном положении линий ФЛ и совпадают с соответствующими транспортными характеристиками (a); спектры ФЛ, измеренные в факторе v = 2 (B = 7.78 Тл)  $(\delta)$ ; нормированная дисперсия  $\sigma^2/\langle I \rangle$  (v = 2)  $(\epsilon)$ .

ботать с большим пятном света (~1 см), а также исследовать сигналы неупругого рассеяния света (НРС) (см. ниже). Мощность ФВ всегда была существенно меньше значения, при котором наступает перегрев электронной подсистемы [6]. Установлено, что гигантские флуктуации имеют времена от единиц до сотен и даже тысячи секунд, демонстрируя макроскопические пространственно-временные корреляции [2, 3, 10]. Вблизи v = 2(поперечное магнитное поле  $B \approx 7.8$  Тл, температура  $T \approx 1.5 \text{ K}$ ) помимо шума интенсивности присутствует телеграфный шум спектрального положения  $\Phi \Pi$  линий основной ( $E_{0SB}$ ) и первой возбужденной ( $E_{1SB}$ ) квантово-размерных подзон, характеризующий переключение между двумя излучающими состояниями 2D электронов [10]. Такой шум не является достаточным условием для возникновения неустойчивости, вызывающей флуктуации интенсивности. Например, при v = 3, когда уровень Ферми находится в щели, обусловленной спиновым расщеплением, телеграфный шум максимален, но гигантский шум интенсивности не наблюдается. Само наличие резких скачков в спектрах свидетельствует об образовании щели в плотности состояний (ПС) 2D электронов, где ПС близка к нулю. Это может быть связано с кулоновским расталкиванием состояний, имеющих благодаря случайному потенциалу одинаковую энергию, но принадлежащих разным УЛ [1]. Оба вида шума были измерены при ФВ лазерным диодом (ЛД) с энергией фотонов 1.653 эВ. Для каждого спектра вычислялись



**Рис. 2.** Спектры НРС, измеренные в режиме ГОФ при факторе заполнения v=2 для разных энергий Ti–Sp лазера:  $E_{\text{Ti-Sp}}=1.545\,$  эВ (SDE мода) и 1.560 эВ (LO фонон) (a); спектральные зависимости параметра  $\sigma^2/\langle I\rangle$  (v=2) для  $E_{\text{Ti-Sp}}=1.545\,$  эВ (красная кривая) и 1.560 эВ (синяя кривая) ( $\delta$ ); временные зависимости спектрального положения линии SDE и линии ФЛ верхнего спинового подуровня  $E_{\text{OSB}}$  (телеграфный пум) (a).

средняя интенсивность  $\langle I \rangle$ , дисперсия  $\langle I^2 \rangle - \langle I \rangle^2$  и их отношение:

$$\frac{\left\langle I^{2}\right\rangle - \left\langle I\right\rangle^{2}}{\left\langle I\right\rangle} = \frac{\sigma^{2}}{\left\langle I\right\rangle}.\tag{1}$$

В такой схеме измерения отношение (1) имеет значения порядка 100, а иногда и на порядок выше. Это обстоятельство можно рассматривать как проявление флуктуаций источника излучения вблизи критической точки, при котором коррелированные состояния, ответственные за указанную статистику фотоотсчетов, возникают на расстоянии, существенно превышающем межчастичное [15], и система оказывается чувствительной к локальным концентрациям частиц. При непрерывном ФВ заполнение можно считать постоянным и спектр 2D ФЛ отражает энергетическое распределение одночастичной ПС 2D электронов в зоне проводимости  $D_e(E) \propto dn_s/dE$  [16]. Связь между  $n_S$ и  $D_{\alpha}(E)$  сохраняется и при наличии межчастичного взаимодействия, однако спектр системы усложняется и перераспределение  $n_S$  сильно зависит от экранирующего фактора [17]. При больших  $n_S$  в условиях ФВ возможны отступления от одноэлектронного сценария ЦКЭХ [20]. В таких случаях возрастает роль флуктуаций и корреляций.

Используя возможности корреляционной спектроскопии, традиционно применяемой для анализа шумов, можно изучать квазипериодические процессы, находить характерное время релаксации,

исследовать динамику аттракторов. Анализ автокорреляционной функции (АКФ) телеграфного шума позволяет оценить среднее время переключений между двумя состояниями — состояния с однородной плотностью электронов (низкая интенсивность ФЛ) и неоднородного состояния (высокая интенсивность). Нормированная АКФ интенсивности в этих условиях описывает волну с периодом P, фазой  $\Phi$  и временем затухания  $\tau_d$  [10]:

$$A(\tau) = \frac{1}{2} \left\{ 1 + e^{-\frac{|\tau|}{\tau_s}} \right\} \cos\left(\frac{2\pi\tau}{P} + \Phi\right) \cdot e^{-\frac{|\tau|}{\tau_d}}, \quad (2)$$

где  $\tau_s$  — среднее время переключений, достигающее  $100~{\rm c}$ .

Затухающая АКФ, как известно, является одним из критериев хаотичности аттрактора в фазовом пространстве управляющего параметра. Действительно, такой аттрактор наблюдался в наших экспериментах [9].

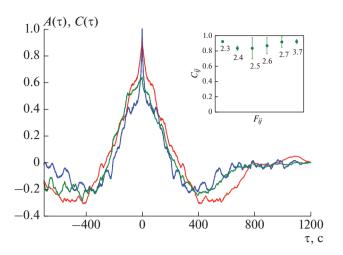
Макроскопический характер ГОФ подтверждается экспериментами по НРС, позволяющему исследовать энергии межподзонных расщеплений в 2D системах [4, 18, 19]. Для изучения HPC нами применялся двухсветоводный метод: первый световод использовался для подвода возбуждающего излучения, второй – для регистрации ФЛ и НРС. Найдено, что интенсивность межподзонного НРС (возбуждение спиновой плотности, SDE мода [18]) при v = 2 также испытывает аномальные флуктуации (рис. 2). Кроме этого, обнаружен телеграфный шум SDE линии, синфазный телеграфному шуму 2D  $\Phi \Pi$  линий (рис. 2 $\theta$ ), а флуктуации интенсивности SDE моды синфазны флуктуациям 2D ФЛ интенсивности. При этом исследование сигнала НРС на объемном продольном оптическом (LO) фононе показало, что флуктуации интенсивности НРС имеют пуассоновское распределение (рис.  $2\delta$ ), что подтверждает "двумерную" природу ГОФ.

Для изучения пространственных корреляций в системе взаимодействующих носителей в 2D плоскости в режиме ГОФ была разработана специальная методика, формирующая большое пятно света на поверхности образца и использующая линейку из 7 регистрирующих световодов [8]. Этот метод позволил наблюдать форму спектра в разных точках 2D плоскости и ее изменение во времени. 2D система возбуждалась полупроводниковым лазером с энергией фотонов 1.536 эВ. Использовалось также ФВ, близкое к резонансному по отношению к  $E_{\rm ISB}$  подзоне. Сигнал  $\Phi \Pi$  основной подзоны  $E_{0SB}$  измерялся одновременно в двух различных световодах  $F_i$  и  $F_i$  регистрирующей линейки. При этом исследовались взаимно-корреляционные функции (ВКФ) и коэффициенты корреляции  $C_{ij} = \langle [I_i - \langle I_i \rangle] \cdot [I_j - \langle I_j \rangle] \rangle / (\sigma_i^2 \sigma_j^2)^{1/2}$  между двумя значениями интенсивности  $I_i$  и  $I_j$ . При резонансном возбуждении в  $E_{\rm ISB}$  подзону сравнение спектральных характеристик 2D системы позволило наблюдать положение двух линий ФЛ в динамике (от v = 3 к 2). В этом случае первоначально несовпадающие спектральные положения линий любой пары  $F_{ii}$  по мере увеличения B сближаются и полностью совпадают в точке однородности  $(B = B_u)$  [10]. Соответствующие ВКФ при этом практически идентичны АКФ и описываются выражением (2), а значения  $C_{ii}$  близки к 1 (рис. 3). Точка  $B = B_{\mu}$  представляет особый интерес, поскольку именно в этой точке наблюдается максимальная интенсивность шума. При превышении  $B_u$  на величину порядка  $10^{-2}$  Тл интенсивность шума падает более чем на порядок, хотя пространственный масштаб корреляций все еще остается макроскопическим (~1 мм). Это позволяет предположить, что основную роль в точке  $B_{\mu}$ играет полное подавление низкочастотных электромагнитных флуктуаций из-за бездиссипативности системы при строгом выполнении условий ЦКЭХ.

Здесь важно отметить, что максимальный шум интенсивности возникает именно при резонансном  $\Phi B$ . Эксперименты выявили заметные различия в свойствах  $\Gamma O \Phi$  при разных размерах пятна  $\Phi B$  (КЯ с l=25 нм). При большом диаметре пятна (~1 см) и  $B > B_u$  телеграфный шум исчезает, а шум интенсивности существенно уменьшается, охватывая существенно больший диапазон B, чем при малом пятне. ВК $\Phi$  в этом режиме имеют только осциллирующие члены, а фаза определяется разностью фаз  $\Delta \Phi = \Phi_j - \Phi_i$  стоячих волн в соответствующих точках образца:

$$C(\tau) = \langle I_i \rangle \langle I_j \rangle + \frac{1}{8} \Delta I_i \Delta I_j \cos \left( \frac{2\pi \tau}{P} + \Delta \Phi \right), \quad (3)$$

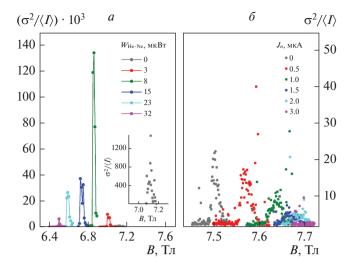
где  $\Delta I_{i(j)} = (I_{i(j)max} - I_{i(j)min})/2$ . Наличие общего пятна  $\Phi B$  для пространственных корреляций излучения является обязательным. Этому аспекту посвящена работа [2], в которой показано, что корреляции исчезают, если электронную систему искусственно разбить на две несвязанных между собой подсистемы. Мы провели ряд экспериментов по варьированию параметров 2D систем для выявления условий возникновения и прерывания макроскопического состояния при v=2. Исчезновение этого эффекта в условиях ГОФ наблюдалось при изучении корреляций сигналов 2D ФЛ, регистрируемых из двух пространственно разделенных областей образца. Это и уже упомянутая работа [2] по разделению электронной системы в плоскости 2D слоя. В этом случае корре-



**Рис. 3.** АКФ функции  $A(\tau)$  2D ФЛ сигналов, зарегистрированных парой световодов  $F_{25}$  (i=2 — красная кривая, j=5 — синяя кривая), и ВКФ функция  $C(\tau)$  (зеленая кривая) для данной пары в точке  $B_u$  (v=2). На вставке приведены значения коэффициента корреляции  $C_{ii}$  для разных пар световодов в  $B_u$ .

ляции исчезали в результате разделения светового пятна посредством черной полоски. Во втором случае таким фактором служил потенциальный барьер определенной толщины между двумя КЯ [3]. Можно предположить, что третьим фактором (помимо барьера в латеральном и поперечном направлениях), влияющим на корреляции, служит величина размерного квантования (тема предстоящей публикации). Предварительные данные указывают на то, что в структурах с более узкой (l = 12 нм) GaAs/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As KЯ при  $T \le 2$ K  $(v = 2) \ 2D \ \Phi Л \$ также испытывает большие флуктуации интенсивности ( $\sigma^2/\langle I \rangle \approx 50$ ). Телеграфный шум выражен слабо и, в отличие от более широкой КЯ (l = 25 нм), макроскопические корреляции между флуктуациями интенсивности при v=2не наблюдаются.

Безусловно, для полноты методологической картины важно охватить методы и результаты, позволяющие дать информацию о влиянии внешних факторов на характер и параметры  $\Gamma$ ОФ. Как было обозначено во введении, одним из них является температура. Было обнаружено, что  $\Gamma$ ОФ исчезают скачкообразно при превышении критического значения T, ниже которого шумы не изменяются в довольно широком интервале  $\Delta T$  [5]. Это неожиданный результат, показывающий, что в исследуемом явлении температура перестает быть существенным фактором, определяющим проводимость ( $\sigma_{xx}$ ) системы. Связаны лишь пороговые значения T и  $\sigma_{xx}$ , определяемые шириной энерге-



**Рис. 4.** *В*-зависимости профилей  $\sigma^2/\langle I \rangle$  сигнала ФЛ из первой КЯ в ДКЯ ( $v=v_1+v_2=4$ ) при разных значениях  $W_{\text{He-Ne}}$ . На вставке приведен профиль при  $W_{\text{He-Ne}}=0$  в уменьшенном масштабе (a); B-зависимости  $\sigma^2/\langle I \rangle$  при разных значениях тока  $J_n$  (мкА) в ОКЯ (I=25 нм) (G).

тической щели. В то же время, температурные особенности могут проявляться в ДКЯ  $(l_1/d/l_2)$ . При определенной толщине барьера d, разделяющего электронные слои шириной  $l_1$  и  $l_2$ , когда расстояние d сравнимо с расстоянием между электронами в 2D плоскости, наблюдается гистерезис в B-зависимостях амплитуды ГОФ [6]. Мы предполагаем, что данное состояние - характеристика двойной электронной 2D системы, испытывающей фазовые переходы при двух критических температурах  $T_1$  и  $T_2$ , и являющейся неким аналогом стационарного эффекта Джозефсона. Было обнаружено влияние мощности Не-Ne лазера ( $W_{
m HeNe}$ ) на дисперсию шума в ДКЯ (30/40/22 нм) и зависимость  $\sigma^2/\langle I \rangle$  от *B* [6, 8]. Энергия  $E_{\text{HeNe}}$ =1.958 эВ превышает величину прямой щели  $Al_xGa_{1-x}As$  для данного состава x = 0.3 и T и обеспечивает поглощение света в смежном с 1КЯ ( $l_1 = 30$  нм) слое (спейсере), отделяющем ее от δ-слоя Si-доноров, заметно изменяя концентрацию электронов  $n_1$  в ней. Из рис. 4aвидно, что  $\sigma^2/\langle I \rangle$  (1КЯ) имеет сильно немонотонную зависимость от мощности подсветки, резко возрастая при  $W_{\rm He-Ne} = 0 - 8 \ {\rm mkBr/cm^2},$  затем следует плавный спад. Для 2КЯ ( $l_2 = 22$  нм) зависимость  $\sigma^2/\langle I \rangle$  от  $W_{\text{He-Ne}}$  качественно схожа с первой. Резкий рост ГОФ при малой  $W_{\text{He-Ne}}$  может быть обусловлен дальнодействующими флуктуациями (Д $\Phi$ ) случайного потенциала заряженных доноров, которые весьма существенны в отсутствие экранирования [21]. Для концентрации доноров  $n_D = 3.4 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$  (близкой к  $n_1$ ) характерная энергия ДФ:

$$E_{LRF} = \sqrt{2\pi} \frac{e^2 \sqrt{n_D}}{\varepsilon} \approx 17 \text{ meB}$$
 (4)

сравнима с циклотронной ( $\hbar\omega_c$ );  $\epsilon = 12.5$  — диэлектрическая проницаемость. Последующее снижение уровня шума связано с уменьшением полной плотности электронов в ДКЯ, что ведет к сдвигу ГОФ в меньшие B. Как видно из (4), параметр  $E_{LRF}$ не зависит от ширины спейсера и электронную 2D жидкость в этих условиях можно считать несжимаемой. Однако в реальных профилях край образца представляет собой набор чередующихся сжимаемых и несжимаемых полосок электронной квантовой жидкости (ЭКЖ), в том числе и при ЦКЭХ [22]. Мы предположили, что во флуктуирующей электронной 2D системе с изменяемым контактным потенциалом, электроны, попадающие в КЯ, могут влиять на фотовозбужденные состояния и менять режим оптических флуктуаций. Это должно зависеть от структуры физического края и экранирующих свойств электронных состояний. Для проверки этого предположения на структуре с ОКЯ (l = 25 нм) был сформирован полупрозрачный металлический барьер, с помощью которого появилась возможность менять величину контактного потенциала  $U_n$ , регулируя величину тока  $J_n \sim n_s e U_n$ , текущего в цепи 2D канал-затвор и регистрировать сигнал ФЛ. На рис. 4 $\delta$  показаны B-зависимости параметра  $\sigma^2/\langle I \rangle$ , измеренные при разных  $J_n$ . Видно, что величина ГОФ падает с ростом  $J_n$ , а профиль  $\sigma^2/\langle I \rangle$  сдвигается в сторону бо́льших B, что связано с ростом  $n_s$ в канале (режим обогащения). При  $J_n = 3$ мкА  $\Gamma$ ОФ полностью исчезают. Величина  $U_n$  при этом значении  $J_n$  также имеет порядок  $\hbar\omega_{\rm c}/e$ . Прекращение ГОФ свидетельствует об изменении структуры электронной плотности вблизи границы и далее, в объеме (фактор v = 2 наблюдается при больших B), и ЭКЖ в итоге переходит из однородного несжимаемого состояния в сжимаемое.

Все проведенные исследования корреляций интенсивностей ФЛ были выполнены нами в диапазоне времен от 1 до 1000 с. Такие измерения позволили проследить длинновременную динамику ГОФ. Для понимания микроскопической природы флуктуаций ЭКЖ представляется потенциально информативным изучение корреляций фотонов в этих системах в наносекундном масштабе времен. Для регистрации корреляций при этом может быть применена схема [8],

а также система для счета отдельных фотонов [23]. Мы рассчитываем, что корреляции на столь коротких временах будут нести непосредственную информацию об основном и возбужденных состояниях несжимаемой электронной жидкости. Предусмотрена также возможность изучения фотонных корреляций излучающих областей ГОФ ("2D доменов") при помощи установки, включающей в себя оптический криостат со сверхпроводящим соленоидом, систему создания изображения большого фрагмента образца и видеосъемки в разных временных масштабах.

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе продемонстрирована возможность получения данных о свойствах ЭКЖ из флуктуаций оптического отклика электронной 2D системы. В режиме КЭХ найдены условия, при которых вся площадь образца излучает свет коррелированным образом, и возникают гигантские флуктуации оптического отклика 2D электронов (эффект ГОФ). Такую структуру можно рассматривать как своего рода сильнокоррелированный макроскопический источник света. Традиционно при рассмотрении когерентности излучения теплового источника сам источник считается стохастическим, излучение с постоянной фазой непродолжительно и определяется временем когерентности. В нашем случае излучение самого источника изначально обладает корреляциями. Описание этих состояний и сравнение времен затухания корреляций с характерными временами в системе было бы естественным обобщением существующей теории, а методология и экспериментальный материал по ГОФ представляют широкий спектр средств для изучения свойств ЭКЖ. Флуктуации источника ГОФ позволяют исследовать новые явления, возникающие вблизи критической точки, каковой можно считать точку однородности электронной плотности ( $B_{\mu}$ ) в ОКЯ и ее аналог в ДКЯ. Использование Не-Ne лазера с разной мощностью подсветки позволяет влиять на механизм "усиления" оптического отклика ГОФ и селективно управлять экранирующими свойствами ЭКЖ. Другой возможностью является регулирование контактной разности потенциалов, приложенной к 2D системе в режиме ГОФ, при котором происходит изменение локального фактора заполнения, и край электронной системы переходит из несжимаемого состояния в сжимаемое. Для понимания микроскопической природы ГОФ и расчетов из первопринципов представляется эффективным изучение корреляций фотонов в наносекундном диапазоне времен.

Работа выполнена в рамках темы государственного задания ИФТТ РАН.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Волков О.В., Кукушкин И.В., Лебедев М.В. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2000. Т. 71. С. 558.
- 2. Лебедев М.В., Кукушкин И.В., Волков О.В. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2003. Т. 77. С. 345.
- 3. Лебедев М.В., Волков О.В., Парахонский А.Л. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2004. Т. 80. С. 363.
- Лебедев М.В., Кукушкин И.В., Парахонский А.Л. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2005. Т. 82. С. 138.
- 5. Парахонский А.Л., Лебедев М.В., Кукушкин И.В. и др. // ФТТ. 2007. Т. 49. № 5. С. 925.
- 6. Парахонский А.Л., Лебедев М.В., Кирпичев В.Е., Кукушкин И.В. // ФТП. 2009. Т. 43. № 1. С. 76.
- 7. Parakhonsky A.L., Lebedev M.V., Dremin A.A. // Phys. E. 2010. V. 42. P. 1610.
- 8. *Parakhonsky A.L., Lebedev M.V., Dremin A.A.* // Phys. E. 2011. V. 43. P. 1449.
- 9. Parakhonsky A.L., Lebedev M.V., Dremin A.A., Kukushkin I.V. // Phys. E. 2012. V. 44. P. 1653.
- 10. Parakhonsky A.L., Lebedev M.V., Dremin A.A., Kukushkin I.V. // Phys. E. 2014. V. 56. P. 319.
- Parakhonsky A.L., Lebedev M.V., Dremin A.A., Kukushkin I.V. // In book: Research advances in quantum dynamics. Ch. 5. Edinburg: University of Texas, 2016. P. 93.
- 12. Гинзбург В.Л., Голдберг У.И., Головко В.А. и др. Рассеяние света вблизи точек фазовых переходов. М.: Наука, 1990. 414 с.
- 13. Weiss D., Klitzing K. von, Mossar V. Two-dimensional systems: physics and new devices. Springer-Verlag, 1986. P. 204.
- 14. *Кирпичев В.Е., фон Клитцинг К., Кукушкин И.В. др.* // Письма в ЖЭТФ. 1991. Т. 54. № 11. С. 630.
- 15. *Kadanoff L.P., Swift J.* // Phys. Rev. 1968. V. 166. P. 89.
- 16. *Кукушкин И.В., Тимофеев В.Б.* // УФН. 1993. Т. 163. № 1. С. 105.
- 17. *Кукушкин И.В., Мешков С.В., Тимофеев В.Б.* // УФН. 1988. Т. 155. № 2. С. 219.
- 18. *Pinczuk A., Dennis B.S., Heiman D. et al.* // Phys. Rev. Lett. 1992. V. 68. Art. No 3623.
- Kulik L.V., Kukushkin I.V., Kirpichev V. E. et al. // Phys. Rev. Lett. 2001. V. 86. Art. No 1837.
- 20. *Van der Meulen H., Sarkar D., Calleja J. et al.* // Phys. Rev. B. 2004. V. 70. No 15. Art. No 155314.
- 21. Efros A.L. // Phys. Rev. B. 1992. V. 45. Art. No 11354.
- 22. Chklovskii D.B., Shklovskii B.I., Glazman L.I. // Phys. Rev. B. 1992. V. 46. Art. No 4026.
- 23. Lebedev M., Demenev A., Parakhonsky A., Misochko O. // J. Russ. Laser Res. 2019. V. 40. P. 64.

### Giant optical fluctuations in quantum-size electron systems

#### A. L. Parakhonsky<sup>a, \*</sup>, M. V. Lebedev<sup>a, b</sup>, A. A. Dremin<sup>a</sup>, V. V. Solovyev<sup>a</sup>, I. V. Kukushkin<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia <sup>b</sup>Moscow Institute of Physics and Technology, Dolgoprudny, 141701 Russia \*e-mail: alpar@issp.ac.ru

It is shown that the study of the properties of giant optical fluctuations in GaAs/AlGaAs quantum well structures under the quantum Hall effect conditions is important to understanding the microscopic nature of fluctuations in quantum liquids. The results of the study of photon-count statistics as well as spectral-correlation characteristics of two-dimensional electrons suggest the possibility of a special ordered state of an electronic liquid in such systems.

УЛК 538.915

### ТЕРМОДИНАМИКА КВАНТОВО-ХОЛЛОВСКИХ ФЕРРОМАГНЕТИКОВ

© 2021 г. Б. Д. Кайсин<sup>1, \*</sup>, И. В. Кукушкин<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики твердого тела Российской академии наук, Черноголовка, Россия \*E-mail: kaysin@issp.ac.ru
Поступила в редакцию 28.08.2020 г.
После доработки 25.09.2020 г.
Принята к публикации 28.10.2020 г.

В сильновзаимодействующих двумерных электронных системах на основе ZnO методом неупругого рассеяния света изучена термодинамическая устойчивость квантово-холловских ферромагнетиков при факторах заполнения v=1 и 2. Обнаружено, что температура Кюри в случае ферромагнетика при v=2 определяется Кулоновской энергией формирование доменных стенок в отличие от случая v=1, при котором устойчивость определяется зеемановским расщеплением спиновых подуровней.

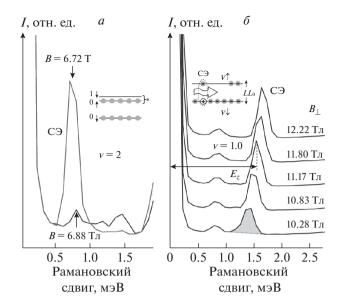
**DOI:** 10.31857/S0367676521020125

#### **ВВЕДЕНИЕ**

На конфигурацию основного состояния сильно коррелированных двумерных электронных систем (ДЭС) в магнитном поле значительное влияние оказывает кулоновское межчастичное взаимодействие масштаба  $e^2/\epsilon l_b$ , где  $\epsilon$  – диэлектрическая проницаемость среды,  $l_b$  — магнитная длина. Степень взаимодействия в ДЭС характеризуется безразмерным радиусом Вигнера—Зейтца  $r_s$ , который представляет собой среднее межчастичное расстояние в единицах боровского радиуса. В хорошо изученных системах на основе GaAs/AlGaAs при концентрации двумерных электронов  $n_{\rm s} \sim 10^{11}~{\rm cm}^{-2}$  данный параметр имеет значение порядка  $r_s \sim 1$ . Существенно большим межчастичным взаимодействием обладают системы ZnO/MgZnO - при той же концентрации параметр взаимодействия достигает значение  $r_s \sim 10$ . Это связано с тем, что структуры на основе ZnO отличаются от структур на основе GaAs большей эффективной массой электронов в зоне проводимости и меньшей диэлектрической проницаемостью. Высокое качество систем ZnO/MgZnO в сочетании с сильным межчастичным взаимодействием позволяют наблюдать множество нетривиальных коллективных явлений.

Одним из таких явлений является формирование ферромагнитной фазы при факторе заполнения v = 2 [1–3]. В отличие от случая v = 1, для которого ферромагнитное упорядочение спиновой

подсистемы является естественным, для случая v = 2 ферромагнитный переход происходит при некотором соотношении между одночастичной щелью над основным состоянием и обменной энергией. Одночастичная щель складывается из шиклотронной энергии и зеемановского расшепления спиновых подуровней Ландау, а обменная энергия имеет кулоновскую природу и определяется масштабом  $e^2/\varepsilon l_h$ . Понижая концентрацию электронов в системе и, соответственно, увеличивая отношение обменной энергии к одночастичной, можно добиться условий самопроизвольного спонтанного перехода спиновой конфигурации основного состояния из парамагнитной в ферромагнитную при v = 2. Однако того же результата можно добиться при фиксированной концентрации ДЭС путем поворота гетероструктуры относительно магнитного поля. Это связано с уменьшением одночастичной щели при изменении соотношения между зеемановским расщеплением (зависит от полного магнитного поля) и циклотронной энергией (зависит от нормальной компоненты магнитного поля относительно ДЭС). Как было показано в работах [2, 3], ферромагнитный переход в окрестности фактора заполнения v = 2 сопровождается формированием доменов противоположных фаз, при этом со стороны больших факторов заполнения домены преимущественно имеют ферромагнитное упорядочения, со стороны меньших – парамагнитное, а при целочисленном факторе заполнения v = 2 cocyществуют в равной степени домены обеих фаз.



**Рис. 1.** Спектры НРС на СЭ для образца 427 с концентрацией  $n_s = 2.8 \cdot 10^{11} \,$  см $^{-2}$  полученные при температуре 0.3 K в окрестности факторе заполнения v=2 при угле наклона 31.5° (a) который соответствует ферромагнитному переходу (на вставке изображена схема вырождения спиновых подуровней) и в окрестности факторе заполнения v=1 (b); на вставке изображена схема электронных переходов соответствующих СЭ на нулевом уровне Ландау  $LL_0$ .

Энергия образования доменных стенок имеет кулоновскую природу и определяет устойчивость ферромагнитной/парамагнитной фазы.

В настоящей работе будет проведено сравнение термодинамической устойчивости квантовохолловских ферромагнетиков в состояниях, соответствующих факторам заполнения v=1 и 2.

#### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Измерения были выполнены на высококачественных гетероструктурах ZnO/MgZnO, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии [4]. Были исследованы два образца: 427 ( $n_s = 2 \cdot 10^{11} \ {\rm cm}^{-2}, \ \mu = 4.27 \cdot 10^5 \ {\rm cm}^2/({\rm B} \cdot {\rm c}))$  и 448 ( $n_s = 4.5 \cdot 10^{11} \ {\rm cm}^{-2}, \ \mu = 2.5 \cdot 10^5 \ {\rm cm}^2/({\rm B} \cdot {\rm c}))$ . Магнитооптические измерения были выполнены в криостате с откачкой паров <sup>3</sup>He в диапазоне температур  $0.3-4.2 \ {\rm K}$  при постоянном магнитном поле в диапазоне  $0-15 \ {\rm Tn}$ . Угол наклона образца относительно магнитного поля измерялся по спектрам двумерной фотолюминесценции с точностью  $0.5^{\circ}$ . Измерения спектров коллективных возбуждений были выполнены методом неупругого рассеяния света (HPC) по двухсветоводной схеме для

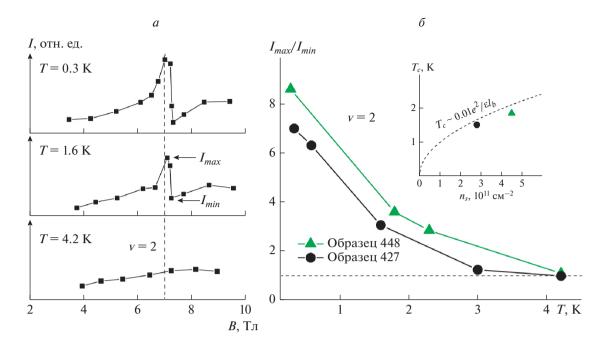
подавления паразитного света, рассеянного на световоде накачки. Использовались многомодовые световоды диаметром 400 мкм. Возбуждение ДЭС осуществлялось перестраиваемым непрерывным лазерным источником в диапазоне 365—368 нм с плотностью мощности 0.5 мВт/см², что исключало возможность перегрева электронной системы [5]. Система для регистрации спектральных линий состояла из спектрометра с линейной дисперсией 5 Å/мм и ПЗС-камеры (прибор с зарядовой связью), охлаждаемой при помощи жидкого азота.

#### РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Исследование спиновой поляризации ДЭС осуществлялось по спектрам НРС на спиновом экситоне (СЭ). СЭ представляет собой волну, образованную переходом электронов между двумя спиновыми подуровнями внутри одного уровня Ландау (см. вставку на рис. 16). В длинноволновом пределе его энергия не зависит от кулоновского взаимодействия и определяется лишь зеемановским расщеплением [6]. Интенсивность спектральной линии СЭ определяется средней степенью спиновой поляризации при неизменных условиях фотовозбуждения и регистрации [7].

На рис. 1a,  $1\delta$  представлены спектры HPC на СЭ в окрестности факторов заполнения v = 2 и 1 соответственно. Сигнал, изображенный на рис. 1а, получен при наклонной ориентации образца относительно магнитного поля при угле, соответствующем ферромагнитному переходу. При этом с уменьшением магнитного поля, переходя через целочисленный фактор заполнения v = 2, ДЭС изменяет характер спинового упорядочения основного состояния с парамагнитного на ферромагнитный. Об этом свидетельствует резкое увеличение сигнала спектральной линии СЭ (см. рис. 1а). Данный переход происходит в условиях вырождения верхнего спинового подуровня нулевого уровня Ландау и нижнего спинового подуровня первого уровня Ландау (см. вставку на рис. 1а). В парамагнитной фазе нижний уровень Ландау практически полностью заполнен, следовательно, СЭ не может образоваться ввиду отсутствия свободных мест на верхнем спиновом подуровне. Однако при изменении спиновой поляризации с парамагнитной на ферромагнитную происходит перераспределение электронов между двумя вырожденными спиновыми подуровнями, в результате чего данное ограничение снимается, а в спектре наблюдается резкое увеличение сигнала НРС на СЭ.

В отличие от фактора заполнения v = 2 ДЭС при факторе заполнения v = 1 имеет естественное

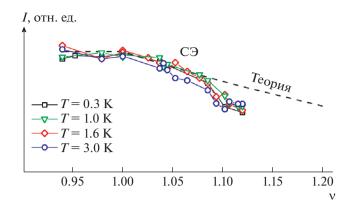


**Рис. 2.** Зависимость интенсивности спектральной линии СЭ от магнитного поля в окрестности фактора заполнения v=2 при трех различных температурах. Образец 427 с концентрацией  $n_s=2.8\cdot 10^{11}\,$  см $^{-2}$ , угол наклона соответствует ферромагнитному переходу (a). Зависимость меры фазового контраста  $I_{max}/I_{min}$  от температуры для двух образцов 427 с концентрацией  $n_s=2.8\cdot 10^{11}\,$  см $^{-2}$  и 448 с концентрацией  $n_s=4.5\cdot 10^{11}\,$  см $^{-2}$ ) ( $\delta$ ). На вставке показана зависимость температуры Кюри от концентрации, для сравнения приведена теоретическая кривая рассчитанная по формуле из работы [8].

устойчивое ферромагнитное упорядочение с заполненным нижним спиновым подуровнем и свободным верхним. В результате чего в окрестности фактора заполнения v=1 интенсивность спектральной линии СЭ изменяется монотонно и плавно (см. рис. 16). Рамановский сдвиг данной линии растет линейно с полем и соответствует энергии Зеемана.

Перейдем к рассмотрению температурной динамики квантово-холловских ферромагнетиков. Проследим за изменением контрастности скачка интенсивности линии НРС на СЭ при факторе заполнения v = 2 в условиях ферромагнитного перехода с увеличением температуры. На рис. 2а представлена зависимость интенсивности линии при трех различных температурах. Видно, что при возрастании температуры контрастность скачка снижается, это свидетельствует о разрушении доменной структуры основного состояния в окрестности фактора заполнения v = 2 и переходу к однородному заполнению двух вырожденных спиновых подуровней. Выберем за меру разрушения ферромагнитной фазы отношение интенсивностей линии СЭ в максимуме  $(I_{\it max})$  к интенсивности в минимуме  $(I_{min})$  в окрестности фактора заполнения v=2. Зависимость данной величины от температуры для двух образцов представлена на рис.  $2 \delta$ . Определим температуру Кюри  $(T_c)$  квантово-холловского ферромагнетика при v=2 как декремент затухания фазового контраста  $I_{max}/I_{min}$ , она приведена на вставке к рис.  $2 \delta$  в зависимости от концентрации электронов в ДЭС. Отметим, что для обоих образцов температура Кюри составляет порядка  $T_c \sim 2$  K, что намного ниже Зеемановского спинового расщепления (для данных образцов при аналогичных условиях оно имеет значение порядка 10 K).

Согласно теоретической работе [8] термодинамическая устойчивость ферромагнитной фазы в условиях вырождения спиновых подуровней определяется энергией образования доменных стенок, которая имеет Кулоновскую природу, ее оценка в приближении Хартри—Фока имеет вид  $E_{dw}=0.01e^2/\varepsilon l_b$ . Данная величина в зависимости от концентрации добавлена на вставку к рис. 26, видно, что экспериментальные результаты хорошо описываются данной моделью несмотря на ограниченность применения теории Хартри—Фока к сильновзаимодействующим ДЭС.



**Рис. 3.** Зависимость интенсивности спектральной линии СЭ от магнитного поля в окрестности фактора заполнения v = 1 при четырех различных температурах (образец 427 с концентрацией  $n_s = 2.8 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ ).

Полученный результат является необычным с точки зрения спиновой динамики ферромагнитного состояния на факторе заполнения v = 1. Как было отмечено выше (см. рис. 16), степень спиновой поляризации имеет плавную и монотонную зависимость в окрестности данного фактора заполнения. На рис. 3 представлена зависимость интенсивности спектральной линии СЭ от фактора заполнения при 4 разных температурах. Напомним, что интенсивность линии СЭ характеризует степень поляризации спиновой подсистемы. При факторах заполнения v < 1 интенсивность линии имеет постоянное значение, что говорит о полной и устойчивой поляризации спиновой подсистемы. Однако при v = 1 в зависимости наблюдается излом и интенсивность линии начинает падать. Данный результат является следствием заполнения верхнего спинового подуровня нулевого уровня Ландау, что приводит к уменьшению свободных состояний для возбужденных электронов. Поскольку заполняется подуровень с противоположной проекцией спина, общий спин системы уменьшается, в результате чего происходит деполяризация. Пунктирной линией (см. рис. 3) представлена теоретическая зависимость деполяризации системы, в одночастичном приближении она имеет вид (2 - v)/v при v > 1. Видно, что она хорошо согласуется с экспериментальными данными. Отметим, что все четыре температурные зависимости практически совпадают. Данный результат свидетельствует о том, что в этом температурном диапазоне не происходит термодинамического разрушения ферромагнитного порядка. Это связано с тем, что минимальная энергетическая щель над основным состоянием в случае v = 1 определяется Зеемановским расщеплением спиновых подуровней, которое в данном случае имеет значение порядка  $E_Z \sim 16\,$  K.

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе была изучена термодинамическая устойчивость квантово-холловских ферромагнетиков при факторах заполнения v=1 и 2. Было показано, что в случае v=2 температура разрушения ферромагнитной фазы определяется энергией формирования доменных стенок  $T_c \sim 0.01e^2/\varepsilon l_b$  в отличие от случая v=1, где устойчивость определяется зеемановским расщеплением над основным состояниям.

Работа выполнена в рамках темы государственного задания ИФТТ РАН.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Tsukazaki A., Ohtomo A., Kawasaki M. et al. // Phys. Rev. B. 2008. V. 78. Art. No 233308.
- Kozuka Y., Tsukazaki A., Maryenko D. et al. // Phys. Rev. B. 2012. V. 85. Art. No 075302.
- Vankov A.B., Kaysin B.D., Kukushkin I.V. // Phys. Rev. B. 2017. V. 96. Art. No 235401.
- 4. *Kozuka Y., Tsukazaki A., Kawasaki M.* // Appl. Phys. Lett. 2017. V. 1. Art. No 011303.
- 5. Кулик Л.В., Кирпичев В.Е. // УФН 2006. № 176. С. 365.
- 6. *Dobers M., von Klitzing K., Weimann G. //* Phys. Rev. B. 1988. V. 38. Art. No 5453.
- 7. *Ваньков А.Б., Кайсин Б.Д., Кукушкин И.В.* // Письма в ЖЭТФ. 2019. Т. 110. С. 268.
- 8. *Jungwirth T., MacDonald A.H.* // Phys. Rev. Lett. 2001. V. 87. Art. No 216801.

### Thermodynamics of quantum-hall ferromagnets

B. D. Kaysin<sup>a, \*</sup>, I. V. Kukushkin<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia \*e-mail: kaysin@issp.ac.ru

In strongly correlated two-dimensional electronic systems based on ZnO, the thermodynamic stability of quantum Hall ferromagnets was studied by means of inelastic light scattering at filling factors v = 1 and 2. It was found that the Curie temperature in the case of a ferromagnet at v = 2 is determined by the Coulomb energy of domain walls, in contrast to the case v = 1, in which the stability is determined by the Zeeman splitting of the spin sublevels.

УЛК 543.42

# ЭКСПРЕСС-АНАЛИЗ ПРИРОДНОГО ГАЗА И ГАЗОВЫХ СМЕСЕЙ С ПОМОЩЬЮ ПОРТАТИВНОГО КР СПЕКТРОМЕТРА, СОЕДИНЕННОГО С ПОЛЫМ ФОТОННО-КРИСТАЛЛИЧЕСКИМ СВЕТОВОДОМ

© 2021 г. М. Н. Ханнанов<sup>1, \*</sup>, В. Е. Кирпичев<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики твердого тела Российской академии наук, Черноголовка, Россия

\*E-mail: kmn@issp.ac.ru

Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Разработан метод газового экспресс-анализа, удовлетворяющий всем необходимым требованиям для определения парциального состава природного газа и производных газовых смесей, использующий портативный рамановский спектрометр с длиной волны возбуждения 532 нм, жестко соединенный с полым фотонно-кристаллическим световодом и оснащенный системой напуска газа.

**DOI:** 10.31857/S0367676521020149

Экспресс-анализ природного и попутного нефтяного газа является приоритетной задачей современной газоперерабатывающей промышленности. Состав углеводородного газа определяет его техническое использование и, в конечном итоге, его цену [1, 2]. Мониторинг качества газа имеет решающее значение для добычи, транспортировки и разделения углеводородных газов. Экспресс-анализ позволяет быстро реагировать на сбои в процессе, такие как загрязнение газообразного продукта, утечка газа и потеря эффективности разделения.

Анализ газовых смесей углеводородов — сложная метрологическая задача, которая обычно решается с помощью газовой хроматографии [3-5]. Для надежного определения состава типичных газовых смесей углеводородов необходимо использовать целый ряд дорогих и трудных в приготовлении калибровочных газовых смесей [6]. Кроме того, даже если аналитическая лаборатория полностью снабжена всеми необходимыми калибровочными газами, анализ реальных проб занимает много времени и требует участия квалифицированного инженера-хроматографиста. Развитие методов газового анализа с использованием КР спектрометрии позволит существенно упростить техническое обследование многокомпонентных газовых смесей, таких как природный газ, попутный нефтяной газ, имитаторы природного газа и различные синтетические газы.

Сравнимая с рамановским методом техника прямого инфракрасного (ИК) поглощения имеет то преимущество, что молекулы имеют высокие сечения ИК-поглощения, особенно для фундаментальных колебаний в среднем ИК-диапазоне (3-50 мкм). Однако ИК-спектроскопия нечувствительна к множеству симметричных молекул, таких как кислород, водород и хлор, которые имеют решающее значение для анализа природного и транспортируемого газа. Кроме того, количественный ИК-анализ многокомпонентной газовой смеси требует лабораторных условий и квалифицированного персонала. Таким образом, молекулярная спектроскопия комбинационного рассеяния света – единственный практический выбор для количественного анализа природного газа среди спектроскопических методов. Значительный прогресс во внедрении рамановской спектроскопии для анализа смесей углеводородных газов достигнут в работах [7-9]. Однако предложенные методы комбинационного рассеяния не могут применяться для экспресс-анализа in situ, поскольку для них необходимо сложное лабораторное оборудование, квалифицированный персонал и они не позволяют проводить анализ газа в полевых условиях, непосредственно на трубопроводе, распределительных станциях и в хранилищах. По этим причинам предложенные методы комбинационного рассеяния не имеют практических преимуществ по сравнению с хроматографическими методами и, кроме того, уступают по точности анализа.

Рамановские анализаторы для анализа природного газа должны соответствовать нескольким основным требованиям: портативность (легкий вес), общая надежность в суровых условиях окружающей среды, то есть возможность работы независимо от условий влажности и температуры на рабочем месте. Автоматизация методики аналитических измерений должна обеспечивать контроль качества при отсутствии высококвалифицированного персонала, а встроенный зонд должен исключать отбор проб газа. Кроме того, анализатор природного газа должен обеспечивать непрерывный онлайн-мониторинг состава газа, что означает, что частота отбора проб, измерение частичного состава, обработка данных измерений и окончательное считывание должны занимать несколько секунд или, по крайней мере, несколько минут. Согласно стандартам ISO 6974-2 и ISO 6974-3 (адаптированным как ГОСТ 31371), газовая хроматография обеспечивает относительную погрешность чуть выше 6% для большинства компонентов природного газа, присутствующих в анализируемой смеси более 0/001 мол. % [10, 11]. Современная рамановская спектрометрия превосходит этот уровень точности.

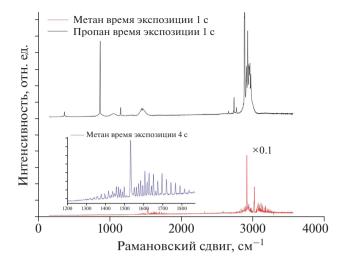
Основным недостатком рамановской спектроскопии для анализа газовой смеси является малое сечение спонтанного комбинационного рассеяния света. Этот недостаток объясняет выбор мощности лазера десятки ватт и время сбора сигнала рассеяния в десятки минут для достижения удовлетворительного сигнала для определения количественного состава природного газа [7, 8]. Такие мощные лазерные системы с большим временем сбора данных не подходят для полевых условий. В последние годы были разработаны и испытаны новые методологические подходы для смягчения этих ограничений. Простое увеличение чувствительности детектора позволяет снизить мощность возбуждающего лазера до доступных уровней (менее 1 Вт), но все же требует длительного времени сбора данных (около 10 мин) и снижает долговечность аналитической системы [12]. Чувствительность рамановской спектрометрии может быть увеличена с помощью когерентной антистоксовой рамановской спектроскопии [13] или фотоакустической спектроскопии [14, 15], но эти методы требуют использования одномодовых стабилизированных лазерных источников и чувствительны к рассогласованию. Достаточное усиление сигнала рассеяния может быть также достигнуто с помощью спектрометрии комбинационного рассеяния с усилением поверхности [16–18].

Более реалистичным и надежным подходом к повышению чувствительности рамановского газоанализатора является увеличение длины формирования сигнала рассеяния. Эффективная геометрия рассеяния света на молекулах газа может быть реализована в заполненном газом световоде с полой сердцевиной, по которому может распространяться лазерное излучение [19-22]. В отличие от другого метода усиления волокна, капилляра с металлическим покрытием, волокна с полой сердцевиной обеспечивают высокую числовую апертуру и усиление сигнала до трех порядков [22]. В волокне с полой сердцевиной длина формирования оптического сигнала ограничивается только параметрами затухания на длинах волн накачки и рассеянного излучения. Для недавно разработанных фотонно-кристаллических световодов с полой сердцевиной (НС-РСF) он может достигать 50-100 м с многообещающим увеличением сигнала по сравнению с конфигурацией однопроходного измерения в открытой ячейке, что является сущностью эффекта усиления оптоволокном рамановского рассеяния на молекулах газа.

Ранее описанные исследования с использованием HC-PCF, на коммерчески доступных КРспектрометрах Kaiser Optics, могут быть названы портативными только номинально [20]. Время экспозиции в описанных экспериментах составляло 4—15 мин, что снижает преимущества КР спектроскопии как метода экспресс-анализа.

В этой работе мы показываем, что всем требованиям для экспресс-анализа природного газа удовлетворяет газоанализатор на основе портативного рамановского спектрометра, жестко соединенного с полым гипоциклоидным фотоннокристаллическим световодом типа Кадоте с основной модой, настроенной на возбуждающую длину волны лазера (532 нм), которая, в свою очередь, подключена к системе накачки газа.

Для работы были использованы следующие газы и газовые смеси: чистый аргон (>99.999% (чистота всех отдельных газов здесь и далее указывается в мольных долях); пр-во НИИ КМ, Москва, Россия); метан высокой чистоты (>99.99%; прво Московского газоперерабатывающего завода, Развилка, Россия); смеси этана (>99.95%), пропана (>99.95%), н-бутана (>99.95%), изобутана (>99.95%) и калибровочных газов (первая: 10.27% этана, 6.94% пропана, 1.96% изобутан, 0.97% н-бутан, 0.98% кислород, 1.94% азот, остальное – метан; второй: 12.26% этан, 7.42% пропан, 0.92% изобутан, 0.50% н-бутан, остальное — метан); пр-во Linde Gas Rus, Балашиха, Россия. Все чистые газы и вторая калибровочная газовая смесь поставлялись от производителя в баллонах объемом 40 л. Первая калибровочная газовая



**Рис. 1.** Рамановские спектры чистого метана (внизу) и пропана (вверху), измеренные с помощью газоанализатора (мощность возбуждения — 20 мВт, время экспозиции — 4 с). На вставке расширенный спектральный диапазон  $\Delta = 670 \text{ см}^{-1}$  с центрами  $1600 \text{ см}^{-1}$  (внизу) и  $3000 \text{ см}^{-1}$  (вверху).

смесь поступала в баллон объемом 10 л. Несколько бинарных калибровочных газовых смесей (третья: 4.34% этан, остальное — метан; четвертая: 4.34% пропан, остальное – метан; пятая: 4.91%  $\mu$ -бутана, остальное — метан; шестая: 4.34% изобутан, остальное – метан) были приготовлены гравиметрически из чистых газов на прецизионных весах LP64001 (Sartorius, Германия) в баллонах объемом 5 л, предварительно откачанных до остаточного давления 7 · 10-4 МПа. Состав всех полученных бинарных калибровочных газовых смесей подтвержден газохроматографическим (ГХ) анализом на приборе Кристалл-5000.2 (СКБ Хроматек, Йошкар-Ола, Россия). Абсолютная разница концентраций компонентов приготовленных бинарных газовых смесей, согласно к данным взвешивания и ГХ анализа, не превышала 0.1 мол. %. Первая многокомпонентная газовая смесь использовалась только для калибровки детекторов хроматографа, вторая многокомпонентная газовая смесь и все бинарные газовые смеси использовались для измерений рамановской спектрометрии. Измерения проводились на портативном раман-спектрометре R532 производства компании Раммикс. Подробная схема установки описана в [23].

Спектры были получены путем накопления рамановского сигнала в течение 4 с при мощности возбуждения 20 мВт. После продувки волокна новой пробой газа спектр измерялся в течение 40 с. Волокно продували в течение 3 мин, чтобы гарантировать полную замену предыдущего образца.

После продувки была проведена серия из 6 измерений, чтобы убедиться в отсутствии изменений спектра во времени.

Газовую хроматографию проводили с использованием прибора Кристалл-5000.2 (СКБ Хроматек, Йошкар-Ола, Россия), оборудованном двойным газовым пробоотборным клапаном, одновременно вводящим отбираемый газ в колонку с цеолитом NaX (3 м  $\times$  3 мм; 60/80 меш), подключенную к детектору теплопроводности и колонке Науевер R (2 м  $\times$  2 мм; 80/100 меш), подключенной к пламенно-ионизационному детектору. Объем пробы газа — 250 мкл; газ-носитель — аргон высокой чистоты со скоростью течения 25 мл/мин. Калибровочная газовая смесь 1 использовалась для калибровки детекторов хроматографа.

Возможности рамановского газоанализатора для анализа углеводородных смесей продемонстрированы на рис. 1, где показаны характерные рамановские спектры двух чистых углеводородов, наиболее распространенных для природного газа: метана и пропана. Для количественного определения концентрации примесей необходимо исходить из интенсивностей их характерных пиков комбинационного рассеяния по сравнению с калибровочной линией газа, который всегда присутствует в анализируемых газовых смесях. Для этого мы выбрали линию метана  $1530 \text{ см}^{-1}$  (рис. 1) [24], который преобладает или, по крайней мере, присутствует почти во всех смесях углеводородного газа. Если в анализируемой газовой смеси нет метана, линии этана или пропана могут выступать в качестве эталонных. Разные газы демонстрируют разные сечения рассеяния из-за разной поляризуемости их молекул, что следует учитывать при вычислении концентраций по спектрам комбинационного рассеяния.

Спектр комбинационного рассеяния калибровочной смеси 4.3% пропана в метане был измерен с целью создания количественной калибровки для автоматического определения парциального состава пропана в натуральном газе. Концентрация пропана в калибровочной смеси контролировалась с помощью хроматографа. Отношение интегральных интенсивностей линий метана и пропана, умноженное на отношение парциальных составов этих газов, дает отношение поперечных сечений комбинационного рассеяния для выбранных молекул.

Калибровочные смеси этан—метан, пропанметан, бутан—метан и изобутан—метан были измерены для количественного определения отношений сечений комбинационного рассеяния различных молекул компонентов газа. Для всех газовых смесей были выбраны неперекрывающиеся линии KP, что существенно упростило количе-

ственный анализ. После проведения калибровки КР спектрометра бинарными смесями на нем бы измерен спектр, имитирующий природный газ. Измеренные спектры представлены на рис. 2.

Следует отметить, что отношение "сигнал/шум" не хуже, чем полученное с использованием лабораторных рамановских установок в процессе длительного сбора сигнала при мощности возбуждающего лазера в несколько ватт [7, 25]. Более того, анализ всегда выполнялся при давлении 1 атм., что имитирует реальные условия анализа газа для многих важных приложений. Измерение высокого давления — более простая задача, поскольку интенсивность КР сигнала увеличивается пропорционально давлению. Есть много применений, в которых компоненты газа следует измерять при атмосферном давлении, например, измерение концентрации паров нефти или бензина в воздухе в хранилишах.

Важным преимуществом развитого метода является масштабируемость его чувствительности, поскольку ее можно мультипликативно увеличивать множеством различных способов. Например, выходная мощность коммерчески доступных компактных твердотельных одномодовых лазеров может быть увеличена почти на порядок по сравнению с мощностью, используемой в настоящей работе, а применение малошумящих фотодетекторов с термоэлектрическим охлаждением может улучшить отношение "сигнал/шум" на порядок. Подобные конструктивные изменения КР газоанализаторов существенно не повлияют на их габариты, но потребуют переделки оптических схем имеющихся портативных КР спектрометров, что выходит за рамки данной работы.

Газовый хроматографический анализ и независимые оценки по спектрам комбинационного рассеяния дают близкие результаты, представленные в табл. 1. Возрастающая относительная погрешность при уменьшении концентрации компонентов происходит из-за уменьшения интенсивности рамановского сигнала от соответствующих компонентов. Полученная точность хорошо согласуется с точностью сигнала, достигаемой с помощью современных лабораторных КР спектрометров, однако представленные данные комбинационного рассеяния были получены с использованием малобюджетного сверх компактного спектрометра с мощностью лазера 20 мВт и временем экспозиции 4 с.

Предел обнаружения этана и пропана можно оценить примерно в 300 ppm, что в 20 раз превышает чувствительность, которая была достигнута ранее с методом HC-PCF [26]. Предел обнаружения бутана оценивается как близкий к пределам обнаружения этана и пропана. Насколько нам из-

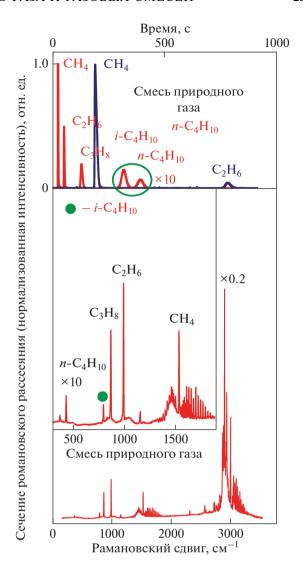


Рис. 2. КР спектры калибровочной газовой смеси, приближенные к составу природного газа, обсуждаемого в тексте, измеренные с помощью газоанализатора (мощность возбуждения — 20 мВт, время экспозиции — 4 с). В верхней части рисунка показана хроматограмма калиброванной газовой смеси, аппроксимирующая состав природного газа. Красные линии, сигнал FID; синие линии, сигнал TCD. Сигналы FID бутана и изобутана увеличены в 10 раз для лучшей видимости.

вестно, он был впервые оценен этим методом. Предложен способ дальнейшего повышения чувствительности метода.

Таким образом, разработана новая методика экспресс-количественного измерения состава природного газа с помощью компактного KP спектрометра размером  $17 \times 12 \times 5.5$  см и массой около 1 кг. Точность анализа сопоставима с точностью газовой хроматографии, но время анализа намного короче, а результаты обрабатываются автоматически. Предлагаемая методика газового

Метод/Источник данных	Концентрации компонент в смеси, мол. %				
	метан	этан	пропан	<i>н</i> -бутан	изобутан
Сертификат производителя	Остальное	$12.26 \pm 0.25$	$7.42 \pm 0.22$	$0.50 \pm 0.05$	$0.92 \pm 0.04$
Газовая хроматография	Остальное	$12.38 \pm 0.33$	$7.57 \pm 0.26$	$0.48 \pm 0.04$	$0.95 \pm 0.08$
КР спектрометрия	Остальное	$12.70 \pm 0.80$	$7.20 \pm 0.40$	$0.53 \pm 0.09$	$0.88 \pm 0.10$

Таблица 1. Сравнение результатов анализа, проведенного разными методами

анализа наиболее перспективна как новый экспресс-метод количественного контроля состава природного газа и производных смесей. Данная работа открывает возможность для создания автоматизированных КР программно-аппаратных комплексов для контроля качества газа при атмосферном и высоком давлении, а также для мониторинга процессов разделения и переработки газа.

Работа выполнена в рамках темы государственного залания ИФТТ РАН.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. ASTM D7164-10(2015). Standard practice for online/at-line heating value determination of gaseous fuels by gas chromatography. West Conshohocken: ASTM International, 2015.
- Dörr H., Koturbash T., Kutcherov V. // Meas. Sci. Technol. 2019. V. 30. No 2. Art. No 022001.
- Hilaire F., Basset E., Bayard R. et al. // J. Chromatogr. A. 2017. V. 1524. P. 222.
- 4. ASTM D1945-14. Standard test method for analysis of natural gas by gas chromatography. West Conshohocken: ASTM International, 2014.
- 5. ASTM D1946-90(2015)e1. Standard practice for analysis of reformed gas by gas chromatography. West Conshohocken: ASTM International, 2015.
- Rhoderick G.C. // J. Chromatogr. A. 2003. V. 1017. No 1–2. P. 131.
- 7. *Gao Y., Dai L.-K., Zhu H.-D. et al.* // Chin. J. Anal. Chem. 2019. V. 47. No 1. P. 67.
- 8. Buldakov M.A., Korolkov V.A., Matrosov I.I. et al. // J. Opt. Technol. 2013. V. 80. No 7. P. 426.
- Hansen S.B., Berg R.W., Stenby E.H. // Appl. Spectrosc. 2001. V. 55. No 1. P. 55.
- 10. GOST 31371.2-2008 (ISO 6974-2:2001). Natural gas. Determination of composition with defined uncertainty by gas chromatography. Part 2. Measuring-system characteristics and statistics for processing of data.

- 11. GOST 31371.3-2008 (ISO 6974-3:2001). Natural gas. Determination of composition with defined uncertainty by gas chromatography. Part 3. Determination of hydrogen, helium, oxygen, nitrogen, carbon dioxide and hydrocarbons up to c[8] using two packed columns.
- 12. Zhao Y., Yamaguchi Y., Liu C. et al. // Appl. Spectrosc. 2018. V. 72. No 2. P. 280.
- 13. Shutov A., Pestov D., Altangerel N. et al. // Appl. Sci. 2017. V. 7. No 7. P. 705.
- Spencer C.L., Watson V., Hippler M. // Analyst. 2012.
   V. 137. No 6. P. 1384.
- Lin C., Liao Y., Fang F. // Appl. Spectrosc. 2019. V. 73. No 11. P. 1327.
- Wachter E.A., Storey J.M.E., Sharp S.L. et al. // Appl. Spectrosc. 1995. V. 49. No 2. P. 193.
- Mosier-Boss P.A., Lieberman S.H. // Appl. Spectrosc. 2000. V. 54. No 8. P. 1126.
- Gu B., Tio J., Wang W. et al. // Appl. Spectrosc. 2004.
   V. 58. No 6. P. 741.
- 19. *Ghenuche P., Rammler S., Joly N.Y. et al.* // Opt. Lett. 2012. V. 37. № 21. P. 4371.
- Khetani A., Riordon J., Tiwari V. et al. // Opt. Expr. 2013. V. 21. No 10. P. 12340.
- 21. *Naji M., Khetani A., Lagali N. et al.* // Proc. SPIE 2008. V. 6865. Art. No 68650E.
- Knebl A., Yan D., Popp J., Frosch T. // Anal. Chem. 2018. V. 103. P. 230.
- 23. Ваньков А.Б., Губарев С.И., Кирпичев В.Е. и др. // Прикл. физ. 2019. No 4. C. 87.
- 24. Jourdanneau E., Chaussard F., Saint-Loup R. et al. // J. Mol. Spectrosc. 2005. V. 233. No 2. P. 219.
- Petrov D.V., Matrosov I.I. // Appl. Spectrosc. 2016.
   V. 70. No 10. P. 1770.
- 26. Buric M.P., Chen K.P., Falk J., Woodruff S.D. // Appl. Opt. 2008. V. 47. No 23. P. 4255.

# Express analysis of natural gas and gas mixtures using a portable Raman spectrometer connected to a hollow photonic crystal light guide

M. N. Khannanov<sup>a, \*</sup>, V. E. Kirpichev<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia \*e-mail: kmn@issp.ac.ru

We have developed a gas express analysis method that meets all the necessary requirements for determining the partial composition of natural gas and derivatives of gas mixtures using a portable Raman spectrometer with an excitation wavelength of 532 nm, rigidly connected to a hollow photonic crystal fiber and equipped with a gas inlet system.

УЛК 538.9

### РЕЗОНАНСНАЯ ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ В УСЛОВИЯХ ДРОБНОГО КВАНТОВОГО ЭФФЕКТА ХОЛЛА

© 2021 г. Е. И. Белозеров<sup>1, 2</sup>, А. С. Журавлев<sup>1, \*</sup>, Л. В. Кулик<sup>1, 2</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки "Институт физики твердого тела Российской академии наук", Черноголовка, Россия <sup>2</sup>Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования "Национальный исследовательский университет "Высшая школа экономики", Москва, Россия \*E-mail: and.zhur@gmail.com Поступила в редакцию 28.08.2020 г.

Поступила в редакцию  $28.08.2020 \, \Gamma$ . После доработки  $25.09.2020 \, \Gamma$ . Принята к публикации  $28.10.2020 \, \Gamma$ .

Обсуждается новый экспериментальный метод исследования объемных состояний в условиях дробного квантового эффекта Холла.

**DOI:** 10.31857/S0367676521020058

Одним из подтвержденных экспериментальных методов изучения объемных электронных состояний в режиме дробного квантового эффекта Холла (ДКЭХ) является резонансное отражение [1]. Именно в сигнале резонансного отражения впервые была обнаружена линия, связанная с состоянием ДКЭХ 1/3, отделенная спектрально от разрешенных одночастичных оптических переходов двумерной электронной системы (2D-ЭC) [2]. Однако этот метод в силу своей сложности не подходит для рутинных измерений 2D-ЭС в режиме ДКЭХ; использование же нерезонансного отражения невозможно в силу неконтролируемого фотоиндуцированного вклада в конечный результат измерений. Причина некорректности использования нерезонансной фотолюминесценции (ФЛ) состоит в том, что при возбуждении вклад в регистрируемый сигнал дают не только двухчастичные возбужденные состояния 2D-ЭС, для которых выполняются условия "скрытой симметрии", но и трехчастичные состояния, для которых никаких симметрийных ограничений на спектральные характеристики сигнала нет [3]. В работе впервые применена методика резонансной фотолюминесценции (РФЛ) для исследования состояния ДКЭХ 1/3, что позволило избавиться от нежелательной фотолюминесценции трехчастичных комплексов. Показано, что в этом случае нарушения "скрытой симметрии" не наблюдается, однако амплитуда сигнала РФЛ в условиях формирования объемного состояния ДКЭХ 1/3 изменяется настолько сильно, что это

изменение может служить индикатором этого дробного состояния.

Была использована гетероструктура с одиночной квантовой ямой GaAs/AlGaAs шириной 19 нм, с концентрацией электронов в двумерном канале  $0.84 \cdot 10^{11} \, \text{см}^{-2}$  и подвижностью более  $3.5 \cdot 10^7 \text{ см}^2 \cdot \text{B}^{-1} \cdot \text{c}^{-1}$ . Гетероструктура помещались в откачиваемый резервуар с жидким <sup>3</sup>He, который, в свою очередь, помещался в криостат со сверхпроводящим соленоидом. Оптические измерения проводились в диапазоне температур 0.45-4.2 К и в диапазоне магнитных полей 0-14 Тл с использованием двухсветоводной методики. Один световод служил для резонансного и нерезонансного возбуждения 2D-ЭC, а второй – для сбора сигнала ФЛ и РФЛ от образца и передачи сигнала на входную щель решеточного спектрометра, оборудованного охлаждаемой ПЗС камерой. Для резонансной накачки использовался полупроводниковый перестраиваемый узкополосный лазер "TOptica", а для нерезонансной – широкополосный диод с длиной волны фотовозбуждения 780 нм.

При температуре бани 1.6 К принципиальной разницы в спектрах  $\Phi$ Л и  $P\Phi$ Л не наблюдается. Спектр состоит из двух основных линий, соответствующих оптическим переходам с нулевого уровня Ландау зоны проводимости на нулевой уровень Ландау первой размерноквантованной зоны тяжелых дырок валентной зоны квантовой ямы  $(hh^{10} - e_0)$ , а также слабой линии, связанной с переходом на нижайший по энергии спиновой подуровень подзоны легких дырок  $(hh^{10} - e_0)$  (рис. 1).

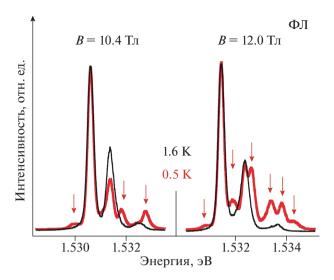


Рис. 1. Спектры нерезонансной фотолюминесценции 2D-ЭС, измеренные в двух магнитных полях при двух температурах 0.5 К (красные сплошные линии) и 1.6 К (черные сплошные линии). Стрелками указаны оптические переходы, не соответствующие каким либо разрешенным двухчастичным оптическим переходам в 2D-ЭС.

Уменьшение температуры бани до 0.5 К приводит к появлению трех дополнительных особенностей в спектрах ФЛ непосредственно в области формирования ДКЭХ 1/3 (10.4 Тл). Новые линии не связаны с какими-либо одночастичными оптическими переходами в 2D-ЭС (рис. 1). Аналогичное уменьшение температуры в области больших магнитных полей, где состояние 1/3 уже не наблюдается, приводит к появлению шести новых спектральных особенностей, что делает интерпретацию связи спектров ФЛ с определенным состоянием ДКЭХ затруднительной (рис. 1).

Основным экспериментальным результатом представленной работы является пороговое изменение интенсивностей линий РФЛ в условиях формирования ДКЭХ 1/3 при понижении температуры гелиевой бани (рис. 2). Если при температуре 1.6 К интенсивности линий переходов с нулевого уровня Ландау отражают заселенность электронных и дырочных уровней Учитывая, что практически все равновесные электроны при 0.5 К находятся на нижайшем уровне Ландау, получается парадоксальный результат: концентрация электронов на верхнем спиновом подуровне Ландау много меньше, чем на нижнем, сила осциллятора оптических переходов с нижнего спинового подуровня выше, чем с верхнего, а амплитуда РФЛ с верхнего спинового подуровня на порядок величины превышает амплитуду РФЛ с нижнего спинового подуровня. Наблюдаемый эффект имеет универсальный характер; т.е. не зависит от энер-

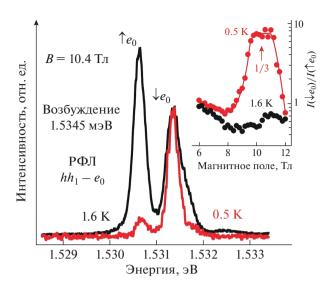


Рис. 2. Спектры резонансной фотолюминесценции (РФЛ) в области формирования ДКЭХ 1/3 при двух температурах 0.5 К (красные сплошные линии) и 1.6 К (черные сплошные линии), измеренные при резонансном возбуждении оптического перехода из размерно-квантованной подзоны легких дырок. На вставке в логарифмическом масштабе показаны зависимости отношений амплитуд линий РФЛ для перехода с верхнего и нижнего спиновых подуровней нулевого уровня Ландау электронов от магнитного поля, измеренные при температурах 0.5 К (красные сплошные точки).

гии используемого резонанса для фотовозбуждения РФЛ. Столь сильное увеличение амплитуды РФЛ может быть связано с формированием в двумерной системе неравновесного когерентного состояния из электронов на верхнем спиновом подуровне нулевого уровня Ландау. С использованием результатов точной численной диагонализации для описания основного и возбужденных состояний электронной системы на факторе заполнения 1/3 в духе работы [4], можно показать, что нижайшим по энергии возбужденным состоянием является не зарядовое возбуждение, как считалось до сих пор [5], а спиновое, причем в дисперсионной зависимости спинового возбуждения существует локальный (ротонный) минимум примерно на двух обратных магнитных длинах, в котором могут конденсироваться спиновые возбуждения. Однако, в не зависимости от физической природы наблюдаемой модификации спектра РФЛ, сама эта модификация служит экспериментальным маркером дробного состояния 1/3, а методика РФЛ может рассматриваться в качестве нового инструмента зондирования дробных состояний квантового эффекта Холла.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 20-02-00230).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Kulik L.V., Zhuravlev A.S., Dickmann S. et al. // Nat. Commun. 2016. V. 7. Art. No 13499.
- 2. *Кулик Л.В., Журавлев А.С., Бисти В.Е. и др.* // Письма в ЖЭТФ. 2014. Т. 100. С. 659.
- 3. Zhuravlev A.S., Kuznetsov V.A., Kulik L.V. et al. // Phys. Rev. Lett. 2016. V. 117. Art. No 196802.
- 4. Chakraborty T., Pietilainen P., Zhang F.C. // Phys. Rev. Lett. 1986. V. 57. P. 130.
- 5. *Girvin S.M., MacDonald A.H., Platzman P.M.* // Phys. Rev. Lett. 1985. V. 54. P. 581.

## Resonant photoluminescence under conditions of the fractional quantum Hall effect

E. I. Belozerov<sup>a, b</sup>, A. S. Zhuravlev<sup>a, \*</sup>, L. V. Kulik<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia <sup>b</sup>National Research University Higher School of Economics, Moscow, 101000 Russia \*e-mail: and.zhur@gmail.com

A new experimental technique is proposed for studying bulk states of the fractional quantum Hall effect.

УДК 537.311.322:535.37:535-47

# ИНЖЕКЦИОННЫЙ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫЙ ЛАЗЕР С ЦИРКУЛЯРНО-ПОЛЯРИЗОВАННЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ

© 2021 г. А. А. Максимов<sup>1, \*</sup>, Е. В. Филатов<sup>1</sup>, И. И. Тартаковский<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки "Институт физики твердого тела Российской академии наук", Черноголовка, Россия

\*E-mail: maksimov@issp.ac.ru Поступила в редакцию 28.08.2020 г.

После доработки 25.09.2020 г.

Принята к публикации 28.10.2020 г.

Измерены спектры и степени циркулярной поляризации излучения одиночных квантовых точек InAs, внедренных в планарный GaAs волновод полупроводниковой наноструктуры, и полупроводникового лазера с электрической накачкой на основе AlAs/AlGaAs микрорезонатора с квантовыми ямами GaAs в активной области, верхний слой которых представлял собой квадратную решетку фотонного кристалла с хиральной симметрией.

DOI: 10.31857/S0367676521020204

#### **ВВЕДЕНИЕ**

Создание компактных устройств, с помощью которых можно управлять состоянием поляризации излучаемого света является одной из центральных проблем нанофотоники. Компактные источники циркулярно-поляризованного излучения открывают (подобно спину в спинтронике) возможности их дальнейшего практического приложения в таких интенсивно развивающихся областях как квантовые технологии для передачи и записи информации и оптоэлектроника.

Одним из возможных решений задачи создания компактных поляризационных устройств является использование для этой цели наноструктур на основе обычных ахиральных  $A^{\rm III}B^{\rm V}$  полупроводников, в которых с помощью частичного травления в верхнем слое формируется модулированная структура, обладающая хиральной симметрией. Таким образом, подобные наноструктуры, в которых неэквивалентность право- и лево-поляризованных электромагнитных мод возникает изза общей хиральной симметрии системы, могут быть использованы для создания компактных источников циркулярно-поляризованного излучения без приложения внешнего магнитного поля.

В настоящей работе представлены результаты исследования спектрально-поляризационных особенностей излучения одиночных InAs квантовых точек, внедренных в планарный GaAs волновод, верхний слой которого с помощью травления выполнен в виде квадратной решетки фотонного кристалла с хиральной симметрией, а также данные по изучению в планарных GaAs/AlGaAs микрорезонаторах с квантовыми ямами в активной области и с хирально модулированным верхним брэггов-

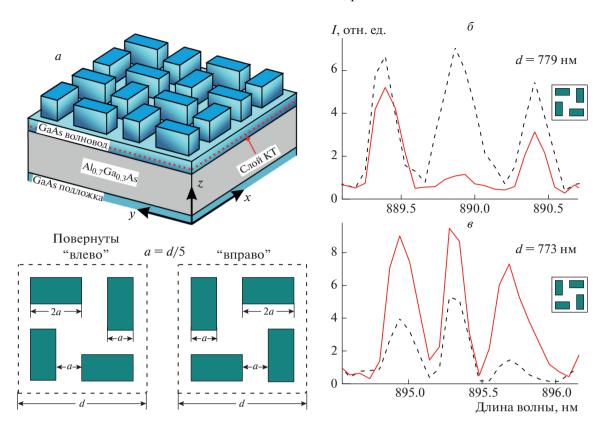
ским зеркалом циркулярно-поляризованного лазерного излучения, возникающего при токовой инжекции носителей заряда.

#### РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Циркулярно-поляризованное излучение одиночных квантовых точек

В работах [1-3] было продемонстрировано, что в наноструктурах с планарным GaAs волноводом и в AlAs/AlGaAs микрорезонаторах с брэгговскими зеркалами, в которых верхний слой структур в результате частичного травления представлял собой квадратную решетку фотонного кристалла с хиральной симметрией, излучение внедренного слоя InAs квантовых точек (KT) при оптической накачке обладало циркулярной поляризацией. Степень циркулярной поляризации  $\rho_C$  в зависимости от параметров наноструктуры могла достигать величины  $\rho_C \approx 96\%$  относительно слабого неполяризованного бесструктурного фона и ≈81% с учетом фона [3] и обладала сильной угловой зависимостью спектров излучения [4], а знак ( $\sigma^+$  или σ-) циркулярной поляризации коррелировал с соответствующей хиральностью фотонного кристалла на поверхности наноструктуры в полном согласии с теоретическими расчетами [2, 5].

Экспериментальные результаты, приведенные в работах [1—4], относятся к исследованию излучения ансамбля квантовых InAs точек. Полуширины полос излучения при этом, измеренные с высоким угловым разрешением в лучшем случае составляли ~2.3 нм [4]. Одиночная квантовая точка, помещенная в наноструктуру с хирально-модулированным верхним слоем в виде квадратной



**Рис. 1.** Схема полупроводниковой наноструктуры с волноводным хиральным слоем GaAs, содержащим слой квантовых точек; внизу — вид сверху на элементарные ячейки фотонных кристаллов с различной хиральностью (a). Спектры излучения одиночных KT в  $\sigma^+$  (сплошные кривые) и  $\sigma^-$  (пунктирные кривые) циркулярной поляризации из мез с различной хиральностью и периодом квадратной решетки фотонного кристалла d=779 нм ( $\delta$ ) и d=773 нм ( $\epsilon$ ).

решетки фотонного кристалла, является, по существу, однофотонным источником света с контролируемым знаком циркулярной поляризации излучения, который определяется хиральностью и периодом кристалла, а также длиной волны излучения [2–4]. Поэтому, несомненный интерес представляет изучение поляризационных особенностей излучения одиночных КТ в подобных наноструктурах.

В настоящей работе исследования проводились на образцах, которые представляли собой планарный GaAs волновод с внедренным слоем InAs квантовых точек. Верхний слой образца (рис. 1a) мембрана из GaAs толщиной 691 нм, выращенная на буферном слое  $Al_{0.7}Ga_{0.3}As$  толщиной 1 мкм методом молекулярно-пучковой эпитаксии, которая состоит из планарного волновода толщиной 263 нм с внедренным слоем квантовых точек InAs (излучающих в диапазоне  $\lambda = 860 - 930$  нм). На поверхности волновода в результате частичного травления мембраны GaAs на глубину 428 нм сформированы фотонные кристаллы в виде мез размером  $100 \times 100 \text{ мкм}^2$ . Верхний слой структуры с помощью травления выполнен в виде квадратной решетки фотонного кристалла с различным периодом (d = 750 - 1005 нм). Элементарная ячейка фотонного кристалла состояла из 4 вытянутых прямоугольных микростолбиков GaAs, повернутых на  $90^{\circ}$  относительно друг друга "влево" или "вправо", и обладала хиральной симметрией, как показано внизу на рис. 1a.

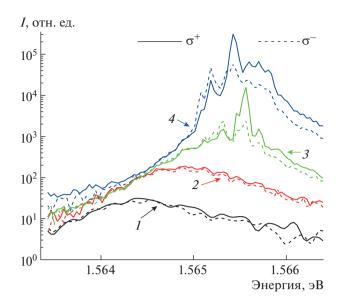
Обычно при исследовании излучения одиночных КТ используют маску с субмикронными отверстиями, которую наносят на поверхность образца. В нашем случае при наличии фотонного кристалла в верхнем слое планарного волновода наноструктуры этот метод принципиально не может быть применен. Плотность квантовых точек в слое была достаточно высока и составляла 10-20 KT/мкм<sup>2</sup> в исследуемых образцах. Поэтому для исследования поляризационных зависимостей излучения одиночных КТ (а не ансамбля КТ) требуется сформировать пятно фотовозбуждения с минимальными поперечными размерами на поверхности образца ≤1 мкм и осуществлять регистрацию излучения с одного и того же фиксированного участка выбранной мезы образца, помещенного в гелиевый оптический криостат при T = 1.8 К. Этого удалось достичь благодаря использованию объектива микроскопа с большим рабочим расстоянием (34 мм), с помощью которого одновременно осуществлялась как фокусировка излучения He-Ne лазера на поверхности образца, так и собиралось выходящее излучение из пятна возбуждения с пространственным разрешением ~1 мкм. Кроме того, специально обеспечивалась стабилизация пространственного положения (≤0.5 мкм) образца за время измерения. Спектр излучения регистрировался с помощью спектрометра МДР-23, оснащенного охлаждаемым Si-CCD-детектором.

Полученные результаты по изучению пиркулярной поляризации излучения одиночных квантовых точек с планарным GaAs волноводом (без углового разрешения) представлены на рис. 16 и 1в. Легко видеть, что в целом знак циркулярной поляризации отдельных узких полос излучения одиночных КТ коррелирует с хиральностью фотонного кристалла на мембране из GaAs. Однако степень циркулярной поляризации излучения отличается для разных КТ. Природа такого отличия может быть связана как с геометрической формой самой КТ, так и с положением КТ относительно элементарной ячейки (в центре или на периферии [2, 3, 5]). Чтобы ответить на этот вопрос, требуются эксперименты на специально выращенных наноструктурах, обладающих хиральной симметрией.

# Циркулярно-поляризованное излучение полупроводникого лазера с электрической накачкой

Возможность получения циркулярно-поляризованного лазерного излучения была пролемонстрирована в работе [6] при возбуждении оптической накачкой AlAs/AlGaAs микрорезонаторов с GaAs квантовыми ямами (КЯ) в активной области и с вытравленным на верхнем брэгговском зеркале фотонным кристаллом с хиральной симметрией. Исследования высококачественных полупроводниковых микрорезонаторов с высоким коэффициентом добротности и с допированными брэгговскими зеркалами позволило впервые реализовать поляритонный лазер с электрической накачкой, обладающий существенно более низким порогом генерации, чем обычные инжекционные полупроводниковые лазеры [7]. Следуюшим шагом в этом направлении, имеющим также прикладное значение, является получение циркулярно-поляризованного лазерного излучения в микрорезонаторах с КЯ в активной области и с хирально модулированным верхним брэгговским зеркалом при электрической накачке [8].

В настоящей работе представлены результаты исследования поляризационных и спектральных характеристик излучения лазерных структур на основе  $\lambda$ -микрорезонатора  $Al_{0.40}Ga_{0.60}As$  с четырьмя GaAs квантовыми ямами толщиной 7 нм, разделенными 4 нм  $Al_{0.40}Ga_{0.60}As$  барьерами. Нижнее брэгговское зеркало состояло из 27 допированных кремнием пар слоев  $AlAs/Al_{0.20}Ga_{0.80}As$ , а верхнее — из 23.5 пар слоев, допированных углеродом. Отдельный лазер представлял собой мик-

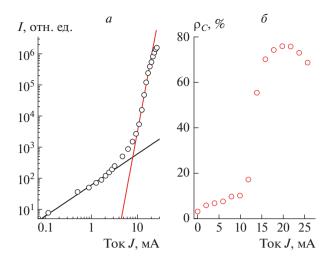


**Рис. 2.** Спектры излучения хиральной полупроводниковой лазерной структуры в  $\sigma^+$  (сплошные кривые) и  $\sigma^-$  (пунктирные кривые) циркулярной поляризации при различных значениях импульсного тока J: 1.7 (кривые I), 6.8 (кривые I), 12.7 (кривые I), 27 мА (кривые I).

ростолбик размером  $60 \times 60$  мкм². На верхнем зеркале внутри площадки, ограниченной золотым кольцевым контактом, в результате частичного травления был сформирован фотонный кристалл размером  $36 \times 36$  мкм², элементарная ячейка которого образована за счет вытравливания на глубину, равную толщине 4.75 пар слоев AlAs/Al<sub>0.20</sub>Ga<sub>0.80</sub>As четырьмя микростолбиками с основаниями в виде вытянутых прямоугольников, повернутых "влево" или "вправо" на  $90^{\circ}$  относительно друг друга. Период фотонного кристалла составлял d = 880 нм, а линейный размер хирального элемента изменялся в диапазоне 256-280 нм.

Для возбуждения излучения к каждому отдельному лазеру прикладывалось импульсное напряжение величиной до ~75 В. Импульсное возбуждение позволяло прикладывать более высокое напряжение, которое не приводило к повреждению (пробою) лазерной структуры. Длительность прямоугольных импульсов возбуждения составляла ~1 мкс при частоте следования 10 кГп.

На рис. 2 представлены спектры излучения одного из таких лазеров в различных циркулярных поляризациях при различных значениях текущего через образец импульсного тока J. При увеличении тока возникает несколько мод лазерной генерации и наблюдается резкий сверхлинейный рост интенсивности линий излучения, который сопровождался сужением их спектральной ширины до величин  $\leq$ 40 мк $\Rightarrow$ B (аппаратное разрешение спектрометра с высоким разрешением) и углового пространственного распределения до  $1.5^{\circ}-2^{\circ}$ .



**Рис. 3.** Зависимость интенсивности I (a) и степени циркулярной поляризации  $\rho_C(\delta)$  излучения полупроводникового лазера на основе хирального микрорезонатора от величины импульсного тока J.

Степень циркулярной поляризации  $\rho_C$  лазерной генерации при этом в некоторых узких линиях могла достигать величины более 90%.

Типичная зависимость интенсивности лазерного излучения от текущего через образец импульсного тока J представлена на рис. 3a. Видно, что линейная зависимость интенсивности излучения I при малых токах, сменяется резким ее сверхлинейным ростом при достижении пороговых значений тока. Следует также отметить, что степень циркулярной поляризации излучения при низких токах (в спонтанном режиме) была относительно низкой  $\rho_C \le 10\%$ , а начиная с пороговых значений импульсного тока при его увеличении наблюдается резкий рост степени циркулярной поляризации лазерного излучения (рис.  $3\delta$ ).

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные исследования спектров и поляризационных свойств излучения одиночных InAs квантовых точек, внедренных в планарный GaAs

волновод полупроводниковой наноструктуры с хиральной симметрией, и излучения полупроводникового лазера с электрической накачкой на основе AlAs/AlGaAs микрорезонатора с GaAs квантовыми ямами в активной области, верхний слой которых представлял собой квадратную решетку фотонного кристалла с хиральной симметрией показали возможность получения в наноструктурах, обладающих хиральной симметрией, циркулярно-поляризованного излучения без приложения магнитного поля. Тем самым продемонстрирована возможность реализации компактных однофотонных источников света и лазерных источников света с контролируемым циркулярнополяризованным излучением на основе хирально-модулированных полупроводниковых наноструктур.

Авторы выражают благодарность В.Д. Кулаковскому и С.Г. Тиходееву за многочисленные полезные обсуждения, а также С. Хёфлингу и Х. Шнайдеру за предоставленные образцы для исследований. Работа частично поддержана РФФИ (проекты № 19-02-00697 и № 20-02-00534).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Konishi K., Nomura M., Kumagai N. et al. // Phys. Rev. Lett. 2011. V. 106. Art. No 057402.
- Maksimov A.A., Tartakovskii I.I., Filatov E.V. et al. // Phys. Rev. B. 2014. V. 89. Art. No 045316.
- 3. *Lobanov S.V., Tikhodeev S.G., Gippius N.A. et al.* // Phys. Rev. B. 2015. V. 92. Art. No 205309.
- Максимов А.А., Пещеренко А.Б., Филатов Е.В. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2017. Т. 106. № 10. С. 615; Maksimov A.A., Peshcherenko A.B., Filatov E.V. et al. // JETP Lett. 2017. V. 106. No 10. P. 643.
- 5. Lobanov S.V., Weiss T., Gippius N.A. et al. // Opt. Lett. 2015. V. 40. No 7. P. 1528.
- 6. Demenev A.A., Kulakovskii V.D., Schneider C. et al. // Appl. Phys. Lett. 2016. V. 109. Art. No 171106.
- 7. Schneider C., Rahimi-Iman A., Kim N.Y. et al. // Nature. 2013. V. 497. No 7449. P. 348.
- 8. *Максимов А.А.*, *Филатов Е.В.*, *Тартаковский И.И. и др.* // Тр. XXIV междунар. симп. (Нижний Новгород, 2020). Т. 2. С. 653.

## Electrically pumped semiconductor laser with circularly polarized radiation

A. A. Maksimov<sup>a, \*</sup>, E. V. Filatov<sup>a</sup>, I. I. Tartakovskii<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia

\*e-mail: maksimov@issp.ac.ru

The radiation and circular polarization degree spectra were studied from single InAs quantum dots embedded in a planar GaAs waveguide and an electrically pumped semiconductor laser based on an AlAs/AlGaAs microcavity with GaAs quantum wells in the active region. The upper layers of the investigated semiconductor nanostructures were fabricated as a square lattice of a photonic crystal with chiral symmetry.

УЛК 535.2

# УЛУЧШЕННЫЙ МЕТОД МЕХАНИЧЕСКОГО ПЕРЕНОСА МОНОСЛОЕВ ДИХАЛЬКОГЕНИДОВ ПЕРЕХОДНЫХ МЕТАЛЛОВ ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ КАЧЕСТВЕННЫХ ГЕТЕРОСТРУКТУР НА ИХ ОСНОВЕ

© 2021 г. А. В. Черненко<sup>1, \*</sup>, А. С. Бричкин<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки "Институт физики твердого тела Российской академии наук", Черноголовка, Россия \*E-mail: chernen@issp.ac.ru

Поступила в редакцию 28.08.2020 г.

После доработки 25.09.2020 г.

Принята к публикации 28.10.2020 г.

Предлагается улучшенный метод "подъема-переноса" для получения гетероструктур на основе дихалькогенидов переходных металлов и гексагонального нитрида бора. Метод позволяет создавать структуры более высокого качества, чем "традиционный" метод переноса благодаря минимизации контакта полидиметилсилоксана со слоями гетероструктуры. Модификации касаются формы используемого для сбора гетероструктуры полимера, а также температурного режима, позволяющего получать качественные многослойные структуры, минуя обработку растворителем.

**DOI:** 10.31857/S0367676521020071

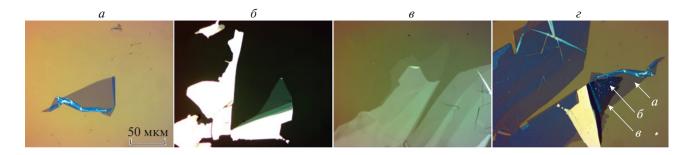
Создание высококачественных многослойных структур на основе дихалькогенидов переходных металлов (ДПМ) является актуальной темой современной физики Ван-дер-ваальсовых материалов [1, 2]. Эти материалы перспективны для оптоэлектронных приложений, а также для спектроскопических исследований. Однако монослои ДПМ быстро деградируют при контакте с атмосферой, что хорошо заметно при исследовании фотолюминесценции. Чтобы избежать деградации, моно- и гетерослои помещаются между тонкими, толщиной 5—30 нм, слоями гексагонального нитрида бора hBN [2, 3].

Наиболее распространенная технология создания инкапсулированных структур типа hBN — монослой ДПМ-hBN включает в себя три этапа: 1) эксфолиацию слоев чистого материала-ДПМ и hBN на пленку полидиметилксилоксана (ПДМС); 2) выбор наилучших "чешуек" (англ. flakes) — монослоев ДПМ и слоев hBN и очищение пленки от лишнего материала, оставшегося после эксфолиации; 3) сборка гетероструктуры посредством последовательного переноса чешуек с ПДМС на подложку Si/SiO<sub>2</sub>. Этот метод широко используется для получения многослойных гетероструктур и подробно описан в литературе [1, 2]. Структура hBN-WSe<sub>2</sub>-hBN, собранная "традиционным" способом, показана на рис. 1. Однако сборка гетероструктур этим методом приводит к появлению на интерфейсах пузырей с размерами от десятков нанометров до микронных [4, 5]. Пузыри

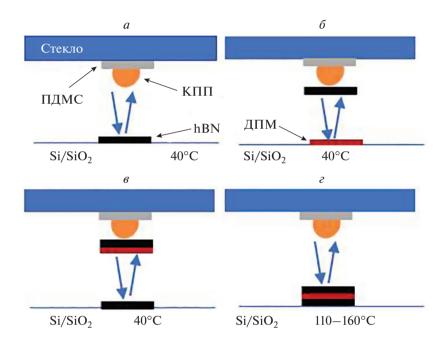
образуются из-за неизбежного загрязнения поверхности ПДМС и деформации монослоев при переносе с ПДМС на подложку. Пузыри нарушают однородность интерфейсов и ухудшают свойства структур. Для минимизации контакта переносимых слоев с ПДМС, в работе [5] был предложен метод сборки гетероструктур, заключающийся в использовании для переноса слоя карбоната полипропилена (КПП), нанесенного на ПДМС. Чистота интерфейсов при сборке гетероструктур достигается отрывом чешуек от подложки  $Si/SiO_2$  и переносом на КПП или на другую чешуйку, что позволяет избежать контакта с ПДМС. Эта техника, изначально предложенная для графена, была применена нами для получения структур с монослоями ДПМ.

Еще одним преимуществом метода "подъемапереноса", помимо исключения контакта чешуек с ПДМС, является то, что они сначала переносятся на очищенную в кислородной плазме подложку  $Si/SiO_2$ . В этом случае 1) поверхность чешуек, ложащихся на подготовленную подложку, остается чистой; 2) перенос на подложку позволяет отделить монослои от более толстых слоев, поскольку толстые слои хуже абсорбируются на поверхности.

Для сборки структур используется стандартная установка, включающая микроскоп с изменяемым увеличением, трехкоординатная прецизионная подвижка и столик с нагревателем. Этапы сборки гетероструктуры методом "подъемапереноса", схематически представлены на рис. 2.



**Рис. 1.** Изображение нижней чешуйки hBN на подложке  $SiO_2/Si$  (a); чешуйка  $WSe_2$ , монослой треугольник ( $\delta$ ); верхняя, закрывающая чешуйка hBN на ПДМС; чешуйка hBN на подложке  $SiO_2/Si$  (s); гетероструктура, собранная из слоев, показанных на других частях рисунка (белые точки — пузыри на интерфейсах) (s). Соответствующие слои указаны стрелками. Масштаб общий для всех рисунков. Для создания гетероструктур использовался коммерческий материал фирмы HQgraphene.

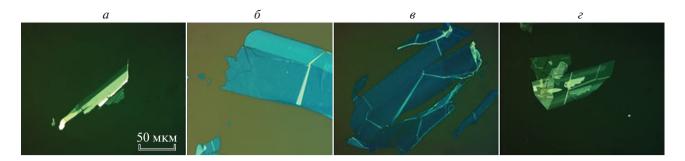


**Рис. 2.** Иллюстрация процесса сборки гетероструктуры. Подбор верхнего слоя hBN с подложки SiO<sub>2</sub>/Si (a); подбор монослоя ДПМ на hBN с подложки ( $\delta$ ); подбор нижнего слоя hBN ( $\theta$ ); нагрев до высокой температуры и отрыв КПП от гетероструктуры ( $\epsilon$ ).

Оказалось, что для сборки ДПМ структур вместо плоской пленки удобнее использовать КПП в форме капли. Для этого КПП растворялся в анизоле, с помощью шприца раствор наносился на слой ПДМС и полимеризовался в течение суток. В "традиционном" методе сборки гетероструктур производится последовательный перенос слоев hВN и монослоев ДПМ, фиксированных на пленке ПДМС силами Ван-дер-Ваальса, на подложку. При этом мягкий слой ПДМС неконтролируемо деформируется, что часто приводит к разрывам монослоев и появлению пузырей на интерфейсах. Исключение контакта с ПДМС в технике "подъема—переноса" осуществляется с помощью подъема чешуек с подложки на каплю КПП. Сила

адгезии в этом случае заметно больше, чем при контакте с ПДМС, что гарантирует надежную поэтапную сборку слоев без повреждения. КПП в форме капли позволяет значительно уменьшить пятно контакта КПП и подложки (менее 500 мкм), и это облегчает совмещение и сборку слоев. Размеры капель варьировались в диапазоне 2—3 мм. Поверхность капли оказывается неоднородной, на ней может существовать несколько максимумов, и абсорбция чешуек происходит на одном из них. Чтобы выбрать нужный максимум, капля КПП предварительно опускалась на край подложки.

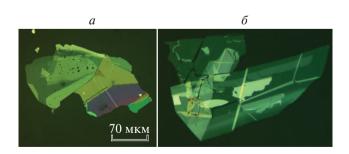
Критически важным для успеха метода "подъема—переноса" оказался подбор темпера-



**Рис. 3.** Изображение чешуйки  $WSe_2$  на подложке  $SiO_2/Si$  (*a*); нижняя чешуйка hBN (*b*); верхняя, закрывающая чешуйка hBN (*b*); гетероструктура, собранная улучшенным методом "подъема—переноса" из слоев, показанных на других частях рисунка (*г*). Масштаб общий для всех рисунков.

туры для отрыва КПП от гетероструктуры, изображенной на рис. 2г. Температура подложки не должна превышать определенную, близкую к температуре плавления КПП ~180°C, иначе при подъеме часть капли останется на гетероструктуре. В работе [6] следы КПП на гетероструктуре убирались растворителем. Однако наш опыт показал, что качество структур при этом ухудшается. Во избежание этого, капля КПП с пробным слоем hBN опускалась на подложку и подбиралась температура, при которой hBN оставался на подложке. После этого выполняется перенос гетероструктуры. В отличие от процедуры, описанной в статье [5], нами было установлено, что этапы 1-3, изображенные на рис. 2, могут гарантированно выполняться при температурах подложки 40-50°C, тогда как авторы [5] предлагали для этапов 2 и 4 (рис. 26 и 2г) поднимать температуру до 110°C. Между тем, такой температурный режим оказался неоптимальным и часто приводил к отрыву чешуек от КПП на этапе 2 и, наоборот, не обеспечивал отрыв КПП от собранной структуры на этапе 4.

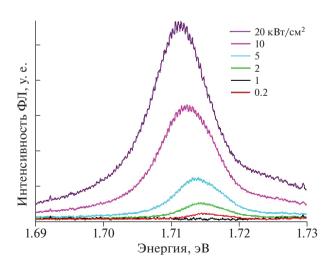
Фотография гетероструктур, полученных таким способом, продемонстрировала отсутствие пузырей на интерфейсах, что видно на рис. 4б. Для сравнения на рис. 4а приведена фотография гете-



**Рис. 4.** Гетероструктура hBN-WSe $_2-$ hBN, полученная "традиционным" способом (a). Черные точки — пузыри на интерфейсе. Гетероструктура, полученная способом "подъема—переноса" ( $\delta$ ). Пузыри не заметны.

роструктуры, полученной "традиционным" способом. Анализ спектров фотолюминесценции, типичные из которых привеленные на рис. 5, показал, что интенсивность фотолюминесценции в структурах, собранных улучшенным методом, оказалась примерно в два раза выше полученных "традиционным" методом. Однако, ширины линий фотолюминесценции при обеих технологиях оказались практически одинаковыми (~7 мэВ). Вероятно, это связано с тем, что на интерфейсе формируются пузыри малого размера, невидимые визуально. Возможно, этот недостаток можно исправить подбором оптимального температурного режима для переноса чешуек на КПП. Нельзя исключать и того, что причины неоднородного уширения линий не связаны с пузырями. Этот пункт требует дополнительных исследований.

Таким образом, метод "подъема-переноса" для получения гетероструктур на основе ДПМ, кото-



**Рис. 5.** Спектры фотолюминесценции гетероструктуры hBN—WSe<sub>2</sub>—hBN при разных накачках. Длина волны возбуждающего лазера 532 нм. Измерения проведены при температуре 2 К.

рый минимизирует использование ПДМС как промежуточного этапа в создании гетероструктур, позволяет получить интерфейсы более высокого качества, чем "традиционный" метод. Это достигается исключением контакта монослоев с ПДМС при переносе на гетероструктуру. Улучшение метода заключается в использовании капли КПП вместо плоского слоя, тщательном выборе оптимальной точки на капле КПП и подборе температуры, при которой происходит отрыв гетероструктуры от капли для каждого конкретного образца. Такой подход позволяет избежать использование растворителя для удаления КПП с поверхности гетереструктур.

Работа выполнена в рамках темы государственного залания ИФТТ РАН.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. *Kolobov A.V., Tominaga J.* Two-dimensional transition-metal dichalcogenides. Berlin: Springer, 2016.
- 2. Geim A.K., Grigorieva I.V. // Nature. 2013. V. 499. P. 419.
- 3. Dean C., Young A., Meric I. et al. // Nat. Nanotech. 2010. V. 5. P. 722.
- 4. Khestanova E., Guinea F., Fumagalli L. et al. // Nat. Commun. 2016. V. 7. Art. No 12587.
- 5. Pizzocchero F., Gammelgaard L., Jessen B. et al. // Nat. Commun. 2016. V. 7. Art. No 11894.
- 6. Purdie D.G., Pugno N.M., Taniguchi T. et al. // Nat. Commun. 2018. V. 9. Art. No 5387.

# Improved mechanical exfoliation technique for transition metals dichalcogenide structures

A. V. Chernenko<sup>a, \*</sup>, A. S. Brichkin<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institute of Solid State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia \*e-mail: chernen@issp.ac.ru

An improved "pick up" method is proposed for heterostructures based on transition metal dichalcogenides and hexagonal boron nitride. The method makes it possible to create structures of higher quality than the "traditional" transfer method by minimizing the contact of polydimethylsiloxane with the layers of the heterostructure. Modifications relate to the shape of the polymer used for collecting the heterostructure, as well as the temperature regime that allows obtaining high-quality multilayer structures, bypassing solvent treatment.

# Волновые явления в неоднородных средах

Редактор тематического выпуска

канд. физ.-мат. наук А. Н. Калиш

УЛК 621.315.592:621.373

## ПРОСТРАНСТВЕННОЕ И СПЕКТРАЛЬНОЕ РАЗДЕЛЕНИЕ КАНАЛОВ ГЕНЕРАЦИИ ИЗЛУЧЕНИЯ В МОЩНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ДИОДАХ

© 2021 г. А. Г. Ржанов\*

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования "Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова", физический факультет, Москва, Россия \*E-mail: rjanov@mail.ru

Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Изучена взаимосвязь между количеством (шириной) нефазированных когерентных каналов генерации излучения мощного лазерного диода с широким контактом и спектральным разделением этих каналов в пределах линии усиления. Обсуждаются причины, приводящие к такому разделению, в связи с трансформацией параметров активной среды по мере функционирования лазера.

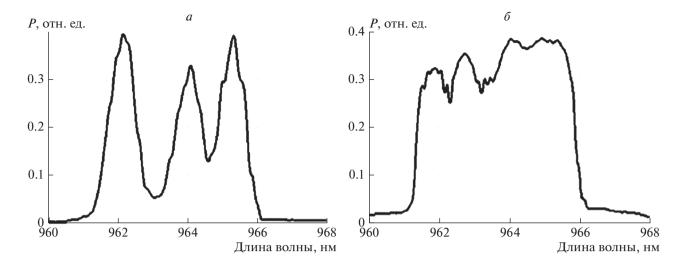
**DOI:** 10.31857/S036767652102023X

#### **ВВЕДЕНИЕ**

Формирование каналов генерации в лазерных диодах (ЛД) выявлено давно [1, 2]. Это явление было обнаружено экспериментально в ЛД планарной технологии с двойной гетероструктурой (ДГС) [2], где были исследованы маломощные ЛД (до 1 мВт) с широким контактом (ЛДШК) более 50 мкм. Причиной возникновения этого явления служат сильные нелинейности в активной среде ЛД, возникающие даже при небольшой мощности излучения. Это объяснялось, прежде всего, несовершенством технологии роста слоев ДГС при жидкофазной эпитаксии, приводящей к неравномерностям распределения примесей и дислокаций, неоднородностям толщины активного слоя в пределах ширины контакта. Экспериментально также наблюдалась многоканальная генерация, сопровождающаяся самосинхронизацией мод внутри каналов, либо пространственно-временным хаосом [2]. Современные ЛДШК с квантовой ямой (КЯ) показывают схожие режимы генерации, но при больших мощностях (от 0.5 Вт и выше) [3]. Это говорит о том, что есть фундаментальный механизм, ограничивающий размеры областей генерации в ЛДШК и не зависящий от качества изготовления полупроводниковых слоев, а именно - когерентность излучения. При этом причины образования каналов остаются теми же, что были ранее в ЛДШК без КЯ и с худшим качеством изготовления слоев. Особенности КЯ в качестве усиливающей условно двумерной среды проявляются в том, что, по сравнению с "объемными" (без квантово-размерного эффекта) активными средами, ЛД с КЯ имеет спектр излучения как минимум на порядок уже (4–6 нм по длине волны). При этом усиление в максимуме линии оказывается примерно во столько же раз больше при одинаковых плотностях тока накачки. Это обстоятельство приводит к необходимости учитывать влияние нелинейной рефракции, а также степени когерентности, на спектрально-пространственные характеристики излучения мощных ЛД [4].

#### МОДЕЛИРОВАНИЕ ЛАЗЕРНЫХ ДИОДОВ

В 80-х гг. прошлого века впервые появились работы по моделированию процессов в ЛД [5, 6], послужившие основой для современных распределенных моделей. В силу своих особенностей модели для ЛДШК требуют усовершенствованных подходов к математическому моделированию динамики и статики их излучения. Современная базовая модель, описывающая самосогласованное взаимодействие излучения, накачки и многослойной активной полупроводниковой структуры описана, например, в работах [7–9]. В основе всех самосогласованных моделей ЛД лежат кинетические (скоростные) уравнения, которые описывают баланс концентраций неравновесных носителей и фотонов в активной области лазера. В распределенных моделях ЛД учитывается неоднородное по пространству взаимодействие между лазерным излучением и неравновесными носителями. Кроме того, в распределенной



**Рис. 1.** Экспериментальные спектры ЛДШК (a) начальный спектр, ( $\delta$ ) спектр после 30 ч непрерывной работы при мощности излучения 0.5 Вт [9].

модели присутствует волновое уравнение для расчета оптического поля в ЛД.

Результаты расчета ближнего поля ЛДШК по модели, описанной в [7—9], при наличии трех каналов генерации в предположении о том, что число каналов известно заранее, можно найти в работах [4, 8, 9]. Экспериментальный спектр [10] ЛДШК, который показан на рис. 1a, соответствует трехканальной генерации ЛД с шириной контакта W = 100 мкм. Каждому пространственному каналу генерации соответствует своя линия в спектре излучения ЛД.

Была поставлена задача определить связь между величиной пространственной ширины одного канала генерации  $w_0$  (или количества каналов  $W/w_0$  для известной ширины Wактивной области ЛД) со спектральным диапазоном линии, отвечающей излучению одного канала, и такими параметрами лазера как длина диффузии неравновесных носителей и коэффициент нелинейной рефракции КЯ. Ширина линии спектра одного канала генерации при токе накачки 1 A, что соответствует двукратному превышению порога, в эксперименте [10, 11] составила величину около  $\Delta \lambda_{\text{канал}} = 1$  нм (рис. 1*a*). Основные параметры используемого в эксперименте ЛДШК были следующие. Длина резонатора L=2 мм, ширина накачиваемой области W = 100 мкм, толщина КЯ d == 12 нм, толщина волноводных слоев  $d_w = 2$  мкм, показатели преломления слоев без накачки  $n_{\rm KS}$  = = 3.64 и  $n_{\rm B} = 3.52$ , коэффициент оптического ограничения KЯ  $\Gamma = 0.012$ , коэффициенты отражения зеркал по интенсивности  $R_1 = 0.065$ ,  $R_2 = 0.99$ , диссипативные потери  $\alpha_{\rm m} = 3.4~{\rm cm}^{-1}$ , время спонтанной рекомбинации неравновесных носителей в КЯ  $\tau_{cn} = 2.7$  нс.

Для расчета оптического поля мы используем одномерное волновое уравнение, подразумевающее когерентность получаемых решений. От концентрации неравновесных носителей N зависит комплексная эффективная диэлектрическая проницаемость лазерного волновода, определяемая согласно методу эффективного показателя преломления [8, 12]:

$$\varepsilon(N(y)) = \varepsilon^0 - AN(y) + j(BN(y) - F), \tag{1}$$

где  $\varepsilon^0 = 12.67$  — действительная часть эффективной диэлектрической проницаемости "холодного" резонатора A, B, F — эффективные коэффициенты нелинейной рефракции, дифференциального усиления и потерь, рассчитываемые по известным соотношениям [8, 9].

Материальное соотношение (1) входит в комплексное уравнение Гельмгольца при следующей зависимости электрического поля от времени t, латеральной и аксиальной координат y и z  $E(y,z,t) = \psi(y) \exp(j(\omega t - \beta z))$ :

$$\frac{d^2 \psi_j(y)}{dy^2} + \left(\frac{\omega_j^2}{c^2} \varepsilon(y) - \beta^2\right) \psi_j(y) = 0, \tag{2}$$

где c — скорость света в вакууме,  $\omega_j$  — частота моды оптического излучения,  $\beta$  — продольная постоянная распространения,  $\psi_j(y)$  — латеральные собственные функции.

#### ДЛИНА КОГЕРЕНТНОСТИ И ШИРИНА КАНАЛА ГЕНЕРАЦИИ

Записывая уравнение (2) для оптического поля мы подразумеваем когерентное излучение ЛД. Однако, рассматривая экспериментальные спек-

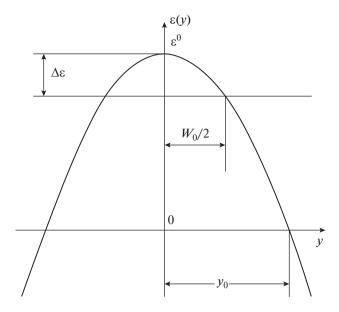


Рис. 2. Профиль параболического волновода.

тры мошных ЛДШК [4, 10, 11, 13], можно сказать, что оказывается невозможно адекватно рассчитать распределение оптического поля на зеркале ЛД, так как каналы излучения несфазированы (некогерентны) между собой. Это заключение основано на том, что несколько линий в спектре ЛД-ШК соответствуют такому же количеству нефазированных пространственных каналов генерации. При ширине наблюдаемого спектра ЛДШК 6 нм [9], и характерной для ЛД длине когерентности в несколько сантиметров [14], расчет показывает, что на ширине 20—40 мкм когерентность лазерного излучения разрушается [9]. С другой стороны, существует известная связь между спектральной шириной линии излучения  $\Delta \lambda_{\text{ког}}$  и длиной когерентности  $L_{\text{ког}}$  [15]:

$$\Delta \lambda_{\text{KOF}} = \frac{\lambda_0^2}{2L_{\text{KOF}}}.$$
 (3)

Здесь  $\lambda_0 = 964$  нм средняя длина волны лазерного излучения ЛДШК. Расчет по этой формуле дает значение спектральной ширины линии излучения  $\Delta\lambda_{\text{ког}} = 0.019$  нм при  $L_{\text{ког}} = 2.5$  см, что не соответствует ширине спектральных линий на рис. 1, которая составляет около  $\Delta\lambda_{\text{канал}} = 1$  нм. Это можно объяснить тем фактом, что наблюдаемый в эксперименте спектр имел разрешение по длине волны около 0.1 нм, тогда как спектральный интервал между продольными модами в лазерном резонаторе длиной L = 2 мм составляет  $\Delta\lambda_{\text{прод}} = 0.065$  нм. В эксперименте наблюдалась огибающая линия спектра, а не точно прописанный спектр. Близкую к спектральному межмодовому расстоянию имеет и ширина резонансов Фабри-

Перо  $\Delta\lambda_{\text{линия}\,\Phi\Pi}=0.043$  нм, определяемая величиной добротности "холодного" резонатора [8, 9]  $Q_x=2.23\cdot 10^4$ . Таким образом, оценка показывает, что в рассматриваемом ЛДШК длина когерентности соответствует ширине спектра излучения, скорее близкой к ширине резонанса Фабри-Перо, чем спектра канала генерации. При этом в одну спектральную линию канала генерации попадает излучение от  $\Delta\lambda_{\text{канал}}/\Delta\lambda_{\text{прод}}=15$  мод.

Воспользуемся результатами теории оптических волноводов [12]. В работе [9] была рассчитана связь между длиной когерентности излучения  $L_{\rm ког}$  и шириной когерентного канала  $w_0$ . Наиболее близкий к экспериментальным данным [4, 10, 11] результат дает использование модели планарного трехслойного волновода в рамках теории дифракции при учете отражений от ограничивающих резонатор плоских зеркал [9, 16]:

$$w_0 = \sqrt{\frac{\lambda_0 L_{\text{KOT}}}{2\pi n_{\text{9} \oplus 0}}},\tag{4}$$

где  $n_{9\Phi0} \approx \sqrt{\epsilon^0}$  — эффективный показатель преломления фундаментальной латеральной моды. Оценка по формуле (4), сделанная для величины  $L_{\rm kor} = 2.5$  см, дает значение  $w_0 = 33$  мкм, что соответствует трем каналам на ширине 100 мкм.

#### ПРИМЕНЕНИЕ ВАРИАЦИОННОЙ ТЕОРЕМЫ В МОДЕЛИ ПАРАБОЛИЧЕСКОГО ВОЛНОВОДА

Учет самофокусировки излучения за счет нелинейной рефракции позволяет рассматривать в качестве приближения локальный волновод с ограниченным квадратичным профилем, изображенный на рис. 2, и также оценить ширину установившегося канала генерации через длину когерентности. При использовании модели наведенного нелинейной рефракцией параболического волновода профиль действительной части эффективной диэлектрической проницаемости записывается в следующем виде:

$$\varepsilon(y) = \varepsilon^0 \left( 1 - \left( \frac{y}{y_0} \right)^2 \right), \tag{5}$$

где  $y_0$  — ширина модельного представления диэлектрической проницаемости, как показано на рис. 2. Величины  $w_0$  и  $y_0$  оказываются связаны между собой соотношением [12]:

$$w_0 = \sqrt{\frac{\lambda_0 y_0}{2\pi n_{9\Phi 0}}},\tag{6}$$

где  $n_{\rm s \phi \, 0}$  — эффективный показатель преломления фундаментальной моды, принимаемый в расчетах равным  $n_{\rm s \phi \, 0}$  = 3.56.

Из сравнения формул (4) и (6) следует, что ширина квадратичного модельного волновода оказывается равной длине когерентности излучения в данном канале:

$$y_0 = L_{\text{KO}\Gamma}. (7)$$

Соотношение (6) соответствует случаю фундаментальной моды волновода (5), то есть основному решению уравнения (2) в виде функции Гаусса:

$$\psi_0(y) = \pi^{-1/4} \exp\left(-\frac{y^2}{2w_0^2}\right),$$
(8)

где учтено условие нормировки:

$$\frac{1}{w_0} \int_{-\infty}^{+\infty} |\psi_0(y)|^2 dy = 1.(9)$$

Для расчета ширины спектра излучения канала генерации, возникающем в результате самофокусировки можно воспользоваться вариационной теоремой [12], рассматривая малые вариации действительной части профиля диэлектрической проницаемости  $\Delta \varepsilon = A \cdot \Delta N$  (1), вызванные нелинейной рефракцией при малых отклонениях профиля концентрации неравновесных носителей  $\Delta N$ . Согласно вариационной теореме, учитывая (5), имеем выражение для расчета спектральной ширины линии канала:

$$\Delta \lambda_{\text{канал}} = \lambda_0 \frac{\int_{-u_0}^{+u_0} \varepsilon^0 u^2 |\psi_0(u)|^2 du}{\int_{-+\infty}^{+\infty} |\psi_0(u)|^2 du},$$
 (10)

где  $u = y/y_0$ ,  $u_0 = w_0/(2y_0)$  — нормированные координата и полуширина канала.

Использование модели параболического профиля волновода (5) и результатов применения вариационной теоремы (10), связывающей вариации длины волны с отклонениями диэлектрической проницаемости дает оценку для ширины спектра канала генерации:  $\Delta \lambda_{\rm канал} = 0.9$  нм.

#### СПЕКТРАЛЬНАЯ ШИРИНА КАНАЛА ГЕНЕРАЦИИ И НЕЛИНЕЙНАЯ РЕФРАКЦИЯ

Для сравнения с предыдущим расчетом рассмотрим более грубую оценку ширины спектра лазерного канала, в которой используем значения вариации концентрации неравновесных носителей  $\Delta N$ , полученные при численном моделировании. Предположим, что вариации действительной части диэлектрической проницаемости (1) определяются в центре и сбоку (на расстоянии  $w_0/2$ ) канала для постоянного значения номера

продольной моды M, а вариации длины волны излучения  $\Delta \lambda_{\text{канал}}$  оцениваются согласно следующему правилу:

$$\Delta \lambda_{\text{\tiny KAHAJ}} = \lambda_0 \frac{\Delta \varepsilon}{2\varepsilon_0},\tag{11}$$

где, согласно формуле (1),  $\Delta \varepsilon = A \cdot \Delta N$ ,  $\Delta N$  — вариация концентрации инжектированных носителей в центре канала. Из численных расчетов при двойном превышении порога мы получили значение  $\Delta N = 1.4 \cdot 10^5 \ \mathrm{Mkm^{-3}}$  (для сравнения, расчетное пороговое значение концентрации равно  $N_{\mathrm{пор}} = 3.5 \cdot 10^6 \ \mathrm{Mkm^{-3}}$ ). Коэффициент нелинейной рефракции составлял  $A = 2.5 \cdot 10^{-7} \ \mathrm{Mkm^{3}}$ . Подстановка этих значений в (8) дает величину  $\Delta \lambda_{\mathrm{канал}} = 1.3 \ \mathrm{hm}$ , что вполне согласуется с экспериментом (рис. 1a).

При такой грубой оценке ширина спектральной линии канала  $\Delta\lambda_{\text{канал}}$  явно не связана с его пространственным размером  $w_0$ . Однако опосредованно эти величины должны быть зависимы из-за очевидной связи между вариацией  $\Delta N$  и шириной этого волновода. При данном токе накачки должно сохраняться среднее количество "выжигаемых" носителей в единицу времени в пределах одного канала, как это предусмотрено в простейшей модели ЛД.

Приведенные выше рассуждения и оценки нужны для объяснения экспериментальных результатов, представленных на рис. 1. Обнаруженное в эксперименте увеличение числа каналов генерации (уменьшение их пространственной ширины) и насыщение спектра ЛДШК в процессе длительной эксплуатации объяснимо, если предположить рост величины параметра нелинейной рефракции А в этом процессе. Этот рост сопровождает медленную деградацию прибора. Расчеты и эксперимент показывают возможность роста величины параметра A в пределах  $10^{-7}-10^{-6}$  мкм<sup>3</sup>, что приводит в ЛДШК, кроме появления новых каналов в резонаторе и новых линий в спектре, к пространственному сужению и спектральному уширению уже существующих каналов генерации. В этом процессе пространственные каналы между собой "расталкиваются", а спектральные линии начинают все больше перекрывать друг друга (рис. 1б).

#### **ЗАКЛЮЧЕНИЕ**

Таким образом, показана связь между нелинейной рефракцией, когерентностью и спектральнопространственными размерами каналов генерации в мощных ЛДШК. Эти результаты можно использовать для экспериментального определения текущей работоспособности и ресурса работы лазерных диодов большой мощности по виду наблю-

даемых пространственного и частотного спектров излучения этих устройств.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Алферов Ж.И. // ФТП. 1998. Т. 32. № 3. С. 3.
- Logginov A.S., Vinogradov I.I. // Proc. SPIE. 1995. V. 2513. P. 799.
- 3. *Тарасов И.С.* // Квант. электрон. 2010. Т. 40. № 8. С. 661; *Tarasov I.S.* // Quant. Electron. 2010. V. 40. No 8, P. 661.
- 4. *Близнюк В.В., Брит М.А., Гадаев И.С. и др. //* Изв. PAH. Сер. физ. 2015. Т. 79. № 12. С. 1666; *Bliznyuk V.V., Brit M.A., Gadaev I.S. et al. //* Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2015. V. 79. No 12. P. 1458.
- Buus J. // IEEE J. Quant. Electron. 1982. V. QE-18. No 7. P. 1083.
- Buus J. // IEEE J. Quant. Electron. 1983. V. QE-19. No 6. P. 953.
- 7. *Ржанов А.Г., Гвердцители В.И., Арбаш А.* // Вестн. РУДН. Сер. мат. инф. физ. 2009. Т. 3. № 65. С. 69.

- 8. *Рэканов А.Г.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2018. Т. 82. № 1. С. 6; *Rzhanov A.G.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2018. V. 82. No 1. P. 1.
- 9. *Рэканов А.Г.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2018. Т. 82. № 11. С. 1508; *Rzhanov A.G.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2018. V. 82. No 11. P. 1371.
- Koval O.I., Rzhanov A.G., Solovyev G.A. // Phys. Wave Phenom. 2013. V. 21. No 4. P. 287.
- 11. *Коваль О.И., Ржанов А.Г., Соловьев Г.А.* // Уч. зап. физ. фак-та МГУ. 2013. № 5. С. 135041.
- 12. *Когельник Г. //* в кн.: Волноводная оптоэлектроника. М.: Мир, 1991. 574 с.
- 13. Bliznyuk V.V., Koval O.I., Rzhanov A.G., Vinogradova E.E. // EPJ Web Conf. 2017. V. 161. Art. No 03004.
- 14. http://www.holography.ru/files/holmich.htm#top.
- 15. Лукин А.В. // Опт. журн. 2012. Т. 79. № 3. С. 91.
- 16. *Ржанов А.Г.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2020. Т. 84. № 2. С. 221; *Rzhanov A.G.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2020. V. 84. No 2. P. 169.

# Spatial and spectral separation of radiation generation channels in high-power laser diodes

#### A. G. Rzhanov\*

Lomonosov Moscow State University, Faculty of Physics, Moscow, 119991 Russia
\*\*e-mail: rianov@mail.ru

The relationship between the number (width) of non-phased coherent channels for generating radiation from a high-power laser diode with a wide contact and the spectral separation of these channels within the laser gain spectrum is considered. The reasons leading to this separation are discussed in connection with the transformation of the active medium parameters during the laser operation.

УЛК 621.315.592:621.373

# ОПРЕДЕЛЕНИЕ СКОРОСТИ ДЕГРАДАЦИИ МОЩНОГО ЛАЗЕРНОГО ДИОДА ПО ЗАВИСИМОСТИ СПЕКТРА ИЗЛУЧЕНИЯ ОТ ВАРИАЦИЙ ТОКА НАКАЧКИ

© 2021 г. В. В. Близнюк<sup>1, \*</sup>, В. А. Паршин<sup>1</sup>, А. Г. Ржанов<sup>2</sup>, А. Е. Тарасов<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования "Национальный исследовательский университет "МЭИ", Москва, Россия

<sup>2</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования "Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова", физический факультет, Москва, Россия \*E-mail: 40595141@mail.ru

Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Предложена методика измерения темпа деградации мощного непрерывного лазерного диода с широким контактом путем контроля состояния его гетероструктуры через каждые пятьдесят часов наработки. В качестве контролируемого параметра используется количество и структура каналов генерации лазера. Рассмотрен механизм деградации структуры лазерного диода, проявляющийся во временной зависимости числа каналов генерации.

#### **DOI:** 10.31857/S036767652102006X

#### **ВВЕДЕНИЕ**

Полупроводниковые лазерные диоды (ЛД) с квантово-размерными гетероструктурами и мощностью непрерывной генерации от нескольких сотен милливатт до единиц ватт нашли широкое применение в разных областях науки и техники [1—5]. Важнейшим технико-экономическим параметром ЛД является срок службы. Именно поэтому разработке новых методик контроля состояния гетероструктуры ЛД и прогнозирования их срока службы, а также совершенствованию таких методик на протяжении нескольких десятилетий уделяется самое пристальное внимание.

Известны несколько методик контроля состояния мощных ЛД и прогнозирования их срока службы [6—10]. Чаще других используется классическая методика, основанная на измерении мощности излучения ЛД при постоянном значении тока накачки. Срок службы в этом случае определяется как время, через которое мощность падает до определенного, заранее установленного уровня. С измерениями мощности излучения ЛД связана и другая методика, когда время наработки определяется как время, через которое поддержание мощности на постоянном уровне путем увеличения тока накачки, становится невозможным [11].

Значительно реже для прогнозирования срока службы ЛД используются методика, основанная

на временной зависимости диаграммы направленности [12], и методика, основанная на анализе временных зависимостей степени линейной поляризации излучения (контраста) [13].

Однако реализация перечисленных выше методик связана со значительным расходованием ресурса лазеров и необходимостью использования статистических методов обработки большого массива данных, полученных в результате диагностики партии приборов, изготовленных в том же технологическом цикле, что и исследуемые в настоящей работе.

Проблема определения качества отдельно взятого прибора электронной техники, каким, в частности, является активный элемент ЛД, стоит особенно остро при серийном производстве изделий [14].

# МЕТОДИКА ОПРЕДЕЛЕНИЯ СОСТОЯНИЯ ГЕТЕРОСТРУКТУРЫ МОЩНОГО ЛД ПО ЧИСЛУ КАНАЛОВ ГЕНЕРАЦИИ

Определенные шаги для решения этой проблемы были сделаны в работе [10] при тестировании партии мощных ЛД, изготовленных в едином технологическом цикле. При этом учитывалось, что ранее разработанная нами методика определения состояния гетероструктуры ЛД по его спектральной характеристике может быть использо-

вана только в том случае, если имеет место режим генерации на фундаментальной моде. Для мощных ЛД характерен сложный вид огибающей спектра излучения. Поэтому анализ этого спектра с целью определения состояния гетероструктуры ЛД проводился нами путем разложения его на составляющие.

На момент начала тестирования лазеров время наработки каждого прибора варьировалось от 270 до 310 ч. В течение 40—80 ч с начала тестирования контур линии  $f_{\rm эксп}(v)$ , огибающей спектр излучения ЛД, можно было представить как суперпози-

цию трех контуров линий  $f_{\text{расч}.i}\bigg(\frac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\Delta\mathbf{v}_i}\bigg)$  с центральными частотами  $\mathbf{v}_{01} \leq \mathbf{v}_{02} \leq \mathbf{v}_{03}$ . Каждый контур соответствовал пространственному каналу генерации в активной области лазерного диода. Анализ

расчетных функций  $f_{\mathrm{pacu},i}\bigg(\frac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\Delta\mathbf{v}_i}\bigg)$  показал, что только в том случае, когда все три линии симметричны относительно частот  $\mathbf{v}_{01},\mathbf{v}_{02},\mathbf{v}_{03}$ , выполняется условие:

$$f_{\text{эксп}}(v) = \sum_{i=1}^{N} f_{\text{pacy},i} \left( \frac{v - v_{0i}}{\Delta v_{i}} \right), \tag{1}$$

где N — число каналов генерации. В данном случае N = 3.

В процессе тестирования ЛД наблюдалось изменение формы спектральной линии ЛД  $f_{\text{эксп}}(v)$ , обусловленное увеличением числа каналов генерации с трех до четырех.

Такого рода изменения спектра излучения ЛД мы связываем с вариациями коэффициента нелинейной рефракции полупроводника квантовой ямы и одновременно длины когерентности излучения в каналах при наработке часов ЛД. Проведенные нами расчеты показали, что меньшее число каналов генерации соответствует большей степени когерентности излучения ЛД. а увеличение числа каналов  $N_{\rm кан}$  означает, что длина когерентности  $L_{\rm ког}$  излучения в каналах уменьшается [7]:

$$N_{\rm Kah} = W \sqrt{\frac{2\pi n}{\lambda_0 L_{\rm Kor}}},\tag{2}$$

где n=3.56 — эффективный показатель преломления лазерного волновода для фундаментальной латеральной моды, W=100 мкм — ширина активной области,  $\lambda_0$  — средняя длина волны излучения ЛД. В данной работе исследовался ЛД с измеренным значением  $\lambda_0=976$  нм (средняя частота  $\nu_0=3.075\cdot 10^{14}$   $\Gamma$ ц).

# РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ СОСТОЯНИЯ СТРУКТУРЫ И ТЕМПА ДЕГРАДАЦИИ МОЩНЫХ ЛД МОДЕЛИ АТС-C200-100-980

Далее приводятся результаты исследований состояния структуры и темпа деградации ЛД модели ATC-C200-100-980 с драйвером LDD-10. Этот ЛД с контактом 100 мкм имел измеренное значение порогового тока накачки  $I_{\text{пор}} = 497 \text{ мA}$  и штатное значение мощности излучения P = 500 мBт при двойном превышении порога. В качестве контролируемого параметра использовалась спектральная характеристики новой партии ЛД, изготовленных по той же технологии и имеющие ту же конструкцию, что и лазеры, исследованные в [10]. Важным фактором проведения исследований является то, что время наработки всех лазеров было известно точно и не превышало 10 ч. В первые несколько часов исследований у всех ЛД были зафиксированы только два канала генерации с центральными частотами  $v_{01}$  и  $v_{02}$ . Согласно (2) это означает, что излучение ЛД в начальной стадии эксплуатации характеризуется большой длиной когерентности, которая огласно (2) составляла  $L_{\text{KOT}} = 5.6 \text{ cm}.$ 

Через 200—250 ч эксплуатации в ЛД возникал третий канал генерации, что означает снижение длины когерентности до величины равной  $L_{\rm kor}$  = 2.5 см. В [10] показано, что каждому каналу генерации с номером i в спектре излучения соответ-

ствует контур линии 
$$f_{\mathrm{pac}^{\mathbf{q},i}}\!\left(\!rac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\Delta\mathbf{v}_{i}}\!
ight)$$
с центральной

частотой  $v_{0i}$ . Поэтому появление третьего канала генерации приводит к тому, что контур линии  $f_{\text{эксп}}(v)$ , огибающей спектр излучения ЛД, представляет собой суперпозицию трех контуров ли-

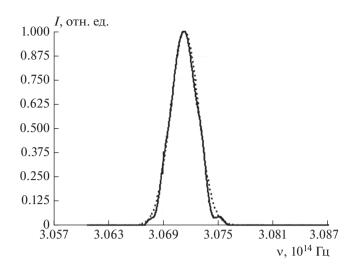
ний 
$$f_{\mathrm{pac}^{\mathrm{u},i}}\!\left(\! rac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\mathbf{\Delta}\mathbf{v}_i}\!
ight)$$
 с центральными частотами  $\mathbf{v}_{01}<\mathbf{v}_{02}<\mathbf{v}_{03}.$ 

Вид функции  $f_{
m эксп}({
m v}),\;$ а значит, и функций  $f_{{
m pac}^{{
m u},i}}\!\left(\!rac{{
m v}-{
m v}_{0i}}{\Delta{
m v}_i}\!
ight)$  зависит от тока накачки ЛД. Анализ

расчетных функций  $f_{\text{расч},i}\bigg(\frac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\Delta\mathbf{v}_i}\bigg)$  показывает, что все три линии симметричны относительно частот  $\mathbf{v}_{01}$ ,  $\mathbf{v}_{02}$  и  $\mathbf{v}_{03}$  только при определенном значении тока накачки. И только при этом токе рас-

четные функции  $f_{\text{расч},i}\bigg(\frac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\Delta\mathbf{v}_i}\bigg)$  хорошо аппроксимируются гауссовой функцией, как показано на рис. 1.

При увеличении наработки ЛД до 350 ч при токе накачки I=940 мА, что составляет  $I=1.89\cdot I_{\text{пор}}$ , в спектре излучения ЛД формируется четвертый



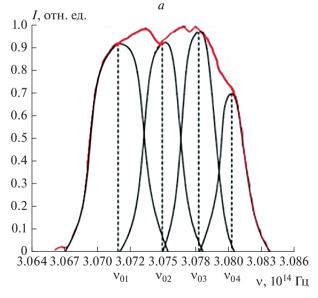
**Рис. 1.** Контур линии  $f_{\mathrm{pacu.1}}\bigg(\frac{v-v_{01}}{\Delta v_1}\bigg)$ , огибающей спектр излучения в первом канале генерации лазерного диода ATC-C200-100-980 с наработкой 350 ч при токе накачки 940 мА.

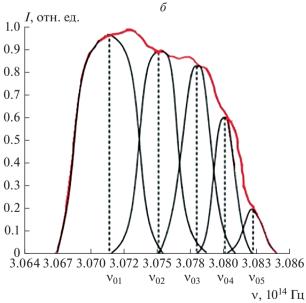
канал генерации (рис. 2a). Согласно (2) это означает, что длина когерентности излучения ЛД продолжает уменьшаться до значения  $L_{\rm ког}=1.4$  см. Увеличение числа нефазированных каналов приводит к соответствующему увеличению числа спектральных компонентов излучения ЛД. Это связано с тем, что полоса усиления имеет довольно

большую (5 нм по длине волны и 1.6 ТГц по частоте) спектральную ширину и должна заполняться новыми полосами излучения, соответствующими разным каналам, вплоть до их существенного перекрытия. Ширина спектральной полосы отдельного канала при увеличении их количества также возрастает, что видно при сравнении рис. 2a и 26.

Представление спектра излучения ЛД как суммы спектров излучения всех каналов генерации позволяет рассчитывать параметры качества  $A_i$  в пределах каждого канала  $f_{\text{расч},i}\left(\frac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\Delta\mathbf{v}_i}\right)$  по той же методике, по которой рассчитывался параметр A одномодового лазера в [9, 15]. Так, численный анализ функций  $f_{\text{расч},i}\left(\frac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\Delta\mathbf{v}_i}\right)$  осуществляется путем их сравнения с гауссовыми функциями  $f_G\left(\frac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\Delta\mathbf{v}_i}\right)$  в пределах ширины i-ой линии  $\Delta\mathbf{v}_i$ . Для проведения такого анализа в пределах каждого канала генерации вводится параметр  $A_i$ , значение которого рассчитывается по формуле:

$$A_{i} = 1 - \int_{\nu_{1/2i \, \text{min}}}^{\nu_{1/2i \, \text{max}}} \left( \frac{\left| D\left(\frac{\nu - \nu_{0i}}{\Delta \nu_{i}}\right) - 1\right|}{\Delta \nu_{i}} \right) d\nu, \tag{3}$$





**Рис. 2.** Спектр излучения лазерного диода ATC-C200-100-980 с наработкой 350 ч  $f_{\rm эксп}$  (v), при двух характерных значениях тока накачки: (a)  $I_{\rm Hak.~1}$  = 940 мA, (б)  $I_{\rm Hak.~2}$  = 980 мA.

где  $v_{1/2i \text{ max}}$  и  $v_{1/2i \text{ min}}$  — частоты, которые определяются из условия:

$$f_{\text{pacq},i}(v_{1/2i \text{ min}}) = f_{\text{pacq},i}(v_{1/2i \text{ max}}) = = f_G(v_{1/2i \text{ min}}) = f_G(v_{1/2i \text{ max}}) = 0.5,$$
(4)

И

$$D\left(\frac{\mathbf{v} - \mathbf{v}_{0i}}{\Delta \mathbf{v}_{i}}\right) = \frac{f_{\text{pacq},i}\left(\frac{\mathbf{v} - \mathbf{v}_{0i}}{\Delta \mathbf{v}_{i}}\right)}{f_{G}\left(\frac{\mathbf{v} - \mathbf{v}_{0i}}{\Delta \mathbf{v}_{i}}\right)},$$
(5)

где  $\mathbf{v}_{0i}$  — центральная частота i-го спектрального диапазона частот  $\Delta\mathbf{v}_i$ , в котором сравниваются гауссова функция  $f_G\bigg(\frac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\Delta\mathbf{v}_i}\bigg)$  и функция  $f_{\mathrm{pac}\mathbf{v},i}\bigg(\frac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\Delta\mathbf{v}_i}\bigg)$ .

Значение частоты  $V_{0i}$  определяется по формуле:

$$v_{0i} = \frac{1}{2} \left( v_{1/2i \max} + v_{1/2i \min} \right). \tag{6}$$

Нормированная гауссова функция имеет вид:

$$f_G\left(\frac{\nu - \nu_{0i}}{\Delta \nu_i}\right) = \exp\left[-4 \cdot \ln 2 \cdot \left(\frac{\nu - \nu_{0i}}{\Delta \nu_i}\right)^2\right]. \tag{7}$$

Из (3) и (5) следует, что значение параметра  $A_i$  стремится к единице, когда функция  $f_{\text{расч},i}\left(\frac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\Delta\mathbf{v}_i}\right)$ , может быть хорошо аппроксимирована гауссовой функцией (7).

При возрастании количества каналов генерации увеличивается и число анализируемых по формулам (3)—(7) функций  $f_{\text{расч},i}\left(\frac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\Delta\mathbf{v}_i}\right)$ , что, впрочем, не нарушает критерия определения срока службы ЛД по параметру  $A_i$ .

Особенностью проводимых в рамках настоящей работы исследований является то, что линии, огибающие спектр излучения ЛД, с центральными частотами  $\nu_{0i}$  анализируются при фиксированных значениях времени наработки лазера в широком диапазоне значений его тока накачки: от 940 до 980 мА. Выбор этого диапазона обусловлен тем, что в его границах наблюдается значительная трансформация спектра излучения ЛД.

При 350 ч наработки и токе накачки 940 мА наблюдаются 4 канала генерации, а при токе накачки 980 мА — уже 5 каналов (рис. 26). Появление 5-го канала генерации приводит к тому, что часть энергии излучения, ранее перераспределявшаяся между четырьмя каналами генерации, переходит в пятый канал с центральной частотой  $V_{05}$ , что и объясняет картину трансформации спектра излучения. На рис. 1 изображен контур первой линии генерации при токе накачки ЛД 940 мА с центральной частотой  $3.072\cdot 10^{14}\,$  Гц. Видно, что кривая  $f_{\rm pacq.1}\!\left(\frac{v-v_{01}}{\Delta v_1}\right)$  практически полностью совпа-

дает с функцией  $f_G\left(\frac{\nu-\nu_{01}}{\Delta\nu_1}\right)$ . Аналогичная картина наблюдается во всех четырех контурах генерации на рис. 2a. Из этого следует, что ток накачки ЛД 940 мА является оптимальным, а дальнейшие наблюдения за процессом его медленной деградации нужно проводить, поддерживая ток на этом уровне.

Численный анализ функций  $f_{\mathsf{pac}^{\mathsf{q},i}}\!\left(\!rac{ extstyle 
u - extstyle 
u_{0i}}{\Delta 
u_{i}}\!
ight)$  при значениях i = 1, 2, 3 и 4, то есть во всех четырех каналах генерации показывает, что соответствующие значения  $A_i$  лежат в интервале от 0.93 до 0.95. Из этого следует, что режим генерация излучения в каждом канале близок к одномодовому, а многомодовый пучок излучения формально можно представить как одновременную генерацию несфазированных одномодовых пучков. Из теории дифракции следует, что по мере увеличения числа каналов генерации (уменьшении поперечных размеров каждого канала) должна возрастать степень дефазировки отдельных областей лазерного излучения внутри резонатора ЛД, что есть следствие уменьшения длины когерентности излучения в каждом канале ЛД. Таким образом, в качестве критерия деградации конкретного лазера целесообразно использовать наблюдаемое число каналов генерации, о котором можно судить по числу линий в измеренном спектре излучения ЛД.

Порядок проведения количественного анализа функции  $f_{\text{эксп}}(\nu)$  является общим для всех мощных ЛД, рассмотриваемых в настоящей работе, и поэтому подробно рассмотрен на примере лазерного диода ATC-C200-100-980 с драйвером LDD-10.

Особый интерес представляют результаты количественного анализа функции  $f_{\rm эксп}(\nu)$ , описывающей форму линии, огибающей спектр излучения лазеров модели КLM-H980-200-5 с мощностью излучения 200 мВт. Для этой модификации ЛД установлено, что уже в первые часы их работы наблюдались три канала генерации. Согласно проведенным в настоящей работе исследованиям, это говорит о низкой когерентности излучения и, как следствие, об изначально низком качестве гетероструктур лазеров модели KLM-H980-200-5. Для

этих приборов был проведен численный анализ функций  $f_{\text{расч},i}\left(\frac{v-v_{0i}}{\Delta v_i}\right)$  при значениях i=1,2 и 3, то есть во всех трех каналах генерации. Он осуществлялся путем ее сравнения с гауссовой функцией  $f_G\left(\frac{v-v_{0i}}{\Delta v_i}\right)$  в пределах ширины i-ой линии  $\Delta v_i$  с использованием формул (3)—(7). Анализ показал, что ни одна из кривых  $f_{\text{расч},i}\left(\frac{v-v_{0i}}{\Delta v_i}\right)$  не бы-

ла симметричной относительно соответствующих центральных частот каналов, которые рассчитывались по формуле (6). В такой ситуации было принято решение за оптимальное значение тока накачки принимать то, при котором асим-

метрия кривых 
$$f_{\mathrm{pac}^{\mathrm{u},i}}\!\left(\!rac{\mathrm{v}-\mathrm{v}_{0i}}{\Delta\mathrm{v}_{i}}\!
ight)$$
 минимальна.

Следует отметить, что из-за асимметрии кривых  $f_{\text{расч},i}\left(\frac{\mathbf{v}-\mathbf{v}_{0i}}{\Delta\mathbf{v}_i}\right)$  разложение спектра излучения на его компоненты значительно усложнилось и потребовалось проведение дополнительных итераций для выполнения условия (1). Кривые имели достаточно сложный вид, что и обусловило даже при оптимальном токе накачки малые значения параметров  $A_i$ . Характерные значения этих параметров варьировались от 0.82 до 0.86. Срок службы ЛД модели KLM-H980-200-5 определялся по методике, изложенной в [10]. При этом в расчетной формуле за значение параметра A принималось минимальное значение из четырех рассчитанных.

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Установлено, что в качестве параметра, по которому можно определить состояние и скорость деградации ЛД с определенным временем наработки, следует использовать количество и качество спектров каналов генерации излучения. Показано, что увеличение числа каналов генерации обусловлено уменьшением длины когерентности излучения ЛД, что служит явным признаком деградации лазера.

Темп деградации возрастает при увеличении тока накачки. Это подтверждается возгоранием дополнительного канала генерации ЛД при фиксированном времени его наработки. Разработан алгоритм определения оптимального значения тока накачки. При его разработке учитывалось, что спектр излучения ЛД представляет собой суперпозицию спектров излучения отельных каналов генерации. Анализ спектра излучения в каж-

дом канале генерации позволяет определить значение параметра  $A_i$ , характеризующего отличие контура линии, огибающей спектр излучения в канале, от гауссовой функции. Если все значения параметра  $A_i$  близки к единице, то это свидетельствует о высоком качестве гетероструктуры ЛД.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Богатов А.П., Дракин А.Е., Стратонников А.А., Коняев В.П. // Квант. электрон. 2000. Т. 30. № 5. С. 401; Bogatov A.P., Drakin A.E., Stratonnikov A.A., Konyaev V.P. // Quant. Electron. 2000. V. 30. № 5. Р. 401.
- 2. Слипченко С.О., Бондарев А.Д., Винокуров Д.А. и др. // ФТП. 2009. Т. 43. № 1. С. 119.
- 3. Слипченко С.О., Винокуров Д.А., Пихтин Н.А. и др. // ФТП. 2004. Т. 38. № 12. С. 1477.
- 4. Лютецкий А.В., Пихтин Н.А., Фетисова Н.В. и др. // ФТП. 2009. Т. 43. № 12. С. 1646.
- 5. *Жуков А.Е.* Физика и технология полупроводниковых наноструктур. СПб.: Элмор, 2007, 304 с.
- Воробьев Л.Е., Софронов А., Фирсов Д. и др. // Фотоника. 2012. Т. 31. № 1. С. 20.
- 7. *Близнюк В.В.*, *Брит М.А.*, *Гадаев И.С. и др. // Изв.* PAH. Сер. физ. 2015. Т. 79. № 12. С. 1666; *Bliznyuk V.V.*, *Brit M.A.*, *Gadaev I.S. et al. //* Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2015. V. 79. No 12. P. 1458.
- 8. *Близнюк В.В., Коваль О.И., Паршин В.А. и др. //* Уч. зап. физ. фак-та МГУ. 2018. № 6. С. 1860501.
- 9. *Близнюк В.В., Коваль О.И., Паршин В.А. и др. //* Изв. PAH. Сер. физ. 2018. Т. 82. № 11. С. 1504; *Bliznyuk V.V., Koval O.I., Parshin V.A. et al. //* Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2018. V. 82. No 11. P. 1367.
- 10. Близнюк В.В., Коваль О.И., Паршин В.А. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2020. Т. 84. № 2. С. 225; Bliznyuk V.V., Koval O.I., Parshin V.A. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2020. V. 84. No 2. P. 173.
- 11. *Кейси Л., Паниш М.* Лазеры на гетероструктурах. Т. 2. М.: Мир, 1981. 299 с.
- 12. *Мифтахутдинов Д.Р., Богатов А.П., Дракин А.Е.* // Квант. электрон. 2010. № 7. С. 583; *Miftakhutdin-ov D.R., Bogatov A.P., Drakin A.E.* // Quant. Electron. 2010. V. 40. No 7. P. 583.
- 13. *Близнюк В.В., Костина О.О., Крайнов И.В. и др. //* Сб. докладов XXII межд. конф. "Лазеры. Измерения. Информация—2012". (СПб., 2012). С. 224.
- 14. *Сидоров В.Г.Шмидт Н.П.* // Науч.-техн. ведомости СПбГПУ. Физ.-мат. науки. 2013. № 2(170). С. 71.
- 15. *Bliznyk V.V., Berezovskaya N.V., Brit M.A. et al.* // Phys. Wave Phenom. 2017. V. 25. No 3. P. 214.

# Determination of the degradation rate in a high-power laser diode by the radiation spectrum dependence from the bias current variations

V. V. Bliznyuk<sup>a, \*</sup>, V. A. Parshin<sup>a</sup>, A. G. Rzhanov<sup>b</sup>, A. E. Tarasov<sup>a</sup>

<sup>a</sup>National Research University "Moscow Power Engineering Institute", Moscow, 111250 Russia <sup>b</sup>Lomonosov Moscow State University, Faculty of Physics, Moscow, 119991 Russia \*e-mail: 40595141@mail.ru

A method is proposed for measuring the degradation rate of a high-power continuous-wave laser diode with a wide contact by monitoring the state of its heterostructure every fifty hours of operation. The number and structure of laser generation channels is used as a controlled parameter. The mechanism of degradation of the laser diode structure, which is manifested in the time dependence of the number of generation channels, is considered.

УЛК 53.043

#### НЕЛИНЕЙНАЯ ДИНАМИКА ПОЗИТРОНОВ В ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ И ГРАВИТАЦИОННЫХ ПОЛЯХ

© 2021 г. М. Г. Гапочка<sup>1</sup>, В. И. Денисов<sup>1</sup>, И. П. Денисова<sup>2</sup>, А. Ф. Королев<sup>1</sup>, Н. Н. Кошелев<sup>1, \*</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования "Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова", физический факультет, Москва, Россия <sup>2</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования "Московский авиационный институт (национальный исследовательский университет)", Москва, Россия \*E-mail: n.koshelev@mail.ru

> Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Изучена нелинейная динамика позитронов в модифицированных теориях с учетом новых гипотез о массе заряженных частиц и массе гравитона. На основе проведенных расчетов получены законы вертикального движения позитронов в постоянном магнитном поле, электрическом поле Барнхилла—Шиффа и гравитационном поле Земли. Предложены эксперименты, позволяющие проверить эти новые гипотезы.

**DOI:** 10.31857/S0367676521020095

#### **ВВЕДЕНИЕ**

Функция действия для электрически заряженных частиц в электромагнитном и гравитационном полях в общей теории относительности Эйнштейна имеет вил:

$$S = -mc \int ds - \frac{q}{c} \int A_k dx^k,$$

где m — масса частицы,  $A_k$  — 4-потенциал электромагнитного поля,  $ds = \sqrt{g_{ik} dx^i d^k}$  — интервал,  $g_{ik}$  — метрический тензор.

Из этой функции действия следуют уравнения движения для частицы с электрическим зарядом q, которые в наиболее общей четырехмерной форме принимают вид:

$$mc\left\{\frac{dU^n}{ds} + \Gamma_{ik}^n U^i U^k\right\} = \frac{q}{c} F^{nk} U_k, \tag{1}$$

где  $U^i = dx^i / ds$  — четырехвектор скорости частицы,  $F^{nk}$  — тензор электромагнитного поля,  $\Gamma^n_{ik}$  — символы Кристоффеля по метрике  $g_{ik}$ :

$$\Gamma_{ik}^{n} = \frac{1}{2} g^{nm} \left[ \frac{\partial g_{mi}}{\partial x^{k}} + \frac{\partial g_{mk}}{\partial x^{i}} + \frac{\partial g_{ik}}{\partial x^{m}} \right],$$

а тензор  $g^{nm}$  по известному тензору  $g_{mk}$  определяется из системы уравнений:  $g^{mn}g_{mk} = \delta_k^n$ .

Уравнения (1) имеют первый интеграл:

$$g_{ik}U^iU^k=1. (2)$$

Таким образом, движение электрически заряженных частиц в электромагнитном и гравитационном полях описывается нелинейной системой уравнений в обыкновенных производных второго порядка. Интегрирование уравнений (1), (2) из-за их нелинейности представляет собой серьезную математическую задачу.

Но в настоящее время появились физические гипотезы, которые значительно усложняют вид уравнений движения для электрически заряженных частиц в электромагнитном и гравитационном полях.

#### НОВЫЕ ФИЗИЧЕСКИЕ ГИПОТЕЗЫ О НЕЛИНЕЙНОЙ ДИНАМИКЕ ЭЛЕКТРИЧЕСКИ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ

В теории гравитации Эйнштейна [1] квант гравитационного поля — гравитон является безмассовой частицей. Однако в последнее время появились статьи [2–4], в которых уравнения Эйнштейна модифицируются так, чтобы гравитон был массивным. Во всех этих теориях предполагается,

что масса гравитона  $m_g \sim 10^{-66}$  г настолько мала, чтобы ее присутствие при современной чувствительности измерительной техники не проявлялось во всех экспериментах, выполненных в гравитационном поле Солнечной системы.

Теории гравитации с массивным гравитоном с необходимостью являются биметрическими, в которых используются два метрических тензора: псевдоевклидова пространства-времени  $\eta_{ik}$ , которое рассматривается [4] как экспериментальный факт, и псевдориманова пространства-времени  $g_{ik}$ , по геодезическим линиям которого движется вещество. Кроме того, в таких теориях используется два типа масс для каждой частицы: инертная масса  $m_I$  и пассивная гравитационная масса  $m_G$ . Функция действия для электрически заряженных частиц в электромагнитном и гравитационном полях в этом случае принимает вид:

$$S = -m_G c \int ds - (m_I - m_G) c \int d\sigma - \frac{q}{c} \int A_k dx^k,$$
 $u^n = dx^n / d\sigma, \ d\sigma = \sqrt{\eta_{ik} dx^i dx^k} - \text{интервал}$ 

где  $u^n = dx^n/d\sigma$ ,  $d\sigma = \sqrt{\eta_{ik}dx^idx^k}$  — интервал в псевдоевклидовом пространстве-времени.

Уравнения движения в этих теориях являются более сложными, чем уравнения (1), (2):

$$m_{G}cg_{pn}\left\{\frac{dU^{n}}{ds} + \Gamma_{ik}^{n}U^{i}U^{k}\right\} + \left(m_{I} - m_{G}\right)c\eta_{pn}\left\{\frac{du^{n}}{d\sigma} + \gamma_{ik}^{n}u^{i}u^{k}\right\}\frac{d\sigma}{ds} = \frac{q}{c}F_{pk}U^{k},$$
(3)

где  $\Gamma_{ik}^n$  — символы Кристоффеля по метрике  $g_{ik}$ , а  $\gamma_{ik}^n$  — символы Кристоффеля по метрике  $\eta_{ik}$ :

$$\gamma_{ik}^{n} = \frac{1}{2} \eta^{nm} \left[ \frac{\partial \eta_{mi}}{\partial x^{k}} + \frac{\partial \eta_{mk}}{\partial x^{i}} + \frac{\partial \eta_{ik}}{\partial x^{m}} \right].$$

Несложно убедиться, что при умножении уравнения (3) на  $U^p=dx^p\big/ds$  , или на  $u^p=dx^p\big/d\sigma$  , получаем, как это и должно быть, тождество 0 = 0.

Таким образом, для проверки гипотезы о существовании не равной нулю массы у гравитона необходимо исследовать нелинейную динамику, предсказываемую уравнениями (3), и, в первую очередь, выяснить соотношение между инертной и гравитационными массами.

Согласно принципу эквивалентности Эйнштейна [1], любое электрически незаряженное пробное тело в гравитационном поле должно двигаться по траектории, не зависящей от его структуры и состава. Для электрически нейтральных частиц и тел это означает равенство гравитационной и инертной масс.

Однако в настоящее время существуют теории гравитации [5-7], согласно уравнениям которых, гравитационная масса электрически заряженной частицы может зависеть от величины ее заряда и поэтому может быть не равной ее инертной массе:  $M_G^q = M_I^q + kq$ , где q — электрический заряд частицы, k — коэффициент,  $M_G^q$  — гравитационная масса частицы,  $M_I^q$  — ее инертная масса.

Из этих соотношений следует, что гравитационная масса любого электрически незаряженного тела должна совпадать с его инертной массой, так как электрически нейтральное тело содержит одинаковое число электронов и протонов. Эксперименты Брагинского и Панова [8] с телами макроскопических размеров подтвердили этот вывод с большой точностью.

Измерения отношения гравитационной массы к ее инертной массе для электрически заряженных частиц до сих пор не проводились. Такие эксперименты, казалось бы, удобнее начинать с электрона [9]. Однако таким измерениям мешает эффект Барнхилла-Шиффа [10]: в области вакуума, огражденной проводящей оболочкой, существует индуцированное гравитацией электрическое поле, действие которого на нерелятивистски движущийся электрон полностью компенсирует действие на него силы гравитации. В результате этой компенсации нерелятивистский электрон в вакуумной области в вертикальном направлении движется с постоянной скоростью. Эксперименты Уитборна-Файербенка, проведенные в прошлом веке [11], подтвердили это предсказание теории.

Для того чтобы нарушить компенсацию гравитационной силы силой Барнхилла-Шиффа, действующими на электрон, необходимо использовать слабо релятивистские электроны [12], в результате чего постановка соответствующего эксперимента оказывается значительно сложнее эксперимента Уитборна-Файербенка.

Кроме электрически заряженных частиц в природе существуют и соответствующие им античастицы. В настоящее время в ЦЕРНе, в рамках экспериментов Gravitational Behaviour of Antihydrogen at Rest [13, 14] и Aegis [15], было показано, что отношение гравитационной массы электрически нейтрального атома антиводорода, состоящего из позитрона и антипротона, к инертной массе этого атома, такое же, как и у обычного атома водорода. Но из этих экспериментов нельзя сделать выводов о гравитационных свойствах отдельно взятых позитронов или отдельно взятых антипротонов. Вполне может оказаться так, что в соответствии с гравитационными теориями [5-7] гравитационная масса позитрона может быть на некоторую величину  $ke_0$  больше его инертной массы, а гравитационная масса антипротона окажется на такую же величину  $ke_0$  меньше инертной массы антипротона:

$$m_G = m_I + ke_0, \quad M_G = M_I - ke_0,$$

где  $M_G$  и  $m_G$  — гравитационные массы антипротона и, соответственно, позитрона,  $M_I$  и  $m_G$  – их инертные массы,  $e_0$  — электрический заряд позитрона. И при этих условиях гравитационная масса антиводорода будет равна его инертной массе:  $M_G + m_G = M_I + m_I$ .

Гравитационные свойства элементарных частиц из-за чрезвычайной малости гравитационного взаимодействия в настоящее время экспериментально изучены очень слабо. Особенно это касается античастиц, гравитационные свойства которых до сих пор не проверялись на эксперименте.

Поэтому возникает необходимость проанализировать возможности постановки экспериментов по измерению отношения гравитационной массы к инертной массе для электрически заряженных частиц. Для электронов такой анализ был проведен в работе [16]. Рассмотрим кратко имеющиеся возможности по постановке таких экспериментов с позитронами, которые являются античастицами для электронов.

# ВОЗМОЖНЫЕ ЭКСПЕРИМЕНТЫ ПО ИССЛЕДОВАНИЮ ГРАВИТАЦИОННЫХ СВОЙСТВ ПОЗИТРОНОВ

Вообще говоря, возможны две постановки экспериментов с электрически заряженными элементарными частицами по измерению отношения их гравитационных масс к инертным массам. В первой из них, как и в эксперименте Уитборна—Файербенка, используются нерелятивистские частицы, а во второй, как предложено в работе [12], слаборелятивистские частицы. В обоих случаях в вакуумной области экспериментальной установки с помощью соленоида должно быть создано вертикально направленное магнитное поле  $B \approx 100 \, \Gamma c$ .

Рассмотрим схематически обе постановки экспериментов для измерения отношения гравитационной массы позитрона к его инертной массе. В обоих случаях в качестве источника позитронов необходимо использовать  $\beta^+$  активные элементы, обладающие достаточно большим периодом полураспада и не очень большой энергией позитрона. Наиболее подходящим нестабильным элементом для этих целей является изотоп церия <sup>139</sup>Ce. У него период полураспада составляет 138 дней, с энергией вылетающих позитронов 166 кэВ. При такой энергии позитрон считается слаборелятивистским и его можно не замедлять при втором методе экспериментов. Другим нестабильным элементом, позитроны которого после замедления в постоянном электрическом поле можно использовать в описываемых экспериментах, является изотоп натрия <sup>22</sup>Na. У него период полураспада значительно больше, чем у <sup>139</sup>Се и составляет 2.6 лет. Однако и энергия позитронов, вылетающих при  $\beta^+$  распаде <sup>22</sup>Na, почти в три раза больше, чем у изотопа церия и равна 546 кэВ. Такая энергия позитронов требует при проведении эксперимента предварительного их замедления.

Следует сразу же отметить, что серьезным недостатком этого эксперимента является аннигиляция позитронов при их столкновении с остатками газа в вакуумной области экспериментальной установки. Однако этот недостаток в значительной степени может быть уменьшен созданием более глубокого вакуума в рабочей области экспериментальной установки. Во всяком случае, в настоящее время этот недостаток не мешает проводить эксперименты с позитронами на ускорителях [17] и в экспериментальной физике элементарных частиц.

Расчеты с использованием уравнений (3) показывают, что проводить эксперименты по измерению отношения гравитационной массы нерелятивистского позитрона к его инертной массе удобнее по схеме Уитборна—Файербенка. В этом случае вертикально движущиеся позитроны в соответствии с уравнениями (3) должны двигаться с ускорением  $a_z$ , направленным к Земле и равным:

$$a_z = -\frac{m_G}{m_I} \left[ 1 + \frac{m_G^e}{m_I} \right] g, \tag{4}$$

где g — ускорение свободного падения,  $m_G$  и  $m_I$  — гравитационная, и соответственно, инертная масса позитрона,  $m_G^e$  — гравитационная масса электрона.

В это выражение входят два множителя:  $m_G/m_I$  и  $m_G^e/m_I$ . Из экспериментов на ускорителях следует, что инертные массы позитрона и электрона с большой точностью совпадают. Однако экспериментальных данных о том, равны или не равны их гравитационные массы, мы в настоящее время не имеем. Поэтому будем пока рассматривать  $m_G/m_I$  и  $m_G^e/m_I$  как два независимых параметра. Для их определения необходимо провести эксперименты с позитронами в другой постановке.

Если использовать схему слаборелятивистского эксперимента, то позитроны в вакуумной области экспериментальной установки должны иметь слаборелятивистскую скорость в горизонтальной плоскости и существенно не релятивистскую скорость в вертикальном направлении. Тогда из расчетов следует, что движение позитронов в вертикальном направлении будет происходить с ускорением  $a_z$ , направленным к Земле и равным:

$$a_z = -\frac{m_G}{m_I} \left[ 1 + \frac{m_G^e}{m_I} \sqrt{1 - \beta^2} \right] g,$$
 (5)

где  $\beta$  — отношение скорости позитрона к скорости света.

В выражение (5) параметры  $m_G/m_I$  и  $m_G^e/m_I$  входят иначе, чем в выражение (4). Поэтому измеряя вертикальную компоненту ускорения в

обоих постановках экспериментов, можно определить эти параметры по отдельности.

Следует отметить, что результирующие формулы (4) и (5) помимо гравитационной и инертной масс позитрона содержат и гравитационную массу электрона из-за наличия индуцированного гравитацией электрического поля Барнхилла— Шиффа  $E_z = -m_G^e g / e_0$ .

В обоих рассмотренных случаях предлагаемый гравитационный эксперимент является радиофизическим по своей постановке.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Эйнштейн А. Собрание научных трудов. М.: Наука, 1965. 700 с.
- Freund P.G., Maheshwari A., Schonberg E. // Astrophys. J. 1969. V. 157. P. 857.
- 3. Visser M. // Gen. Relat. Gravit. 1998. V. 30. P. 1717.
- Babak S.V., Grishchuk L.P. // Phys. Rev. D. 1999. V. 61. Art. No 024038.
- Dittus H., Lammerzahl C., Selig H. // Gen. Relat. Gravit. 2004. V. 36. P. 571.
- 6. Rohrlich F. // Found. Phys. 2000. V. 30. P. 621.

- 7. Goto M., Natti P.L., Takano Natti E.R. // Class. Quant. Grav. 2010. V. 27. Art. No 025005.
- 8. *Брагинский В.Б., Панов В.И.* // ЖЭТФ. 1971. Т. 61. № 3. С. 873; *Braginsky V.B., Panov V.I.* // Sov. Phys. JETP. 1971. V. 34. P. 464.
- Королев А.Ф., Кошелев Н.Н. // Вестн. МГУ. Сер. физ. 2018. № 2. С. 46; Korolev A.F., Koshelev N.N. // Moscow Univ. Phys. Bull. 2018. V. 73. P. 168.
- Schiff L.I., Barnhill M.V. // Phys. Rev. 1966. V. 151. P. 1067.
- Witteborn F.C., Fairbank W.M. // Phys. Rev. Lett. 1967.
   V. 19. P. 1049.
- 12. *Denisov V.I., Denisova I.P., Gapochka M.G. et al.* // Mod. Phys. Lett. A. 2018. V. 33. № 33. Art. No 1850192.
- Voronin A. Yu., Kupriyanova E.A., Lambrecht A. et al. // J. Phys. B. 2016. V. 49. No 20. Art. No 205003.
- 14. Crepin P.-P., Kupriyanova E.A., Guerout R. et al. // EPL. 2017. V. 117. No 3. Art No 33001.
- 15. Antonello M., Belov A., Bonomi G. et al. // Nucl. Inst. Meth. 2020. V. 960. Art No 163637.
- 16. Гапочка М.Г., Денисова И.П., Королев А.Ф. и др. // Вестн. МГУ. Сер. физ. 2019. № 3. С. 39; Gapochka М.G., Denisova I. P., Korolev A.F. et al. // Moscow Univ. Phys. Bull. 2019. V. 74. P. 337.
- Niang S., Charlton M., Choi J.J. et al. // Acta Phys. Pol. A. 2020. V. 137. P. 164.

#### The nonlinear dynamics of positrons in the electromagnetic and gravitational fields

M. G. Gapochka<sup>a</sup>, V. I. Denisov<sup>a</sup>, I. P. Denisova<sup>b</sup>, A. F. Korolev<sup>a</sup>, N. N. Koshelev<sup>a</sup>, \*

<sup>a</sup>Moscow State University, Moscow, 119991 Russia <sup>b</sup>Moscow Aviation Institute (National Research University), Moscow, 125993 Russia \*e-mail: n.koshelev@mail.ru

The nonlinear dynamics of positrons in modified theories is considered, taking into account new hypotheses about the mass of charged particles and the mass of the graviton. Based on the calculations, the laws of vertical movement of positrons in a constant magnetic field, the Barnhill—Schiff electric field and the Earth's gravitational field are obtained. Experiments are proposed to test these new hypotheses.

УЛК 517.957

# ПЕРЕМЕЖАЕМОСТЬ ВБЛИЗИ ГРАНИЦЫ ОБОБЩЕННОЙ СИНХРОНИЗАЦИИ В СИСТЕМАХ СО СЛОЖНОЙ ТОПОЛОГИЕЙ АТТРАКТОРА

© 2021 г. В. А. Ханадеев<sup>1, 2, \*</sup>, О. И. Москаленко<sup>1, 2</sup>, А. А. Короновский<sup>1, 2</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования "Саратовский национальный исследовательский государственный университет имени Н.Г. Чернышевского", Саратов, Россия

<sup>2</sup>Региональный научно-образовательный математический центр "Математика технологий будущего", Саратов, Россия

> \*E-mail: v.a.hanadeev@gmail.com Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Исследованы характеристики перемежающегося поведения, имеющего место на границе обобщенной синхронизации в однонаправленно диссипативно связанных системах со сложной топологией аттрактора. На примере систем Лоренца и генераторов Чуа установлено, что и распределения длительностей ламинарных фаз, и зависимости средних длительностей ламинарных фаз от параметра надкритичности в данном случае подчиняются экспоненциальным законам.

**DOI:** 10.31857/S0367676521020137

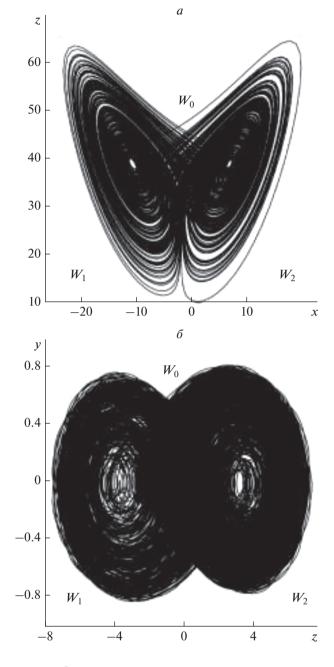
#### **ВВЕДЕНИЕ**

Явление перемежаемости, возникающее при переходе от одного типа поведения к другому, хорошо известно в настоящее время [1]. Говоря о перемежаемости, подразумевают чередование регулярного (периодического или стационарного) и нерегулярного (хаотического) поведения или чередование различных хаотических режимов. Перемежаемость присутствует в разных динамических системах, в том числе физических, медицинских и биологических [1]. Она наблюдается также вблизи границ синхронных режимов, в связи с чем различают перемежающиеся полную синхронизацию, фазовую синхронизацию, обобщенную синхронизацию, синхронизацию, индуцированную шумом [2—6].

Одним из наиболее интересных типов перемежающегося синхронного поведения является режим перемежающейся обобщенной синхронизации [5]. Он наблюдается вблизи границы обобщенной синхронизации хаотических систем, связанных однонаправленно или взаимно [7], и подразумевает наличие функциональной связи (функционала) между состояниями этих систем только в определенные интервалы времени, называемые ламинарными фазами поведения, в то время как на фоне ламинарных фаз имеют место кратковременные турбулентные всплески, в тече-

ние которых функциональная связь между взаимодействующими системами не наблюдается.

Режим перемежающейся обобщенной синхронизации в настоящее время изучен достаточно хорошо, но только для ограниченного класса динамических систем. В частности, известно, что на границе этого режима в однонаправленно связанных системах с достаточно простой топологией аттрактора, как, например, у систем Ресслера, наблюдается перемежаемость типа "опoff", характеризующаяся степенными распределениями длительностей ламинарных фаз и зависимостей средних длительностей ламинарных фаз от параметра надкритичности [5]. Однако, наряду с "простыми" системами достаточно широко распространены системы с так называемой сложной (двулистной) структурой аттрактора. Фазовое пространство таких систем состоит из двух различных подпространств  $W_{1,2}$ , имеющих малую общую область  $W_0$ , внутри которой фазовые траектории могут переходить из подпространства  $W_1$  в подпространство  $W_2$  и наоборот. Так как каждое из подпространств визуально выглядит как гладкий лист (см. рис. 1), в данной работе будем называть эти осцилляторы системами с двулистной структурой аттрактора, а каждое из подпространств  $W_{1, 2}$  – листом. В том случае, если исследуемая система (в силу тех или иных причин) характеризуется только наблюдаемыми вре-



**Рис. 1.** Фазовые портреты систем со сложной топологией аттрактора: система Лоренца (a), генератор Чуа  $(\delta)$ .

менными рядами (а оператор эволюции неизвестен), следует говорить о восстановленном фазовом пространстве с помощью метода Таккенса. К системам с двулистной структурой аттрактора относятся, например, такие классические модели как осцилляторы Лоренца, широко известные в метеорологии, или радиотехнические генераторы Чуа [8]. При определенном выборе значений управляющих параметров фазовые траектории таких систем как будто переходят с одного листа хаотического аттрактора на другой, фактически описывая двойную

петлю на фазовой плоскости. Понятно, что специфика таких систем может привести к изменению механизмов возникновения синхронных режимов, в частности, обобщенной синхронизации, по сравнению со случаем систем с достаточно простой топологией аттрактора, а отличия в этих механизмах, в свою очередь, могут привести к отличиям в поведении систем вблизи границ соответствующих режимов. Иными словами, тип перемежаемости, наблюдаемый вблизи границы обобщенной синхронизации в системах с достаточно сложной топологией аттрактора, может отличаться от известных в настоящее время типов перемежаемости.

В настоящей работе проводится анализ характеристик перемежающегося поведения, наблюдаемого на границе обобщенной синхронизации в диссипативно связанных системах со сложной топологией аттрактора. В качестве объектов исследования выбраны однонаправленно связанные системы Лоренца и генераторы Чуа, находящие в хаотическом режиме с аттракторами типа двойной спирали. Как будет показано ниже, в обоих случаях распределения длительностей ламинарных фаз и зависимости средних длительностей ламинарных фаз от параметра связи таких систем подчиняются экспоненциальным законам, что не характерно для систем с достаточно простой топологией аттрактора.

#### ИССЛЕДУЕМЫЕ СИСТЕМЫ

Однонаправленно связанные системы Лоренца [9] описываются следующей системой обыкновенных дифференциальных уравнений:

$$\dot{x}_1 = \sigma(y_1 - x_1), \quad \dot{y}_1 = r_1 x_1 - y_1 - x_1 z_1, 
\dot{z}_1 = -b z_1 + x_1 y_1, \quad \dot{x}_2 = \sigma(y_2 - x_2) + \varepsilon(x_1 - x_2), \quad (1) 
\dot{y}_2 = r_2 x_2 - y_2 - x_2 z_2, \quad \dot{z}_2 = -b z_2 + x_2 y_2,$$

где  $\vec{x}_{12} = (x_{1,\,2}, y_{1,\,2}, z_{1,\,2})$  — векторы состояний взаимодействующих ведущей и ведомой систем, соответственно,  $\sigma = 10$ , b = 2,  $r_1 = 40$  и  $r_2 = 35$  — управляющие параметры,  $\varepsilon$  — параметр связи.

Уравнения для однонаправленно связанных генераторов Чуа записываются в виде [10]:

$$\dot{x}_{1} = \alpha_{1} (y_{1} - x_{1}^{3} - cx_{1}), \quad \dot{y}_{1} = x_{1} - y_{1} + z_{1}, 
\dot{z}_{1} = -\beta y_{1}, \quad \dot{x}_{2} = \alpha_{2} (y_{2} - x_{2}^{3} - cx_{2}), 
\dot{y}_{2} = x_{2} - y_{2} + z_{2} + \varepsilon (y_{1} - y_{2}), \quad \dot{z}_{2} = -\beta y_{2},$$
(2)

где  $\vec{x}_{12}=(x_{1,2},y_{1,2},z_{1,2})$  — векторы состояний взаимодействующих однонаправленно связанных генераторов,  $\alpha_1=10$ ,  $\alpha_2=10.1$ ,  $\beta=16$  и c=-0.143 — управляющие параметры,  $\epsilon$  — параметр связи. Система (2) является моделью реальной радиотехнической схемы, автономная динамика которой подробно исследована в [10].

Следует отметить, что при выбранных значениях управляющих параметров в обеих системах наблюдаются хаотические аттракторы со сходной двулистной структурой, что позволяет применять одинаковые методы и подходы для анализа повеления в таких системах.

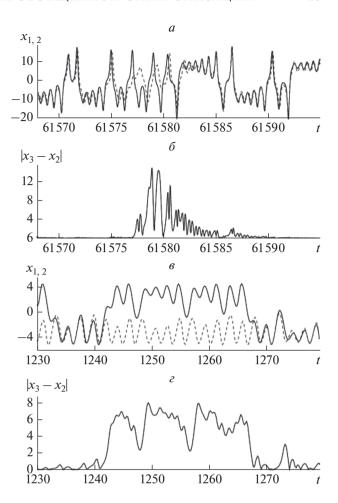
#### МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Для определения наличия обобщенной синхронизации в исследуемых системах и анализа характеристик перемежающегося поведения, имеющего место вблизи ее границы, использовался метод вспомогательной системы [11], являющийся одним из классических подходов к анализу обобщенной синхронизации в системах с однонаправленной связью. Суть этого метода сводится к введению в рассмотрение дополнительной, так называемой, вспомогательной системы, идентичной ведомой системе по управляющим параметрам, но стартующей с других начальных условий, и сравнению состояний этих систем с течением времени. Если после завершения переходного процесса состояния ведомой и вспомогательной систем полностью совпадают, в исходной паре ведущей и ведомой систем наблюдается режим обобщенной синхронизации. Если же состояния этих систем всегда различны, режим обобщенной синхронизации отсутствует.

Промежуточным является режим перемежающейся обобщенной синхронизации [5], при котором режим обобщенной синхронизации наблюдается не всегда: при фиксированных значениях управляющих параметров во временных реализациях взаимодействующих систем происходит чередование участков с синхронной (ламинарные фазы) и асинхронной (турбулентные фазы) в смысле обобщенной синхронизации динамикой. Для определения типа перемежаемости, реализующегося в системе, необходимо проанализировать сигнал, представляющий собой временную зависимость разности состояний ведомой и вспомогательной систем, и рассчитать статистические характеристики длительностей ламинарных фаз распределения длительностей ламинарных фаз и зависимости средних длительностей ламинарных фаз от параметра связи. При этом, под ламинарными фазами поведения понимаются временные интервалы, в течение которых модуль разности состояний ведомой и вспомогательной систем оказывается меньше некоторой наперед заданной константы  $\Delta$ , величина которой мала по сравнению с амплитудой собственных колебаний в системе.

#### РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Применим метод вспомогательной системы для определения статистических характеристик



**Рис. 2.** Фрагменты временных реализаций взаимодействующих систем Лоренца при  $\varepsilon=9.6$  (*a*) и Чуа (2) при  $\varepsilon=1.5$  (*в*), находящихся в режиме перемежающейся обобщенной синхронизации, и соответствующие им временные зависимости модуля разности состояний ведомой  $x_2$  и вспомогательной  $x_3$  систем Лоренца ( $\delta$ ) и Чуа ( $\epsilon$ ), соответственно.

перемежаемости в однонаправленно связанных системах Лоренца (1) и генераторах Чуа (2). Тип связи в обеих системах является диссипативным, что типично для режима обобщенной синхронизации.

Рисунок 2 иллюстрирует фрагменты временных реализаций взаимодействующих систем Лоренца при  $\varepsilon=9.6$  и генераторов Чуа при  $\varepsilon=1.5$ , соответствующих ламинарным и турбулентным фазам поведения, а также зависимости модуля разности состояний ведомой и вспомогательной систем в эти моменты времени. Из рисунков видно, что в обоих случаях в течение ламинарных фаз поведения состояния ведущей и ведомой систем оказываются близкими друг к другу, в то время как перед наступлением турбулентной фазы состояния этих систем расходятся на разные листы аттракторов, вновь сближаясь по окончании турбулентной

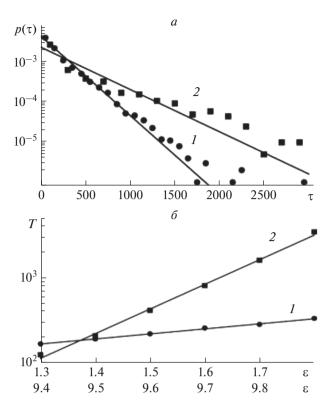


Рис. 3. Распределения длительностей ламинарных фаз при  $\varepsilon=9.6$  [при  $\varepsilon=1.5$ ] (a) и зависимости средних длительностей ламинарных фаз от параметра связи  $\varepsilon$  ( $\delta$ ) для однонаправленно связанных систем Лоренца (1) — кружки (генераторов Чуа (2) — квадраты), находящихся в режиме перемежающейся обобщенной синхронизации, и их теоретические аппроксимации экспоненциальными законами (3) и (4). Параметры аппроксимации выбраны следующими:  $T=218.6, K=0.0005, \alpha=1.36$  ( $T=410.4, K=0.02, \alpha=6.64$ ). Среднеквадратичные отклонения численно полученных данных от теоретических закономерностей (3) и (4) составляют  $\sigma=0.0001$  ( $\sigma=0.0003$ ) для рис. 1a,  $\sigma_m=0.0002$  ( $\sigma_m=0.0005$ ) — для рис.  $1\delta$ .

фазы. Такая ситуация наблюдается и в системах Лоренца, и генераторах Чуа, что говорит о типичности такого поведения в системах со сложной топологией аттрактора с однонаправленным диссипативным типом связи, находящихся в режиме перемежающейся обобщенной синхронизации.

На рис. 3 представлены статистические характеристики длительностей ламинарных фаз для систем (1) и (2), находящихся в режиме перемежаемости. Рисунок 3a соответствует распределениям длительностей ламинарных фаз, рассчитанным для обеих систем при тех же значениях параметра связи, что и на рис. 2, а рис. 3б соответствует зависимостям средних длительностей ламинарных фаз для этих систем от параметра связи. На рисунках представлены численно полученные данные и их аппроксимации. Из рисунков видно, что для обеих рассмотренных систем и распределения дли-

тельностей ламинарных фаз  $p(\tau)$ , и зависимости средних длительностей ламинарных фаз T от параметра связи подчиняются экспоненциальным законам

$$p(\tau) = \frac{1}{T} \exp\left(-\frac{\tau}{T}\right),\tag{3}$$

И

$$T = K \exp(\alpha \varepsilon), \tag{4}$$

соответственно, где K и  $\alpha$  — некоторые положительные константы (их значения указаны в подрисуночной подписи к рис. 3), что характерно также для взаимно связанных систем со сложной топологией аттрактора, находящихся вблизи границы обобщенной синхронизации [12].

#### **ЗАКЛЮЧЕНИЕ**

Таким образом, на примере двух однонаправленно диссипативно связанных систем Лоренца и радиотехнических генераторов Чуа проведено исследование характеристик перемежающегося поведения, имеющего место на границе обобщенной синхронизации в системах со сложной топологией аттрактора. Установлено, что тип перемежаемости, возникающий в данном случае, существенно отличается от перемежаемости типа "on-off", имеющей место в системах с достаточно простой топологией аттрактора. Показано, что распределения длительностей ламинарных фаз и зависимости средних длительностей ламинарных фаз от параметра связи подчиняются экспоненциальным законам, что характерно также для аналогичных систем с взаимной связью, находящихся вблизи границы обобщенной синхронизации.

На основании проведенного рассмотрения можно утверждать, что тип перемежаемости, реализующейся вблизи границы обобщенной синхронизации, не зависит от типа связи между системами (однонаправленная или взаимная), а определяется, в первую очередь, топологией аттракторов взаимодействующих систем (простая она или сложная).

Работа выполнена при финансовой поддержке Совета по грантам Президента Российской Федерации для государственной поддержки молодых российских ученых — докторов наук (проект  $N \ge MJ - 21.2020.2$ ).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Berge P., Pomeau Y., Vidal C. Order within chaos. New York: John Wiley and Sons, 1984.
- 2. Ott E., Sommerer J.C. // Phys. Lett. A. 1994. V. 188. P. 39.
- 3. Pikovsky A.S., Osipov G.V., Rosenblum M.G. et al. // Phys. Rev. Lett. 1997. V. 79 P. 47.
- Boccaletti S., Valladares D. // Phys. Rev. E. 2000. V. 62. P. 7497.

- Hramov A.E., Koronovskii A.A. // Europhys. Lett. 2005.
   V. 70. No 2. P. 169.
- 6. Hramov A.E., Koronovskii A.A., Kurovskaya M.K. et al. // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 97. Art. No 114101.
- 7. Rulkov N.F., Sushchik M.M., Tsimring L.S. et al. // Phys. Rev. E. 1995. V. 51. P. 980.
- 8. *Кузнецов С.П.* Динамический хаос. Москва: Физматлит. 2006. 356 с.
- Zheng Z., Wang X., Cross M.C. // Phys. Rev. E. 2002.
   V. 65. Art. No 056211.
- Huang A., Pivka L., Wu C.W. // Int. J. Bifurcat. Chaos. 1996. V. 6. P. 2175.
- Abarbanel H.D.I., Rulkov N.F., Sushchik M. // Phys. Rev. E. 1996. V. 53. P. 4528
- 12. Москаленко О.И., Короновский А.А., Ханадеев В.А. // ЖТФ. 2019. Т. 89. С. 338.

## Intermittency near the boundary of generalized synchronization in systems with a complex topology of attractor

V. A. Khanadeev<sup>a, b, \*</sup>, O. I. Moskalenko<sup>a, b</sup>, A. A. Koronovskii<sup>a, b</sup>

<sup>a</sup>Saratov State University, Saratov 410012 Russia

<sup>b</sup>Regional Scientific and Educational Mathematical Center "Mathematics of Future Technologies", Saratov 410012 Russia
\*e-mail: v.a.hanadeev@gmail.com

The characteristics of intermittent behavior taking place near the boundary of generalized synchronization in unidirectionally coupled systems with a complex topology of attractor have been studied. Using the examples of Lorentz systems and Chua generators it has been found that the distributions of the laminar phase lengths and dependencies of the mean lengths of the laminar phases on the criticality parameter in such case obey the exponential law.

УЛК 533.9

#### УТОЧНЕНИЕ СКОРОСТЕЙ РЕАКЦИЙ ПИРОЛИЗА ЭТАНА

© 2021 г. О. И. Топор<sup>1, \*</sup>, А. А. Белов<sup>1, 2</sup>, И. А. Федоров<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
 "Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова", физический факультет, Москва, Россия
 <sup>2</sup>Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования
 "Российский университет дружбы народов", Москва, Россия

\*E-mail: topor.oi15@physics.msu.ru Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Проанализированы экспериментальные данные о скоростях реакций, описывающих пиролиз этана. Получена точность 1-25%, что существенно превосходит мировой уровень. Попутно проведен критический анализ существующих теоретических моделей скоростей химических реакций.

DOI: 10.31857/S0367676521020289

#### **ВВЕДЕНИЕ**

Важную роль в химической промышленности играют низшие олефины — этилен и пропилен. Они используются для производства полиэтилена, полипропилена, этанола, ацетона, фенола, лаков, растворителей и т.д. Основным способом получения олефинов является процесс термического разложения (пиролиза) углеводородов [1, 2] в ходе нефтепереработки. Простейшим таким процессом является термическое разложение этана. Этот процесс имеет большую практическую значимость.

Для решения этих задач (в частности, при разработке новых химических реакторов) широко применяется численное моделирование. При этом используют сложные газодинамические коды, в которые входят уравнения кинетики химических реакций. Результат такого моделирования сильно зависит от используемых данных по скоростям химических реакций.

Скорости реакций находят из экспериментальных измерений либо теоретических расчетов. Широкоупотребительные методы теоретического расчета имеют ряд слабых мест, их критика представлена ниже. Поэтому остановимся на экспериментальных измерениях.

Основными экспериментальными техниками являются проточные реакторы (для экзотермических реакций) и ударные трубы (для эндотермических реакций) [3]. В таких экспериментах получают значение скорости реакции K(T) при фиксированных значениях температуры и давления.

Как правило, по каждой реакции имеется много экспериментальных работ различных авторов, причем диапазон условий в них частично перекрывается, частично различается. Обычно каждый автор производит обработку своих измерений, используя аппроксимирующую формулу обобщенного аррениусовского типа

$$K(T) = AT^{n} \exp(-E/T). \tag{1}$$

Здесь A, n, E — подгоночные параметры. Из-за неизбежных погрешностей эксперимента результаты различных авторов отличаются друг от друга, причем нередко значительно.

Чтобы нивелировать индивидуальные отклонения отдельных экспериментов, применяют совместные обработки данных из большого количества разных источников. Такие обработки проводятся сотрудниками Национального института стандартов и технологий (NIST) [4, 5], NASA [6], университета Беркли [7] и публикуются в различных тематических изданиях (например, [8-11]). Однако в таких обработках остается неясным, с какой точностью получаются коэффициенты обобщенной формулы Аррениуса. Коэффициенты, даваемые разными коллективами, могут отличаться. В этих работах иногда делаются экспертные оценки точности полученных коэффициентов и коридоров достоверности полученных кривых, однако аккуратный статистический анализ отсутствует.

В работе [12] предложен метод совместной обработки таких экспериментальных данных, который впервые позволил помимо аппроксимаций находить статистически достоверные оценки их точности. Этот метод обеспечивает отличную точность совместной аппроксимации данных из различных источников.

В данной работе с использованием метода [12] проведена обработка экспериментальных данных по скоростям системы реакций, описывающей пиролиза этана. Получена точность 1—25%, которая значительно превосходит мировой уровень.

#### МОДЕЛИ СКОРОСТЕЙ РЕАКЦИЙ

Для квантово-механического расчета [13, 14] нужно задать потенциал взаимодействия реагирующих молекул. Однако аккуратное нахождение этого потенциала теоретическими методами практически невыполнимо. Поэтому применяют различные эмпирические псевдопотенциалы, которые содержат свободные параметры, подгоняемые под эксперимент. Предсказательная сила такого расчета невелика.

Другим широко распространенным подходом является теория переходного состояния. Мы проанализировали различные варианты этой теории, описанные в [15]. Приведем критику этих теорий.

#### Теория переходного состояния

Это название объединяет группу теорий, перечисленных далее. В них предполагается, что исходные реагенты соединяются в промежуточную молекулу (называемую также активной)

$$A + B \rightarrow AB^* \rightarrow пролукты.$$
 (2)

Активная молекула сталкивается с другими молекулами, в результате чего часть кинетической энергии столкновения переходит во внутренние степени свободы активной молекулы. Если энергия одной из степеней свободы активной молекулы оказывается достаточно большой (т.е. превышает высоту потенциального барьера), то эта степень свободы разрывается, и реализуется один из каналов химической реакции. При этом рассматривается и обратный процесс — потеря энергии активной молекулой при столкновениях с другими частицами.

Такое рассмотрение разумно для реакций между сложными молекулами, содержащими много атомов. Тогда энергия может долго переходить между степенями свободы активной молекулы. Однако именно для сложных молекул теории переходного состояния дают большое расхождение с экспериментом [15]. Причина в том, что для многоатомной активной молекулы сложно найти фактические степени свободы, поскольку она не может распасться на части произвольного состава. Кроме того, потенциал, соответствующий этим степеням свободы, точно неизвестен. Возможны только модели, содержащие подгоночные параметры.

Если же исходные реагенты малоатомные, то число степеней свободы в активной молекуле невелико. Поэтому реакция должна происходить

практически в одно столкновение. При попытке это учесть, теория переходного состояния сильно занижает скорости реакций. Поэтому при отсутствии подгонок фактические границы применимости теории переходного состояния неясны.

#### Теория Линдемана

В рамках описанного выше подхода предполагается, что преодоление потенциального барьера активной молекулой возможно только за счет перекачки энергии из поступательного движения. При этом внутренние степени свободы активной молекулы не задействуются. В этой теории вводился подгоночный параметр — конечное времени жизни активной молекулы, то есть исключалась быстрая ее деактивация. В противном случае теория резко занижала скорость реакции [15].

#### Модификация Хиншельвуда

Модификация Хиншельвуда основана на теории Линдемана. Основным отличием было предположение о том, что энергия, требуемая для преодоления потенциального барьера, частично берется из внутренних степеней свободы активной молекулы. Это позволило отказаться от введения фиктивного времени жизни активной молекулы, но сделало модель чувствительной к выбору внутренних степеней свободы. Фактически их число оказывается новым подгоночным параметром. Известны случаи, когда расхождение этой теории с экспериментом оказывается большим [15].

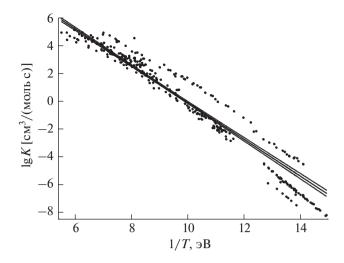
#### Теория Слэтера

В теории Слэтера используется механизм столкновений Хиншельвуда—Линдемана. Активная молекула представляется в виде системы гармонических осцилляторов, которые не взаимодействуют друг с другом. Реакция происходит тогда, когда координата одного из осцилляторов достигает критического значения.

Эта модель наследует указанную выше проблему теории Хиншельвуда. Кроме этого, приближение гармонического осциллятора справедливо только вблизи минимума потенциала. По мере приближения к максимуму потенциального барьера все больше сказывается ангармонизм. Последний неизбежно приводит к обмену энергией между степенями свободы, что противоречит исходным предположениям теории.

#### Теория Райса-Рамспергера-Касселя

Теория Райса—Рамспергера—Касселя (РРК) также основана на механизме столкновений Хиншельвуда—Линдемана, но допускает обмен энергией между внутренними степенями свободы за



**Рис. 1.** Реакция  $C_2H_6 \rightarrow 2CH_3$ . Точки — эксперименты (полный список ссылок приведен в [19]). Сплошная линия — линейная аппроксимация, пунктир — границы ее доверительного интервала (соответствуют одному стандартному уклонению).

счет введения ангармонического потенциала. Чтобы реакция произошла, активная молекула должна иметь достаточную энергию, причем эта энергия должна быть сконцентрирована в нужной части молекулы. Данная теория разработана как в классическом, так и в квантовом варианте.

Модель РРК, как и теория Хиншельвуда, чувствительна к эмпирическому выбору внутренних степеней свободы активной молекулы. Их число остается подгоночным параметром. Во-вторых, эта теория должна явно содержать константу связи различных внутренних степеней свободы. Эта величина также фактически является подгоночной.

#### Теория Маркуса-Райса

Теория Маркуса—Райса (РРКМ) считается наиболее употребительной. Она построена на основе модели РРК. В ней вводится дополнительная ступень реакции — так называемый активированный комплекс  $AB^+$ 

$$A + B \rightarrow AB^* \rightarrow AB^+ \rightarrow$$
 продукты. (3)

Активная молекула  $AB^*$  имеет достаточную энергию, но эта энергия не сосредоточена в нужной степени свободы. В активированном комплексе  $AB^+$  произошло нужное перераспределение энергии. Данное состояние соответствует максимуму потенциального барьера между реагентами и продуктами. Фактически скорость реакции  $AB^* \to AB^+$  является еще одним подгоночным параметром (третьим по счету после двух параметров в модели PPK). Таким количеством параметров можно подогнать любые эксперимен-

тальные данные. Поэтому проверка этой теории на конкретных экспериментах ничего не доказывает.

#### СИСТЕМА РЕАКЦИЙ

Система реакций пиролиза этана была взята из [16]. Она приведена в табл. 1. Здесь звездочка (\*) обозначает радикал (то есть наличие неспаренного электрона у атома С). Носителями цепи являются атомарный водород Н и метил СН<sub>3</sub>. Эта система реакций, с одной стороны, максимально проста, то есть включает минимально возможное число стадий. С другой стороны, она адекватно описывает пиролиз этана как при низких конверсиях, так и при высоких [16, 17].

#### ОБРАБОТКА ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ

Мы проанализировали литературу по скоростям K перечисленных реакций. По всем реакциям, кроме четырех, есть прямые экспериментальные данные. Для этих реакций в табл. 1 стоит прочерк в графе N, содержащей количество экспериментальных точек.

Оказалось, что скорости реакций диссоциации  $C_2H_6 \rightarrow 2CH_3^*$ ,  $C_2H_5^* \rightarrow C_2H_4 + H$ ,  $C_3H_7^* \rightarrow CH_3^* + C_2H_4$  сильно зависят от давления. Простейший закон Аррениуса не позволяет это учитывать. Однако в прикладных задачах (например, при крекинге нефти) давление составляет от одной до нескольких атмосфер. В этих условиях указанные реакции ведут себя как мономолекулярные; то есть скорость расхода исходного реагента пропорциональна его концентрации, причем коэффициент пропорциональности не зависит от давления (т.е. от концентраций всех остальных молекул). В химической литературе этот случай называется пределом высоких давлений [15].

Поэтому по перечисленным реакциям мы собирали данные, относящиеся к максимальным давлениям, достигнутым в оригинальных работах. Обычно эти давления составляли от 0.2 до 4 атм. Для каждой реакции отобранные данные разумно согласуются друг с другом.

По каждой реакции было собрано от  $\sim$ 30 до  $\sim$ 300 точек для K(T). В пределах экспериментальных погрешностей эти точки укладываются на прямую линию в координатах 1/T— $\lg K$ ; это соответствует n=0 в (1). Пример такого графика для реакции  $\mathrm{C_2H_6} \to 2\mathrm{CH_3}^*$  приведен на рис. 1. По этой реакции имеется 297 экспериментальных точек. Видно, что они образуют несколько размытую "полосу".

Эти данные были обработаны методом, предложенным в [12]. Напомним, что это метод совместной обработки, то есть аппроксимация стро-

Таблица 1. Результаты обработки экспериментальных данных (пояснения см. в тексте)

Реакция	Δ <i>T</i> , K	$\lg A$	Е, эВ	N	ΔK, %
$C_2H_6 \to 2CH_3^*$	777—2108	13.18	3.05	297	15
$CH_3^* + C_2H_6 \to CH_4 + C_2H_5^*$	162-1143	12.15	0.529	77	8
$C_2H_5^* \to C_2H_4 + H$	672-914	11.22	1.35	23	9
$H + C_2H_6 \rightarrow H_2 + C_2H_5^*$	280-1480	14.09	0.410	89	4
$H+C_2H_4 \to C_2H_5^*$	198-825	12.70	0.664	299	4
$CH_3^* + C_2H_4 \rightarrow C_3H_7^*$	353-502	8.40	0.319	23	3
$C_3H_7^* \to CH_3^* + C_2H_4$	538-805	9.12	0.95	24	25
$2C_2H_5^* \to C_2H_4 + C_2H_6$	203-343	11.86	0	5	1
$C_3H_7^* + C_2H_4 \to C_3H_5^* + C_3H_6$	300-2500	10.20	0.30	_	50
$CH_3^* + C_2H_4 \rightarrow CH_4 + C_2H_3^*$	672–776	4.153	0.080	50	1
$CH_3^* + C_2H_3^* \to CH_4 + C_2H_2$	300-900	13.39	0	19	15
$C_2H_3^* + H \rightarrow C_2H_2 + H_2$	213-298	13.47	0	8	5
$C_2H_4 \to {}^*C_2H_4^*$	400-1500	14.9	2.64	_	20
$^*C_2H_4^* + C_2H_6 \rightarrow CH_3^* + C_3H_7^*$	400-1500	16.16	2.21	_	25
$^*C_2H_4^* \rightarrow C_2H_4$	900-1100	10.2	0	_	600

ится для всего доступного массива данных, а не для точек каждой из работ в отдельности.

Метод заключается в аппроксимации полиномами, ортогонализованными на множестве экспериментальных точек с весами, соответствующими погрешностям этих точек. Для экзотермических реакций используется аппроксимация константой, для эндотермических — линейной функцией. Благодаря использованию ортогональных многочленов погрешности коэффициентов разложения не коррелированны между собой (тем самым, могут округляться независимо

друг от друга). Это позволяет не только найти достоверную аппроксимацию, но и определить объективные оценки ее точности. Попутно уточняются оценки точности самих данных по отклонению от аппроксимирующей прямой.

#### УСРЕДНЕНИЕ ТЕОРЕТИЧЕСКИХ ОЦЕНОК

По четырем реакциям (реакция  $C_3H_7^* + C_2H_4 \rightarrow C_3H_5^* + C_3H_6$  и три реакции с участием биради-

кала  ${}^*C_2H_4^*$ ) известны только теоретические оценки скорости. В зарубежной литературе эти реакции вовсе неосвещены. Данные по реакции  ${}^*C_2H_4^* \to C_2H_4$  удалось найти только в работе [16]. Поскольку эта реакция, очевидно, является экзотермической, в качестве ее скорости можно взять предэкспоненциальный множитель в скорости эндотермической реакции  $C_2H_4 \to {}^*C_2H_4^*$ . Это довольно грубая оценка, но ее расхождение с данными из [16] укладывается в рамки погрешности, приведенные в этой работе. Поэтому такая оценка достаточно разумна.

Для других пар взаимно обратных реакций с участием радикалов такой подход неприменим, поскольку неспаренные электроны продуктов-радикалов могут находиться в высоковозбужденных состояниях. Поэтому такие реакции в обоих направлениях могут оказаться эндотермическими.

Для реакций, по которым имеются только теоретические формулы для скорости, эти формулы усредняются методом виртуального эксперимента [18]. Суть подхода заключается в следующем.

Для теоретических формул обычно приводятся диапазон температур, для которого они выводились, и некоторые оценки погрешности. Для каждой формулы разыграем достаточное количество (~30) случайных значений температуры в интервале ее применимости и вычислим значения K по этим формулам. Прибавим  $\kappa$  этим значениям случайное возмущение в виде гауссовых случайных величин. Это возмущение имитирует случайную погрешность эксперимента. Оно имеют нулевое среднее и стандартное уклонение, равное оценке точности соответствующей теоретической формулы. Получим массив  $\sim 30J$  "псевдоэкспериментальных" значений K(T), где J – количество теоретических формул. Этот массив обрабатывается тем же методом аппроксимации ортогональными полиномами. Выдаваемые при этом оценки доверительного интервала являются объективными оценками точности итоговых аппроксимаций.

#### БАЗА ДАННЫХ

Найденные коэффициенты аппроксимаций, а также оценки их точности приведены в табл. 1. Диапазон температур указан в кельвинах; предэкспоненциальный множитель A имеет размерность 1/c для мономолекулярных реакций и моль/ $(cm^3 \cdot c)$  для бимолекулярных реакций; энергия активации E дана в единицах электрон-вольт  $(1 \ni B = 11604 \text{ K})$ . Здесь N — число экспериментальных точек для каждой реакции,  $\Delta K$  — средняя по-

грешность аппроксимации в указанном интервале температур.

Для тех реакций, по которым имеются экспериментальные данные, точность наших аппроксимаций составила от 1 до 25%. Подчеркнем, что эти оценки статистически достоверны и получены в результате математически строгой процедуры. Такую высокую точность удалось получить за счет совместной обработки большого количества данных.

Для реакций, по которым отсутствуют экспериментальные данные, полученная погрешность K(T) может интерпретироваться как оценка точности исходных теоретических моделей (как правило, различных вариантов теории переходного состояния). Видно, что эта точность заметно хуже, чем точность самих экспериментов.

В известных обзорах, рекомендации которых широко используются на практике, приводятся экспертные оценки точности аппроксимаций (см., например, [8]). Обычно они составляют 0.3-0.4 для  $\lg K$ , т.е. 100-250%. Видно, что точность аппроксимаций, построенных в данной работе, кардинально превосходит мировой уровень.

Собранные экспериментальные данные со ссылками на оригинальные работы, а также построенные аппроксимации с оценками их точности и достоверности включены в базу данных ТЕФИС [19], разрабатываемую в Институте прикладной математики им. М.В. Келдыша РАН.

Работа поддержана РНФ (проект № 16-11-10001-П).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. *Мухина Т.Н., Барабанов Н.Л., Бабаш С.Е. и др.* Пиролиз углеводородного сырья. М.: Химия, 1987.
- Leatherd D.A., Purnell J.H. // Annu. Rev. Phys. Chem. 1970. V. 21. P. 197.
- 3. *Davidson D.F., Hanson R.K.* // Int. J. Chem. Kinet. 2004. V. 36. P. 510.
- Westley F. Tables of recommended rate constants for chemical reactions occurring in combustion. National standard reference data series, NSRDS-NBS 67, 1980.
- 5. NIST Chemical kinetics database. Standard reference database 17-2Q98. Gaithersburg: NIST, 1998.
- 6. Burkholder J.B., Sander S.P., Abbatt J.P.D. et al. Chemical kinetics and photochemical data for use in atmospheric studies. Eval. No 18. Pasadena: JPL Publ., 2015.
- 7. http://www.me.berkeley.edu/gri mech.
- 8. Baulch D.L. Bowman C.T., Cobos C.J. et al. // J. Phys. Chem. Ref. Data. 2005. V. 34. No 3. P. 757.
- 9. *Ибрагимова Л.Б Смехов Г.Д.*, *Шаталов О.П.* // Физ.-хим. кин. в газ. динам. 2009. Т. 8. С. 1.
- 10. Mass U., Warnatz J. // Combust. Flame. 1988. V. 74. P. 53.
- 11. *Miller J.A.*, *Bowman C.T.* // Progr. Energy Combust. Sci. 1989. V. 15. No 4. P. 287.

- 12. Белов А.А., Калиткин Н.Н. // ЖВМиМФ. 2020. Т. 60. № 7. С. 105.
- Harris F.E. // Ann. Rev. Phys. Chem. 1972. V. 23. No 1. P. 415.
- 14. *Murrell J.N., Carter S., Farantos S.C. et al.* Molecular potential energy functions. N.Y.: Wiley, 1984.
- Robinson P.G., Holbrook K.A. Monomolecular reactions. London, New York Sydney, Toronto: Wiley-interscience, 1972.
- Nurislamova L.F., Stoyanovskaya O.P., Stadnichenko O.A. et al. // Chem. Prod. Proc. Model. 2014. V. 9. No 2. P. 143.
- 17. Snytnikov V.N. Snytnikov P.V., Amosov Yu.I. et al. // Kinet. Catalysis. 2010. V. 51. P. 10.
- 18. *Belov A.A.*, *Kalitkin N.N.*, *Kozlitin I.A.* // Fusion Engin. Design. 2019. V. 141. P. 51.
- 19. http://tefis.keldysh.ru.

#### Refinement of reactivities of reactions describing ethane pyrolysis

O. I. Topor<sup>a, \*</sup>, A. A. Belov<sup>a, b</sup>, I. A. Fedorov<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119991 Russia <sup>b</sup>Peoples' Friendship University of Russia (RUDN University), Moscow, 117198 Russia \*e-mail: topor.oi15@physics.msu.ru

We performed new processing of experimental data on reactivities of reactions describing ethane pyrolysis. Our approximations have accuracy of 1-25% which essentially exceed world level. Simultaneously, we present critical analysis of existing theoretical models of chemical reaction reactivities.

УЛК 542.34

# ПРИМЕНЕНИЕ ГОЛОГРАФИЧЕСКОЙ ИНТЕРФЕРОМЕТРИИ ДЛЯ ПЕРЕДАЧИ ИНФОРМАЦИИ ЧЕРЕЗ ВОЗМУЩЕННУЮ ОКЕАНИЧЕСКУЮ СРЕДУ

© 2021 г. В. М. Кузькин<sup>1</sup>, М. Бади<sup>2</sup>, С. А. Пересёлков<sup>3, \*</sup>, Е. С. Казначеева<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Федеральный исследовательский центр "Институт общей физики имени А.М. Прохорова Российской академии наук", Москва, Россия <sup>2</sup>Университет штата Делавер, Ньюарк, США

<sup>3</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования "Воронежский государственный университет", Воронеж, Россия

> \*E-mail: pereselkov@yandex.ru Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Теория интерферометрической обработки гидроакустической информации обобщена на случай, когда интенсивные внутренние волны обусловливают взаимодействие мод поля источника. Дано объяснение экспериментальным данным по формированию голограммы при наличии интенсивных внутренних волн. Оценена погрешность передачи неискаженной информации через возмущенную океаническую среду.

**DOI:** 10.31857/S0367676521020186

#### **ВВЕДЕНИЕ**

Интерферометрическая обработка [1–3] основана на когерентном накоплении спектральной интенсивности волнового поля вдоль локализованных полос интерференционной картины (интерферограммы) в переменных частота-время, формируемой широкополосным источником, которая далее подвергается двукратному преобразованию Фурье. На выходе интегрального преобразования спектральная плотность концентрируется в узкой полосе в форме фокальных пятен, обусловленных интерференцией мод различных номеров. В отличие от сигнала, накопление помехи вдоль полос интерферограммы не когерентно и распределено по всей области двукратного интегрального преобразования. Восстановление зашумленной интерферограммы достигается фильтрацией двумерной спектральной плотности сигнала с последующим применением к ней двукратного обратного преобразования Фурье. Преобразованную спектральную плотность интерферограммы назовем голограммой, а саму обработку - голографической интерферометрией, позволяющей выделять слабые сигналы на фоне интенсивной помехи. Регулярный характер интерференционной картины, позволяющей реализовать такую обработку, обусловлен волноводной дисперсией и многомодовым распространением звуковых волн.

Наиболее очевидным применением голографической интерферометрии является локализация малошумных источников [1–3]. На ее основе разработаны два адаптивных алгоритма интерферометрической обработки, которые решают проблему локализации малошумных источников в условиях, когда отсутствует априорная информация о передаточной функции океанической среды [4–6].

Другое представляющее интерес применение голографической интерферометрии связано с возможностью передачей неискаженной гидроакустической информации через случайно-неоднородную океаническую среду. Впервые данный эффект экспериментально обнаружен при прохождении широкополосного сигнала стационарной трассы, возмущенной интенсивными внутренними волнами (ИВВ), в эксперименте SWARM-95 [7, 8] и описан в работах [9, 10].

В настоящей работе на основе теоретического анализа и численного моделирования изучен механизм формирования интерферограммы и голограммы, когда ИВВ приводят к взаимодействию мод поля источника. Объяснен экспериментальный эффект [10] образования двух непересекающихся областей голограммы, обусловленных невозмущенным и рассеянным полями. Оценена погрешность восстановления интерферограммы невозмущенного поля.

#### ФОРМИРОВАНИЕ ГОЛОГРАММЫ В ПРИСУТСТВИИ ИВВ

Теоретическое обоснование избежания искажений информации при наличии гидродинамических возмущений опирается на возможность представления интерферограммы в виде линейной суперпозиции двух независимых интерферограмм, порожденных невозмушенным и рассеянным полями. Тогда, согласно свойству линейности двукратного преобразования Фурье, на голограмме формируются две неперекрывающиеся локализованные спектральные области. Одна из них, обусловленная невозмущенным полем, концентрируется в форме фокальных пятен преимущественно в направлении оси времени, а вторая, вызванная гидродинамическим возмущением, — в направлении оси частоты. Фильтрация этих областей позволяет разрешить голограммы невозмущенного и рассеянного полей. Применение к ним обратного двукратного преобразования Фурье дает возможность реконструировать их интерферограммы. Одна из них обусловлена интерференцией мод невозмущенной среды, другая — изменчивостью среды.

В условиях, когда моды нельзя считать независимыми, вариации показателя преломления инициируют обмен энергии между их комплексными амплитудами. Изменения фазы, определяющей вид локализованных полос интерферограммы, обусловлены изменениями как горизонтальных волновых чисел, так и амплитуд мод. Поправки фазы по отношению к невозмущенному значению можно определить методом малых возмущений, позволяющим описать слабую межмодовую трансформацию, характерную для океанических неоднородностей.

Для простоты ограничимся рассмотрением ИВВ в форме одиночного солитона, распространяющегося вдоль акустической трассы. Поправки комплексных амплитуд  $A_m$  определяются из системы линейных дифференциальных уравнений первого порядка для взаимодействующих мод

$$\frac{dA_m(x,t)}{dx} = i \sum_n \{ \xi_m \delta_{mn} + \mu_{mn}(x,t) \} A_n(x,t), \qquad (1)$$

где  $\xi_m = h_m + i\gamma_m$  — комплексное горизонтальное волновое число m-й моды,  $\delta_{mn}$  — символ Кронекера, x — текущее горизонтальное расстояние между источником и приемником, t — время [11]. Далее невозмущенные значения величин обозначаются чертой сверху, а возмущенные — тильдой.

Коэффициенты взаимодействия мод равны

$$\mu_{mn}(x,t) = \frac{\overline{k_0}^2}{2\sqrt{\overline{h_m}\overline{h_n}}} \int_0^H \overline{\Psi}_m(z) \overline{\Psi}_n(z) \tilde{n}^2(x,z,t) dz. \quad (2)$$

Здесь  $\overline{k_0}^2$  — квадрат волнового числа на глубине  $z=0,\ \overline{\psi}_m(z)$  — собственная функция m-й моды. Флуктуационная компонента квадрата показателя преломления записывается как

$$\tilde{n}^{2}(x,z,t) = -2QN^{2}(z)\Phi(z)\zeta(x,t),$$
(3)

где  $Q \approx 2.4 \text{ c}^2/\text{м}$  — константа, определяемая физическими свойствами воды; N(z) — частота плавучести;  $\Phi(z)$  — собственная функция первой гравитационной моды, нормированная на собственное значение на глубине приема, H — глубина волновода [12]. Вертикальные смещения водных слоев  $\zeta(x,t)$ , определяемые решением уравнения Кортевега—де Вриза, имеют вид

$$\zeta(x,t) = -B\operatorname{sech}^{2}[(x-ut)/\eta]. \tag{4}$$

Здесь B и  $\eta$  — амплитуда и полуширина солитона на уровне 0.42 от максимума, u — скорость распространения.

Учитывая малость  $\tilde{n}^2$  по отношению к  $\overline{n}^2$ ,  $\tilde{n}^2 \ll \overline{n}^2$ , результирующее поле p представим как

$$p = p_0 + p_s, (5)$$

где  $p_0$  — невозмущенное поле, удовлетворяющее волновому уравнению

$$\Delta p(x,z,t) + \overline{k_0}^2 (\overline{n}^2(z) + \tilde{n}^2(x,z,t)) p(x,z,t) = 0$$
 (6)

с соответствующими граничными условиями при  $\tilde{n}^2(x,z,t)=0$ ,  $p_s$  — рассеянное поле первого порядка относительно  $\tilde{n}^2$ . Запишем поля  $p_{0,s}$  как сумму мод вида

$$p_0(\omega) = \sum_m \overline{A}_m(\omega) \exp(i\overline{h}_m(\omega) x_0), \qquad (7)$$

$$p_{s}(\omega,t) = \sum_{m} \tilde{A}_{m}(\omega,t) \exp(i\Phi_{m}(\omega,t)),$$
  

$$0 \le x(t) \le x_{0}.$$
(8)

Здесь  $\Phi_m(\omega,t) = \int_0^{x(t)} \tilde{h}_m(\omega,t) dx'$  — фаза m-моды рассеянного поля,  $x_0$  — расстояние между источником и приемником. Поправки  $\tilde{A}_m$  и  $\tilde{h}_m$  определяются из решения системы уравнений (1). Цилиндрическое расхождение поля, модальное затухание, глубины источника  $z_s$  и приемника  $z_q$  формально учитываются амплитудной зависимостью мод.

Интерферограмма результирующего поля  $I = |p|^2$ , согласно (5), равна

$$I = p_0 p_0^* + p_s p_0^* + p_0 p_s^* + p_s p_s^*, (9)$$

где звездочкой обозначена комплексно-сопряженная величина. Первое и четвертое слагаемые

представляют собой интерферограммы невозмущенного и рассеянного полей, а второе и третье слагаемые — интерферограммы, вызванные произведением невозмущенного и рассеянного полей. Невозмущенное и рассеянное поля некогерентны, поэтому второе и третье слагаемые можно рассматривать как некий фон (среднее значение), снижающий контрастность результирующей интерферограммы.

Вычтем из интерферограммы I(9) среднее значение  $\overline{\overline{I}}$  ,  $\overline{\overline{I}} = I - \overline{\overline{I}}$  . Тогда

$$\ddot{I}(\omega,t) = \ddot{I}_0(\omega) + \ddot{I}_s(\omega,t). \tag{10}$$

Согласно (7), (8),

$$\ddot{I}_{0}(\omega) = \sum_{m} \sum_{n} \overline{A}_{m}(\omega) \overline{A}_{n}^{*}(\omega) \exp(i\overline{h}_{mn}(\omega) x_{0}) =$$

$$= \sum_{m} \sum_{n} \ddot{I}_{0}^{(mn)}(\omega), \ m \neq n,$$
(11)

$$\ddot{I}_{s}(\omega,t) \sum_{m} \sum_{n} \tilde{A}_{m}(\omega,x(t),t) \tilde{A}_{n}^{*}(\omega,x(t),t) \times \\
\times \exp \left( i \int_{0}^{x(t)} \tilde{h}_{mn}(\omega,t) dx' \right) = \\
= \sum_{m} \sum_{n} \ddot{I}_{s}^{(mn)}(\omega,t), \quad m \neq n. \tag{12}$$

Здесь  $\overline{h}_{mn} = \overline{h}_m - \overline{h}_n$ ,  $\widetilde{h}_{mn} = \widetilde{h}_m - \widetilde{h}_n$ . Таким образом, при наличии возмущения интерферограмма представляет собой сумму интерферограмм невозмущенного и рассеянного полей.

Применим к интерферограмме  $\ddot{I}(\omega,t)$  (10) двукратное преобразование Фурье. В результате получаем сумму голограмм невозмущенного и рассеянного полей

$$F\left(\dot{\mathbf{v}},\tau\right) = \sum_{m} \sum_{n} \int_{0}^{\Delta t} \int_{\omega_{1}}^{\omega_{2}} \left[ \ddot{I}_{0}^{(mn)}(\omega) + \ddot{I}_{s}^{(mn)}(\omega,t) \right] \times \\ \times \exp\left[i\left(\dot{\mathbf{v}}\,t - \tau\omega\right)\right] dt d\omega = \\ = \sum_{m} \sum_{n} F_{0}^{(mn)}\left(\dot{\mathbf{v}},\tau\right) + \sum_{m} \sum_{n} F_{s}^{(mn)}\left(\dot{\mathbf{v}},\tau\right).$$
(13)

Здесь  $\acute{\mathbf{v}}=2\pi$  и  $\mathbf{\tau}-$  циклическая частота и время голограммы;  $\Delta t-$  время наблюдения;  $\omega_{1,2}=$  =  $\omega_0 \mp (\Delta \omega/2)$ ,  $\Delta \omega$  и  $\omega_0-$  ширина и средняя частота спектра.

Используя подход при получении голограммы движущегося источника [1], для парциальной голограммы невозмущенного поля находим

$$F_{0}^{(mn)}\left(\dot{\mathbf{v}},\boldsymbol{\tau}\right) = \overline{A}_{m}\left(\omega_{0}\right)\overline{A}_{n}^{*}\left(\omega_{0}\right)\Delta\omega\Delta t \times \\ \times \exp\left(i\dot{\mathbf{v}}\,\Delta t/2\right)\exp\left\{i\left[\left(m-n\right)x_{0}\alpha-\tau\omega_{0}\right]\right\} \times (14) \\ \times \frac{\sin\left(\frac{\dot{\mathbf{v}}\,\Delta t}{2}\right)}{\left(\frac{\dot{\mathbf{v}}\,\Delta t}{2}\right)}\frac{\sin\left[\left(\left(m-n\right)x_{0}\frac{d\alpha}{d\omega}-\tau\right)\frac{\Delta\omega}{2}\right]}{\left[\left(\left(m-n\right)x_{0}\frac{d\alpha}{d\omega}-\tau\right)\frac{\Delta\omega}{2}\right]},$$

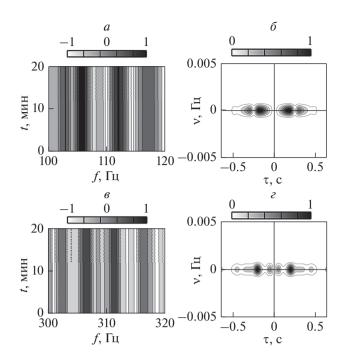
где  $\alpha = d\overline{h}_l(\omega_0)/dl = \overline{h}_{l+1}(\omega_0) - \overline{h}_l(\omega_0)$ , l — номер моды, в окрестности которой моды синфазны. Введение величины  $\alpha$  полезно при интерпретации голограммы. В действительности,  $(d\alpha/d\omega)(m-n) = (d\overline{h}_{mn}(\omega_0)/d\omega)$ .

Вычисление парциальной голограммы рассеянного поля (13) возможно лишь численными методами. Однако и без численного решения можно получить некоторые общие выводы относительно расположения на голограмме области локализации рассеянного поля. Положим, что в интерферограмме рассеянного поля (12) амплитуды  $\tilde{A}_{m,n}$  медленно меняются с изменением частоты и времени по сравнению с "быстрым" экспоненциальным множителем. Тогда парциальную голограмму рассеянного поля можно представить как

$$F_{s}^{(mn)}\left(\dot{\mathbf{v}},\tau\right) = \sum_{m} \sum_{n} \tilde{A}_{m}\left(\omega_{0},t_{1}\right) \tilde{A}_{n}^{*}\left(\omega_{0},t_{1}\right) \times \int_{0}^{\Delta t} \int_{\omega_{1}}^{\omega_{2}} \left[\exp\left(i\Phi_{mn}\left(\omega,t\right)\right) \exp\left(i\left(\dot{\mathbf{v}}\,t-\tau\omega\right)\right)\right] dt d\omega.$$
(15)

Если в разности фаз  $\Phi_{mn}(\omega,t) = \Phi_m(\omega,t) - \Phi_n(\omega,t)$  можно пренебречь изменениями частоты, то спектральная плотность рассеянного поля концентрируется вдоль оси частоты  $\acute{\mathbf{v}}$ . Данный эффект ранее наблюдался в натурном эксперименте [10]. В противном случае, когда эту зависимость необходимо учитывать, спектральная плотность будет располагаться в узкой полосе под некоторым углом к оси частоты.

Таким образом, в присутствии ИВВ на голограмме реализуются две неперекрывающиеся области спектральной плотности невозмущенного и рассеянного полей. Применение к отфильтрованным спектральным плотностям обратных двукратных преобразований Фурье дает возможность реконструировать двумерные интерферограммы невозмущенного и рассеянного полей.

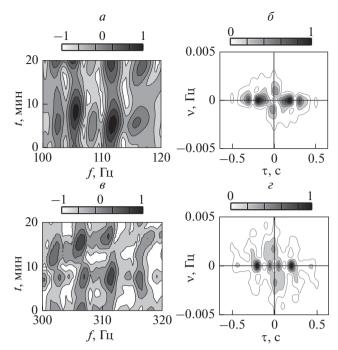


**Рис. 1.** Нормированные интерферограммы (a, s) и модули голограмм (s, c) невозмущенных полей:  $(a, \delta)$  полоса  $\Delta f_1$ , (s, c) полоса  $\Delta f_2$ .

#### ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

Использовался невозмущенный горизонтально-однородный волновод, близкий по характеристикам экспериментальному каналу [7, 8]. Рассматривались два диапазона частот:  $\Delta f_1 = 100-120 \, \Gamma$ ц и  $\Delta f_2 = 300 - 320$  Гц. Параметры жидкого поглощающего дна: отношение плотности грунта и воды ρ = 1.8; для первого диапазона частот комплексный показатель преломления n = 0.84(1 + i0.03), для второго — n = 0.84(1 + i0.05). Расстояние между неподвижными источником и приемником  $x_0 = 10$  км. Источник располагался на глубине  $z_s = 12.5$  м, приемник — на глубине  $z_a = 35$  м. Задавался равномерный спектр, импульсы регистрировались с периодичностью 5 с, дискретизация по частоте спектра принимаемого сигнала 0.25 Гц. Единичный солитон перемещался вдоль трассы в направлении от приемника к источнику. Параметры солитона: амплитуда B = 15 м, ширина  $\eta = 150$  м, скорость w = 0.7 м/с. Время наблюдения  $\Delta t = 20$  мин. Результаты моделирования приведены на рис. 1-4. С целью повышения контрастности и информативности на интерферограммах вырезаны средние значения.

На рис. 1 представлены интерферограммы и модули голограмм для невозмущенных полей, т.е. когда солитон располагался вне стационарной трассы. С точностью до постоянного множителя

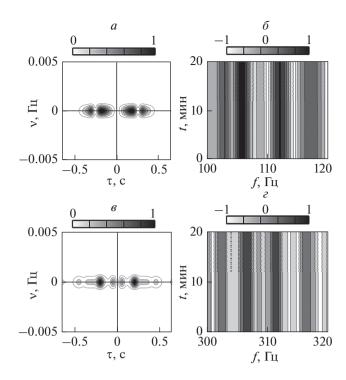


**Рис. 2.** Нормированные интерферограммы (a, e) и модули голограмм  $(\delta, \epsilon)$ , когда солитон расположен на трассе:  $(a, \delta)$  полоса  $\Delta f_1$ ,  $(e, \epsilon)$  полоса  $\Delta f_2$ .

интерферограмма невозмущенного поля является передаточной функцией волновода.

Интерферограммы и модули голограмм для начального момента времени наблюдения, когда солитон удален на расстояние  $x_* = 5$  км от источника, приведены на рис. 2. За время наблюдения  $\Delta t = 20$  мин солитон прошел расстояние  $\Delta x = 840 \text{ м}$ . На низких частотах, когда рассеяние на неоднородности мало, в результирующей интерферограмме преобладают вертикальные локализованные полосы (рис. 2a), характерные невозмущенному волноводу. С повышением частоты эффекты рассеяния возрастают, усиливается вклад интерференции мод рассеянного поля, что приводит к формированию горизонтальных локализованных полос (рис. 2e). В результате интерференционная картина усложняется. На голограммах спектральные плотности невозмущенного и рассеянного полей в форме фокальных пятен сконцентрированы вдоль осей времени т и частоты  $\nu$  (рис. 26,  $2\epsilon$ ). Вне этих пятен спектральная плотность практически подавлена. Механизм расположения фокальных пятен делает возможным восстановление интерферограмм невозмущенного и рассеянного полей.

Фильтрация спектральных плотностей голограмм невозмущенного поля, сосредоточенных вблизи оси времени, и их образ Фурье показаны на рис. 3. Интерферограммы и топография расположения локализованных областей на голограммах



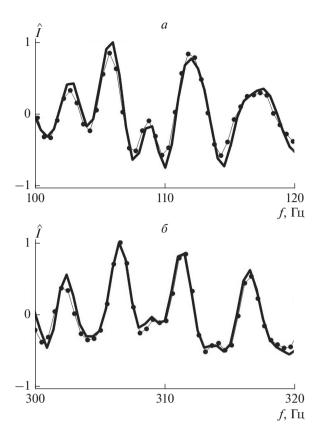
**Рис. 3.** Нормированные отфильтрованные модули голограмм  $(a, \theta)$  невозмущенного поля и восстановленные по ним интерферограммы  $(\delta, \epsilon)$ :  $(a, \delta)$  полоса  $\Delta f_1$ ,  $(\theta, \epsilon)$  полоса  $\Delta f_2$ .

невозмущенных полей в отсутствие солитона и восстановленных близки между собой (см. рис. 1). Максимумы расположения фокальных пятен совпадают. Наиболее ярко близость их интерферограмм иллюстрирует рис. 4.

На рис. 4 приведены одномерные интерферограммы невозмущенных полей в отсутствие солитона на трассе (сплошная линия) и реконструированные (точки), когда солитон движется по трассе. Интерферограммы представляют собой горизонтальные сечения двумерных интерферограмм (рис. 1, 3). Погрешность восстановления интерферограмм оценивалась как

$$d = \frac{\sum_{j=1}^{J} |I_1(f_j) - I_2(f_j)|}{\sum_{j=1}^{J} |I_1(f_j)|},$$
(16)

где число отсчетов J=80. Здесь  $I_{1,2}$  — интерферограмма невозмущенного поля в отсутствие солитона и восстановленная при его наличии соответственно. Для ширины спектра  $\Delta f_1=100-120~\Gamma$ ц ошибка d=0.014, для ширины спектра  $\Delta f_2=300-320~\Gamma$ ц — d=0.074. Различие между ошибками обусловлено эффектом рассеяния на



**Рис. 4.** Зависимости нормированных интерферограмм невозмущенных полей от частоты в отсутствие солитона (сплошная линия) и реконструированные при его наличии (точки).

неоднородности с увеличением частоты. На рис. 4 нормированные величины обозначены сверху значком "крышка".

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В условиях взаимодействия мод акустического поля источника, вызванного проявлением одиночного солитона, применяя голографическую интерферометрию, доказана возможность восстановления интерферограммы невозмущенного поля. Обработка основана на записи результирующей голограммы, формируемой невозмущенным и рассеянным полями, которая представляет собой непересекающиеся локализованные области спектральных плотностей, отвечающих отсутствию и наличию возмущения. Считывание этих областей путем обратного двукратного преобразования Фурье позволяет реконструировать интерферограмму невозмущенного поля с малыми искажениями.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проекты № 19-29-06075 и № 19-38-90326).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Кузнецов Г.Н., Кузькин В.М., Пересёлков С.А. // Акуст. журн. 2017. Т. 63. № 4. С. 406; Kuznetsov G.N., Kuz'kin V.M., Pereselkov S.A. // Acoust. Phys. 2017. V. 63. No 4. P. 449.
- 2. *Кузнецов Г.Н., Кузькин В.М., Пересёлков С.А.* // Изв. PAH. Сер. физ. 2017. Т. 81. № 8. С. 1041; *Kuznetsov G.N., Kuz'kin V.M., Pereselkov S.A.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2017. V. 81. No 8. P. 938.
- 3. *Казначеев И.В., Кузнецов Г.Н., Кузькин В.М. Пересёлков С.А.* // Акуст. журн. 2018. Т. 64. № 1. С. 33; *Kaznacheev I.V., Kuznetsov G.N., Kuz'kin V.M., Pereselkov S.A.* // Acoust. Phys. 2018. V. 64. No 1. P. 37.
- 4. Kaznacheeva E.S., Kuznetsov G.N., Kuz'kin V.M. et al. // Phys. Wave Phenom. 2019. V. 27. No 1. P. 73.
- 5. Kaznacheeva E.S., Kuz'kin V.M., Lyakhov G.A. et al. // Phys. Wave Phenom. 2020. V. 28. No 3. P. 267.

- 6. Пересёлков С.А., Кузькин В.М., Кузнецов Г.Н. // Изв. РАН. Сер. физ. 2020. Т. 84. № 6. С. 794; Pereselkov S.A., Kuz'kin V.M., Kuznetsov G.N. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2020. V. 84. No 6. P. 648.
- 7. *Apel J. R., Badiey M., Chiu C.-S. et al.* // IEEE J. Ocean. Eng. 1997. V. 22. P. 465.
- 8. Frank S.D., Badiey M., Lynch J., Siegmann W.L. // JOSA. 2004. V. 116. No 6. P. 3404.
- 9. Kuz'kin V.M., Pereselkov S.A., Zvyagin V.G. et al. // Phys. Wave Phenom. 2018. V. 26. No 2. P. 160.
- Badiey M., Kuz'kin V.M., Lyakhov G.A. et al. // Phys. Wave Phenom. 2019. V. 27. No 4. P. 313.
- Кацнельсон Б.Г., Петников В.Г. Акустика мелкого моря. М.: Наука, 1997. 192 с.
- 12. Флатте С. Распространение звука во флуктуируюшем океане. М.: Мир. 1982. 336 с.

## The application of the holographic interferometry for transmission of the information through perturbed ocean environment

V. M. Kuz'kin<sup>a</sup>, M. Badiey<sup>b</sup>, S. A. Pereselkov<sup>c</sup>, \*, E. S. Kaznacheeva<sup>c</sup>

<sup>a</sup> Prokhorov General Physics Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow 119991 Russia

<sup>b</sup> University of Delaware, Newark, DE 19716, USA

<sup>c</sup> Voronezh State University, Voronezh, 394006 Russia

\*e-mail: pereselkov@vandex.ru

The theory of interferometric processing of hydroacoustic information is generalized to the case when intense nonlinear internal waves cause the modes coupling in the sound field. The theoretical explanation is given for experimental hologram formation at the presence of intense nonlinear internal waves. The error of transmission of unperturbed information through perturbated oceanic environment is estimated.

УЛК 519.6

#### УЛУЧШЕНИЕ ОЦЕНОК ПОГРЕШНОСТИ ДЛЯ ЭКСПОНЕНЦИАЛЬНО СХОДЯЩИХСЯ КВАДРАТУР

© 2021 г. В. С. Хохлачев<sup>1, \*</sup>, А. А. Белов<sup>1, 2</sup>, Н. Н. Калиткин<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования "Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова", Физический факультет, Москва, Россия <sup>2</sup>Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования "Российский университет дружбы народов", Москва, Россия

<sup>3</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки "Федеральный исследовательский центр Институт прикладной математики имени М.В. Келдыша Российской академии наук", Москва, Россия

\*E-mail: valentin.mycroft@yandex.ru Поступила в редакцию 20.07.2020 г. После доработки 28.08.2020 г. Принята к публикации 28.09.2020 г.

Для некоторых практически важных классов функций возможно кардинальное увеличение точности и уменьшение трудоемкости квадратур при вычислении интегралов. Разработан соответствующий математический аппарат с новейшими улучшениями, что позволяет в сотни раз и более сократить трудоемкость вычислений. Приводятся примеры физических задач, к которым он хорошо применим.

**DOI:** 10.31857/S0367676521010166

#### **ВВЕДЕНИЕ**

#### Прикладные задачи

В физических задачах часто требуется численно находить интегралы. Выделим два класса подынтегральных функций. Первый — периодические функции. Такие задачи возникают при разложении в ряды или интегралы Фурье; они являются некорректными [5]. Поэтому для них необходимо вычислять квадратуры с высокой точностью. Второй класс — функции, быстро убывающие на бесконечности. Приведем примеры таких задач.

- 1) Передача сигнала. Передать сигнал большого объема дорого. Используют следующий подход. Сигнал разлагают в интеграл Фурье, и в памяти хранят дискретный Фурье образ. Его, в отличие от аналогового сигнала, можно программно сжать без потери информации. Сжатый сигнал передают. По нему восстанавливают Фурье образ и воспроизводят исходный сигнал.
- 2) Функции Ферми—Дирака. Они зависят от индекса k и параметра x:

$$I_k(x) = \int_0^\infty \frac{t^k dt}{1 + \exp(t - x)}, \quad x \in (-\infty, +\infty).$$
 (1)

Подынтегральная функции быстро убывает на бесконечности. Функции (1) были введены в [6, 7] для описания проводимости твердых метал-

- лов. Они являются моментами фермиевского распределения электронов. Затем эти функции были использованы для описания термодинамики плотной горячей плазмы [8]. Сейчас они используются во многих областях физики. Наиболее важны функции с полуцелыми k, но их трудно вычислять.
- 3) Плазменное микрополе. Хаотическое движение заряженных частиц в плазме создает в ней поля, флуктуирующие на расстояниях порядка межатомных. Именно этими микрополями определяются многие оптические свойства плазмы [9, 10]. Распределение микрополя часто находят, представляя суммарное действие заряженных частиц интегралом Фурье, при этом Фурье образ корректируют с помощью различных модельных предположений. Первой была работа [11], в которой функция распределения равна

$$H(\beta) = \frac{2}{\pi} \beta \int_{0}^{\infty} \exp(-x^{3/2}) \sin(\beta x) x dx.$$
 (2)

4) Скорости реакций. Поведение скоростей термоядерных реакций при низких температурах важно для расчета зажигания дейтериевых мишеней. Для многих ядерных реакций измерены экспериментальные зависимости сечений от скоростей частиц  $\sigma(v)$ . Тогда зависимость скорости ре-

акции от температуры можно найти, усредняя сечение по распределению Максвелла

$$K(T) = \langle \sigma(v) v \rangle = \frac{\pi}{\sqrt{m}} \left(\frac{2}{\pi T}\right)^{3/2} \int_{0}^{\infty} \sigma(E) E \times \exp\left\{-\frac{E}{T}\right\} dE, \quad E = \frac{mv^{2}}{2}.$$
 (3)

Подынтегральная функция быстро убывает при  $\mathfrak{v} \to \infty$ .

#### Вычисление квадратур

Для вычисления квадратур подобных типов в последние годы появился математический метод, ускоряющий вычисления в сотни раз. Оказалось, что для указанных классов функций квадратуры на равномерных сетках сходятся не по степенному закону, а по экспоненциальному. Наиболее полно данная проблема изложена в [1]; там же приведен исчерпывающий список литературы. В [2, 3] экспериментально было показано, что теоретические оценки работы [1] справедливы лишь для функций с полюсами первого порядка.

Опишем полученные результаты. 1) Мажорантную оценку работы [1] можно заметно улучшить. 2) Приведенное в [1] доказательство справедливо лишь для функций с полюсами первого порядка. 3) Найдена эмпирическая оценка погрешности для функций с полюсами порядка выше первого. 4) Эмпирически показано, что зависимость от числа узлов в этих оценках является не мажорантной, а асимптотически точной. Для иллюстрации данных результатов найдены новые точно берущиеся интегралы. Приведены примеры интегралов, для которых погрешность квадратурных формул зависит от шага сетки немонотонно и не описывается существующими теориями.

#### ЭКСПОНЕНЦИАЛЬНО СХОДЯЩИЕСЯ КВАДРАТУРЫ

В многочисленных учебниках по вычислительной математике строятся квадратурные формулы трапеций, средних, Симпсона и т.д. на сетках с шагом  $h \sim 1/N$ , где N — число узлов сетки. Доказывается, что для достаточно гладких функций погрешность таких квадратур есть  $O(h^p) = O(N^{-p})$ ,

где p есть порядок сходимости. Такую сходимость называют степенной.

В работе [1] была доказана теорема, что для неограниченно дифференцируемой функции интеграл по периоду аппроксимируется формулой трапеций на равномерной сетке не со степенной погрешностью, а с экспоненциальной. Пусть

$$I = \int_{0}^{2\pi} u(x)dx, \quad I_{N} = \sum_{n=0}^{N-1} \frac{h}{2} (u_{n} + u_{n+1}). \tag{4}$$

Здесь  $u_n = u(x_n)$ ,  $x_n = nh$ ,  $h = 2\pi/N$  — равномерная сетка. Пусть L есть наименьшее расстояние от всех особых точек функции u(x) на комплексной плоскости до вещественной оси. Тогда справедлива мажорантная оценка

$$\delta = |I - I_N| \le \frac{2\pi M_1}{\exp(LN) - 1}, \quad M_1 = \max_{0 \le x \le 2\pi} |u|.$$
 (5)

Зависимость погрешности от N имеет необычный вид. Если  $LN \ll 1$ , то  $\delta \sim (LN)^{-1}$ , то погрешность степенная с первым порядком точности. Если же  $LN \gg 1$ , то погрешность  $\delta \sim \exp(-LN)$ , т.е. убывание погрешности не степенное, а экспоненциальное.

В [1] доказаны аналогичные теоремы для интеграла по окружности на комплексной плоскости и для интеграла по числовой оси от непериодической функции, достаточно быстро убывающей на бесконечности.

Видно, что зависимость от N в (5) является не степенной, а экспоненциальной. Такая сходимость гораздо быстрее степенной и имеет качественно другой характер. Для функций, удовлетворяющих требованиям указанной теоремы, трудоемкость квадратур очень сильно уменьшается. Это указывает на большую практическую ценность данной теоремы.

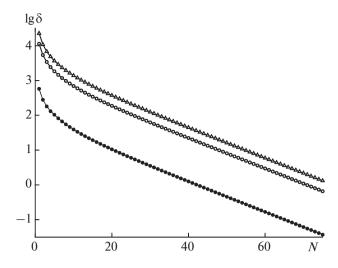
#### ПОЛЮСЫ ПЕРВОГО ПОРЯДКА

В работах [2—4] экспоненциально сходящиеся квадратуры применялись к важной практической задаче — построению способов быстрого вычисления функций Ферми—Дирака. Для тщательного исследования квадратур был найден интеграл [12, стр. 383]

$$\int_{0}^{\pi} \frac{\cos rx dx}{(1 - 2a\cos x + a^{2})^{q}} = \begin{cases} \frac{a^{2q+r-2}\pi}{(1 - a^{2})^{2q-1}} \sum_{k=0}^{q-1} {q+r-1 \choose k} {2q-k-2 \choose q-1} \left(\frac{1-a^{2}}{a^{2}}\right)^{k}, & a^{2} < 1; \\ \frac{\pi}{a^{r}(a^{2} - 1)^{2q-1}} \sum_{k=0}^{q-1} {q+r-1 \choose k} {2q-k-2 \choose q-1} (a^{2} - 1)^{k}, & a^{2} > 1. \end{cases}$$

$$(6)$$

При целочисленных r и q он берется точно в элементарных функциях.



**Рис. 1.** Погрешность интеграла (6) для q = 1, r = 10. Обозначения — см. текст.

Численные расчеты показали, что для q=1 при увеличении N действительно наблюдалась экспоненциальная сходимость. Однако при q=2 наблюдалось отличие сходимости от экспоненциальной. Хотя оно было небольшим, но сходимость оказалась более медленной. Это нарушало теорему [1]. Это противоречие заставило нас более тщательно проанализировать детали работы [1]. Опишем результаты проведенного исследования.

#### Мажорирующая константа

Пусть функция постоянна: u(x) = C. Очевидно, для такой функции формула трапеций точна. Поэтому погрешность (5) для функции u(x) - C такова же, как для функции u(x). Однако константа M для функции u(x) - C будет другой. Выберем такую константу C, чтобы минимизировать величину M для новой функции. Для вещественной функции u(x) этот выбор очевиден:  $C = 0.5(\max u(x) + \min u(x))$ . Это дает

$$M_2 = \frac{1}{2} (\max u(x) - \min u(x)).$$
 (7)

Легко видеть, что всегда  $M_2 \le M_1/2$ . Если же u(x) > 0, причем  $\max u(x)/\min u(x)$  близко к 1, то  $M_2 \le M_1$ .

Аналогичную оценку можно построить для комплексной функции u(x). Рассмотрим значения функции только на вещественном отрезке  $x \in [0, 2\pi]$ . Положим

$$C = \frac{1}{2} \left( \max \operatorname{Re} u(x) + \min \operatorname{Re} u(x) \right) + i \frac{1}{2} \left( \max \operatorname{Im} u(x) + \min \operatorname{Im} u(x) \right).$$
 (8)

Тогда получим оценку

$$M_2 = \frac{1}{2} \sqrt{(\max \text{Re } u(x) - \min \text{Re } u(x))^2 + (\max \text{Im } u(x) + \min \text{Im } u(x))^2}.$$
 (9)

Для вещественных функций оценка (9) переходит в (7). Заметим, что авторы [1] считали свою оценку  $M_1$  неулучшаемой.

#### Апробация оценок

Хотя авторы [1] называют свою оценку мажорантной, фактически они получили гораздо более сильный результат. Наши численные расчеты показали, что если особые точки u(x) являются полюсами первого порядка, то указанная в [1] зависимость от N является асимптотически точной. Опишем эти расчеты.

Для теста был выбран интеграл (6) с q=1, r=10. Все особые точки являются полюсами первого порядка. Они расположены в точках

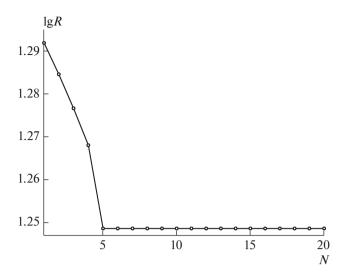
$$x = \arccos \frac{1+a^2}{2a} + 2\pi k, \quad k = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$$
 (10)

Приведем типичный расчет, в котором выбрано очень малое L=0.05 (ему соответствует  $a=e^L\approx 1.051$ ) и все значения N=1, 2, 3, ... Ре-

зультаты показаны на рис. 1 и 2. На рис. 1 показана зависимость логарифма погрешности  $\lg \delta$  от N. Фактическая погрешность показана точками, оценка [1] — треугольниками, оценка [1] с константой  $M_2$  — кружками. На начальных участках линий  $LN \ll 1$ , и эти участки искривлены. При  $LN \gg 1$  линии асимптотически переходят в прямые, что соответствует практически экспоненциальной сходимости. Видно, что наше уточнение константы M улучшает теоретическую оценку.

В данном примере выбрано очень малое L, т.е. особая точка расположена очень близко к вещественной оси. Такой пример считается очень трудным для обычных расчетов. Тем не менее, погрешность стремительно убывает при увеличении N. Уже при  $N \approx 400$  она уменьшается до  $\delta \sim 10^{-16}$ . Если же взять  $L \sim 1$ , то 16 верных знаков (предельная компьютерная точность) будут получены при  $N \approx 20$ . Это наглядно показывает выгоды экспоненциальной сходимости.

На рис. 2 показано отношение оценки [1] с константой  $M_2$  к фактической погрешности.



**Рис. 2.** Расчет интеграла (6) для q=1, r=10. Отношение R оценки (5) с константой  $M_2$  (7) к фактической погрешности.

Видно, что указанное отношение слегка отличается от константы при LN < 0.5 и очень быстро стремится к константе при увеличении N. Это убедительно свидетельствует, что зависимость от N в оценке [1] является не просто мажорантной, а асимптотически точной, и вдобавок применимой при очень малых значениях LN. Это показывает высокую ценность оценки [1].

#### Практические рекомендации

Из практики расчетов известно, что при степенном характере сходимости  $\delta \sim O(N^{-p})$  знак реальной погрешности, начиная с некоторого  $N_0$  не меняется при дальнейшем увеличении N. Это является важным свойством, которое позволяет строить оценки точности методом Ричардсона по сгущению сеток.

В данных расчетах мы наблюдали аналогичную картину: погрешность сохраняла свой знак при сгущении сеток. Поэтому здесь также возможно апостериорное определение погрешности по расчетам на сгущающихся сетках. При этом удобно проводить расчеты не при всех N подряд, а только при последовательно удваивающихся N.

Однако сами эти оценки будут другими. Мы используем их при  $LN \gg 1$ , когда можно считать  $\delta_N \approx \text{const} \cdot \exp(-LN)$ . В этом случае  $\delta_{2N} \sim O\left(\delta_N^2\right)$ . Это напоминает ньютоновскую сходимость, которую обычно называют квадратичной (зачастую не совсем корректно говорят, что число верных знаков удваивается с удвоением N). Это позволяет сформулировать следующую практическую рекомендацию.

Если требуется получить точность  $\varepsilon$ , то остановим вычисления, как только выполнится условие  $|I_N-I_{2N}|<\varepsilon^{\rm v}$ , где показатель степени выбирают в пределах  ${\rm v}\approx 0.65{-}0.75$ . Меньший показатель может не дать требуемой точности, больший — к избыточным вычислениям или отсутствию сходимости из-за ошибок округления.

#### ПОЛЮСЫ ЦЕЛЫХ ПОРЯДКОВ

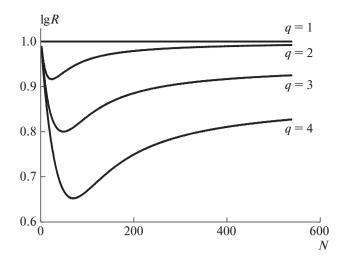
#### Обобщение оценки погрешности

Мы провели тщательный анализ доказательства теоремы [1]. Удалось обнаружить, что при доказательстве теоремы сделано неявное предположение о том, что ближайшая особенность является полюсом первого порядка. Поэтому мы экспериментально исследовали, какова будет погрешность для полюсов целого порядка q>1. Для исследования был взят тестовый интеграл (6) при r=0.

Численные расчеты показали, что фактическая погрешность при больших N превышает мажорантную оценку [1]. Поскольку эта оценка мажорантна, то превышение означает, что функциональная зависимость погрешности от N должна быть несколько иной. Более тщательный анализ позволил предложить следующую зависимость погрешности от N:

$$\delta = 2\pi M \frac{\left(LN/q + \exp(-LN/q)\right)^{q-1}}{\exp(LN) - 1}.$$
 (11)

Для полюса первого порядка (q=1) она переходит в оценку [1]. Видно, что при  $LN \gg 1$  главным членом является экспонента в знаменателе, то



**Рис. 3.** Расчет интеграла (6) для r = 0. Отношение R оценки (11) с константой  $M_2$  (7) к фактической погрешности. Значения q указаны у кривых.

есть погрешность будет близка к экспоненциальной. Наличие множителя  $(LN)^{q-1}$  в числителе несколько замедляет скорость сходимости тем сильнее, чем больше q, т.е. чем сильнее особенность. Тем не менее, сходимость очень быстра.

#### Апробация оценки

Результаты расчетов тестового интеграла показаны на рис. 3. По оси абсцисс, как и на рис. 2, отложен логарифм отношения теоретической оценки (11) к фактической погрешности расчета. Около каждой кривой указана кратность полюса q. Для сравнения приведена кривая для q=1.

Видно, что линия q = 1 горизонтальна. Остальные линии — кривые с минимумом, переходящие в горизонтальные линии при увеличении N. Это показывает, что предложенная оценка (11) является асимптотически точной по N. Выход на асимптоту происходит тем медленнее, чем больше *q*. Из высот горизонтальных асимптот видно, что при q = 1 и q = 2 теоретическая оценка в ~10 раз больше фактической погрешности. При q = 3 превышение составляет  $\sim 8.5$  раз; при q = 4 оно равно ~6.6 раз. Такие превышения показывают, что функциональная зависимость погрешности от N, L, q близка к истинной, но использование константы  $M_2$  приводит к слишком большому превышению (константа  $M_1$  даст еще худшие результаты).

Отметим, что в этих расчетах реальная погрешность сохраняет свой знак при увеличении N, как это было для полюса кратности 1. Поэтому здесь остаются в силе те же практические рекомендации по выбору сеток и критерию окончания расчета для получения заданной точности.

#### НЕПЕРИОДИЧЕСКИЕ ФУНКЦИИ

#### Новые тестовые интегралы

В [1] были рассмотрены непериодические функции на бесконечной прямой. Сформулированы условия, при которых соответствующие квадратуры сходятся экспоненциально. Найдены мажорантные оценки их погрешности.

Для верификации этих оценок необходимо иметь тестовые примеры с такими подынтегральными функциями, при которых интегралы выражаются через элементарные функции. Мы построили четыре таких интеграла, значения которых ранее были неизвестны. Приведем их без вывода.

$$I = \int_{0}^{\infty} \exp\left(-(x + \frac{1}{x})^{2}\right) dx = \frac{\sqrt{\pi}}{2e^{4}},$$
 (12)

$$I = \int_{0}^{\infty} (x + 1/x)^{2} \exp(-(x + 1/x)^{2}) dx = \frac{9\sqrt{\pi}}{4e^{4}}, \quad (13)$$

$$I = \int_{0}^{\infty} \frac{1}{x^{2}} \exp\left(-(x+1/x)^{2}\right) dx = \frac{\sqrt{\pi}}{2e^{4}},$$
 (14)

$$I = \int_{0}^{\infty} x^{2} \exp(-(x+1/x)^{2}) dx = \frac{3\sqrt{\pi}}{4e^{4}}.$$
 (15)

В этих интегралах функция имеет существенно особую точку при x=0 (то есть эта точка совпадает с концом отрезка интегрирования), а также бесконечно удаленную особую точку. Интегралы с такими особенностями возникают, например, при вычислении скоростей химических или ядерных реакций по их сечению в термодинамически равновесной среде.

Этот случай не подпадает под теорему [1], поскольку в ней предполагалось, что особая точка

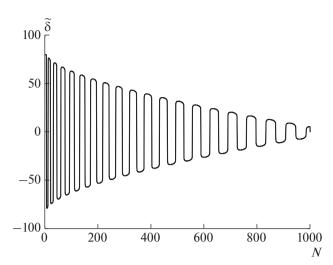


Рис. 4. Погрешность интеграла (15).

не лежит на отрезке интегрирования (хотя расстояние до отрезка интегрирования может быть сколь угодно малым). В связи с отсутствием теоретических оценок численный расчет таких примеров становится особенно интересным.

#### Пример расчета

Для интеграла (15) были проведены численные расчеты для сеток с N=1,2,...,1000. Было найдено точное значение погрешности  $\delta=|I-I_N|$ . Оказалось, что зависимость этой величины от N кардинально отличается от ранее рассмотренных случаев. Эта зависимость знакопеременна и затухает по амплитуде.

Для передачи такой зависимости был найден специфический масштаб. По оси ординат откладывалась величина

$$\tilde{\delta} = \operatorname{arcsh} \frac{\delta}{\mu} = \operatorname{sgn}(\delta) \ln \left( \frac{|\delta|}{\mu} + \sqrt{\frac{\delta^2}{\mu^2} + 1} \right); \tag{16}$$

здесь µ — величина наименьшего из экстремумов. На рис. 4 показана погрешность в данном масштабе. Такой масштаб линейно изображает погрешность в малой окрестности нулевых значений, но логарифмически уменьшает ее вдали от нулей.

Такой вид погрешности, во-первых, не описывается ни одной из известных теорий. Во-вторых, к нему не применимы все известные методы апостериорного нахождения погрешности расчета. Видно, что подобные задачи требуют развития новых теоретических подходов.

#### Бесконечно удаленная особенность

Если подынтегральная функция имеет только бесконечно удаленную особую точку, то это должно быть антиподом только что рассмотрен-

ного примера. Следует ожидать очень быстрой сходимости квадратур. Рассмотрим следующий тестовый пример:

$$I = \int_{0}^{\infty} x^{2} \exp(-x^{2}) dx = \frac{\sqrt{\pi}}{4}.$$
 (17)

Этот пример также выходит за рамки теоремы [1]. Расчет показывает, что сходимость квадратурных формул оказывается качественно быстрее экспоненциальной. Она подчиняется закону  $\delta_{2N} \sim O(\delta_N^4)$ .

Особая точка подынтегральной функции (17) является существенно особой. Тем не менее, сходимость оказывается исключительно быстрой. Это показывает, что характер сходимости определяется не столько типом особенности, сколько ее расположением. Чем дальше особая точка находится от отрезка интегрирования, тем сходимость быстрее. Расположение особой точки на отрезке кардинально ухудшает сходимость.

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Изложенный метод является мощным инструментарием для решения физических задач. Если удается найти преобразования переменных, сводящие интегралы к указанным выше видам, то вычисления ускоряются в сотни раз.

Проведенные исследования позволили: 1) улучшить теоретические оценки погрешности экспоненциально сходящихся квадратур; 2) найти оценку погрешности для случая кратных полюсов подынтегральной функции; 3) установить, что попадание особой точки на отрезок интегрирования качественно меняет поведение погрешности, что не объясняется известными теориями.

Полученные результаты применены к вычислению функций Ферми—Дирака полуцелого индекса [2—4]. Замена переменных  $t=\tau^2$  в (1) приводит интеграл к требуемой форме. Квадратура трапеций обеспечивает 16 верных знаков уже при  $N \sim 10$ –100, а традиционные квадратуры требуют  $N \sim 10^4$ .

Работа поддержана РНФ (проект № 16-11-10001-П).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Trefethen L.N., Weideman J.A.C. // SIAM Rev. 2014. V. 56. No 3. P. 385.
- Kalitkin N.N., Kolganov S.A. // Doklady Math. 2017.
   V. 95. No 2. P. 157.
- 3. Kalitkin N.N., Kolganov S.A. // Math. Models Comp. Simul. 2017. V. 9. No 5. P. 554.
- 4. *Kalitkin N.N., Kolganov S.A.* // Math. Models Comp. Simul. 201. V. 10. No 4. P. 472.
- 5. *Тихонов А.Н., Арсенин В.Я.* Методы решения некорректных задач. М.: Наука, 1979.
- 6. Pauli W. // Z. Phys. 1927. V. 41. P. 81.

- 7. Sommerfeld A. // Z. Phys. 1928. V. 47. P. 1.
- Feynman R.P., Metropolis N., Teller E. // Phys. Rev. 1949. V. 75. P. 1561.
- 9. *Собельман И.И.* Введение в теорию атомных спектров. М.: Физматлит, 1963.
- Грим Г. Уширение спектральных линий в плазме. М.: Мир, 1978.
- 11. Holtsmark J. // Ann. Phys. 1919. V. 58. P. 577.
- 12. *Градитейн И.С., Рыжик И.М.* Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений. М.: Физматиз, 1963.

#### Improvement of error estimates for exponentially convergent quadratures

V. S. Khokhlachev<sup>a, \*</sup>, A. A. Belov<sup>a, b</sup>, N. N. Kalitkin<sup>c</sup>

<sup>a</sup>Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119991 Russia <sup>b</sup>Peoples' Friendship University of Russia, Moscow, 117198 Russia <sup>c</sup>Keldysh Institute of Applied Mathematics RAS, Moscow, 125047 Russia \*e-mail: valentin.mycroft@yandex.ru

For some practically important classes of functions, a dramatic increase in accuracy and a decrease in the complexity of quadratures are arise when calculating the integrals. A corresponding mathematical apparatus with the latest improvements has been developed, which allows to reduce by hundreds of times and more the complexity of calculations. Physical examples of such issues are given.

УЛК 534-143:534.631

# АВТОМАТИЗИРОВАННЫЙ МЕТОД РАСЧЕТА ОБЪЕМОВ ГАЗОВОЙ РАЗГРУЗКИ МЕЛКОВОДНЫХ МЕТАНОВЫХ СИПОВ ПО ДАННЫМ ПАССИВНОЙ АКУСТИКИ

© 2021 г. И. Н. Иванова<sup>1, \*</sup>, А. А. Будников<sup>1</sup>, Т. В. Малахова<sup>2</sup>, Ю. А. Якимычев<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования "Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова", Физический факультет, Москва, Россия <sup>2</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Федеральный исследовательский центр "Институт биологии южных морей имени А.О. Ковалевского Российской академии наук", Севастополь, Россия

Поступила в редакцию  $20.07.2020~\mathrm{r}$ . После доработки  $28.08.2020~\mathrm{r}$ . Принята к публикации  $28.09.2020~\mathrm{r}$ .

\*E-mail: ivair@vandex.ru

Разработан алгоритм, позволяющий в автоматическом режиме рассчитывать количество пузырьков газа, выделяющихся из точечного источника, на основе анализа записей акустических сигналов, генерируемых пузырьками. Данный алгоритм успешно апробирован в натурных и лабораторных условиях, и может быть использован для расчета газовых потоков при продолжительном мониторинге природных метановых сипов.

**DOI:** 10.31857/S0367676521010130

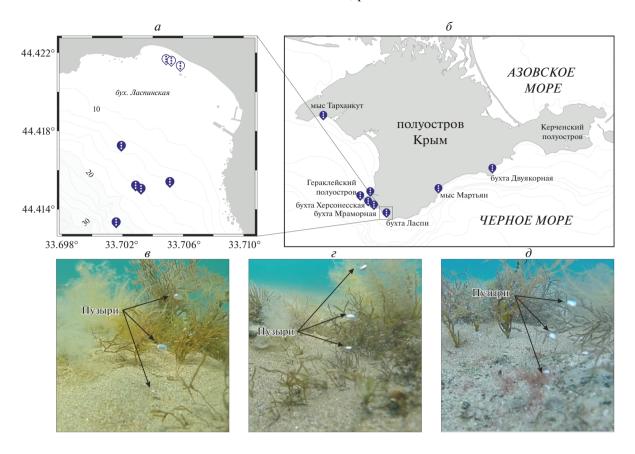
#### **ВВЕДЕНИЕ**

Исследования выхода природного газа (холодных сипов, от англ. seep — просачиваться) из морского дна имеют важное прикладное значение во многих сферах: оценка вклада в пул парниковых газов, возможность использования подводных метановых высачиваний в качестве альтернативного источника топлива или в качестве маркера для подземных залежей углеводородов. Также изучение активности и объемов газоотдачи прибрежных сипов необходимо для оценки потенциальной опасности при катастрофических выбросах во время природных катаклизмов. На данный момент для исследования действующих газовыделений используются, зачастую совместно, методы, основанные на обработке видеозаписей, а также акустических данных [1, 2]. При этом, востребованы долгопериодные наблюдения, позволяющие отслеживать вариации газовых потоков. Такие наблюдения в настоящее время проводятся при помощи включающихся по таймеру гидроакустических подводных обсерваторий [3], либо с использованием пассивного акустического метода, использующего для анализа данные непрерывно записываемых собственных аудиосигналов подводных пузырьковых высачиваний [4]. Неоспоримым преимуществом пассивного метода является его низкая энергозатратность, позволяющая производить непрерывную запись в течение длительного времени и фиксировать даже короткопериодные вариации потоков, что, в свою очередь, дает возможность с большей точностью анализировать временную изменчивость объемов газовыделений, а также накапливать данные для выявления причин, влияющих на эту изменчивость.

В акватории Черного моря струйные газовыделения впервые были обнаружены в 1989 г. в сероводородной зоне на глубинах 200—250 м при помощи высокочастотного эхолота [5]. Это событие положило начало многочисленным исследованиям в Черноморском регионе, связанным с поиском новых областей метановых высачиваний. На сегодняшний день найдены и отмечены на картах тысячи подобных областей практически на всем диапазоне глубин от нескольких метров до километра и более.

Актуальной задачей в настоящее время остается расчет объема выделяющегося газа, осложняющийся как трудностью прямых подводных измерений пузырькового потока, так и значительной вариативностью частоты выхода пузырьков, вплоть до полного прекращения высачивания газа.

Целью данной работы была разработка автоматического алгоритма расчета потока пузырьковых газовыделений по записям аудиосигналов,



**Рис. 1.** Схема площадки пузырьковых газовыделений в бухте Ласпи (*a*) и (*б*) общая карта прибрежных сипов Крыма; ( $\theta$ ,  $\varepsilon$ ,  $\partial$ ) подводные фотографии точек газовыделений в бухте Ласпи GP1, GP2, GP3.

генерируемых пузырьковыми газовыделениями, и его проверка с помощью расчета суточных объемов газовыделений на площадке струйных выделений метана в бухте Ласпи.

#### ОБЪЕКТ, АППАРАТУРА И МЕТОДИКА СБОРА ДАННЫХ

Натурные данные, использованные для проверки алгоритма были получены 26-27 августа 2019 г. на площадке постоянно действующих пузырьковых газовыделений в бухте Ласпи (рис. 1a,  $1\delta$ ) (N  $44.42099^{\circ}$ , Е  $33.70766^{\circ}$ ) на глубине 2 м. Пузырьковые газовыделения на этой площадке происходят в течение всего года и имеют глубинный источник [6]. Характер газовыделений представлял собой точечную разгрузку непрерывно выделяющихся пузырей (рис.  $1e-1\partial$ ).

На дне в непосредственной близости от точки высачиваний, располагалась камера GoPro4 со встроенным микрофоном, на которую осуществлялась видеозапись процесса выхода пузырькового газа с одновременной записью аудиосигнала. В ходе проводимых работ были получены 3 ви-

деозаписи различных сипов (далее GP1, GP2 и GP3), длительностью по 17 мин каждая. Местоположение выхода пузырьковых образований отличались: сип GP1 был расположен на песчаном дне, сип GP2 вблизи скалистого образования, сип GP3 на песчаном дне среди водорослей (макрофитов).

### АЛГОРИТМ ДЛЯ РАСЧЕТА КОЛИЧЕСТВА ПУЗЫРЬКОВЫХ ВЫДЕЛЕНИЙ

Из полученных видеофайлов были извлечены звуковые дорожки и сохранены в отдельные аудиофайлы в формате WAV. Далее, в интегрированной среде разработки для языка программирования Python (Pycharm), для каждого аудиофайла, с помощью метода scipy.io.wavfile были получены частотные массивы всех содержащихся в аудиофайле сигналов, а затем, с помощью библиотеки matplotlib, были построены спектрограммы каждой аудиозаписи. Пример такой спектрограммы приведен на рис. 2. На ней отчетливо видны сигналы, производимые пузырьками газа при выходе из газового канала в толщу жид-

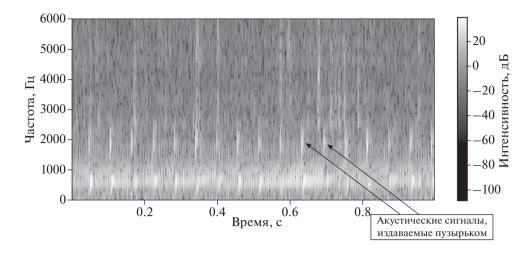


Рис. 2. Спектрограмма аудиозаписи сипа GP3.

кости. Каждый сигнал от одиночного пузырька состоит из двух идущих друг за другом сигналов, которые разделяют сотые доли секунды: первого сигнала с более высокой частотой (1500-2000 Гц) и следующего за ним сигнала более низкой частоты (500-700 Гц). Предположительно, эти сигналы соответствуют 2 фазам. Первый сигнал соответствует моменту отрыва пузырька от подводящего канала, когда пузырек имеет в начале форму капли, а затем деформируется, принимая шарообразную форму. Второй сигнал соответствует низкочастотным молам колебаний поверхности пузырька, сопровождающим основное колебание. Количество таких сигналов, производимых за время всей аудиозаписи, и, соответственно, количество выделяющихся пузырей можно рассчитать с помощью метода find peaks (рис. 3). Использованный метод определяет и подсчитывает количество максимумов на заданном диапазоне частот, превышающих указанное пороговое значение интенсивности сигнала на определенном интервале времени. На рис. 3 приведен пример обработки фрагмента аудиозаписи GP3 методом find peaks в диапазоне частот свыше 1800 Гц. При отладке метода была произведена выборочная проверка на произвольных непродолжительных фрагментах полученных аудиозаписей. Количество сигналов, рассчитанное автоматически, совпало с количеством сигналов, определенным вручную по спектрограмме и по видеозаписи, что подтвердило правильность работы программы. Также была проведена проверка программы на протяженной аудиозаписи, выполненной в лабораторном бассейне на физическом факультете МГУ. При помощи иглы-насадки, соединенной с компрессором, в бассейне создавался пузырьковый поток с известной частотой выхода пузырей.

Автоматический расчет в пределах погрешности совпал с реальными данными.

По итогам обработки аудиозаписей количество сигналов, производимых пузырьками при выходе в водную толщу, для аудиозаписи GP1 составило 10609 шт., GP2 — 14285 шт., GP3 — 16346 шт., что соответствует интенсивности газовыделений 10, 14 и 16 пузырьков в секунду.

#### РАСЧЕТ ОБЪЕМОВ СУТОЧНЫХ ГАЗОВЫДЕЛЕНИЙ

Для определения частоты, относящейся непосредственно к частоте звучания пузырьковых газовыделений, использовалось бесплатное, открытое кроссплатформенное программное обеспечение Audacity 2.3.1, позволяющее проводить

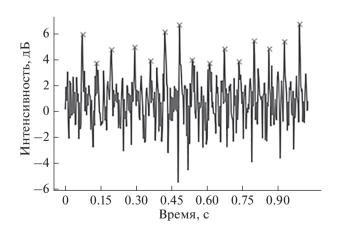
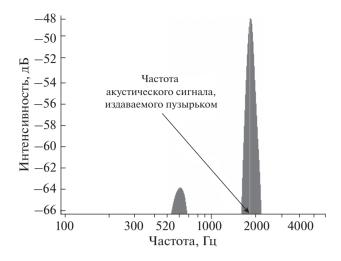


Рис. 3. Пример обработки фрагмента аудиозаписи GP3 методом find\_peaks. Крестиками отмечены максимумы интенсивности звукового сигнала в диапазоне частот свыше 1800 Гц, соответствующие пузырькам газа.



**Рис. 4.** Спектральный анализ аудиозаписи сипа, где максимум характеризует частоту акустического сигнала, издаваемого пузырьками.

частотный анализ записи и выделение полезного сигнала на фоне шумовой составляющей (рис. 4). После подавления фонового сигнала средствами Audacity 2.3.1 были построены частотные спектры. В частотном диапазоне звучания пузырей, определенном по спектрограммам, был выбран максимум, соответствующий наибольшей интенсивности сигнала. Определенные таким образом частоты, принятые за характеристические частоты пузырьковых газовыделений, составили 1736, 1490 и 1832 Гц для сипов GP1, GP2 и GP3, соответственно.

Для расчета радиусов выделяющихся пузырьков использовалась формула Миннарта [7, 8]:

$$f = \frac{1}{2\pi r} \sqrt{\frac{3\gamma p}{\rho}},\tag{1}$$

где f — найденная частота аудиосигнала, производимого пузырьком, p — давление газа в пузырьке ( $\sim 10^5$  Па),  $\gamma$  — показатель адиабаты газа (для метана  $\sim 1.32$ ), r — радиус пузырька.

Для аудиозаписей сипов GP1, GP2 и GP3 полученные значения радиусов пузырьков составили 1.8, 2.1 и 1.7 мм, соответственно.

Аналогично работе [8], используя формулу для объема шара  $V=\frac{4\pi r^3}{3}$  и рассчитав количество регистрируемых сигналов N за время аудиозаписи T по формуле  $V_d=\frac{NV}{T}$ , можно определить полный объем выделившегося газа  $V_d$  за время наблюдения. Рассчитанный таким образом объем газовыделений  $V_d$  составил 22.9, 48.4 и 30.1 л/сут для записей GP1, GP2 и GP3.

Полученные данные совпадают по порядку величины с данными измерений газовых потоков в 2018 г. на этой же площадке для двух других аналогичных сипов [9]. Стоит отметить, что в 2018 г. отличался характер газовыделений, пузырьки выделялись порциями с паузами между сериями выходов от 2 до 15 с. Рассчитанный объем газовыделений для этих сипов составил 40 и 6 л/сут.

#### ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

Разработан алгоритм, позволяющий в автоматическом режиме рассчитывать количество пузырьков газа, выделяющихся из точечного источника, на основе анализа записей акустических сигналов, генерируемых пузырьками. Данный алгоритм апробирован в натурных и лабораторных условиях.

С использованием этого алгоритма рассчитана интенсивность газовыделений для трех мелководных сипов в бухте Ласпи по аудиозаписям, полученным летом 2019 года, которая составила 10, 14 и 16 пуз./с, что соответствует газовому потоку 21, 46 и 28 л/сут, соответственно. Проведено сравнение результатов расчетов с данными 2018 г.

На основании проделанной работы можно сделать следующие выводы:

- 1. Разработанный метод позволяет проводить расчеты объема газовыделений из точечного источника пузырькового газа при долгосрочных измерениях.
- 2. Объемы суточных газовыделений для исследованных сипов в 2018 и 2019 г. совпадают по порядку величин, что косвенно подтверждает работоспособность метода и может говорить о небольшой изменчивости активности данных сипов за эти годы.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. *Li J., Roche B., Bull J.M. et al.* // Int. J. Greenh. Gas Con. 2020. V. 93. Art. No 102899.
- 2. *Dziak R.P., Matsumoto H., Embley R.W. et al.* // Deep Sea Res. II. 2018. V. 150. P. 210.
- 3. *Moser M., Bergès B., Ferré B.* // Geophys. Res. Abstr. 2019. V. 21. EGU2019-12940.
- 4. Makarov M.M., Muyakshin S.I., Kucher K.M. et al. // J. Great Lakes Res. 2020. V. 46. No 1. P. 95.
- 5. *Егоров В.Н.*, *Артемов Ю.Г.*, *Гулин С.Б.* Метановые сипы в Черном море средообразущая и экологическая роль. Севастополь: ЭКОСИ-Гидрофизика, 2011. 405 с.
- 6. *Малахова Т.В.*, *Канапацкий Т.А.*, *Егоров В.Н. и др.* // Микробиология. 2015. Т. 84. № 6. С. 743.

- 7. Wiggins S.M., Leifer I., Linke P., Hildebrand J.A. // Marin. Petrol. Geol. 2015. V. 68. P. 776
- 8. *Johnson H.P., Miller U.K., Salmi M.S., Solomon E.A.* // Geochem. Geophys. Geosyst. 2015. V. 16. P. 3825.
- 9. Будников А.А., Малахова Т.В., Иванова И.Н., Линченко Е.В. // Вестн. МГУ. Сер. Физ. астр. 2019. № 6. С. 106; Budnikov A.A., Malakhova T.V., Ivanova I.N., Linchenko E.V. // Moscow Univ. Phys. Bull. 2019. V. 74. P. 690.

### Automated calculation method for the bubble gas flux using passive acoustics data of shallow-water methane seeps

I. N. Ivanova<sup>a</sup>, \*, A. A. Budnikov<sup>a</sup>, T. V. Malakhova<sup>b</sup>, I. A. Iakimychev<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Lomonosov Moscow State University, Faculty of Physics, Moscow, 119991 Russia <sup>b</sup>Kovalevsky Institute of Biology of the Southern Seas of RAS, Sevastopol, 299011 Russia \*e-mail: ivair@yandex.ru

An automatic algorithm has been developed that calculates the amount of bubble gas flux from a point source using the acoustic emission signal of the gas seep. This algorithm was successfully tested in situ and in laboratory conditions and can be used to evaluate gas flows with long-term monitoring of natural methane seepages.

УЛК 535.2

# КВАНТОВО-РАЗМЕРНЫЕ ОБЪЕКТЫ В ВИДЕ ЛОВУШЕК ЭКСИТОНОВ И ТРИОНОВ И ИХ РОЛЬ ПРИ ЭКСИТОННОМ ЧАСТИЧНОМ БЛОКИРОВАНИИ МЕМРИСТОРНЫХ СВОЙСТВ ТОНКИХ ПЛЕНОК ОКСИЛА ЦИНКА<sup>1</sup>

© 2021 г. И. И. Попов<sup>1, \*</sup>, А. В. Мороз<sup>1</sup>, Д. В. Минеев<sup>1</sup>, А. А. Гладышева<sup>1</sup>, Н. И. Сушенцов<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования "Поволжский государственный технологический университет", Йошкар-Ола, Россия

\*E-mail: popov@volgatech.net
Поступила в редакцию 28.08.2020 г.
После доработки 25.09.2020 г.
Принята к публикации 28.10.2020 г.

На основе анализа результатов экспериментов по фотонному эху в тонких пленках оксида цинка и легированного кремния обсуждаются возможные механизмы возникновения при комнатной температуре ловушек экситонов и трионов и динамика протекающих в них релаксационных процессов. Изучены вольтамперные характеристики, снятые для таких пленок с ловушками, обладающих мемристорным эффектом, и установлено влияние ловушек на параметры вольтамперных характеристик.

**DOI:** 10.31857/S0367676521020228

#### **ВВЕДЕНИЕ**

Новые материалы с квантоворазмерными структурами привлекают все большее внимание с точки зрения перспектив их использования в новых приложениях электроники и фотоники. Создание новых материалов с полезными функциональным свойствами невозможно без фундаментального исследования их микроскопической структуры и внутренней динамики. Особый интерес представляет изучение релаксационных процессов, протекающих в квантовых точках при разных температурах, включая комнатные. В области лазерной спектроскопии одним из наиболее эффективных направлений экспериментального исследования указанных свойств является селективная спектроскопия примесного центра, включая методы фотонного эха (ФЭ) [1-6] и люминесцентной спектроскопии [7-11]. Необходимо также отметить важность развития теоретических подходов к описанию быстропротекающих процессов в твердотельных нанокомпозитах [12, 13], в особенности, методов, описывающих эволюцию экситонной когерентности [14, 15].

В данной работе на основе анализа экспериментов по ФЭ в примесных тонких пленках полупроводников предлагаются возможные механиз-

мы возникновения при комнатной температуре ловушек экситонов и трионов и исследуется динамика протекающих в них релаксационных процессов. Указанные ловушки локализованы на наноразмерных зонах поверхностных дефектов кристаллической структуры волокон текстурированных тонких пленок полупроводника. Актуальность исследования связана с совершенствованием возможностей активно разрабатываемой в настоящее время мемристорной памяти, которая может быть использована при создании биоиндуцированных вычислительных систем и нейрокомпьютеров [16]. В этом случае мемристор можно рассматривать в качестве искусственного аналога синапса, необходимого для создания цепей, позволяющих реализовать обучение по правилу Хебба [17]. Исследование механизмов функционирования подобной памяти не только с точки зрения записи, но и обработки информации, является важной научно-исследовательской задачей.

В [18] нами были показаны возможности анализа временных спадов интенсивности эхо-сигналов для исследования релаксационных процессов суперпозиционных состояний, формируемых при возбуждении экситонов и трионов, локализуемых в ловушках. Было показано, что релаксационные процессы затухания сигналов ФЭ связаны с глубиной энергетического залегания в запрещенной зоне дефектных участков кристалличе-

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Данная статья была представлена для опубликования в тематическом выпуске "Нанооптика, фотоника и когерентная спектроскопия" (см. № 12, том 84, 2020).

ской решетки, составляющих на поверхности кристаллической структуры зоны локализации экситонов и трионов. При этом отметим, что мемристорные свойства тонких полупроводниковых пленок связаны с изменением толшины запрещенной зоны за счет переключения основной симметрии анионов относительно катионов на зеркальную и, наоборот, под воздействием напряжения определенной полярности, прикладываемого к пленке, достигающего значения, критического для переключения между различными типами симметрии. В результате сопоставления этих двух факторов, зависящих от толщины запрещенной зоны, может быть установлен механизм их взаимного влияния друг на друга. Суть развиваемого подхода заключается в использовании режима измерения вольтамперной характеристики (ВАХ) полупроводниковой пленки для возбуждения экситонного состояния в ловушках пленки с целью коррекции характерной для мемристора толщины запрещенной зоны, а вместе с тем и сопротивления электрическому току. В [19] было продемонстрировано наличие мемристорных свойств у пленок оксида цинка, полученных методом химического осаждения. Такие пленки, по-видимому, характеризуются малым количеством ловушек экситонов из-за отсутствия поверхностных дефектов кристаллической решетки, характерного для волокнисто-кристаллической структуры пленок, полученных методом магнетронного распыления. Тем не менее в [19] была показана возможность изменения симметрии анионов относительно катионов с основной на зеркальную и наоборот в зависимости от полярности прикладываемого напряжения, достигающего критического значения, необходимого для этого переключения. За счет изменения толщины запрещенной зоны во время переключения этих симметрий изменяется сопротивление пленки, что проявляется в возникновении петли гистерезиса на ВАХ. Причем в случае приложения положительного напряжения значение перепада тока при одном и том же напряжении на петле гистерезиса значительно больше, чем перепад тока при таком же напряжении обратной полярности. Таким образом, была показана пригодность тонких пленок оксида цинка и легированного кремния для построения мемристорной памяти. Целью исследования является установление механизмов, обуславливающих изменение сопротивления тонкой пленки оксила шинка за счет включения различных экситонных механизмов релаксации, протекающих внутри ловушек, связанных с дефектами структуры пленки. Дополнительной задачей было установление оптимальной концентрации кислорода и толщины пленки, необходимых для проявления мемристорных свойств.

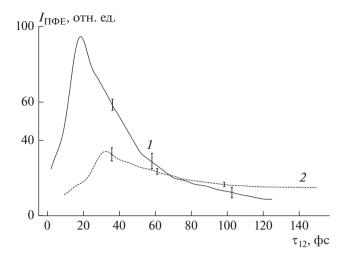
#### МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Были исследованы однослойные и многослойные пленки, состоящие из оксида цинка (ZnO) и кремния, легированного бором (Si(B)) или фосфором (Si(P)), или имеющих в своем составе слои этих материалов (Si(P)/Si(B)/ZnO). Пленки были получены методом магнетронного распыления, описанным в [20]. Толщина пленок варьировалась в интервале от 100 до 800 нм. Изучали пленки оксида цинка с различными концентрациями кислорода и толщинами, как одиночных, так и в составе трехслойной пленки Si(P)/Si(B)/ZnO. Ранее в этом материале наблюдали сигналы фотонного эха [18, 20].

Особенностью тонких пленок, полученных методом магнетронного распыления, является их волоконно-кристаллическая текстура. Пленки состоят из кристаллических волокон, вертикально ориентированных относительно подложки пленки. Волокна имеют винтообразную форму с убывающей по мере удаления от подложки площадью горизонтального сечения, с диаметром, меняющимся от нескольких сотен нанометров до десятков нанометров. Пространство между волокнами заполнено ренгеноаморфной фазой распыляемого вещества, не обладающей кристаллической структурой. В силу большой кривизны поверхности волокон на границе, отделяющей кристаллическую фазу от ренгеноаморфной, в структуре волокон возникает множество дефектов кристаллической решетки. Как будет показано ниже, участки на этой поверхности, где скапливаются дефекты кристаллической решетки, расположенные внутри замкнутой кривой линии дислокации, могут образовывать ловушки экситонных и трионных состояний, возбуждаемых в этих пленках, за счет глубокого залегания этих дефектов в запрещенной зоне.

Наиболее важным параметром, характеризующим строение тонких пленок, является степень их кристалличности, поэтому возникавшая задача контроля, вычисления и оптимизации этого параметра при напылении пленок [20] была решена путем построения математической модели, связывающей условия формирования тонкой пленки со степенью кристалличности. Дополнительно в [20] были описаны способы контроля качества тонких пленок, включая методы рентгеноструктурного анализа, зондовой микроскопии и регистрации микротвердости.

Для экспериментального поиска и исследования мемристорных свойств оксида цинка нами были изготовлены два вида пленок. Первый (тип I) — десятислойная пленка с увеличением на 10% концентрации кислорода в каждом слое (от 0 до 90%) по мере приближения к внешней поверхности пленки. Второй (тип II) представлял собой



**Рис. 1.** Кривые спада сигналов  $\Pi\Phi \ni$  в тонких пленках оксида цинка, полученных методом магнетронного распыления, толщиной 800 (1) и 600 нм (2).

двухслойную пленку оксида цинка. Нижний проводниковый слой имел концентрацию кислорода 20%, а верхний полупроводниковый — 30%. Таким образом, в первом варианте роль внутреннего проводящего электрода выполнял слой с концентрацией кислорода в 20%, во втором случае – слой с концентрацией кислорода 0%. В качестве внешнего проводящего электрода использовался платиновый щуп зондового микроскопа, с помощью которого измеряли ВАХ пленок, показанные на рис. 36, 36. Режим измерения BAX на зондовом микроскопе имел аппаратные ограничения по регистрации максимального тока в диапазоне от -50до +50 нА. Поэтому некоторые случаи переключения сопротивления пленки в наших экспериментах соответствовали режиму токового насышения.

# ФЕМТОСЕКУНДНОЕ ФОТОННОЕ ЭХО В ТОНКИХ ПЛЕНКАХ ОКСИДА ЦИНКА И ЛЕГИРОВАННОГО КРЕМНИЯ

Первичное фотонное эхо в однослойных и многослойных пленках

На рис. 1 приведены кривые спада интенсивности первичного фотонного эха (ПФЭ), измеренные в пленках оксида цинка толщиной 600 и 800 нм. Условия пространственного синхронизма соответствовали режиму однофотонного возбуждения эхо-сигналов. На кривых спада можно выделить три участка с различной динамикой. Первый участок быстрого спада интенсивности ПФЭ обязан упругим столкновениям экситонов и фононному крылу однородного уширения резонансной спектральной линии (сбой фазы из-за взаимодействия резонансных частиц с фононами кристаллической решетки). Для пленки 600 нм

время релаксации  $T_2$  составило 235  $\pm$  51 фс, а для пленки толщиной  $800 \text{ нм} - 140 \pm 11 \text{ фс. Второй}$ участок более медленного спада интенсивности сигнала ПФЭ обязан упругим столкновениям экситонов в условиях значительного снижения влияния фононов кристаллической решетки. Для пленки толщиной 600 нм время релаксации  $T_2$  составило 307 ± 27 фс, а для пленки толщиной  $800 \text{ нм} - 188 \pm 15 \text{ фс.}$  Третий (пологий) спад интенсивности  $\Pi\Phi$ Э указывает на то, что эхо-сигнал формируется на экситонном конденсате. Можно предположить, что конденсат возникает благодаря глубокому залеганию дефектов кристаллической решетки пленки ZnO в широкой запрещенной зоне при интенсивности возбуждающего излучения, достаточной для формирования в экситонной ловушке прелельной концентрации экситонов. Экситонный конденсат возникает в результате упорядоченного взаимодействия экситонного газа с фононами кристаллической решетки в отсутствии влияния возбужденных частиц. Для пленки 600 нм время необратимой поперечной релаксации  $T_2$  составило  $1126 \pm 155$  фс, а для пленки толщиной 800 нм —  $230 \pm 69$  фс. При меньшей толщине пленки средняя кривизна кристаллических волокон, составляющих пленку, больше. Это приводит к уменьшению квантово-размерного объекта, соответственно к увеличению времени релаксации, и к более глубокому залеганию в запрещенной зоне дефектов, составляющих эту ловушку.

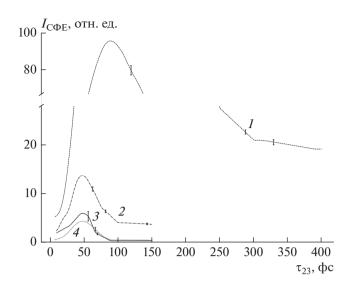
### Стимулированное фотонное эхо в однослойных и многослойных пленках

На рис. 2 показаны кривые спада интенсивности сигналов стимулированного фотонного эха (СФЭ) при временном интервале между первым и вторым возбуждающими импульсами равным нулю. Условия пространственного синхронизма соответствовали условиям однофотонного возбуждения. Сигналы СФЭ регистрировали в однослойных пленках ZnO, Si(B) и Si(P) (каждая пленка толщиной 100 нм) и в трехслойной пленке Si(P)/Si(B)/ZnO с толщиной всей пленки 300 нм, а каждого отдельного слоя — 100 нм. Мы предполагаем, что в однослойных пленках сигналы СФЭ формируются в экситонных ловушках, а в трехслойной пленке – в трионных ловушках. Трионы образуются при возбуждении в оксиде цинка экситона, к которому притягивается донорная дырка, возникающая благодаря наличию двух слоев легированного кремния. Трион имеет электрон, связанный с двумя дырками кулоновскими связями с противоположным по знаку спином. В процессе миграции по поверхности кристаллического волокна трион попадает в ловушку, в которой аналогично экситонным состояниям локализуется за счет потери части своей энергии при взаимодействии с фононами кристаллической

решетки. Концентрация трионов зависит от глубины залегания дефектов кристаллической решетки в запрещенной зоне оксида цинка и от интенсивности импульсов возбуждающего лазерного излучения.

На рис. 2 на кривой 1 (для трионов в оксиде цинка трехслойной пленки) и кривой 2 (для экситонов в оксиде цинка) можно выделить три характерных участка спада сигнала СФЭ. Первый быстрый спад обязан затуханию эхо-сигнала изза неупругих столкновений трионов и наличию фононного крыла в столкновительном уширении резонансной спектральной линии из-за взаимодействия трионов с фононами кристаллической решетки. Для трехслойной пленки время релаксации  $T_1$  составило 690  $\pm$  40 фс, а для пленки оксида цинка толщиной  $100 \text{ нм} - 920 \pm 20 \text{ фс. Быст-}$ рый спад, обусловленный взаимодействием с фононами кристаллической решетки, наблюдался также для пленки Si(P) (кривая 3) и Si(B) (кривая 4). При этом время релаксации  $T_1$  составило, соответственно,  $980 \pm 200$  и  $5360 \pm 970$  фс. Большие значения времени релаксации  $T_1$  на пленках легированного кремния объясняются меньшими размерами квантово-размерного объекта (ловушек экситонов) из-за меньшего диаметра волокон и большей кривизны их поверхности. Второй более медленный спад интенсивности сигнала СФЭ связан со столкновительным уширением резонансной спектральной линии из-за неупругих столкновений возбужденных трионов при значительном снижении влияния фононов кристаллической решетки. Для трехслойной пленки при возбуждении трионных состояний время релаксации  $T_1$  составило  $3100 \pm 3$  фс, а для пленки оксида цинка толщиной 100 нм при возбуждении экситонных состояний  $-3800 \pm 3$  фс. Для кремния, легированного фосфором (кривая 3), время релаксации  $T_1$  на участке медленного спада составило  $3490 \pm 65$  фс. Для кремния, легированного фтором, время спада СФЭ обусловленное столкновениями экситонов, по-видимому, близко к характерному времени взаимодействия с фононами кристаллической решетки, потому участка медленного спада эхо-сигнала не наблюдается.

Третий участок самого пологого спада интенсивности сигнала СФЭ обязан релаксации трионного (кривая *I*) или экситонного (кривая *2*, для однослойных пленок) конденсата. Наличие такого спада указывает на то, что глубина залегания дефектов кристаллической решетки в запрещенной зоне и интенсивность возбуждающего излучения достаточны для формирования при комнатной температуре экситонного и трионного конденсата в ловушках экситонов и трионов, сформированных на поверхностных дефектах



**Рис. 2.** Кривые спада сигналов СФЭ при постоянном значении временного интервала  $\tau_{12}$ : I — для трехслойной пленки Si(P)/Si(B)/ZnO; 2 — для пленки ZnO толщиной 100 нм; 3 — для пленки Si(P) толщиной 100 нм; 4 — для пленки Si(B) толщиной 100 нм.

кристаллической решетки полупроводниковых тонких пленок. Регистрируемое время необратимой продольной релаксации  $T_1$  зависит от концентрации локализованных экситонных и трионных состояний. Для реализованных параметров эксперимента для трехслойной пленки  $T_1$  составило  $17200 \pm 300$  фс, а для пленки оксида цинка толщиной  $100 \text{ нм} - 36500 \pm 15 \text{ фс. В пленках леги-}$ рованного кремния не наблюдается формирования сигналов СФЭ на экситонном конденсате, по-видимому, из-за отсутствия последнего в силу узкой запрещенной зоны у пленок, не обеспечивающей необходимую глубину залегания дефектов кристаллической решетки. Концентрация экситонов в ловушках снижается в силу захвата большого числа электронов акцепторными и донорными примесями полупроводниковой пленки кремния.

#### Нефарадеевский поворот плоскости поляризации сигналов СФЭ в трехслойной пленке

Авторами [21, 22] было показано, что спектры трионов имеют сверхтонкую структуру с компонентами, имеющими противоположный спин. Под действием однородного магнитного поля происходит снятие вырождения спектральных уровней этих компонент, сопровождающееся зеемановским расщеплением. Возникает ларморовская прецессия псевдоэлектрического дипольного момента возбужденного квантового перехода, благодаря чему в газовых средах (и только в

них) возникает специфический поворот плоскости поляризации сигналов СФЭ при воздействии продольного однородного магнитного поля [23]. Мы предполагаем, что при возбуждении сигналов СФЭ на квантовых уровнях трионов в трехслойной пленке (Si(P)/Si(B)/ZnO) при наличии продольного однородного магнитного поля происходит зеемановское расщепление экситонных связей электрона разными дырками с учетом знака спина. При этом величины зеемановского расщепления для разных уровней резонансного трионного перехода отличаются, что согласно [23] может привести к возникновению эффекта нефарадевского поворота плоскости поляризации СФЭ в наших экспериментах. Таким образом, в [24] нами было экспериментально продемонстрировано наличие в трехслойной пленке трионных состояний, возбуждаемых мощным лазерным излучением. Это утверждение справедливо благодаря регистрации в трехслойной пленке нефарадеевского поворота плоскости поляризации СФЭ, не наблюдающегося в однослойных пленках (в экситонных ловушках). В активной среде под воздействием однородного магнитного поля имеет место зеемановское расщепление сверхтонкой структуры на компоненты, отличающейся знаком спина, характерной для трионного состояния. Тот факт, что этот эффект наблюдался ранее только в газовой среде, можно интерпретировать как наличие в ловушках активной среды в виде трионного газа. Наличие тождественных признаков в релаксационных кривых спада для трехслойной и однослойной пленок позволяет утверждать, что природа формирования сигналов ФЭ в этих пленках одна и та же, т.е. характерна для резонансной среды, находящейся в газовой фазе: в экситонном газе — в случае исследования однослойных пленок, в трионном газе - для трехслойной пленки. Развитый подход позволяет описать механизмы появления пологого участка в кривой спада интенсивности эхо-сигналов, приведенных на рис. 1 и 2. Однако высказанные предположения нуждаются в проверке другими спектроскопическими методами.

Дополнительно стоит отметить возможность использования наблюдаемых эффектов для прецизионного измерения очень коротких промежутков времени. Угол поворота плоскости поляризации сигналов СФЭ зависит от гиромагнитного соотношения резонансного квантового перехода, величины напряженности приложенного магнитного поля, дискретно меняющегося временного интервала между первыми двумя возбуждающими импульсами ( $t_{12} = 0 - 50$  фс) и временного интервала между вторым и третьим возбуждающими импульсами ( $t_{23}$ ). При этом кривые спада сигналов СФЭ при различных дискретных значениях  $t_{12}$  от-

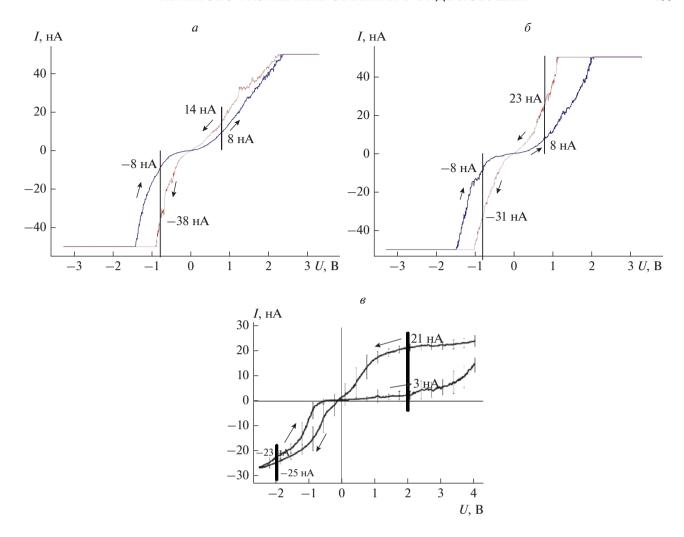
личаются по форме и степени проявления периодического возрастания интенсивности эхо-сигнала [25]. Путем регистрации угла поворота плоскости поляризации сигнала СФЭ при фиксированных остальных параметрах эксперимента (включая  $t_{12}$ ), используя теорию, развитую в [23], вычисляется величина  $t_{23}$ . Минимальное зарегистрированное в наших экспериментах значение составило 27 фс. Это более, чем на 3 порядка меньше существуюших на сегодня эталонов [26]. Данное обстоятельство подтверждает практическую значимость рассматриваемых в данной работе эффектов, связанных с квантоворазмерными объектами в виде ловушек трионов, сформированных в тонких полупроводниковых пленках при комнатной температуре.

### МЕМРИСТОРНЫЕ СВОЙСТВА ТОНКИХ ПЛЕНОК

Объемные полупроводники характеризуются постоянным значением ширины запрещенной зоны, потому на их ВАХ отсутствует петля гистерезиса и, соответственно, отсутствует возможность создания на них мемристорной памяти. В тонких полупроводниковых пленках существует зависимость принимаемой пленкой симметрии анионов относительно катионов от величины и полярности приложенного к пленке напряжения. Меняющаяся при этом толщина запрещенной зоны приводит к появлению петли гистерезиса на графике ее ВАХ.

В наших измерениях ВАХ тонких пленок оксида цинка регистрируемый ток зависел от толщины запрещенной зоны, значение которой определялось тем, какое из двух устойчивых состояний (основное или зеркальное) принимали анионы кислорода относительно узлов кристаллической решетки катионов цинка. Смена этих состояний, соответственно, появление одного из двух значений сопротивления электрическому току, происходило под действием прикладываемого значения напряжения, необходимого для выбора типа симметрии анионов относительно катионов. На основе данного эффекта возможно создание мемристорной (резистивной) памяти. Экспериментально нами было установлено, что для оксида цинка значения напряжений в зависимости от концентрации кислорода находятся в диапазоне от -4 до +4 В.

В работе [19] приведены результаты измерения ВАХ пленки оксида цинка (рис. 36), полученной методом химического осаждения. Переключение сопротивления происходило при напряжениях, равных -2.5 и 4 В. При измерении ВАХ в момент изменения напряжения от -2.5 до +4 В ширина запрещенной зоны пленки была максимально возможной для нее, то есть сопротивление плен-



**Рис. 3.** Вольтамперные характеристики оксида цинка, полученного методом магнетронного распыления (a и  $\delta$ ) и методом химического осаждения [19] (a): при послойном изменении концентрации кислорода через 10% от 0 до 90% (три слоя проводники, один полупроводник и 6 верхних слоев изолятор) (a); двухслойная пленка (первый слой 20% кислорода — проводник; верхний слой 30% кислорода — полупроводник) ( $\delta$ ).

ки было максимальным. Это соответствовало наименьшим значениям регистрируемого электрического тока. При измерении ВАХ в момент изменения напряжения от + 4 до -2.5 В ширина запрещенной зоны пленки была минимально возможной для нее, то есть сопротивление пленки было минимальным. Это соответствовало наибольшим значениям регистрируемого электрического тока. При этом перепад тока в прямом направлении для двух ветвей ВАХ, лежащих в области положительных значений напряжения, равному +2 В, соответствовал более значимому изменению сопротивления пленки и наибольшему перепаду тока, равному 18 нА (с 3 до 21 нА). Для значений, лежащих в области отрицательного напряжения, составляющего -2 B, перепад тока составлял всего 2 нА (от -23 до -25 нА).

В то же время, при измерении ВАХ пленок, полученных методом магнетронного распыления, перепад тока при значении напряжения, равном +0.8 В, в верхней части ВАХ для пленки типа І (рис. 3a) составил 6 нА (с 8 до 14 нА), а для типа II (рис. 36) — 15 нА (с 8 до 23 нА). При этом для значений напряжения  $-0.8~\mathrm{B}$  в нижней части  $\mathrm{BAX}$  для пленки типа I составил 30 нA (с -8 до -38 нA), а для типа II -23 нA (с -8 до -31 нA). Таким образом, для 10-слойной пленки оксида цинка, полученной методом магнетронного распыления, с концентрацией кислорода в верхних слоях пленки, обеспечивающей оксиду цинка свойства диэлектрика, перепад тока вверху по сравнению с нижней частью ВАХ был на 15 нА меньше и на пленке без изолирующего слоя оксида цинка сверху пленки – на 8 нА меньше. Это уменьшение перепада тока между верхними ветвями ВАХ связано с тем, что при подаче прямого напряжения часть электронов кислородных анионов участвует в создании экситонных состояний, которые в дальнейшем локализуются в ловушках экситонов. По этой причине количество анионов, влияющих на ток ВАХ уменьшается, что приводит к значительному снижению перепада тока по сравнению с ВАХ, снимаемой при напряжении, приложенном в обратном направлении, когда не создаются экситонные состояния. Наибольшее проявление блокирования мемристорных свойств оксида цинка в верхней половине ВАХ для пленки, имеющей снаружи изолирующий слой, связано с большим количеством поверхностных дефектов в запрещенной зоне, а значит и с большим количеством ловушек экситонов и локализованных в них экситонов.

Таким образом, регулируя напряжением интенсивность возбуждения экситонных и трионных состояний, локализуемых в их ловушках, мы получаем возможность изменять величину перепада значений тока в верхней части петли гистерезиса на ВАХ тонкой полупроводниковой пленки, то есть влиять на запоминаемые в мемристорной памяти значения сопротивления.

#### **ЗАКЛЮЧЕНИЕ**

В результате комплексного изучения тонких пленок оксида цинка и легированного кремния, полученных методом магнетронного распыления, предложены и обоснованы возможные механизмы возникновения при комнатной температуре ловушек экситонов и трионов и описана их релаксационная динамика. Установлено значение концентрация кислорода в оксиде цинка, при которой в тонкой пленке проявляются свойства мемристорной памяти, составляющее от 20 до 30 процентов. Определены характерные времена поперечной и продольной необратимых релаксаций для ловушек экситонов и трионов при комнатной температуре. Установлены характеристики пленок, необходимые для обеспечения в них мемристорного эффекта.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Karimullin K.R., Arzhanov A.I., Eremchev I.Yu. et al. // Laser Phys. 2019. V. 29. No 12. Art. No 124009.
- Karimullin K.R., Knyazev M.V., Arzhanov A.I. et al. // J. Phys. Conf. Ser. 2017. V. 859. Art. No 012010.
- 3. Аржанов А.И., Каримуллин К.Р., Наумов А.В // Кр. сообщ. по физ. ФИАН. 2018. Т. 45. № 3. С. 39; Arzhanov A.I., Karimullin K.R., Naumov A.V. // Bull. Lebedev Phys. Inst. 2018. V. 45. No 3. P. 91.
- 4. *Каримуллин К.Р., Аржанов А.И., Наумов А.В.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2018. Т. 82. № 11. С. 1620;

- Karimullin K.R., Arzhanov A.I., Naumov A.V. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2018. V. 82. No 11. P. 1478.
- 5. *Каримуллин К.Р., Аржанов А.И., Наумов А.В.* // Изв. PAH. Сер. физ. 2017. Т. 81. № 12. С. 1581; *Karimullin K.R., Arzhanov A.I., Naumov A.V.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2017. V. 81. No 12. P. 1396.
- 6. *Каримуллин К.Р., Князев М.В., Вайнер Ю.Г., Нау-мов А.В.* // Опт. и спектроск. 2013. Т. 114. № 6. С. 943; *Karimullin K.R., Knyazev M.V., Vainer Y.G., Naumov A.V.* // Opt. Spectrosc. 2013. V. 114. No 6. P. 859.
- 7. Магарян К.А., Каримуллин К.Р., Васильева И.А., Наумов А.В. // Опт. и спектроск. 2019. Т. 126. № 1. С. 50; Magaryan K.A., Karimullin K.R., Vasil'eva I.A., Naumov A.V. // Opt. Spectrosc. 2019. V. 126. No 1. P. 41.
- 8. Karimullin K.R., Mikhailov M.A., Georgieva M.G. et al. // J. Phys. Conf. Ser. 2018. V. 951. Art. No 012011.
- 9. Магарян К.А., Михайлов М.А., Каримуллин К.Р. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2014. Т. 78. № 12. С. 1629; Magaryan K.A., Mikhailov M.A., Karimullin K.R. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2014. V. 78. No 12. P. 1336.
- 10. *Каримуллин К.Р., Князев М.В., Наумов А.В.* // Изв. PAH. Сер. физ. 2014. Т. 78. № 12. С. 1539; *Karimullin K.R., Knyazev M.V., Naumov A.V.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2014. V. 78. No 12. P. 1254.
- 11. *Еськова А.Е., Аржанов А.И., Магарян К.А. и др. //* Изв. РАН. Сер. физ. 2020. Т. 84. № 1. С. 48; *Eskova A.E., Arzhanov A.I., Magaryan K.A. et al. //* Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2020. V. 84. No 1. P. 40.
- Fedyanin V.V., Karimullin K.R. // Laser Phys. 2019.
   V. 29. No 12. Art. No 124008.
- 13. *Федянин В.В., Каримуллин К.Р.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2020. Т. 84. № 3. С. 361.
- 14. *Самарцев В.В.*, *Митрофанова Т.Г.*, *Хасанов О.Х.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2019. Т. 83. № 12. С. 1609. *Samartsev V.V.*, *Mitrofanova T.G.*, *Khasanov O.K.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2019. V. 83. No 12. P. 1450.
- 15. Самарцев В.В., Камалова Д.И., Митрофанова Т.Г. // Изв. РАН. Сер. физ. 2018. Т. 82. № 12. С. 1738; Samartsev V.V., Kamalova D.I., Mitrofanova T.G. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2018. V. 82. No 12. P. 1574.
- Erokhin V., Fontana M.P. // J. Comput. Theor. Nanosci. 2011. V. 8. No 3. P. 1.
- 17. *Hebb D.O.* The organization of behavior. N.Y.: Wiley, 1949. 335 p.
- 18. Попов И.И., Архиреев И.А., Вашурин Н.С. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2020. Т. 84. № 3. С. 398; Popov I.I., Arkhireev I.A., Vashurin N.S. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2020. V. 84. No 3. P. 308.
- 19. *Смирнов В.А., Томинов Р.В., Авилов В.И. и др. //* ФТП. 2019. Т. 53. № 1. С. 77; *Smirnov V.A., Tominov R.V., Avilov V.I. et al. //* Semiconductors. 2019. V. 53. No 1. P. 72.
- 20. *Сушенцов Н.И.*, *Мороз А.В.*, *Степанов С.А. и др.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2014. Т. 78. № 3. С. 313.
- Langer L., Poltavtsev S.V., Yugova I.A. et al. // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 109. Art. No 157403.
- 22. Langer L., Poltavtsev S.V., Yugova I.A. et al. // Nat. Photon. 2014. V. 8. P. 851.

- 23. *Евсеев И.В., Ермаченко В.М., Решетов В.А.* // Опт. и спектроск. 1982. Т. 52. № 3. С. 444.
- 24. Попов И.И., Вашурин Н.С., Путилин С.Э., Баходуров А.У. // Изв. РАН. Сер. физ. 2017. Т. 81. № 5. С. 594; Popov I.I., Vashurin N.S., Bahodurov A.U., Putilin S.E. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2017. V. 81. No 5. P. 551.
- 25. Попов И.И., Вашурин Н.С., Виноградов Е.А. и др.// Изв. РАН. Сер. физ. 2018. Т. 82. № 8. С. 1113; Popov I.I., Vashurin N.S., Vinogradov E.A. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2018. V. 82. No 12. P. 1008.
- 26. ГЭТ 1-98. Государственный первичный эталон времени и частоты и шкал времени в составе Единого эталона единиц времени, частоты и длины.

#### Quantum-sized objects in the form of exciton and trion traps and their role in excitonic partial blocking of memristor properties of thin zinc oxide films

I. I. Popov<sup>a, \*</sup>, A. V. Moroz<sup>a</sup>, D. V. Mineev<sup>a</sup>, A. A. Gladysheva<sup>a</sup>, N. I. Sushentsov<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Volga State University of Technology, Yoshkar-Ola, 424000 Russia \*e-mail: popov@volgatech.net

Basing on the analysis of the results of experiments on photon echo in thin films of zinc oxide and doped silicon, possible mechanisms of the exciton and trion traps formation at room temperature and the dynamics of relaxation processes in them are discussed. The current—voltage characteristics recorded for such films with traps possessing the memristor effect are studied, and the influence of traps on the parameters of the current-voltage characteristics is studied.

УЛК 535.2

#### ДВУХКВАНТОВЫЕ ТРАНЗИЕНТ-ГОЛОГРАММЫ НА ЭКСИТОННЫХ УРОВНЯХ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК<sup>1</sup>

© 2021 г. В. В. Самарцев<sup>1, \*</sup>, Т. Г. Митрофанова<sup>1</sup>, О. Х. Хасанов<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Казанский физико-технический институт имени Е.К. Завойского — обособленное структурное подразделение Федерального государственного бюджетного учреждения науки "Федеральный исследовательский центр "Казанский научный центр Российской академии наук", Казань, Россия

<sup>2</sup>Государственное научно-производственное объединение

"Научно-практический центр Национальной академии наук Беларуси по материаловедению", Минск, Беларусь

\*E-mail: dr samartsev39@mail.ru

Поступила в редакцию 28.08.2020 г. После доработки 25.09.2020 г. Принята к публикации 28.10.2020 г.

Теоретически исследованы возможность и условия записи и считывания двухквантовых транзиент-голограмм на экситонных уровнях полупроводниковых квантовых точек типа CdSe/CdS/ZnS.

**DOI:** 10.31857/S0367676521020241

#### **ВВЕДЕНИЕ**

Полупроводниковые квантовые точки (ПКТ) находят все большее применение в квантовой оптике [1]. На авторов данной статьи наибольшее впечатление произвели работы экспериментальной группы из Института спектроскопии РАН (Москва, Троицк) с двухоболочечными ПКТ CdSe/CdS/ZnS (пр-во QD-Light, Россия) размером 3-7 нм [2-8]. Отметим, что эти квантовые точки были выращены методом коллоидного синтеза так, что излучающее ядро CdSe оказалось окружено двумя оболочками из CdS и ZnS, улучшающими фотостабильность и квантовый выход ПКТ, Согласно [9], при возбуждении таких ПКТ лазерным излучением на длине волны 580 нм, соответствующей максимуму экситонного поглощения, время необратимой релаксации при температуре 10 К составляет 0.75 пс. Недавние работы [10-13] показывают, что для практических целей необходимо учитывать дисперсию ПКТ по размерам [10], а также концентрационные эффекты [11, 12] и влияние окружающей матрицы [13]. Кроме того, важно изучать механизмы быстропротекающих процессов в твердотельных нанокомпозитах [14, 15], в особенности, развивать теоретические подходы для описания эволюции экситонной когерентности [16–18].

Квантовые точки типа CdSe/CdS/ZnS характеризуются дискретным набором энергетических состояний, подобно атомам, из-за чего их нередко называют "искусственными атомами", а размеры таких ПКТ практически совпадают с размерами экситонов Ванье-Мотта [19] (см. также монографии [20, 21]). Поэтому нами было сделано предположение об экситонной природе наблюдавшихся в [6-9] когерентных явлений [17, 22]. Новизна данного теоретического рассмотрения состоит в том, что рабочими объектами являются экситоны, а не примесные центры (как в обзоре [23]). Кроме того, вслед за А.К. Ребане и его коллегами [24], мы считаем, что возбуждение ПКТ осуществляется в двухквантовом режиме двумя лазерными пучками пикосекундной длительности, один из которых — объектный (т.е. имеет неплоский волновой фронт), а другой – референтный. В этом режиме, при возбуждении ПКТ в области экситонного поглощения, лазер должен иметь длину волны 1160 нм. Для облегчения детектирования оптическая схема установки должна позволять каждому пучку иметь свой волновой вектор ( $\vec{k_1}$  и  $\vec{k_2}$ ), чтобы обеспечить угол между  $\vec{k_1}$  и  $\vec{k}_2$ , равный 60°. В этом случае реализуется режим формирования коррелированных транзиент-голограмм [25]. Таким образом, в данной статье речь идет об экситонной транзиент-голографии. Возбуждающие пучки формируют в области возбуждения ПКТ две "решетки" неравновесной экситонной поляризации, на которых рассеива-

<sup>1</sup> Данная статья была представлена для опубликования в тематическом выпуске "Нанооптика, фотоника и когерентная спектроскопия" (см. № 12, том 84, 2020).

ются во взаимно-противоположных направлениях сигналы свободной экситонной индукции, волновой фронт которых совпадает с волновым фронтом объектного пучка.

#### ЭКСИТОННАЯ ТРАНЗИЕНТ-ГОЛОГРАФИЯ НА ПКТ CdSe/CdS/ZnS

Двухквантовый режим возбуждения коррелированных сигналов свободной индукции (free induction decay — FID) рассмотрен в работе [26], а процесс формирования волнового фронта этих когерентных откликов изучен в [25]. Согласно [26] электрическое поле возбужденных в двухквантовом режиме коррелированных сигналов свободной индукции (FID) в приближении малых импульсных площадей может быть записано в виде:

$$\vec{E}_{FID}(t) = E_0^2 \hbar^{-1} \Delta t Q \Phi_{FID} th^2 \frac{\hbar \omega}{2k_{\rm B}T} f \times$$

$$\times \sum_{i}^{N} \left[ e^{-i(\vec{k}_{FID} - \vec{k}_1 + \vec{k}_2)\vec{r}_j} + e^{-i(\vec{k}_{FID} - \vec{k}_2 + \vec{k}_1)\vec{r}_j} \right],$$

$$(1)$$

где  $\vec{E}_0$  — амплитуда электрического поля,  $\Delta t$  — длительность возбуждающих импульсов, Q — параметр двухквантового возбуждения,  $\Phi_{FID}$  — форм-фактор формы FID,  $\omega$  — частота возбуждения,  $k_{\rm B}$  — параметр Больцмана, T — рабочая температура,  $f\approx 1$  — параметр, регулирующий размерность, N — число участвующих экситонов.

При формировании двухквантовых коррелированных транзиент-голограмм (correlated transient holograms — СТН) один из возбуждающих пучков является объектным и имеет неплоский волновой фронт:

$$\vec{E}_{1}(\vec{r}_{j},t) = \sum_{\eta=1}^{m} \vec{E}_{0_{\eta}}^{(1)} \exp\{i\left[\omega t - \vec{k}_{1}\vec{r}_{j} - \varphi_{1}(\vec{r})\right]\}$$
 (2)

(где  $\vec{E}_{0_{\eta}}^{(1)}$ ,  $\omega$  и  $\phi_{l}(\vec{r})$  — амплитуда электрического поля, частота возбуждения и фаза объектной волны) и, согласно правил транзиент-голографии, его электрическое поле должно быть разложено в ряд Фурье по плоским волнам. Второй пучок — референтный, с плоским волновым фронтом

$$\vec{E}_{2}(\vec{r}_{j},t) = \vec{E}_{0}^{(2)} \exp\left\{i\left[\omega t - \vec{k}_{2}\vec{r}_{j} - \varphi_{2}(\vec{r})\right]\right\}, \quad (3)$$

и не требует разложения. Здесь  $\vec{E}_0^{(2)}$  — амплитуда электрического поля,  $\omega$  — частота возбуждения,  $\varphi_2(\vec{r})$  — фаза референтной волны. Параметры  $\varphi_1(\vec{r})$  и  $\varphi_2(\vec{r})$  определяют волновые фронты соответствующих пучков.

Согласно [25] электрическое поле двухквантовой коррелированной транзиент-голограммы имеет вил:

$$\vec{E}_{CTH}(\vec{r},t) = \vec{E}_{0}(\vec{r}) \left\{ \exp\left[-i\left(\vec{k}_{1} - \vec{k}_{2} - \vec{k}_{CTH}\right)\vec{r} - \left[\omega(t - \Delta t) - \left(\phi_{CTH}(\vec{r}) - \phi_{1}(\vec{r}) + \phi_{2}(\vec{r})\right)\right] + \exp\left[-i\left(\vec{k}_{2} - \vec{k}_{1} - \vec{k}_{CTH}\right)\vec{r} - \omega(t - \Delta t) - \left(\phi_{CTH}(\vec{r}) - \phi_{2}(\vec{r}) + \phi_{1}(\vec{r})\right)\right] \right\},$$
(4)

где 
$$\vec{E}_0(\vec{r}) = E_0^{(1)} E_0^{(2)} \hbar^{-1} \Delta t Q \Phi_{CTH} ext{th}^2 \frac{\hbar \omega}{2k_{\scriptscriptstyle E} T} f e^{-(t-\Delta t)/T_2},$$

 $T_2$  — время фазовой релаксации. Видно, что коррелированные сигналы экситонной свободной индукции (EFID1 и EFID2) распространяются во взаимно противоположных направлениях:

$$\vec{k}_{EFID1} = \vec{k}_1 - \vec{k}_2 \quad \text{if} \quad \vec{k}_{EFID2} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$$
 (5)

и имеют обращенные волновые фронты:

$$\varphi_{CTH_1}(\vec{r}) = \varphi_1(\vec{r}) \text{ и } \varphi_{CTH_2}(\vec{r}) = -\varphi_1(\vec{r}).$$
(6)

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, показана возможность записи и считывания двухквантовых экситонных транзиент-голограмм. Возникает вопрос о природе экситонов в ПКТ CdSe/CdS/ZnS, о которых идет речь в работах [6–9]. Если бы речь шла о свободных экситонах Ванье-Мотта, то время необратимой релаксации  $T_2$  составляло бы 5 фс [27]. В нашем случае  $T_2$  экситонов равно 1 пс, т.е. мы имеем дело с локализованными экситонами Ванье-Мотта. Поэтому и теория таких транзиент-голограмм на ансамбле экситонов такая же, что и у примесных центров [23] (см. также монографию [28]). Заметим, что лазерное возбуждение и считывание когерентных откликов с плоских пленочных образцов удобно вести с помощью призм полного внутреннего отражения [29].

Работа выполнена в рамках темы государственного задания Министерства науки и высшего образования Российской Федерации № АААА-A18-118030690040-8.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Bera D., Qian L., Tseng T.K., Holloway P.H. // Materials. 2010. V. 3. P. 2260.
- Магарян К.А., Михайлов М.А., Каримуллин К.Р. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2014. Т. 78. № 12. С. 1629; Magaryan K.A., Mikhailov M.A., Karimullin K.R. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2014. V. 78. No 12. P. 1336.
- 3. Karimullin K.R., Mikhailov M.A., Georgieva M.G. et al. // J. Phys. Conf. Ser. 2018. V. 951. Art. No 012011.
- 4. Магарян К.А., Каримуллин К.Р., Васильева И.А., Наумов А.В. // Опт. и спектроск. 2019. Т. 126. № 1. С. 50; Magaryan K.A., Karimullin K.R., Vasilieva I.A., Naumov A.V. // Opt. Spectrosc. 2019. V. 126. No 1. P. 41.

- 5. Каримуллин К.Р., Князев М.В., Вайнер Ю.Г., Наумов А.В. // Опт. и спектроск. 2013. Т. 114. № 6. С. 943; Karimullin K.R., Knyazev M.V., Vainer Yu.G., Naumov A.V. // Opt. Spectrosc. 2013. V. 114. No 6. P. 859.
- 6. *Каримуллин К.Р.*, *Аржанов А.И.*, *Наумов А.В.* // Изв. PAH. Сер. физ. 2017. Т. 81. № 12. С. 1581; *Karimullin K.R.*, *Arzhanov A.I.*, *Naumov A.V.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2017. V. 81. No 12. P. 1386.
- 7. Karimullin K.R., Knyazev M.V., Arzhanov A.I. et al. // J. Phys. Conf. Ser. 2017. V. 859. Art. No 012010.
- 8. *Аржанов А.И.*, *Каримуллин К.Р.*, *Наумов А.В.* // Кр. сооб. по физ. ФИАН. 2018. Т. 45. № 3. С. 39; *Arzhanov A.I.*, *Karimullin K.R.*, *Naumov A.V.* // Bull. Lebedev Phys. Inst. 2018. V. 45. No 3. P. 91.
- 9. *Каримуллин К.Р., Аржанов А.И., Наумов А.В.* // Изв. PAH. Сер. физ. 2018. Т. 82. № 11. С. 1620; *Karimullin K.R., Arzhanov A.I., Naumov A.V.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2018. V. 82. No 11. P. 1438.
- 10. Karimullin K.R., Arzhanov A.I., Eremchev I.Yu. et al. // Laser Phys. 2019. V. 29. No 12. Art. No 124009.
- 11. *Еськова А.Е., Аржанов А.И., Магарян К.А. и др. //* Изв. РАН. Сер. физ. 2020. Т. 84. № 1. С. 48; *Eskova A.E., Arzhanov A.I., Magaryan K.A. et al. //* Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2020. V. 84. No 1. P. 40.
- 12. Eskova A.E., Arzhanov A.I., Magaryan K.A. et al. // EPJ Web Conf. 2020. V. 220. Art. No 03014.
- Karimullin K.R., Arzhanov A.I., Es'kova A.E. et al. // J. Phys. Conf. Ser. 2020. V. 1461. Art. No 012114.
- Fedyanin V.V., Karimullin K.R. // Laser Phys. 2019.
   V. 29. No 12. Art. No 124008.
- 15. *Федянин В.В., Каримуллин К.Р.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2020. Т. 84. № 3. С. 361.
- 16. Самарцев В.В., Митрофанова Т.Г., Хасанов О.Х. // Изв. РАН. Сер. физ. 2019. Т. 83. № 12. С. 1609. Samartsev V.V., Mitrofanova T.G., Khasanov O.K. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2019. V. 83. No 12. P. 1450.

- 17. Самарцев В.В., Камалова Д.И., Митрофанова Т.Г. // Изв. РАН. Сер. физ. 2018. Т. 82. № 12. С. 1738; Samartsev V.V., Kamalova D.I., Mitrofanova T.G. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2018. V. 82. No 12. P. 1574.
- 18. *Самарцев В.В., Митрофанова Т.Г., Хасанов О.Х.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2020. Т. 84. № 12. С. 1729; *Samartsev V.V., Mitrofanova T.G., Khasanov O.K.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2020. V. 84. No 12. P. 1469.
- Ikezawa M., Nairs S., Masumoto Y. et al. // J. Lumin. 2007. V. 122–123. P. 809.
- Новотный Л., Хехт Б. Основы нанооптики. Москва: Физматлит, 2009. 482 с.
- 21. *Осадько И.С.* Флуктуирующая флуоресценция наночастиц. Москва: Физматлит, 2011. 315 с.
- 22. Samartsev V.V., Mitrofanova T.G. // J. Phys. Conf. Ser. 2019. V. 1283. Art. No 012012.
- 23. Nefediev L.A., Samartsev V.V. // Laser Phys. 1992. V. 2. P. 617
- Rebane A.K., Drobizhev M., Karotki A. // J. Lumin. 2002. V. 98. P. 341.
- 25. Samartsev V.V., Leontiev A.V., Mitrofanova T.G. // J. Phys. Conf. Ser. 2016. V. 714. Art. No 012014.
- Leontiev A.V., Lobkov V.S., Mitrofanova T.G. et al. // Laser Phys. Lett. 2012. V. 9. P. 654.
- 27. Нолль Г., Зингер У., Шевель С.Г., Гебель Э.О. // Письма ЖЭТФ. 1990. Т. 51. № 6. С. 361; Noll G., Sienger W., Shevel S.G., Gobel E.O. // JETP Lett. 1990. V. 51. No 7. P. 409.
- 28. Евсеев И.В., Рубцова Н.Н., Самарцев В.В. Когерентные переходные процессы в оптике. М.: Физматлит, 2009. 536 с.
- 29. Власов Р.А., Гадомский О.Н., Гадомская И.В., Самарцев В.В. // ЖЭТФ. 1986. Т. 90. № 6. С. 1938; Vlasov R.A., Gadomskii O.N., Gadomskaya I.V., Smartsev V.V. // JETP. 1986. V. 63. No 6. P. 1134.

## Two-quantum transient holograms on the exciton levels of semiconductor quantum dots

V. V. Samartsev<sup>a, \*</sup>, T. G. Mitrofanova<sup>a</sup>, O. Kh. Khasanov<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Kazan E.K. Zavoisky Physical-Technical Institute of the Kazan Scientific Center of the Russian Academy of Sciences, Kazan, 420029 Russia

<sup>b</sup>Scientific-Practical Materials Research Centre of the National Academy of Sciences of Belarus, Minsk, 220072 Belarus \*e-mail: dr samartsev39@mail.ru

The possibility and the conditions of the recording and reading out of two-quantum transient holograms on the exciton levels of the semiconductor quantum dots of CdSe/CdS/ZnS type are studied theoretically.