Міністерство освіти і науки України

Ужгородський національний університет

Закарпатське фізичне товариство

НАУКОВИЙ ВІСНИК Ужгородського університету

Uzhhorod University SCIENTIFIC HERALD

Серія

Фізика

Series

Physics

Випуск **42**
Issue

2017

Журнал засновано у 1997 році та видається за рішенням
Редакційно-видавничої ради Ужгородського національного університету

Ужгород – 2017

Засновником журналу "Науковий вісник Ужгородського університету. Серія Фізика" є Ужгородський національний університет, фізичний факультет та Закарпатське фізичне товариство

Журнал має передплатний індекс 89038 і щорічно включений до

„Каталогу періодичних видань Закарпатської області"

Журнал включено до нового Переліку наукових фахових видань з фізики, затвердженого Президією ВАК України (постанова президії ВАК України від 13.07.2015 р. № 747).

Редакційна колегія

Професор, д.ф.-м.н. В.Різак (головний редактор),
професор, д.ф.-м.н. М.Мар'ян (заступник головного редактора),
доцент, к.ф.-м.н. Н.Попович (відповідальний секретар)
професори, д.ф.-м.н. Ю.Височанський, В.Лазур, І.Небола, О.Сливка, І.Студеняк, І.Шафраньош,
доценти, к.ф.-м.н. П.Гуранич, М.Карбованець (Ужгородський національний університет),
академік НАН України О.Шпеник (ІЕФ НАН України, м. Ужгород),
професори, д.ф.-м.н. Ю.Баніс (Вільнюський університет), М.Зубек (Політехнічний університет, Гданськ, Польща), П.Копчанський (Інститут експериментальної фізики Словацької АН, м. Кошіце), О.Фегер (Інститут фізики, Кошіцький університет ім. Шафарика, Словаччина), В.Матолін (Карлів університет у Празі, Чехія), М.Краньчен (Університет Норд, Вараджін, Хорватія), Р.Янєв (Євроатом, м. Юліх, Німеччина), А.Олеага (Університет країни Басків, м.Більбао, Іспанія), доцент, к.пед.н. В.Шебень (Пряшівський університет, Словаччина), к.ф.-м.н. М.Вереш (Інститут фізики твердого тіла і оптики Вігнеровського фізичного дослідного центру Угорської академії наук, м. Будапешт)

Відповідальний за випуск к.ф.-м.н. доц. Біланич В.С.

Редакція
Біланич В.С.

*Тематика журналу **„Науковий вісник Ужгородського університету. Серія Фізика"***
охоплює:
фізику конденсованих систем,
ядерну фізику,
атомну та молекулярну фізику,
теорію поля та фізику елементарних частинок,
астрофізику,
фізичну електроніку,
прикладну фізику,
фізико-технологічні проблеми забезпечення інформаційної безпеки,
міждисциплінарну фізику
та суміжні галузі науки, техніки, історії фізики,
хроніку, персоналії та бібліографію

Рекомендовано до друку Вченою Радою Ужгородського національного університету, протокол № 14 від 21 листопада 2017 р.

Адреса редакції:
Фізичний факультет УжНУ
вул. Волошина, 54, Ужгород, 88000
Тел. (факс): (03122) 3-20-24
e-mail: visnykuzhnufizyka@gmail.com

Свідоцтво про державну реєстрацію друкованого засобу масової інформації
Серія КВ № 7972, видане Державним комітетом телебачення і радіомовлення
від 09.10.2003 року

ISSN: 2415-8038

Ужгородський національний університет, 2017

Ministry of Education and Science of Ukraine

Uzhhorod National University

Transcarpathian Physical Society

НАУКОВИЙ ВІСНИК Ужгородського університету

Uzhhorod University SCIENTIFIC HERALD

Серія

Фізика

Series

Physics

Випуск **42**
Issue

2017

The journal was founded in 1997 and is published by
the Publishing Council of Uzhhorod National University

Uzhhorod – 2017

The journal "Scientific Herald of Uzhhorod University. Series "Physics"
is founded by Faculty of Physics, Uzhhorod National University
and Transcarpathian Physical Society

The journal has the subscription index 89038 and annually included to
„Catalogue of journals of Transcarpathian region"

The journal is included in the list of scientific editions on Physics, approved by the Ministry of education and science of Ukraine (order of the MES of Ukraine from 13.07.2015 №747).

Editorial board:
Professor V.Rizak (Editor-in-Chief),
Professor M.Maryan (Deputy Editor-in-Chief),
Associate Professor N.Popovich (Executive Secretary)
Professors Yu.Vysochanskyi, V.Lazur, I.Nebola, O.Slyvka, I.Studeniak, I. Shafranyosh,
Associate Professor P.Guranych, M. Karbovanec (Uzhhorod National University),
Academician of Ukrainian National Academy of Science, Professor O. Shpenyk, (Institute of Electron Physics of Ukrainian National Academy of Science, Uzhhorod),
Professors J.Banys (Vilnius University), M.Zubek (Gdańsk University of Technology, Poland), P.Kopchans'kyi (Institute of Experimental Physics of Slovak Academy of Science, Košice), V.Matolin (Charles University, Prague, Czech Republic), R.Yanev (EuroAtom, Yulich, Germany), A.Feher (Pavol Jozef Šafárik in Košice, Slovak Republic),
A.Oleaga (University of the Basque Country (UPV/EHU), Bilbao, Spain),
M.Kranjčec (University North, Varaždin, Croatia),
Associate Professor V.Sheben' (University of Prešov, Slovak Republic), M.Veres (Institute for Solid State Physics and Optics, Wigner Research Centre for Physics of the H.A.S., Budapest, Hungary)

Editor of the issue: Bilanych V.S.

Editorial notes by
Bilanych V.S.

The journal ***"Scientific Herald of Uzhhorod University. Series Physics"***
covers the topics:
condenced matter physics,
nuclear physics,
atomic and molecular physics,
field theory and elementary-particle physics,
astrophysics,
physical electronics,
applied physics,
interdisciplinary physics
and adjacent fields of physics, engineering, history of physics,
chronicles, famous personalities and bibliography

Recommended to publication by the Scientific Council of Uzhhorod National University, record № *14* from November 21, 2017

The address of editorial board:
Faculty of Physics,
Uzhhorod National University,
Voloshyn Str. 54, Uzhhorod, 88000, Ukraine
Phone (fax): (380-3122) 32024
e-mail: visnykuzhnufizyka@gmail.com

Certificate of State Registration of Printed Mass Media,
Series KV № 7972, issued by the State Committee of Radio and TV,
November 9th, 2003

ISSN: 2415-8038

© *Uzhhorod National University*, 2017

ЗМІСТ

Б. Біланич, О. Шиленко, В. Команіцкій, В. Біланич, О. Фегер, В. Різак 8
Виготовлення елементів захисту інформації на плівці As_4Se_{96} методом електронно-променевої літографії

V.M. Rubish, M.M. Pop, O.A. Mykaylo, A.A. Kryuchyn, V.M. Maryan, ... 14
M.O. Durkot, T.I. Yasinko, S.O. Kostyukevich, K.V. Kostyukevich
Laser-induced changes in the optical characteristics of amorphous films of the As-Sb-S system

І.І. Сакалош, І.І. Трикур, М.Ю. Січка, І.Й. Цьома, В.М. Різак 27
Особливості підготовки торців кварцових оптичних волокон для нанесення плівок бактеріородопсину

Л. Ю. Хархаліс, К.Є. Глухов, Т.Я. Бабука 35
Моделювання електронної і граткової підсистем в шаруватому кристалі β-InSe з перших принципів

І.І. Небола, А.Я. Штейфан, А.Ф. Катаниця, І.П. Студеняк 47
Фононні спектри сімейства аргіродитів

К.Є. Глухов, Л.Ю. Хархаліс, Т.Я. Бабука 54
Ab initio дослідження оптичних характеристик антиферомагнетика $FePS_3$

В.Ю. Лазур, М.І. Карбованець, В.В. Алексій, С.І. Мигалина 62
Метод функції Гріна в теорії одноелектронної перезарядки молекулярного іона водню на голих ядрах

А.О. Малініна, О.М. Малінін 73
Оптичні характеристики двосмугової ексилампи бар'єрного розряду на молекулах монойодіду та монобромiду ртуті

П.П. Гуранич, О.В. Шуста, О.Г. Сливка, В.С. Шуста, P. Huranych 80
Край фундаментального поглинання шаруватих кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$

Т.І. Велеган, М.М. Руснак, М.І. Карбованець 85
Вплив електронних кореляцій на динаміку двоелектронної перезарядки іонів на полярних молекулах

В.М. Хмара, М. Гнатіч, В.Ю. Лазур, О.К. Рейтій, В.В. Рубіш 95
Двоцентрові поправки до сферичного і параболічного базисів атома водню

І.І. Бондар, В.В. Суран, І.І. Аксенюк, Т.В. Дубровка 104
Залежність процесу утворення іонів Ba^{2+} від інтенсивності випромінювання при реалізації двоелектронного механізму в двох лазерних полях

O.K. Reity, V.Yu. Lazur, V.K. Reity 112
Quasiclassical theory of tunnel ionization of an atom by parallel electric and magnetic fields

С.В. Гедеон, В.Ф. Гедеон, В.Ю. Лазур, Є.А. Нодь 121
Диференціальні 3d-перерізи розсіяння електронів на атомі фтору

В.В. Данило, О. Й. Миня, О.К. Шуаібов, І.В. Шевера, З.Т. Гомокі, М.В. Дудич 128
Характеристики сильнострумового наносекундного розряду на сумішах гелію та аргону з малими домішками пари води

В.Ю. Лазур, М.І. Карбованець, В.В. Алексій, С.І. Мигалина 137
Метод спотворених хвиль неперервного спектру в теорії двоелектронної перезарядки

В.М. Мазур 153
Вимірювання ізомерних відношень виходів для реакцій (γ,n) на важких ізотопах церію

А.А. Генерал, В.А. Кельман, Ю.В. Жменяк, В.В. Звенигородський, Ч.Д. Надь 161
Оптичне випромінювання плазмового струменя, що збуджується бар'єрним розрядом в сумішах аргон-повітря і гелій-повітря

І.В. Пилипчинець, О.О. Парлаг, Є.В. Олейников 169
Моделювання виходів продуктів фотоподілу ядер актинідів, індукованих гальмівним випромінюванням електронних прискорювачів

Р.М. Плекан, В.Ю. Пойда 178
Розрахунок спектрів двонуклонних станів парно-парних ядер ^{64}Zn та ^{74}Se в адіабатичному наближенні

В.І. Жаба 191
Дейтрон: аналітичні форми хвильової функції та розподіл густини

І.І. Гайсак, В.О. Мартишичкін, Р.М. Плекан, О.Г. Окунєв, М.Т. Саболчій 196
Вимірювання абсолютної величини експозиційної дози на бетатроні Б-25

УДК 53.03, 537.533.9
PACS: 85.40.Hp, 78.66.Jg
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.8-13

Б.Біланич[1], О.Шиленко[2], В.Команіцкій[2], В.Біланич[1], О.Фегер[2], В.Різак[1]
[1]Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54
[2]Faculty of Science, Safarik University, Kosice 04001, Slovakia
e-mail: bvbilanych@gmail.com

ВИГОТОВЛЕННЯ ЕЛЕМЕНТІВ ЗАХИСТУ ІНФОРМАЦІЇ НА ПЛІВЦІ As_4Se_{96} МЕТОДОМ ЕЛЕКТРОННО-ПРОМЕНЕВОЇ ЛІТОГРАФІЇ

Досліджені особливості взаємодії електронного променя з халькогенідними плівками As_4Se_{96}. Вказано на існування точки інверсії електронно індукованого поверхневого рельєфу. На плівці As_4Se_{96} реалізовано процес виготовлення оригіналу захисного елементу згідно зображення логотипу методом сухої електронної літографії.

Ключові слова: електронна літографія, халькогенідні плівки, захисний елемент.

Вступ

Одним із способів технічного захисту інформації є використання спеціальних захисних елементів, які наносяться безпосередньо на носій інформації. Вказана задача може бути реалізована різними літографічними методами [1]. В останній час інтенсивно розвивається, метод електронної літографії, заснований на нетермічній взаємодії прискорених електронів з електронним резистом.

Здебільшого в якості електронних резистів використовуються полімери – ПММА, полістирол та інші [2]. Однак, дослідження впливу електронного опромінення на халькогенідні плівки показали на наявність модифікації їх поверхні електронним променем [3-5]. Це показало на можливість реалізації одноступеневої сухої (без хімічного травлення) електронної літографії для виготовлення майстер-голограм на халькогенідних плівках.

Метою даної роботи було дослідження впливу електронного променю на формування поверхневого рельєфу в аморфній плівці As_4Se_{96} та оцінка ефективності її використання для виготовлення зображення захисного елемента методом сухої електронної літографії.

Методика експерименту

Для вимірювань були використані плівки As_4Se_{96} товщиною 3 μm. Плівки були отримані термічним випаровуванням у вакуумі скляних заготовок тієї ж композиції на сапфірові підкладки. Плівки опромінювали променем скануючого електронного мікроскопу Tescan, модель VEGA. При локальному опромінюванні прискорююча напруга U = 30 кВ, діаметр пучка B = 640 нм, струм пучка електронів I=60 нА. Час експозиції t змінювали від 0,5 мс до 5 с. Час експозиції визначав дозу опромінення G: $G=I\times t/S$, де S-площа поперечного перерізу сфокусованого на поверхню плівки електронного променя. Кінцева формула для розрахунку дози G в даному експерименті має вигляд: $G=18{,}6\times10^6\times t$, (мкКл/см^2), де t вимірюється в секундах.

Рельєф структури поверхні плівки був вивчений з використанням атомно-силового мікроскопа (АСМ) Bruker, модель ICON.

Результати та їх обговорення

Плівки As_4Se_{96} були точково опромінені протягом різних часів експозиції, які визначали різні дози в інтервалі від 9.3×10^2 до 9.3×10^6 мкКл/см^2. Для кожної окремої дози G на поверхні

плівки формували матрицю (20x20) точково опромінених областей. Відстань d між центрами таких областей уздовж ліній руху променя і між ними становила 10 µm.

На рис.1, 2 показані скани опромінених областей плівок As_4Se_{96} і профілі індукованого електронним променем поверхневого рельєфу. Як видно з рисунка у даному дозовому інтервалі на опроміненій області формується поверхневий рельєф у вигляді конуса з профілем гаусового типу. Максимальна висота рельєфу (330 нм) спостерігається при дозі 18.6×10^2 мкКл/см^2, яка досягається при опроміненні протягом t=0.1 мс. При даній дозі опромінення плівка As_4Se_{96} може бути використана у якості негативного електронного резиста.

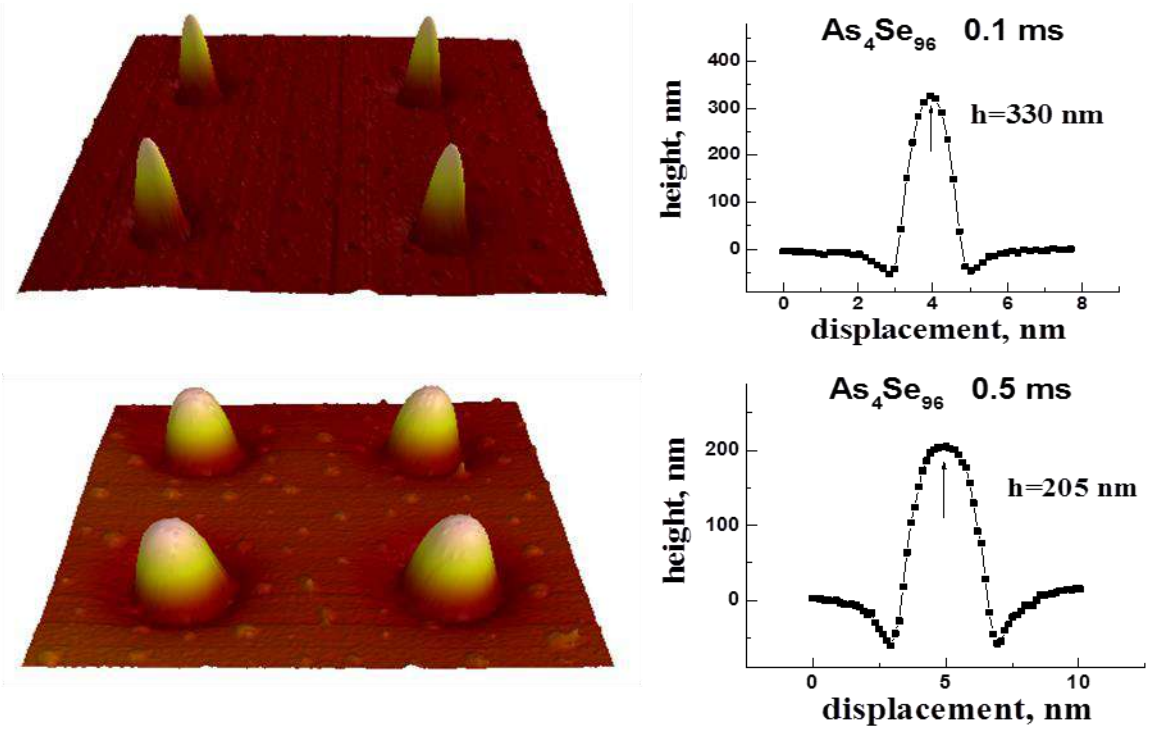


Рис.1. АСМ-зображення та профілі поверхневого рельєфу, індукованого електронним променем на поверхні плівки As_4Se_{96}, які формуються в області доз 9.3×10^2 мкКл/см^2 - 9.3×10^3 мкКл/см^2.

Зростання дози опромінення понад 9.3×10^4 мкКл/см^2 (t>5 мс) приводить до інверсії форми електронно індукованого рельєфу. В області доз 9.3×10^4 до 9.3×10^6 мкКл/см^2 при електронному опроміненні на поверхні плівки утворюються кратери з профілем гаусового типу. При дозі опромінення 9.3×10^6 мкКл/см^2 (t=0.5 с) глибина рельєфу становить близько 1.5 мкм. У вказаному інтервалі доз плівка As_4Se_{96} може бути використана у якості позитивного електронного резисту.

Як було показано в [5], процес формування поверхневого рельєфу в халькогенідних плівках визначається як параметрами електронного променя так і товщиною та електрофізичними властивостями плівки.

Механізм формування такого рельєфу може бути пояснений формуванням у плівці області просторового заряду при опроміненні електронним променем. Проникнення первинних електронів у плівку призводить до накопичення заряду всередині плівки, на її поверхні, а також випромінювання електронів з плівки назад у вакуум [6].

Потік випромінених з плівки електронів складається з вторинних і відбитих електронів. Від'ємний заряд, утворений у зразку, можна визначити як $Q = (1-\eta)I_0t$, де η - коефіцієнт відбитих електронів, I_0 - струм первинного електронного пучка, t - час експозиції. Товщина області від'ємного заряду дорівнює глибині проникнення падаючих

електронів у плівку. За рахунок емісії вторинних електронів з приповерхневих шарів плівки назад в вакуум утворюється відносно тонкий ($l \approx 3\lambda$, λ-довжина вільного пробігу електрона) приповерхневий шар позитивного заряду $Q_+ = \delta I_0 t$, де δ - коефіцієнт вторинних електронів [6]. Тобто при електронному опроміненні всередині і на поверхні плівки відбувається акумуляція заряду. Ці два шари зарядів (Q_- і Q_+) утворюють область
просторового заряду в якій утворюється електричне поле в області взаємодії плівки і електронного променя. Внаслідок цього на поверхні плівки виникає потенціал V_s, величина і знак якого залежать від сумарного заряду $\Delta Q = |Q_- - Q_+|$ [7]:

$$V_s = \frac{\Delta Q h}{\varepsilon_0 \varepsilon_r S} + \frac{(Q_+ l + Q_- R)}{2\varepsilon_0 \varepsilon_r S}$$

де S площа опроміненої області, h товщина плівки, ε_0 і ε_r діелектрична постійна вакууму і матеріалу відповідно.

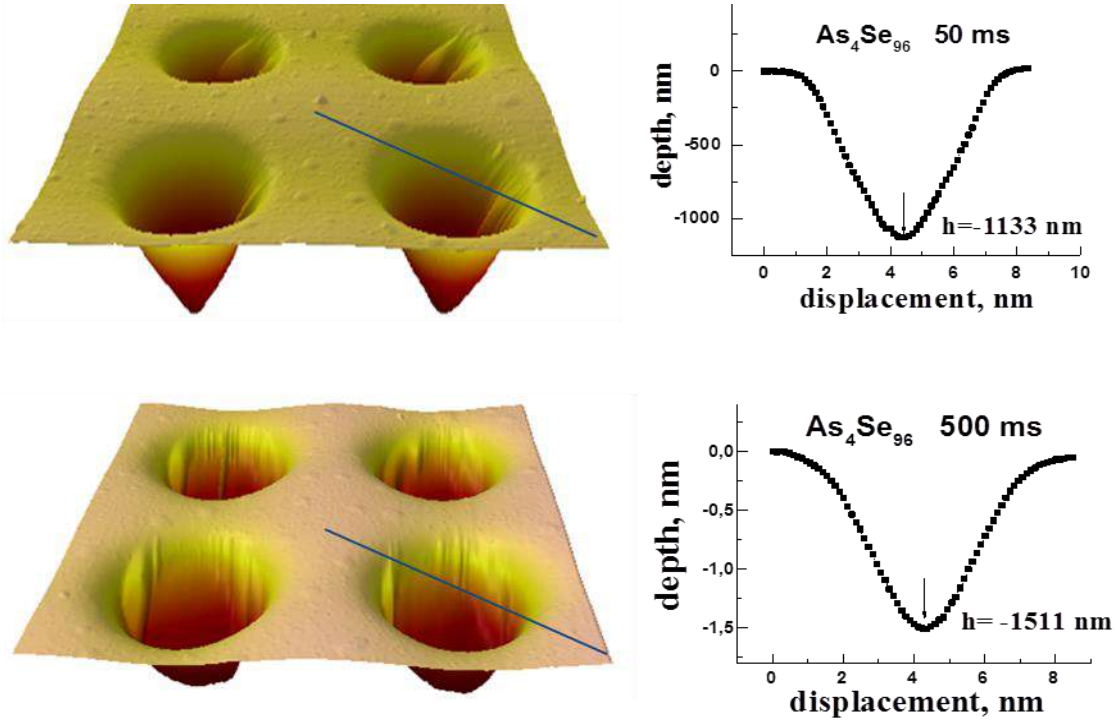


Рис.2. АСМ-зображення та профілі поверхневого рельєфу, індукованого електронним променем на поверхні плівки As_4Se_{96}, які формуються в області доз 9.3×10^4 мкКл/см^2 - 9.3×10^6 мкКл/см^2.

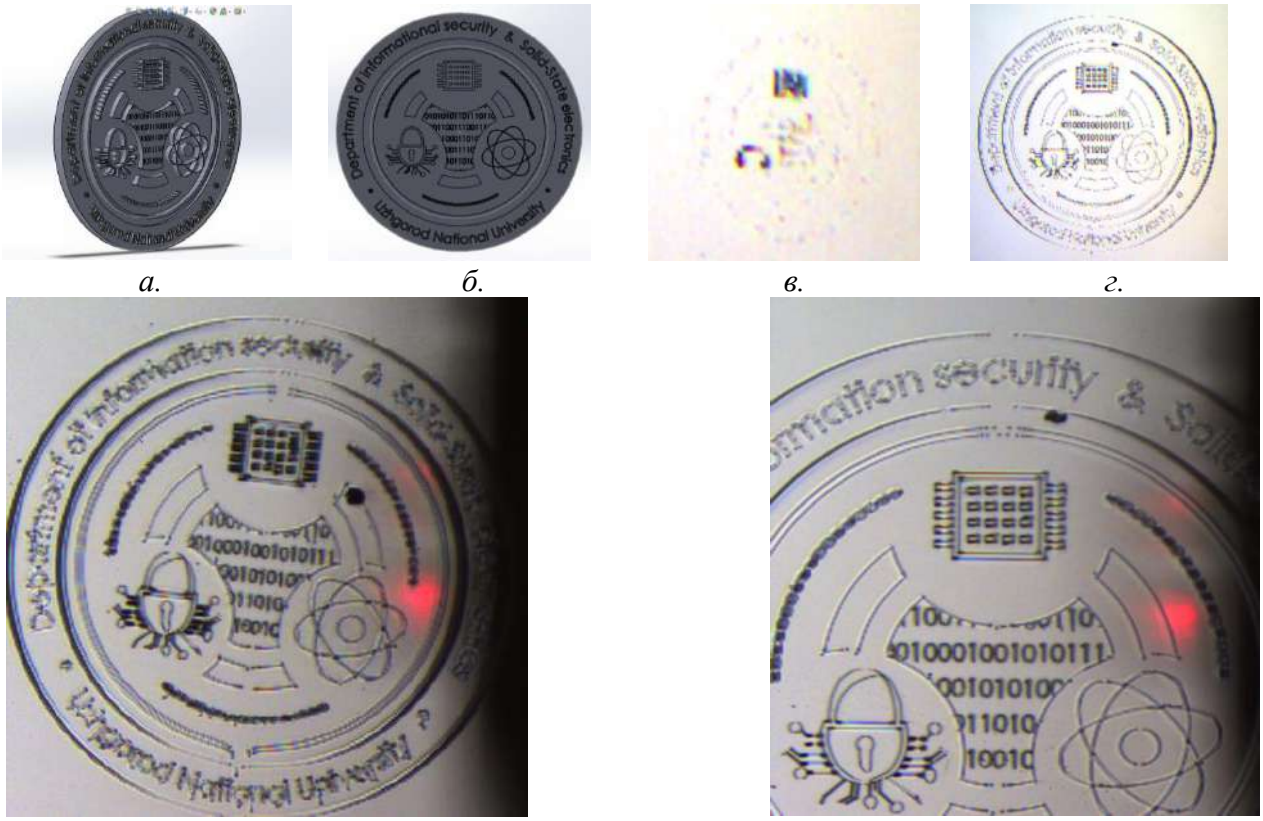
У залежності від величини цього потенціалу, а також співвідношення між величинами Q_- і Q_+ внаслідок електростатичної взаємодії відбувається розширення або стиснення опроміненої області і, як наслідок, виникнення поверхневого рельєфу різної форми. Виходячи з отриманих результатів було виготовлене індивідуальне зображення логотипу кафедри ТЕІБ (рис.3) на плівці As_4Se_{96} методом однопроменевої електронної літографії. Дана задача була реалізована з допомогою скануючого електронного мікроскопа TESCAN, укомплектованого програмним пакетом EBL (Electron Beam Lithography) для створення літографічних шаблонів у векторному або растровому вигляді.

Файл із зображенням логотипу був створений з допомогою програми SolidWorks (рис.3.а) і потім сконвертований у потрібний для EBL формат *.*dxl* (рис.3.б). На початку були задані параметри електронного пучка, які використовувалися для локальної модифікації поверхні плівки, а саме: прискорююча напруга U = 30 кВ, діаметр пучка B = 640 нм, струм пучка електронів I= 60 нА. Час експозиції 5 мс на точку. Після здійснення опромінення плівка була

перенесена на атомно-силовий мікроскоп у якому було оглянуто зображення (рис.3.в).

З рис. 3.в видно, що зображення є дуже нечітке, а деякі елементи є занадто сильно опромінені і тому плівка локально зруйнована. Такий результат означає, що одні і ті ж параметри пучка неможна використовувати для створення всіх елементів зображення. Тому, в подальшому була використана технологія In-Flight Beam Tracing, яка дозволяє відстежувати параметри електроного променя в реальному часі. Ця технологія дозволяє змінювати час експонування від пікселя до пікселя в реальному режимі.

Тому, був проведений аналіз щільності елементів зображення, врахований елемент близькості елементів і були підібрані різні параметри електронного пучка для виготовлення різних елементів зображення:



а. *б.* *в.* *г.*

д. *е.*

Рис.3. Емблема кафедри твердотільної електроніки та інформаційної безпеки: ***а***. виготовлена у програмі SolidWorks; ***б***. фронтальний вид емблеми; ***в***. початковий вид емблеми в АСМ на плівці As_4Se_{96}; ***г, д*** вид емблеми у відео камері АСМ при різних параметрах електронного променю для окремих елементів; ***е.*** вид емблеми в АСМ на плівці As_4Se_{96} при оптимізованих параметрах електронного променю.

прискорююча напруга U = 30 кВ, діаметр пучка B = 640 нм, струм пучка електронів змінювали від 5 нА до 60 нА, час експозиції змінювали від 0,5 мс до 10 мс на точку. З рис. 3*г.д.* видно, що при роздільному опроміненні окремих елементів якість емблеми помітно зросла. Подальше покращення якості зображення було пов’язане з коректуванням параметрів електронного променю, особливо часу експозиції. Після оптимізації параметрів літографічного процесу, певної кількості спроб запису зображення на плівку на електронному мікроскопі та його огляді в атомно-силовому мікроскопі було отримане зображення емблеми прийнятної якості на плівці As_4Se_{96} (рис.3е.). З рис. 3е видно, що досить чітко видно всі лінії та інші елементи зображення, хоча в деяких місцях зображення спостерігаються також дефекти, не пов’язані з якістю поверхні плівки. Для визначення вертикальних розмірів поверхневого рельєфу утворене зображення було розглянуте в

інтерференційному мікроскопі МИИ-4. Висота поверхневого рельєфу, який утворює лінію, становить близько 270 нм.

Очевидно, що для покращення технологічного процесу виготовлення зображення потрібно детально аналізувати щільність елементів зображення і відповідно підібрати параметри електронного променю.

Висновки

Досліджена та проаналізована взаємодія халькогенідних плівок As_4Se_{96} з електронним променем. Встановлена наявність точки інверсії форми рельєфу поверхні плівок, яка вказує на можливість використання даних матеріалів у якості як позитивних так і негативних електронних резистів. Реалізовано процес виготовлення майстер-оригіналу захисного елемента методом одноступеневої (сухої) однопроменевої електронної літографії з використанням халькогенідної плівки As_4Se_{96} у якості електронного резиста. Отримано захисний елемент хорошої якості при електронно-літографічному процесі з різними параметрами електронного променя при записі окремих складових елементів зображення.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Tseng A.A., Chen K., Chen C.D., Ma K.J. Electron beam lithography in nanoscale fabrication: recent development. //Ieee Transaction on Electronics Packaging Manufacturing–2003.–V.26.–№2.–P.141-149.
2. Thompson L.F., Kerwin R.E. Polymer Resist Systems for Photolithography and Electron Lithography. //Annual Review of Materials Science –1976. – V.6. – P.267-301.
3. Tanaka K. Electron beam induced reliefs in chalcogenide glasses. //J. Appl. Phys. – 1997.– V.70. – P.261-263.
4. Bilanych V., Komanicky V., Lacková M., Feher A., Kuzma V., Rizak V. Fabrication of meso- and nano-scale structures on surfaces of chalcogenide semiconductors by surface hydrodynamic interference patterning. //Mater. Res. Express. – 2015. – V.2– P.105201.1.–105201.8.
5. Bilanych V., Komanicky V., Kozejova M., Feher A., Kovalcikova A., Lofaj F., Kuzma V., Rizak V. Surface pattering of Ge-As-Se thin films by electric charge accumulation, //Thin Solid Films –2016.– V.616.–P. 86–94.
6. Cazaux J. e-Induced Secondary Electron Emission Yield of Insulators and Charging Effects. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. – 2006. – V.B244. – P. 307-322.
7. Evstaf'eva E.N., Rau E.I., Mileev V.N., Novikov L.S., Ditsman S.A., Sennov R.A. Analysisof mechanisms of dielectric target charging under the effect of electron irradiation. //Inorg. Mater. Appl. Res. – 2011. – V.2. – P. 106–113.

Стаття надійшла до редакції 29.10.2017.

Б.Биланич[1], О.Шиленко[2], В.Команицкий[2], В.Биланич[1], О.Фегер[2], В.Ризак[1]
[1]Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54
[2]Faculty of Science, Safarik University, Kosice 04001, Slovakia
e-mail: bvbilanych@gmail.com

ИЗГОТОВЛЕНИЕ ЭЛЕМЕНТОВ ЗАЩИТЫ ИНФОРМАЦИИ НА ПЛЕНКЕ As_4Se_{96} МЕТОДОМ ЭЛЕКТРОННО-ЛУЧЕВОЙ ЛИТОГРАФИИ

Исследованы особенности взаимодействия электронного луча с халькогенидными пленками As_4Se_{96}. Обнаружена инверсия формы электронно-индуцированного рельефа. На пленке As_4Se_{96} реализован процесс изготовления

оригинала защитного элемента согласно изображения логотипа методом сухой электронной литографии.
Ключевые слова: электронная литография, халькогенидные пленки, защитный элемент.

PACS: 85.40.Hp, 78.66.Jg
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.8-13
B.Bilanych[1], O.Shylenko[2], V.Komanicky[2], V.Bilanych[1], A.Feher[2], V.Rizak[1]
[1]Uzhgorod National University, Uzhgorod, 88000, Ukraine, Voloshina str. 54
[2]Faculty of Science, Safarik University, Kosice 04001, Slovakia
e-mail: bvbilanych@gmail.com

FABRICATION OF INFORMATION PROTECTION ELEMENTS ON THE FILM As_4Se_{96} BY ELECTRON-BEAM LITHOGRAPHY METHOD

Purpose. The objective of this work was to study mechanisms of interaction of electron beam with the amorphous As_4Se_{96} film and fabrication of a protective element image by dry electron lithography method.
Methods. The films were irradiated by an electron beam using a scanning electron microscope (Tescan, model VEGA). The film surface structure relief was studied by atomic force microscope (Bruker, model ICON).
Results. The interaction As_4Se_{96} chalcogenide films with an electron beam have been investigated. It is established irradiation dose at which the surface relief shape inversion occurs, i.e. expansion at low irradiation doses and contraction at high doses.
Conclusions. The process of fabrication the master-original of the protective element by one-stage (dry) single-beam electronic lithography method with use of the As_4Se_{96} chalcogenide film as an electronic resist have been realized.
Keywords: electron beam lithography, chalcogenide thin films, protective element.

REFERENCES

1. Tseng A.A., Chen K., Chen C.D., Ma K.J. (2003) “Electron beam lithography in nanoscale fabrication: recent development.” Ieee Transaction on Electronics Packaging Manufacturing, 26 (2) p.141-149.
2. Thompson L.F., Kerwin R.E. (1976) “Polymer Resist Systems for Photolithography and Electron Lithography.” Annual Review of Materials Science 6 p.267-301.
3. Tanaka K. (1997) “Electron beam induced reliefs in chalcogenide glasses.” J. Appl. Phys. 70 (2) p.261-263.
4. Bilanych V., Komanicky V., Lacková M., Feher A., Kuzma V., Rizak V.(2015) “Fabrication of meso- and nano-scale structures on surfaces of chalcogenide semiconductors by surface hydrodynamic interference patterning.” Mater. Res. Express 2 (10) p.105201.1.–105201.8.
5. Bilanych V., Komanicky V., Kozejova M., Feher A., Kovalcikova A., Lofaj F., Kuzma V., Rizak V. (2016) “Surface pattering of Ge-As-Se thin films by electric charge accumulation.” Thin Solid Films 616 (1) p. 86–94.
6. Cazaux J. (2006) “e-Induced Secondary Electron Emission Yield of Insulators and Charging Effects.” Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B244 (2) p. 307-322.
7. Evstaf'eva E.N., Rau E.I., Mileev V.N., Novikov L.S., Ditsman S.A., Sennov R.A. (2011) “Analysis of mechanisms of dielectric target charging under the effect of electron irradiation.” Inorg. Mater. Appl. Res. 2 (1) p. 106–113.

© Ужгородський національний університет

PACS 78.30.-j, 78.66.Jg
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.14-26

V.M. Rubish[1], M.M. Pop[2], O.A. Mykaylo[2], A.A. Kryuchyn[1], V.M. Maryan[1], M.O. Durkot[1], T.I. Yasinko[1], S.O. Kostyukevich[3], K.V. Kostyukevich[3]

[1] Institute for Information Recording, NAS of Ukraine, 4, Zamkovi Skhody str., 88000 Uzhgorod, Ukraine
e-mail: center.uzh@gmail.com
[2] Uzhgorod National University, 3, Narodna sq., 88000, Uzhgorod, Ukraine
[3] V. Lashkaryov Institute of Semiconductor Physics, NAS of Ukraine, 41, Prosp. Nauky, 03028 Kyiv, Ukraine

LASER-INDUCED CHANGES IN THE OPTICAL CHARACTERISTICS OF AMORPHOUS FILMS OF THE As-Sb-S SYSTEM

Abstract. The optical transmission spectra of amorphous $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ films with small antimony content (x=0, 0.8, 1.6, 4, 6) prepared by the thermal evaporation of glasses of corresponding compositions have been measured over the whole 400-750 nm spectral range. It is established that the laser irradiation and annealing of films leads to an absorption edge shift into the long-wave spectral region. The values of pseudoforbidden gap width E_g and refractive index n of films have been determined. The parameters of a single-oscillator model (oscillator energy E_0, dispersion energy E_d, and effective coordination number per cation N_c) for the studied films are estimated. The maximum changes in optical characteristics are found for $As_{36}Sb_4S_{60}$ films. Changes in the optical parameters of films are caused by structural transformations taking place in them under the irradiation and annealing.

Keywords: chalcogenide amorphous films, transmission spectra, photoinduced effects, optical properties, structural transformations.

Introduction

Due to the broad spectrum of photo-induced phenomena, chalcogenide glass-like semiconductors are widely applied as the media for information recording, fabrication of surface relief structures, optical sensors, waveguides, etc. [1-15].

As inorganic photoresists with high resolving power, amorphous films of As-S-Se system are most widely used in systems of optical recording of information and holography [2, 4-7, 11, 16-18]. In the thin layers of such materials, the structural transformations, which are accompanied by essential changes in optical parameters, occur under the action of a laser emission or a thermal heating. In this case, the level of structural transformations is determined by a chemical composition of amorphous films and the conditions of fabrication, heating, and irradiation. In this aspect, $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ amorphous films are not practically studied. Earlier, we revealed [19] that under the same conditions of exposure of as-prepared films of the given system, the film $As_{36}Sb_4S_{60}$ is characterized by the highest level of photoinduced changes in optical parameters (shift in the absorption edge, changes in the pseudoforbidden gap width E_g and the refractive index n). However, in that work, the films with x=0, 4, 6, 8, and 10 were investigated. The films with $0<x<4$ were not considered, though the compositions of films with a high level of changes in optical characteristics are, possibly, present just in this interval of concentrations.

In the present work, we describe the results of studies of the influence of a laser irradiation on the transmission spectra and, respectively, the optical parameters of $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ amorphous films with low content of antimony (x=0.8, 1.6, 4, and 6).

Experimental

$As_{40-x}Sb_xS_{60}$ ($0 \le x \le 6$) glasses were prepared using the vacuum melting method (~0.01 Pa) of the corresponding mixture of As_2S_3 and Sb_2S_3 components. Arsenic and antimony sulfides were produced by means of the direct synthesis from high pure As, Sb, and S. During the synthesis, we applied the stepwise increase in temperature. The homogenization temperatures for melts of As_2S_3 and Sb_2S_3 were 780 and 870 K, respectively. The homogenization time of melts was 48 h. The melts were periodically mixed. Cooling of melts was performed in the regime of a switched-off furnace. Under the such conditions of cooling, As_2S_3 and Sb_2S_3 were obtained, respectively, in the form of a glass and a polycrystalline ingot. Similarly, $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ glasses were produced. The homogenization temperature for $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ melts was 780-830 K, and the homogenization time was 36 h. Cooling of melts was carried out in air.

$As_{40-x}Sb_xS_{60}$ thin films were produced on unheated glass substrates by means of chalcogenide glasses vacuum evaporation of the corresponding compositions from quasi-closed effusive cells on improved vacuum setup ВУП-5 equipped with a thickness control system. The thickness of films was ~1 μm. Constancy of layer thickness in the working zone was ensured by the planetary rotation of substrates.

The transmission spectra were studied in 450-750 nm range at room temperature using a diffraction monochromator МДР-23. The spectral resolution was no worse than 10^{-3} eV. Light exposure of films was carried out using defocused semiconductor laser (λ=530 nm) with a power 100 mW.

Results and discussion

In Figs. 1 and 2 we show the transmission spectra of $As_{39.2}Sb_{0.8}S_{60}$ and $As_{36}Sb_4S_{60}$ amorphous films, which are typical for all studied materials. It is seen that, as antimony content in film composition increases, the absorption edge shifts some to the long-wave spectrum part, indicating a decrease in their pseudoforbidden gap width E_g. In this case, the edge slope is practically unchanged. This means that the type of structural matrix of As-Sb-S system films is unchanged at the transition from As_2S_3 to Sb_2S_3.

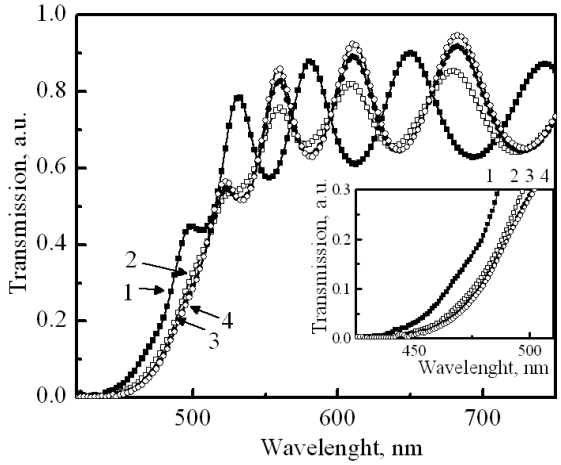


Fig. 1. Dependences of the transmission spectra inherent to $As_{39.2}Sb_{0.8}S_{60}$ films on the exposure time: *1* – 0; *2* – 1; *3* – 3; *4* –5 min.

The structural studies of glasses and films of As_2S_3-Sb_2S_3 system with Sb_2S_3 content up to 60 mol.% by methods of vibrational (Raman and Infrared) spectroscopy [6, 11, 20- 23] showed that they have the nanoheterogeneous structure. Their matrix is constructed mainly of trigonal AsS_3 and SbS_3 pyramids linked through a common twofold coordinated atoms of sulfur and contains also a considerable number of structural fragments with homopolar bonds As-As and S-S (e.g., As_4S_4, S_n).

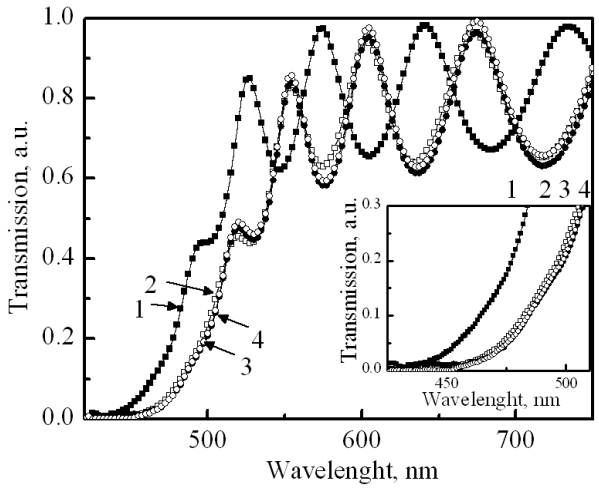


Fig. 2. Dependences of the transmission spectra inherent to $As_{36}Sb_4S_{60}$ films on the exposure time: *1* – 0; *2* – 1; *3* – 3; *4* –5 min.

The concentration of such fragments (which depends on the chemical composition and technological conditions of preparation) in films is higher. No structural units with

homopolar bonds Sb-Sb were found in the studied materials.

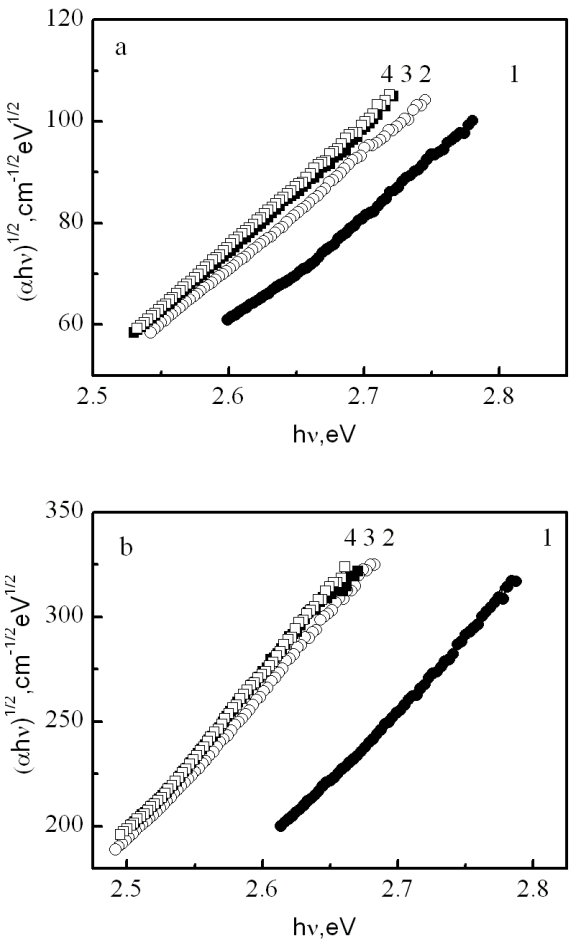


Fig. 3. Dependence of the absorption edge position on the photon energy for $As_{39.2}Sb_{0.8}S_{60}$ (*a*) and $As_{36}Sb_4S_{60}$ (*b*) films unexposed (*1*) and exposed (*2 – 4*) for 1 (*2*), 3 (*3*), and 5 (*4*) min.

The value of E_g can be determined from the Tauc relation [24]

$$\alpha(h\nu) = \frac{B(h\nu - E_g)^2}{h\nu}, \qquad (1)$$

where $\alpha(h\nu)$ - the absorption coefficient, $h\nu$ - the photon energy, B is a constant, which depends on the film material and characterizes the slope of Tauc absorption edge. Relation (1) is correct in the high-energy region for $\alpha(h\nu) \geq 10^4$ cm^{-1}. The values of E_g for $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ films were determined via extrapolation of $\left[\alpha(h\nu)\cdot h\nu\right]^{1/2} \approx f(h\nu)$ dependences to $\alpha(h\nu) = 0$ (Fig. 3, curves *1*). For films with x=0, 0.8, 1.6, 4, and 6, the pseudoforbidden gap widths are 2.376, 2.354, 2.349, 2.334, and 2.324 eV, respectively. We note that the value of E_g determined by us (Table 1) for $As_{40}S_{60}$ film is in good agreement with that adduced in [24] (2.38 eV).

As the content of antimony in film compositions of As-Sb-S system increases, the pseudoforbidden gap width decreases (Table 1). It is worth to note that the values of E_g determined in our work for as-prepared films of $As_{40}S_{60}$, $As_{36}Sb_4S_{60}$, and $As_{34}Sb_6S_{60}$ are slightly different from those in [19] for the same compositions. This difference is related, apparently, to some distinctions in the deposition processes of films and their thicknesses.

Table 1. Dependences of E_g and n for $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ films on the exposure time

τ, min.	Parameter	Composition			
		$As_{39.2}Sb_{0.8}S_{60}$	$As_{38.4}Sb_{1.6}S_{60}$	$As_{36}Sb_4S_{60}$	$As_{34}Sb_6S_{60}$
0	E_g, eV	2.354	2.349	2.334	2.324
	n	2.275	2.284	2.366	2.442
1	E_g, eV	2.308	2.309	2.264	2.276
	n	2.323	2.316	2.430	2.496
3	E_g, eV	2.292	2.305	2.262	2.270
	n	2.332	2.320	2.442	2.508
5	E_g, eV	2.287	2.297	2.260	2.267
	n	2.340	2.326	2.448	2.514

The influence of technological factors on the properties of chalcogenide materials is testified also by the studies of the pseudoforbidden gap width for glasses of As_2S_3-Sb_2S_3 system produced under different conditions. For example, for $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ glasses with x=0, 8, and 10 that were synthesized in the regimes used in this work, the values of E_g are 2.41, 2.255, and 2.215 eV, respectively [25]. For glasses with the same compositions that were produced by hardening of melts homogenized at 1173 K for 48 h in water, the values

of E_g are equal to 2.23, 2.13, and 2.105 eV were presented in [23].

The refractive index of films was determined from the relation [26]

$$n = \left[N + \left(N^2 - s^2 \right)^{1/2} \right]^{1/2}, \qquad (2)$$

where

$$N = 2s \frac{T_{max} - T_{min}}{T_{max} \cdot T_{min}} + \frac{s^2 + 1}{2}. \qquad (3)$$

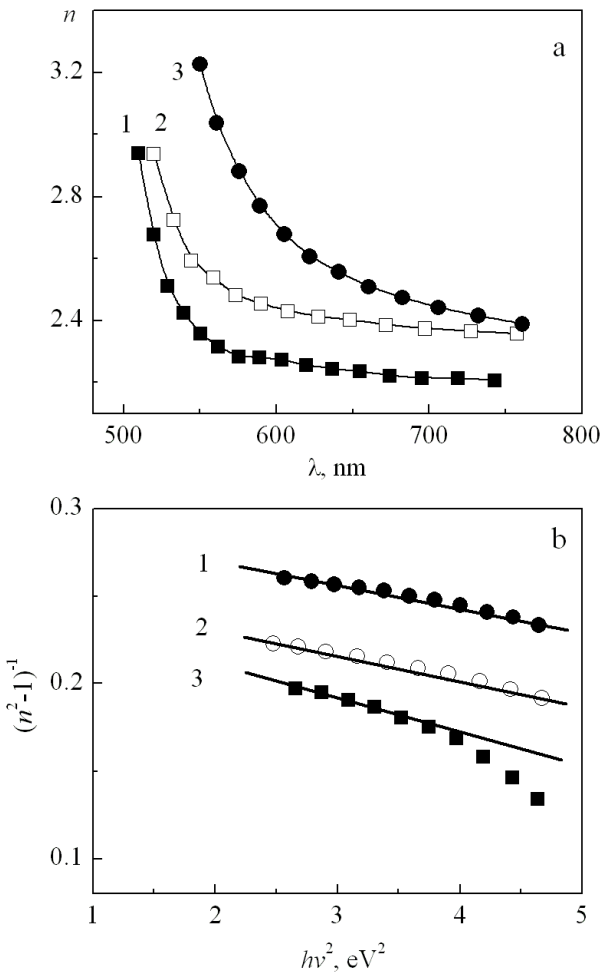


Fig. 4. Dispersion of the refractive index (a) and the dependence of (*n2*- 1)-1 on *hv2* (b) for As40-*x*Sb*x*S60. films *x*, at.%: *1* – 0; *2* – 4; *3* – 6.

In these formulas, s is the refractive index of a substrate; T_{max} and T_{min} are the interference maxima and minima of the transmission spectra in the wavelengths region, where there is no dispersion of the refractive index.

The values of n for $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ films determined at λ=700 nm are given in Table 1. It is seen that the refractive index increases with growing of antimony content in film compositions.

The dispersion of refractive index of $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ films is shown in Fig. 4, a. In transparence region (λ>600 nm), we see the normal spectral behavior of n, which indicates the absence of absorption bands in this spectral region. The absorption effect is accompanied by a sharp increase in the refractive index. As the Sb content in film compositions increases, the dependences $n(\lambda)$ like the spectral dependences of absorption effect shift to the long-wave spectral region.

In the transparent region the dispersion of n is well described within the single-oscillator model [27, 28]:

$$n^2(h\nu) = 1 + \frac{E_0 E_d}{E_0^2 - (h\nu)^2}, \qquad (4)$$

where E_0 and E_d are the parameters of the one-oscillator model (E_0 is the energy of an effective oscillator related to the average energy gap; E_d is the dispersion energy, which characterizes the intensity of interband transitions), ν is the frequency, at which n is measured. The film parameters E_0 and E_d were determined from the linear dependences $\left[n^2(h\nu) - 1 \right]^{-1} \sim f(h\nu)^2$ (Fig. 4, b) by the slope of $(E_0E_d)^{-1}$ and the intersection of E_0/E_d with the ordinate axis.

The calculations showed that, as the antimony content in film compositions increases, the oscillator energy E_0 decreases from 4.82 eV for $As_{40}S_{60}$ down to 4.68 eV for $As_{34}Sb_6S_{60}$ (Table 2). The dependence of E_0 on x (within the measurement errors) is close to a linear one. The similar concentration dependence is obtained also for the pseudoforbidden gap width E_g determined from the spectral dependence of film absorption edges. Such symbatic changes of E_0 and E_g with the composition becomes clear, if we consider the fact that the relation $E_0 \approx 2E_g$ is valid for the non-crystalline chalcogenide materials [28].

In the studied concentration range, the composition dependence of E_d is close to a linear one. In this case, the dispersion energy of as-prepared $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ films changes very slightly, as the composition is varied (Table 2). Minimum value of E_d is found for $As_{36}Sb_4S_{60}$ film. We note that the measured dispersion energy of arsenic sulfide amorphous film is in good agreement with the values of E_d in [7, 28, 29]. For example, the value of E_d for

$As_{40}S_{60}$ film is equal to 20.61 eV [29]. Earlier [11], while studying the optical characteristics of $As_{40}S_{60-x}Se_x$ films we determined the value E_d=20.52 eV for $As_{40}S_{60}$. Such insignificant difference in the values of E_d for $As_{40}S_{60}$ films obtained by different authors is caused by technological factors and, as a consequence, by differences in their structures. The value of E_d for $Sb_{40}S_{60}$ film determined in [30] is equal to 21.3 eV.

Table 2. Parameters of the single-oscillator model for $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ films

Composition	E_0 (eV)	E_d (eV)	N_c
$As_{40}S_{60}$	4.82	19.66	2.80
$As_{39.2}Sb_{0.8}S_{60}$	4.78	19.40	2.76
$As_{38.4}Sb_{1.6}S_{60}$	4.74	19.24	2.74
$As_{36}Sb_4S_{60}$	4.70	18.81	2.67
$As_{34}Sb_6S_{60}$	4.68	19.06	2.71

According to [27, 28], the parameter E_d obeys the simple empiric relationship

$$E_d=\beta N_c z_a N_e . \quad (5)$$

Here, β is a constant equal to 0.37±0.04 eV for covalent materials; N_c is the coordination number of the cation nearest neigbour to the anion; z_a is the formal valency of anion; and N_e is the effective number of valence electrons per anion..

Taking z_a=2 for sulfur in $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ films with $0\leq x\leq 6$, we get the coordination number N_c=2.67-2.80 (Table 2). The value N_c=2.8 determined by us for $As_{40}S_{60}$ film differs from the coordination number value for the film with the same composition in [29] ($N_c\approx 3.0$).

For as-prepared $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ films ($0\leq x\leq 6$), no change in dispersion energy E_d is practically observed. Moreover, like for E_0, we found an insignificant deviation from the additivity on the concentration cut As_2S_3-Sb_2S_3. This becomes clear, if we take into consideration that As_2S_3-Sb_2S_3 system is pseudobinary (a continuous series of solid solutions is formed in it). Arsenic and antimony belong to the same group of the Periodic Table, and the values of formal chemical valency for them in stoichiometric compounds As_2S_3 and Sb_2S_3 are close to 3. In addition, the production conditions for $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ films with a low content of antimony, like those for glasses with the corresponding compositions, are practically identical. Therefore, the average values of coordination numbers of cations in studing materials are very close.

As mentioned above, the structure of $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ glasses and films is mainly determined by $AsS_{3/2}$ and $SbS_{3/2}$ trigonal pyramids. However, it includes also a significant amount of structural fragments with homopolar bonds As-As and S-S. For example, in glassy As_2S_3, the equilibrium concentration of homopolar bonds, which is “frozen” in hardening process of melt at the temperature 463 K, is $2.7\cdot 10^{26}$ m^{-3} [31]. The value of N_c (2.8) obtained by us for $As_{40}S_{60}$ film is essentially lower than for the glass with corresponding composition (3.2 [27] and 3.74 [32]). Such difference in values of N_c is caused by distinctions in the structure of film and massive glasses. The structural network of films contain a significantly larger number of fragments with homopolar bonds As-As and S-S. The concentration of such bonds in arsenic chalcogenides films, according to [2, 7, 11, 32, 33], is 30-32 %. Just this reason is a cause for lower values of the coordination numbers of films.

At laser illumination of films, the absorption spectra shift to the long-wave region (Figs. 1 and 2, curves 2-4). It occurs photodarkening of films. At the same conditions of exposure, this shift in $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ films is significantly larger than in $As_{40}S_{60}$ film. For example, the absorption edge shifts (ΔE) of films with x= 0.8, 1.6, 4, and 6 on the transmission level 0.2 at irradiation for 1 min are 0.047, 0.057, 0.098, and 0.76 eV, respectively. For $As_{40}S_{60}$ film ΔE is 0.018 eV.

This testifies to a higher light sensitivity of Sb-containing films compared to $As_{40}S_{60}$.

The values of E_g for irradiated $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ films calculated from dependences $\left[\alpha(h\nu)\cdot h\nu\right]^{1/2} \sim f(h\nu)$ (Fig. 3, cur-ves 2-4) are given in Table 1. It is seen that E_g decreases at laser irradiation. In this case, the largest and the smallest changes in the pseudoforbidden gap width are found, respectively, for $As_{36}Sb_4S_{60}$ and $As_{40}S_{60}$ films (at the irradiation for 1 min, ΔE_g for $As_{40}S_{60}$ equal 0.025 eV).

The refractive index of films increases at the irradiation. For example, the value n at λ=700 nm is 2.43 (Δn=0.064) at the irradiation of $As_{36}Sb_4S_{60}$ film for 1 min. For the other studied films of As_2S_3-Sb_2S_3 system under the same conditions of exposure, the value Δn is less (for $As_{39.2}Sb_{0.8}S_{60}$ and $As_{34}Sb_6S_{60}$ films, the values Δn are 0.048 and 0.054, respectively).

We note that the largest absorption edge shift and changes in E_g and n are observed at small irradiation times. The level of photoinduced changes of given film parameters essentially decrease, as the light-striking increases.

Changes in optical characteristics of $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ amorphous films (the shift of the absorption edge in long-wave spectral region, decreasing of E_g, increasing of n) are caused by structural transformations, which occur at laser irradiation. Similar changes are caused in chalcogenide glassy semiconductors at high-energy irradiation [32-36], with the only difference being that due to a high penetrating ability the optical properties are better expressed in massive glassy samples. There is a certain difference in the photo- and radiation-induced changes, however, the mechanisms of action of light and high-energy ionizing radiations on chalcogenide glassy semiconductors are similar [11, 32, 33].

The matrix of $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ amorphous films, like the matrix of glasses of the corresponding compositions, is mainly constructed of pyramidal units $As(Sb)S_3$ connected with one another by S atoms. We revealed
no molecular fragments with homopolar bonds Sb-Sb in it. But the structural groups with homopolar bonds As-As and S-S are present in a large amount. The higher level of photoinduced changes in optical parameters (ΔE, ΔE_g, Δn) of $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ films of the studied compositions, as compared to $As_{40}S_{60}$, can testify to the higher level of disordering of the structural network due to the higher content of molecular fragments with homopolar As-As bonds in it.

The irradiation of films leads to the breaking and switching of bonds As-As and S-S in structural fragments of As_4S_4 and S_n type, which are present in a larger amount in the matrix of as-prepared films, with the formation of structural units with heteropolar bonds As-S (AsS_3) [7, 11, 19, 37]. The destruction of some chemical bonds and the appearance of another ones is accompanied by the generation of a particular type of structural defects with over- and subcoordinated atoms of arsenic (As_2^- and As_4^+) and sulfur (S_3^+ and S_1^-) [6, 11, 19, 32, 37]. At the breaking of homopolar bonds As–As and S–S, the pairs of coordination defects (As_2^-, S_3^+) and (As_4^+, S_1^-) are formed.Then the charged defect states are transformed (relax) into the structure of pyramidal AsS_3 units. The possibility for the metastable pairs of coordination defects (As_2^+, S_1^-) to participate in these processes cannot be excluded [36]. The defectless photopolymerization of molecular fragments of As_4S_4 and S_n type into the structural network $AsS_{3/2}$ is possible as well [2, 11, 37]. However, such transformations are possible only at a high concentration of initial molecules. Indeed, they can run, if, at the simultaneous breaking of two homopolar bonds As–As and S–S, all four atoms are in the position that is suitable for the formation of two heteropolar bonds As–S, whereas the generation of a pair of charged defects (As_2^-, S_3^+) or (As_4^+, S_1^-) requires that the given condition be satisfied only for two atoms. In this connection, the probability of such polymerization process for a film under its irradiation is significantly higher. It is obvious that the defectless polymerization process of the film dominates in the case of thermoexcitation [6, 7, 32], since the probability for the atoms of the structural skeleton to migrate increases.

With the aim to ascertain the influence of temperature on photoinduced changes in optical characteristics, we studied the

transmission spectra of films $As_{36}Sb_4S_{60}$ and $As_{34}Sb_6S_{60}$ annealed at 423 K for 1 h. The choice of films with just these compositions is determined by the fact that they are characterized by the highest level of photoinduced changes in optical parameters.

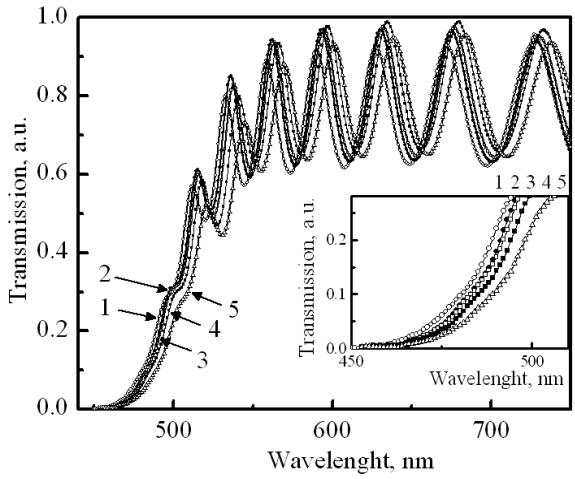


Fig. 5. Dependences of the transmission spectra of the as-prepared $As_{36}Sb_4S_{60}$ (*1*) and annealed at 423 K (2-5) films on the exposure time:
2 – 0; *3* – 1; *4* – 3; *5* –10 min.

In Fig. 5 (curve *2*), we show the transmission spectrum of $As_{36}Sb_4S_{60}$ annealed film. It is seen that compared to the spectrum of as-prepared film (Fig. 5, curve *1*), it is shifted to the region of larger wavelengths. In this case, the absorption edge shift ΔE is 0.036 eV. For $As_{34}Sb_6S_{60}$ film this parameter is less (0.029 eV). This means that the pseudoforbidden gap width decreases at annealing. For annealed films $As_{36}Sb_4S_{60}$ and $As_{34}Sb_6S_{60}$, the values E_g are 2.296 and 2.290 eV, respectively. The refractive index of films increases at annealing. For the annealed films of given compositions, the values n determined at λ=700 nm are 2.412 and 2.480.

Like in the case of laser irradiation, the changes in optical characteristics of films at annealing are caused by the structural transformations. At the thermoexcitation, the breaking and switching of homopolar bonds As–As and S–S and the formation of structural units AsS_3 happen in structural fragments AsS_4 and S_n, which participate in the construction of the matrices of films. As was mentioned above, the thermopolymerization of molecular fragments AsS_4 and S_n into a structural network of $AsS_{3/2}$ type occurs by the defectless (dominant) mechanism and with the formation of structural defects As_2^-, As_4^+, S_3^+, and S_1^- [11, 32, 33, 37].

In Fig. 5 (curves *3-5*) the transmission spectra of $As_{36}Sb_4S_{60}$ film irradiated after annealing is given. Like in the previous case, the spectra are shifted to the long-wave spectral region at laser irradiation. It is seen that the absorption edge shift and, respectively, the change in E_g under laser radiation are significantly less in the annealed film than in the as-prepared one (Fig. 2, a). A change in the refractive index is less as well. For example, a change in E_g for as-prepared $As_{36}Sb_4S_{60}$ film after the irradiation for 1 min is 0.07 eV. For the annealed film, this value is equal to 0.032 eV. Changes in the refractive index of the annealed films under the irradiation are also less (0.064 and 0.028, respectively). In $As_{36}Sb_4S_{60}$, annealed films the levels of photoinduced changes of E_g and n are also lower (ΔE_g =0.028 eV, Δ n=0.025).

The lower level of photoinduced changes in optical characteristics of annealed films testifies to a lower level of photostructural transformations in them. This is caused by that the matrices of films after the annealing contain a much less number of structural fragments with homopolar bonds As–As and S–S, which can be polymerized under the laser irradiation.

This conclusion is confirmed by the results of studies of the refractive index dispersion and calculations of parameters E_0, E_d, and N_c for films $As_{36}Sb_4S_{60}$ and $As_{34}Sb_6S_{60}$, which were irradiated for 1 min [E_0(I), E_d(I), and N_c(I)], annealed films [E_0(II), E_d(II), and N_c(II)], and films irradiated (1 min) after the annealing [E_0(III), E_d(III), and N_c(III)]. For $As_{36}Sb_4S_{60}$, film we get the following values of these parameters: E_0(I)=4.56 eV, E_0(II)=4.64 eV, E_0(III)=4.60 eV; E_d(I)= 20.2 eV, E_d(II)=19.87 eV, E_d(III)=20.57 eV; N_c(I)=2.88 eV, N_c(II)=2.83 eV, N_c(III)= 2.93 eV. For $As_{34}Sb_6S_{60}$, film the values of these parameters and the character of their changes are similar. As is seen from Table 2 and calculations, the irradiation and annealing of films lead to a slight decrease (increase) in E_0 (E_d). In this case, the coordination numbers N_c increase.

The increase of N_c at the irradiation and annealing of films is caused by the

polymerization of molecular groups with homopolar bonds As-As and S-S and by the ordering of their structural network.

Conclusions

On the basis of studies of the trans mission spectra of $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ amorphous films we have established that the laser irradiation and the annealing induce the absorption edge shift to the long-wave region. In this case, the pseudoforbidden gap width of the films decreases, whereas the refractive index increases. It is shown that, under the same conditions of irradiation and annealing, the largest changes in optical parameters occur in the films with x=4. The level of photoinduced changes in optical parameters of the annealed films is lower than for the as-prepared ones. Changes in the optical characteristics of films are caused by the photo- and thermostructural transformations, which are accompanied by decreasing in the number of structural fragments with homopolar bonds As-As and S-S in their matrix.

REFERENS

1. Shimakawa, K., Kolobov, A. Elliot, S.R. (1995), “Photoinduced effects and metastability in amorphous semiconductors and insulators”, Adv. Phys, V.44, No.6, pp.475-588.
2. Semak, D.I., Rizak, V.M., Rizak, I.M. (1999), Photothermostructural Transformations of Chalcogenides [Fototermostrukturni peretvorennia khalkohenidiv], Zakarpattya Publ., Uzhgorod, (in Ukrainian), 392 p.
3. Frumar, M., Cernosek, Z., Jedelsky, J. et. al. (2001), “Photoinduced changes of strucrure and properties of amorphous binary and ternary chalcogenides”, J. Optoelectron. Adv. Mater, V.3, No.2, pp. 177-188.
4. Teteris, J., Reinfelde, M. (2003), “Application of amorphous chalcohenide semiconductor thin films in optical recording technologies”, J. Optoelectron. Adv Mater, V.5, No.5, pp.1335-1360.
5. Petrov, V.V., Kryuchin, A.A., Shanoilo, S.M. et. al (2003), Optical Disk: History, State, Perspectives [Opticheskie diski: istoria, sostojanie, perspektivy razvitia], Naukova dumka, Kyiv, 176 p., (in Russian).
6. Petrov, V.V., Kryuchin, A.A., Kostyukevich, S.A., Rubish V.M. (2007), Inorganic Photolitography [Neorhanichna fotolitohrafiia], Institute of Metal Physics, NAS of Ukraine, Kyiv, 195 p., (in Ukrainian).
7. Venger, E.F., Melnichuk, A.V., Stronsky, A.V., (2007), Photostimulated Process in Semiconductors and Their Practical Application. Chalcogenide Vitreous [Fotostimulirovannye protsessy v khalkohenidnykh stekloobraznykh poluprovodnikakh i ikh prakticheskoe primenenie], Akademperiodika Publ., Kyiv, 283 p., (in Russian).
8. Yannopoulos, S.N., Trunov, M.L. (2009), “Photoplastic effects in chalcogenide glasses. A review”, Phys. Stat. Sol.(b), V.246, No.8, pp.1773-1785.
9. Rubish, V.M., Trunov, M.L., Lytvyn, P.M. et al. (2010), “Direct method of the surface relief gratings formation in films of chalcogenide glasses” [“Priamyi metod formuvannia poverkhnevykh reliefnykh hratok u plivkakh khalkohenidnykh stekol”], Data Recording, Storage & Processing, V.12, No.2, pp.43-51 (in Ukrainian).
10. Eggleton, B.J., Davies, B.L., Richardson, K. (2011), “Chalcogenide photonics”, Nature photonics, V.5, pp.141-148.
11. Petrov, V.V., Kryuchin, A.A., Rubish, V.M. (2012), Materials for Perspective Optoelectronic Devices [Materialy perspektivnykh optoelektronnykh ustrojstv], Naukova dunka-Verlag, Kiev, 336 p. (in Russian).
12. Indutnyi, I.Z., Kryuchin, A.A., Borodin, Yu.A. et al. (2013), “Optical recording of micro- and nano-sized relief structures on Ge-Se inorganic resists” [“Opticheskaja zapis mikro i nanorazmernykh relefnykh struktur na neorhanicheskikh rezistakh Ge-Se”], Data Recording, Storage & Processing , V.15, No.4, pp.3-12 (in Russian).
13. Rubish, V.M., Gera, E.V., Durcot, M.O. et.al. (2013), “Photo- and thermally-

induced changes in the optical properties of Ge-S-Se amorphous films", Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics, V.16, No.4, pp. 349-353.
14. Trunov, M.L., Lytvyn, P.M., Nagy, P.M. et al. (2014), "Light-induced mass transport in amorphous chalcogenides: Toward surface plasmon-assisted nanolithography and near-field nanoimaging", Phys. Stat. Sol. (b), V.251, No.7, pp. 1354-1362.
15. Petrov, V.V., Kryuchin, A.A., Kunitsky, Yu.A. et. al. (2015), Methods of nanolithograrhy [Metody nanolitohrafii], Naukowa dumka. Verlag, Kyiv, 262 p. (in Ukrainian).
16. Kostyukevich, S.A., Shepeliavyi, P.E., Moskalenko, N.L. et al. (2001), "Study of mastering the compactdisks based on inorganic photoresists" ["Issledovanie protsessa masterinha kompakt-diskov na neorhanicheskikh fotorezistakh"], Data Recording, Storage & Processing, V.3, No.4, pp.5-11 (in Ukrainian).
17. Kostyukevich, S.A., Shepelyavy, P.E., Svechnikov, S.V. et al. (2002), "Formatiom of diffraction optical elements by using inorganic laser lithography" ["Formuvannia dyfraktsiinykh optychnykh elementiv iz vykorystanniam neorhanichnoi lazernoi litohrafii"] Data Recording, Storage & Processing, V.4, No.3, pp. 3-14 (in Ukrainian).
18. Kostyukevich, S.A., Morozovska, G.M., Minko, V.I. et al., (2004), "Recording the highly efficient diffraction grating by using He-Cd laser", Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics, V.7, No.4, pp. 472-477.
19. Rubish, V.M., Gera, E.B., Pop, M.M. et al. (2009), "Photo-thermoinduced changes of transmission spectra of $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ amorphous layers", Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics, V.12, No.3, pp. 251-254.
20. Maryan, V.M., Pop, M.M., Yasinko, T.I. et al. (2009), "Influence of laser illumination and annealing on the optical parameters of $(As_2S_3)_{100-x}$ $(Sb_2S_3)_x$ amorphous layers", Proc. 6th Intern. Conf. "Holography. Science and practice", Kiev, Ukraine, pp.229-230.
21. Pop, M.M., Gera, E.V., Maryan, V.M. et al. (2009), "Optical properties of thin films based on arsenic sulfide" ["Optychni vlastyvosti tonkykh plivok na osnovi sulfidu myshiaku"], Abstracts of IV Ukranian Sciences Conf. on Semiconductor Physics, V. 2, Zaporizhzhya, Ukraine, (in Ukrainian) p. 202.
22. Kato, M., Onari, S., Arai, T. (1983), "Far infrared and Raman spectra in $(As_2S_3)_{100-x}(Sb_2S_3)_x$ glasses", Jap. J. Appl. Phys., V.22, No.9, pp. 1382-1387.
23. El Idrissi Raghni, M.A., Lippens, P.E., Olivier-Fourcade, J., Jumas, J.C. (1995), "Local structure of glasses in the As_2S_3-Sb_2S_3 system", J. Non-Cryst. Solids, V.192&193, pp.191-194.
24. Petkov, K. (2002), "Compositional dependence of the photoinduced phenomena in thin chalcogenide films", J. Optoelectron. Adv. Mater., V.4, No. 3, pp. 611-629.
25. Pop, M.M., Shpak, I.I. "Influence of Composition and Temperature on the Band Gap of Glassy Melts As_2S_3-Sb_2S_3", Glass Phys. Chem., V.38, No.2, pp.196-200.
26. Swanepoul, R. (1983), "Determination of the thickness and optical constants of amorphous silicon", J. Phys. E: Sci. Instrum., V.16, pp.1214-1222.
27. Wemple, S.H. (1973), "Refractive-index behavior of amorphous semiconductors and glasses", Phys. Rev. B., V.7, No.8, pp.3797-3777.
28. Tanaka, K. (1980), "Optical properties and photoinduced changes in amorphous As-S films", Thin Solid Films, V.34, No.3, pp.201-204.
29. Conzales-Leal, J.M., Prieto-Alcon, R., Angel, J.A., Marquez, E. (2003), "Optical properties of thermally evaporated amorphous $As_{40}S_{60-x}Se_x$ films", J. Non-Cryst. Solids, 315, pp.134-143.
30. Frumarova, B., Bılkova, M., Frumar, M. et al. (2003), "Thin films of Sb_2S_3 doped by Sm^{3+} ions", J. Non-Cryst. Solids, V.326&327, pp. 348-352.
31. Feltz, A. (1983), Amorphe und glasartige anorganische Festkörper, Akademie-Verlag Berlin, 460 p.
32. Shpotyuk, O.I., Shwarts, K.K., Kornelyuk, V.N. et.al (1991),

Destructionpolymerization Transformations in Chalcogenide Vitreous [Destruktsionno-polimerizatsionnye prevrashchenia v khalkohenidnykh stekloobraznykh poluprovodnikakh], Semiconductors. Institute of Physics, Latvian AS Publ., Riga, 105 p. (in Russian).
33. Shpotyuk, O.I., Filipecki J. (2003), Free volume in vitreous chalcogenide semi conductors: possibilities of positron annihilation lifetime study, Wydawnictwo WSP Czestochowa, 114 p.
34. Shpotyuk, O.I., Savitsky, I.V. (1989), "Thermal Radiation Effects in Glassy Semiconductors of As_2S_3-Sb_2S_3 system" ["Radiatsionno-termicheskie эffekty v stekloobraznykh poluprovodnikakh sistemy As_2S_3-Sb_2S_3"], Ukr. Phys. J., V.34, No.6, pp.894-898.
35. Balitska, V.O., Shpotyuk, O.I. (1998), "Radiation-induced structural transformations in vitreous chalcogenide semiconductors", J. Non-Cryst. Solids, V.227-230, pp.723-727.
36. Balitska, V., Shpotyuk, Y., Filipecki, J. and Shpotyuk, O. (2010), "Radiation-induced defects in As-Sb-S glass", IOP Conf. Series: Mat. Science and Engineering, V.15, pp. 012054, (1-6).
37. Rubish, V.M., Rubish, V.V., Leonov, D.S. et al. (2004), "Features of the structure and structural transformations in chalcogenide glassy semiconductors" ["Osoblyvosti struktury i strukturnykh peretvoren v khalkohenidnykh sklopodibnykh napivprovidnykakh"], Nanosystems, nanomaterials, nanotechnologies, V.2, No.2, pp.417–440.

Стаття надійшла до редакції 29.10.2017

УДК 536.669:537.363:004.08

В.М. Рубіш[1], М.М. Поп[2], О.А. Микайло[2], С.А. Костюкевич[3], А.А. Крючин[1], М.А. Дуркот[1], Т.І. Ясінко[1]
[1]Інститут проблем реєстрації інформації НАН України, 88000, Ужгород, вул.Замкові сходи, 4
[2]Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54
[3]Інститут фізики напівпровідників ім. В.Лашкарьова НАН України, 03028, Київ, просп. Науки, 41

ЛАЗЕРНО-ІНДУКОВАНІ ЗМІНИ ОПТИЧНИХ ХАРАКТЕРИСТИК АМОРФНИХ ПЛІВОК СИСТЕМИ As-Sb-S

В спектральній області 400-750 нм досліджені спектри пропускання аморфних плівок $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ з малим вмістом Sb (x=0, 0.8, 1.6, 4, 6), одержаних методом термічного випаровування стекол відповідних складів на скляні підкладки. Встановлено, що лазерне опромінення та відпал плівок призводять до зсуву краю поглинання в довгохвильову ділянку спектру. Визначені ширина псевдозабороненої зони E_g та показник заломлення n плівок. Розраховані параметри одноосциляторної моделі (енергія осцилятора E_0, дисперсійна енергія E_d та ефективне координаційне число N_c). Максимальні зміни оптичних характеристик виявлені для плівки $As_{36}Sb_4S_{60}$. Зміни оптичних параметрів плівок відбуваються в них при опроміненні та відпалі.
Ключові слова: халькогенідні аморфні плівки, спектри пропускання, фотоіндуковані ефекти, оптичні властивості, структурні перетворення.

В.М. Рубиш[1], М.М. Поп[2], О.А. Микайло[2], С.А. Костюкевич[3], А.А. Крючин[1], М.А. Дуркот[1], Т.И. Ясинко[1]
[1]Институт проблем регистрации информации НАН Украины, 88000, Ужгород, ул. Замковые сходы, 4
[2]Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54
[3]Институт физики полупроводников им. В.Лашкарьова НАН Украины, 03028, Киев, просп. Науки, 41

ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННЫЕ ИЗМЕНЕНИЯ ОПТИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК АМОРФНЫХ ПЛЕНОК СИСТЕМЫ As-Sb-S

В спектральной области 400-750 нм исследованы спектры пропускания аморфных пленок $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ с небольшим содержанием сурмы (x=0, 0.8, 1.6, 4.6) полученных термическим испарением стекол соответствующих составов. Установлено, что лазерное облучение и отжиг пленок приводит к сдвигу края поглощения в длинноволновую область спектра. Определены значения ширины псевдозапрещенной зоны E_d и показателя преломления n пленок. Рассчитаны параметры одноосциляторной модели (энергия осциллятора E_0, дисперсионная энергия E_d и эффективное координационное число). Максимальные изменения оптических характеристик наблюдались в пленках $As_{36}Sb_4S_{60}$. Изменения оптических параметров пленок обусловлены структурними превращениями, происходящими в них при облучении и отжиге.
Ключевые слова: халькогенидные аморфные пленки, спектры пропускания, фотоин-дуцированные эффекты, оптические свойства, структурные превращения.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Shimakawa, K., Kolobov, A. Elliot, S.R. (1995), “Photoinduced effects and metastability in amorphous semiconductors and insulators”, Adv. Phys, V.44, No.6, pp.475-588.
2. Семак, Д.Г., Різак, В.М., Різак, І.М. (1999), Фото-термоструктурні перетворення халькогенідів, Ужгород, Закарпаття, 392 с.
3. Frumar, M., Cernosek, Z., Jedelsky, J. et. al. (2001), “Photoinduced changes of strucrure and properties of amorphous binary and ternary chalcogenides”, J. Optoelectron. Adv. Mater, V.3, No.2, pp. 177-188.
4. Teteris, J., Reinfelde, M. (2003), “Application of amorphous chalcohenide semiconductor thin films in optical recording technologies”, J. Optoelectron. Adv Mater, V.5, No.5, pp.1335-1360.
5. Петров, В.В., Крючин, А.А., Шанойло, С.М. та ін. (2003), Оптические диски: история, состояние, перспективы развития. – Киев: Наукова думка, 176 с.
6. Петров, В.В., Крючин, А.А., Костюкевич, С.О., Рубіш, В.М. (2007), Неорганічна фотолітографія. – К.: ІМФ НАНУ, 195 с.
7. Венгер, Е.Ф., Мельничук, А.В., Стронский, А.В. (2007), Фотостимулированные процессы в халькогенидных стеклообразных полупроводниках и их практическое применение. – Київ: Академпериодика, 283 с.
8. Yannopoulos, S.N., Trunov, M.L. (2009), “Photoplastic effects in chalcogenide glasses. A review”, Phys. Stat. Sol.(b), V.246, No.8, pp.1773-1785.
9. Рубіш, В.М., Трунов, М.Л., Литвин, П.М. та ін. (2010), “Прямий метод формування поверхневих рельєфних граток у плівках халькогенідних стекол”, Реєстрація,зберігання і обробка даних Т.12, №2, с.43-51.

10. Eggleton, B.J., Davies, B.L., Richardson, K. (2011), "Chalcogenide photonics", Nature photonics, V.5, pp.141-148.
11. Петров, В.В., Крючин, А.А., Рубиш, В.М. (2012), Материалы перспективных оптоэлектронных устройств. – К.: Наукова думка, 336 с.
12. Индутный, И.З., Крючин, А.А., Бородин, Ю.А. та ін. (2013), "Оптическая запись микро и наноразмерных рельефных структур на неорганических резистах Ge-Se", Реєстрація, зберігання і обробка даних, Т.14, №5, сс. 3-12.
13. Rubish, V.M., Gera, E.V., Durcot, M.O. et.al. (2013), "Photo- and thermally-induced changes in the optical properties of Ge-S-Se amorphous films", Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics, V.16, No.4, pp. 349-353.
14. Trunov, M.L., Lytvyn, P.M., Nagy, P.M. et al. (2014), "Light-induced mass transport in amorphous chalcogenides: Toward surface plasmon-assisted nanolithography and near-field nanoimaging", Phys. Stat. Sol. (b), V.251, No.7, pp. 1354-1362.
15. Петров, В.В. , Крючин, А.А. , Куницький, Ю.А. та ін. (2015), Методи нанолітографії – Київ: Наукова думка, 262с.
16. Костюкевич, С.А., Шепелявий, П.Е., Москаленко, Н.Л. (2001), "Исследование процесса мастеринга компакт-дисков на неорганических фоторезистах", Реєстрація, зберігання і обробка даних, Т.3, 4, сс.5-11.
17. Костюкевич, С.А., Шепелявий, П.Е., Свечников, С.В. та ін. (2002), "Формування дифракційних оптичних елементів із використанням неорганічної лазерної літографії", Реєстрація, зберігання і обробка даних,Т.4, №.3, сс.3-14.
18. Kostyukevich, S.A., Morozovska, G.M., Minko, V.I. et al., (2004), "Recording the highly efficient diffraction grating by using He-Cd laser", Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics, V.7, No.4, pp. 472-477.
19. Rubish, V.M., Gera, E.B., Pop, M.M. et al. (2009), "Photo-thermoinduced changes of transmission spectra of $As_{40-x}Sb_xS_{60}$ amorphous layers", Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics, V.12, No.3, pp. 251-254.
20. Maryan, V.M., Pop, M.M., Yasinko, T.I. et al. (2009), "Influence of laser illumination and annealing on the optical parameters of $(As_2S_3)_{100-x}$ $(Sb_2S_3)_x$ amorphous layers", Proc. 6th Intern. Conf. "Holography. Science and practice", Kiev, Ukraine, pp.229-230.
21. Поп М.М., Гера Е.В., Мар'ян В.М. та ін. (2009), "Оптичні властивості тонких плівок на основі сульфіду миш'яку", Тези IV Укр. наук. конф. з фізики напівпровідників (УНКФН-4), Т.2, с.202.
22. Kato, M., Onari, S., Arai, T. (1983), "Far infrared and Raman spectra in $(As_2S_3)_{100-x}(Sb_2S_3)_x$ glasses", Jap. J. Appl. Phys., V.22, No.9, pp. 1382-1387.
23. El Idrissi Raghni, M.A., Lippens, P.E., Olivier-Fourcade, J., Jumas, J.C. (1995), "Local structure of glasses in the As_2S_3-Sb_2S_3 system", J. Non-Cryst. Solids, V.192&193, pp.191-194.
24. Petkov, K. (2002), "Compositional dependence of the photoinduced phenomena in thin chalcogenide films", J. Optoelectron. Adv. Mater., V.4, No. 3, pp. 611-629.
25. Pop, M.M., Shpak, I.I. "Influence of Composition and Temperature on the Band Gap of Glassy Melts As_2S_3-Sb_2S_3", Glass Phys. Chem., V.38, No.2, pp.196-200.
26. Swanepoul, R. (1983), "Determination of the thickness and optical constants of amorphous silicon", J. Phys. E: Sci. Instrum., V.16, pp.1214-1222.
27. Wemple, S.H. (1973), "Refractive-index behavior of amorphous semiconductors and glasses", Phys. Rev. B., V.7, No.8, pp.3797-3777.
28. Tanaka, K. (1980), "Optical properties and photoinduced changes in amorphous As-S films", Thin Solid Films, V.34, No.3, pp.201-204.
29. Conzales-Leal, J.M., Prieto-Alcon, R., Angel, J.A., Marquez, E. (2003), "Optical properties of thermally evaporated amorphous $As_{40}S_{60-x}Se_x$ films", J. Non-Cryst. Solids, 315, pp.134-143.
30. Frumarova, B., Bılkova, M., Frumar, M. et al. (2003), "Thin films of Sb_2S_3 doped by Sm^{3+} ions", J. Non-Cryst. Solids, V.326&327, pp. 348-352.
31. Feltz, A. (1983), Amorphe und glasartige anorganische Festkörper, Akademie-Verlag Berlin, 460 s.

32. Шпотюк, О.И., Шварц, К.К., Корнелюк, В.Н. и др. (1991), Деструкционно-полимеризационные превращения в халькогенидных стеклообразных полупроводниках, Издательство ИФ Латвийской АН, Рига, 105 с.
33. Shpotyuk, O.I., Filipecki J. (2003), Free volume in vitreous chalcogenide semiconductors: possibilities of positron annihilation lifetime study, Wydawnictwo WSP Czestochowa, 114 p.
34. Шпотюк, О.И., Савитский, И.В. (1989), "Радиационно-термические эффекты в стеклообразных полупроводниках системы As_2S_3–Sb_2S_3", Укр. Физ. Ж., Т.34, №6, сс. 894-898.
35. Balitska, V.O., Shpotyuk, O.I. (1998), "Radiation-induced structural transformations in vitreous chalcogenide semiconductors", J. Non-Cryst. Solids, V.227-230, pp.723-727.
36. Balitska, V., Shpotyuk, Y., Filipecki, J. and Shpotyuk, O. (2010), "Radiation-induced defects in As-Sb-S glass", IOP Conf. Series: Mat. Science and Engineering, V.15, pp. 012054, (1-6).
37. Рубіш, В.В., Рубіш, В.М., Леонов, Д.С. та ін. (2004), "Особливості структури і структурних перетворень в халькогенідних склоподібних напівпровідниках", Наносистеми, наноматеріали, нанотехнології, Т.2, №2, сс. 417-440.

© Ужгородський національний університет

УДК: 539.23, 621.372.8
PACS 42.81.-i, 42.81.Pa
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.27-34

І.І. Сакалош, І.І. Трикур, М.Ю. Січка, І.Й. Цьома, В.М. Різак
Ужгородський національний університет, 88000, м. Ужгород, вул. Волошина, 54
e-mail: ihor.sakalosh@uzhnu.edu.ua

ОСОБЛИВОСТІ ПІДГОТОВКИ ТОРЦІВ КВАРЦОВИХ ОПТИЧНИХ ВОЛОКОН ДЛЯ НАНЕСЕННЯ ПЛІВОК БАКТЕРІОРОДОПСИНУ

Наведено результати адаптації методики шліфування та полірування склоподібних матеріалів для обробки торців оптичних кварцових волокон, і результати досліджень плівкових структур на основі бактеріородопсину у желатинових та золь-гельних матрицях, нанесених на торці оптичних волокон, підготовлених за допомогою запропонованої методики. За допомогою оптичної та атомно-силової мікроскопії показано, що запропонована методика цілком прийнятна для підготовки поверхні торців оптичних кварцових волокон для нанесення плівки чутливого матеріалу.

Ключові слова: оптичне волокно, торець оптичного волокна, бактеріородопсин, шліфування, полірування, оптична мікроскопія, атомно-силова мікроскопія.

Вступ

Розробка, створення та оптимізація волоконно-оптичних сенсорів – актуальна задача, вирішенням якої займається багато науковців та інженерів у різноманітних галузях науки, виробництва, охорони здоров'я, екомоніторингу, тощо. Такого роду сенсори задовольняють вимогам точного, експресного та надійного моніторингу тиску, температури, інтенсивності електромагнітних полів, хімічного аналізу середовищ та багатьох інших параметрів [1]. Малий діаметр оптичного волокна дозволяє використовувати для аналізу мікрооб'єми середовищ, що є особливо актуальним для медицини. Чутливим елементом може бути як сам торець волокна, так і плівка з матеріалу чутливого до дії досліджуваного середовища. У другому випадку однією з найважливіших проблем створення таких чутливих елементів є питання обробки та підготовки поверхні торця оптичного волокна для нанесення плівки чутливого матеріалу. Оскільки для нормального функціонування датчика плівкова структура на торці оптичного волокна повинна мати хорошу адгезію та прийнятну оптичну якість. Одному із способів вирішення цієї задачі і присвячена дана стаття.

В даній роботі наведено результати адаптації методики шліфування та полірування склоподібних матеріалів для обробки торців оптичних кварцових волокон, а також результати досліджень відполірованих торців волокон за допомогою оптичної та атомно-силової мікроскопії та порівняння їх характеристик з необробленими волокнами. Крім того наведено результати досліджень плівкових структур на основі бактеріородопсину у желатинових та золь-гельних матрицях нанесених на торці оптичних волокон попередньо оброблених за допомогою запропонованої методики.

Підготовка торця оптичного волокна за допомогою механічної обробки

Для покращення стабільності відтворення технології нанесення плівок на торці кварцових оптичних волокон, а також оптимізації співвідношення сигнал-шум сенсорної системи з чутливим елементом на торці оптичного волокна, було прийнято рішення відпрацювати технологію

механічного шліфування та полірування торців кварцових оптичних волокон, шляхом адаптації існуючих методів і техніки шліфування та полірування зразків скляних і склоподібних матеріалів.

Схематичне зображення, використовуваного нами, пристрою для механічного шліфування та полірування торців кварцових оптичних волокон приведене на рис. 1.

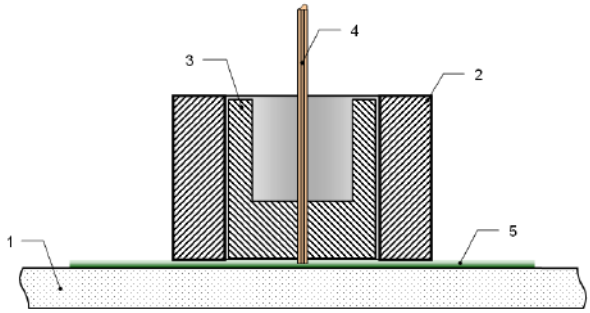


Рис. 1. Схематичне зображення обладнання для механічного шліфування та полірування торців кварцових оптичних волокон: 1 - скляний столик; 2 - зовнішня частина стальної шайби для полірування; 3 - внутрішня частина стальної шайби для полірування; 4 - кварцові оптичні волокна; 5 - абразивний матеріал.

Основним елементом обладнання виступає шайба 3, яка може вільно вертикально рухатися у корпусі 2. Всі елементи виготовлені з нержавіючої сталі і можуть використовуватися для шліфування та полірування скляних зразків. Для строго перпендикулярної та надійної фіксації оптичного кварцового волокна, в центрі стальної шайби 3 вздовж вертикальної осі було просвердлено отвір діаметром 3 мм. Таким чином забезпечується одночасна фіксація п’яти кварцових оптичних волокон 4 діаметром 600 мкм. Фіксація волокон в отворі здійснюється за допомогою термоклею. Обробка торців волокон реалізується за рахунок горизонтального переміщення круговими рухами корпусу шайби по поверхні скляного столика 1 з нанесеним на нього абразивним порошком або алмазною пастою 5 з відповідним розміром зерен. Також можливий варіант фіксації корпусу шайби в той час як скляний столик обертається із заданою частотою, прикріплений до ротора центрифуги. У обох випадках металева шайба, в якій закріплені волокна, під дією власної ваги тисне на поверхню і забезпечує достатньо щільний контакт для ефективної обробки торців волокон абразивом. Якість обробленої поверхні торця визначається зернистістю використаного абразивного порошку та часом обробки. Візуальний контроль проміжних етапів процесу механічного шліфування та полірування здійснювався за допомогою оптичного мікроскопа.

Оскільки кварцове оптичне волокно досить крихке, для отримання зразків потрібної довжини або оновлення торця стаціонарного волокна, спочатку видаляється оболонка, потім, за допомогою спеціального пристрою Fiber Cleaver FC-3, обрізають волокно потрібної довжини. Практично у всіх випадках на поверхні торця утворюється виступ або впадина яка може займати до 30% відсотків поверхні (рис. 3, а). Наявність такого складного профілю поверхні приводить до суттєвого збільшення розсіювання оптичного сигналу та ускладнення формування однорідних плівок на поверхні торця волокна. Як показали попередні дослідження [2], за умови вдалого "сколу" волокна та його додаткової обробки за допомогою відповідних хімічних реактивів можна отримати плівки з прийнятною оптичною якістю та адгезією. Однак навіть у найкращих зразках з допомогою оптичного мікроскопа візуально можна спостерігати неоднорідності на поверхні як чистих торців так і нанесених на них плівок (рис. 2).

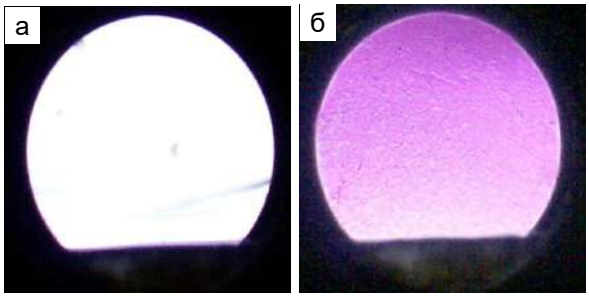


Рис. 2. Мікроскопічні знімки (збільшення x210) торця оптичного волокна обробленого розчином piranha (а) та плівки бактеріородопсину в матриці золь-гелю нанесеної методом витягування з розчину (б) [2].

Первинна обробка торців кварцових оптичних волокон, а саме механічне шліфування, здійснювалася за допомогою

абразивного порошку зернистістю 14 мкм. Результати шліфування приведені на рис. 3, б. Як видно з результатів використання крупнозернистого абразивного порошку приводить до вирівнювання великих неоднорідностей рельєфу поверхні торця, але в той же час і до появи великої кількості малих подряпин які активно розсіюють світло.

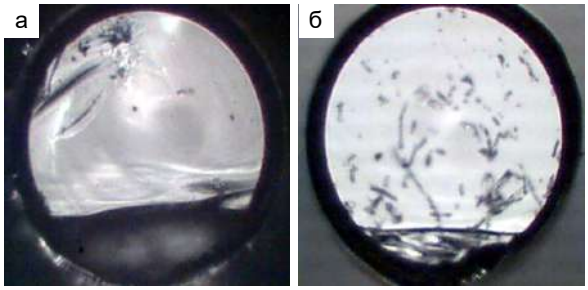


Рис. 3. Мікроскопічні знімки (збільшення х210) торця кварцового оптичного волокна до обробки поверхні (а) та після механічного шліфування (б) порошком 14 мкм.

Подальша обробка торців кварцових оптичних волокон здійснювалася за допомогою полірування алмазними пастами із зернистістю 5-3 мкм та 3-2 мкм. Результати полірування приведені на рис. 4. Після полірування мілкоабразивними алмазними пастами залишаються лише незначні неоднорідності, які практично не спостерігаються за допомогою оптичного мікроскопу, що свідчить про вирівнювання поверхні торця волокна і відсутності на ньому дефектів.

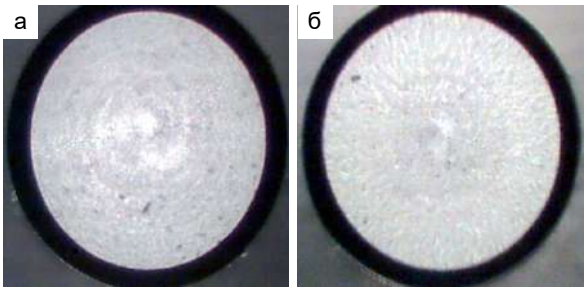


Рис. 4. Мікроскопічні знімки (збільшення х210) торця кварцового оптичного волокна після полірування алмазною пастою 5-3 мкм (а) та 3-2 мкм (б).

Фінальна обробка торців кварцових оптичних волокон здійснювалася за допомогою полірування алмазною пастою із зернистістю 1-0 мкм. Результати полірування приведені на рис. 5. В даному випадку ми спостерігаємо однорідну гладку поверхню, на якій не видно жодних дефектів.

Рис. 5. Мікроскопічний знімок (збільшення х210) торця кварцового оптичного волокна після полірування алмазною пастою 1-0 мкм.

Порівнюючи наведені на рис. 3 – 5 мікроскопічні знімки торця волокна при 210-кратному оптичному збільшенні можна побачити всі етапи обробки торця і візуально оцінити на скільки змінився профіль його поверхні. Щоб підтвердити якість полірування торців кварцових оптичних волокон, додатково були проведені дослідження поверхні торця за допомогою атомно-силового мікроскопа. Результати атомно-силової мікроскопії приведені на рис. 6.

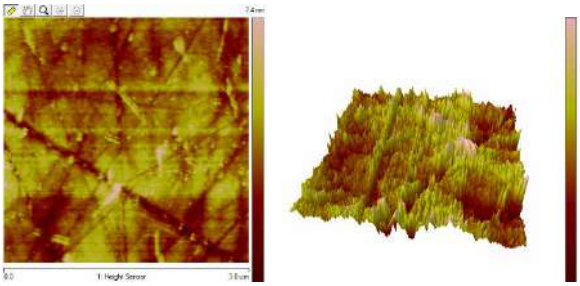


Рис. 6. 2D та 3D АСМ-зображення поверхні відполірованого торця кварцового оптичного волокна.

Як видно з отриманих даних, в результаті механічного шліфування та полірування кварцових оптичних волокон шорсткість поверхні відполірованого торця не перевищує 10 нм, що порівняно з шорсткістю поверхні покривних стекол, які використовуються як підкладки для нанесення плівок [3], та шорсткістю поверхні чистих желатинових або золь-гельних плівок, які використовуються в якості матриці [4]. Враховуючи отримані результати, можна зробити висновок про цілковиту придатність запропонованої технології механічної обробки поверхні торців волокон для їх підготовки до нанесення плівок бактеріородопсину.

Характеристики плівкових структур на основі бактеріородопсину на торцях механічно оброблених оптичних волокон

Оскільки на адгезію та однорідність плівок впливає не лише рельєф, а й стан поверхні підкладки, в нашому випадку поверхні торця багатомодового кварцового оптичного волокна, було проведено його додаткову хімічну обробку. Частину кварцового оптичного волокна з відполірованим торцем занурювали на одну годину у суміш перекису водню і сірчаної кислоти у співвідношенні 30:70 (piranha). Потім промивали у дистильованій воді під дією ультразвуку, сушка проводилась на повітрі при кімнатній температурі. Оскільки суміш є сильним окислювачем, вона дозволяє усунути більшість органічних речовин, а також покращує гідрофільність оброблюваної поверхні. Детальніше методика додаткової хімічної обробки торця кварцового оптичного волокна та її результати описані в [2].

Для нанесення плівкоутворюючої суміші (суспензії пурпурних мембран в тій чи іншій матриці) на торець кварцового оптичного волокна та висушування отриманих плівок використовувалися методи описані у [2]. Дані методи дозволяють одержати однорідні плівки з добре контрольованою товщиною та високою оптичною якістю.

Методика, що передбачає використання фотографічної желатини як матриці для отримання плівок бактеріородопсину, більш проста і приводить до отримання якісних однорідних плівок. Тому для відпрацювання технології спочатку наносилися плівки бактеріородопсину в желатиновій матриці на торці 600-мікронного кварцового оптичного волокна. Підготовку торця волокна описано вище, плівкоутворюючу суміш готували згідно стандартних методик [2, 5]. Висушування плівок проводилося при кімнатній температурі у ексикаторі.

На рис. 7, б наведено мікрофотографію плівки бактеріородопсину в желатиновій матриці, яка нанесена на попередньо відполірований та оброблений розчином *piranha* торець волокна. Порівняно з плівками які наносилися на торці без шліфування та полірування (рис. 7, а) відсутній нерівномірний розподіл плівкоутворюючої суміші, спричинений складним рельєфом торця, і, як видно з рисунку, в результаті отримується однорідна плівка без видимих сторонніх включень та дефектів.

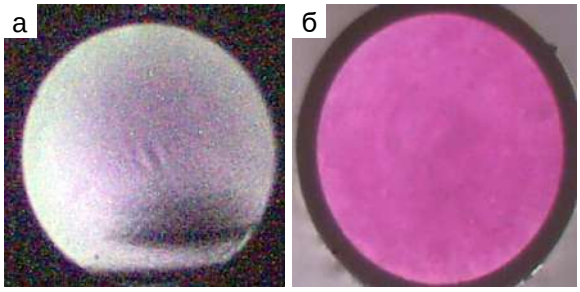


Рис. 7. Плівка бактеріородопсину в желатиновій матриці нанесена на торець волокна після хімічної (а) [2] та після механічної й хімічної (б) підготовки.

Нанесена плівка має хорошу адгезію до торця кварцового оптичного волокна. В процесі висушування не спостерігалося відшарування чи розтріскування плівки незалежно від методики отримання. Для плівок отриманих методом нанесення мікропіпеткою на торець вертикально закріпленого волокна інтенсивність відбитого сигналу дещо більша ніж для плівок отриманих методом занурення у плівкоутворюючу суміш, що може бути зумовлено більшою товщиною плівки.

Результати атомно-силової мікроскопії плівки бактеріородопсину в желатиновій матриці нанесеної на відполірований торець кварцового оптичного волокна приведені на рис. 8 показали, що при внесенні бактеріородопсину у матрицю шорсткість поверхні плівки зростає більш ніж на порядок порівняно з шорсткістю торця волокна без плівки. Суттєве зростання неоднорідності поверхні плівок при внесенні молекул бактеріородопсину у матрицю желатини порівняно з плівками чистої желатини спостерігається і для плівкових структур отриманих на скляних підкладках [6, 7]. Пояснити даний ефект можна значними розмірами фрагментів пурпурних мембран та їх довільною орієнтацією в матриці відносно поверхні торця волокна. При зростанні товщини

плівки неоднорідність поверхні зменшується.

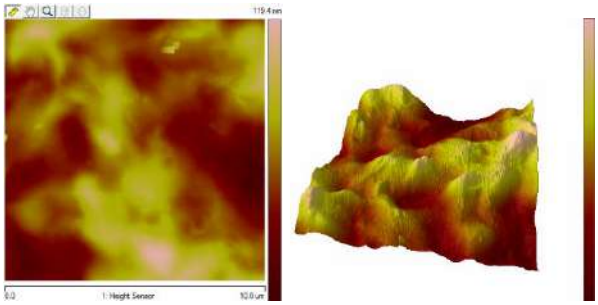


Рис. 8. 2D та 3D АСМ-зображення поверхні плівки БР в желатиновій матриці на відполірованому торці кварцового оптичного волокна.

За допомогою волоконно-оптичного Y-розгалуджувача було проведено дослідження спектральних характеристик плівки на торці кварцового оптичного волокна. Результати спектральних досліджень (рис. 9) показали наявність характерних для БР смуг поглинання на 410 нм та 570 нм. Це свідчить про відсутність структурних чи функціональних пошкоджень молекул бактеріородопсину у процесі нанесення плівки на торець кварцового оптичного волокна.

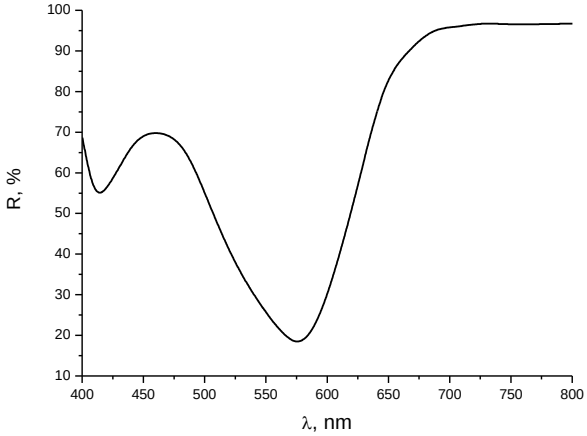


Рис. 9. Спектр відбивання плівки бактеріородопсину в желатиновій матриці на торці кварцового оптичного волокна.

Анологічно до плівок у желатинових матрицях наносилися плівки з використанням в якості матриці неорганічного SiO_2-золь-гельного скла. Методики підготовки плівкоутворюючої суміші та отримання плівок описані в [2, 4].

Аналогічно до попереднього випадку, для візуального контролю якості отриманих плівкових структур використовувалася оптична мікроскопія, а для більш детального аналізу – АСМ та оптична спектроскопія. На рис. 10 наведено мікрофотографію плівки бактеріородопсину в золь-гельній матриці, нанесеній на торець оптичного волокна без механічної обробки та на відполірований згідно методик описаних вище. В обох випадках використовувалася обробка торця розчином *piranha* перед нанесенням плівки.

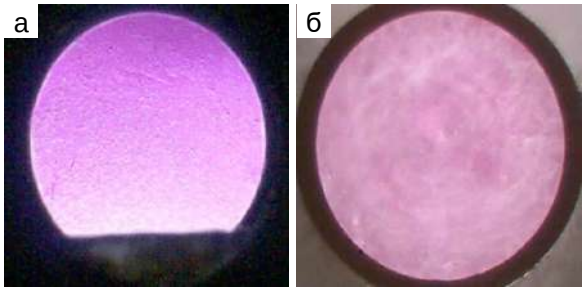


Рис. 10. Плівка бактеріородопсину в золь-гельній матриці нанесена, методом витягування з розчину, на відполірований торець кварцового оптичного волокна (б) та торець без механічної обробки (а) [2].

Як видно з рис. 10, після додаткової обробки поверхні торця, нам вдалося отримати якісну плівку бактеріородопсину у золь-гельній матриці без видимих тріщин та дефектів. Як і у випадку желатинової матриці, рівномірне забарвлення плівки (рис. 10, б) свідчить про рівномірний розподіл плівкоутворюючого матеріалу по поверхні торця, що не спостерігалося для плівок на торцях із нерівною поверхнею (рис. 10, а). Слід відмітити, що вдалі зразки отримували лише при нанесенні методом витягування із розчину і повільного висихання плівки у парах розчинника в закритій посудині при пониженій температурі. При використанні інших методів нанесення чи режимів висушування спостерігалося розтріскування, а в деяких випадках руйнування плівки.

Результати атомно-силової мікроскопії плівки бактеріородопсину в золь-гельній матриці, нанесеної на відшліфований торець кварцового оптичного волокна, приведені на рис. 11. Як видно з отриманих даних, плівки бактеріородопсину у золь-гельних матрицях мають більші неоднорідності поверхні ніж плівки в желатинових матрицях. Максимальні перепади по висоті складають майже 400 нм (рис. 11) порівняно з 120 нм (рис. 8) для желатинових плівок. Збільшення

шорсткості поверхні зумовлено усадками, які виникають у матеріалі матриці під час випаровування води із пор золь-гельного скла, в той же час фрагменти пурпурних мембран не змінюють своїх розмірів.

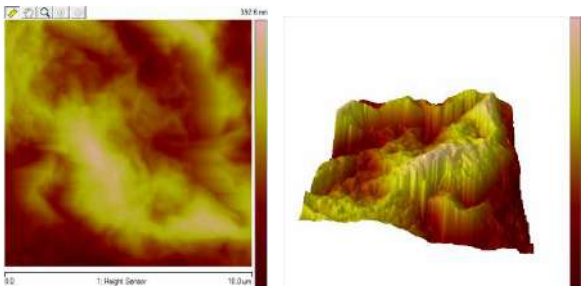


Рис. 11. 2D та 3D АСМ - зображення поверхні плівки БР в золь-гельній матриці на відполірованому торці кварцового оптичного волокна.

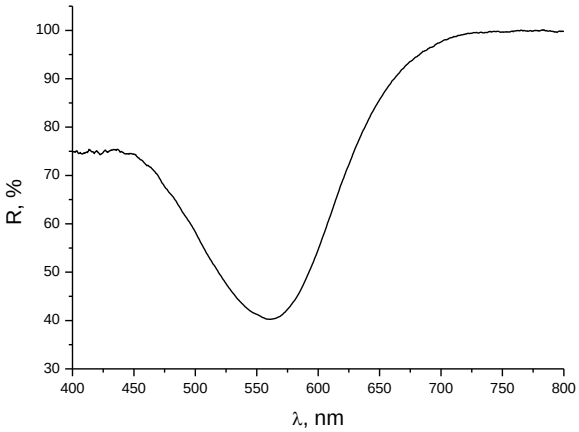


Рис. 12. Спектр відбивання плівки бактеріородопсину в золь-гельній матриці на торці кварцового оптичного волокна.

Спектр відбивання для даної плівки наведено на рис. 12. На спектрі видно чітку смугу поглинання бактеріородопсину на 570 нм, що свідчить про збереження ним своїх властивостей при впровадженні у золь-гельну матрицю.

Висновки

Узагальнюючи наведені вище дані, можемо зробити висновок, що запропонована методика цілком прийнятна для підготовки поверхні торця оптичного кварцового волокна для нанесення плівки чутливого матеріалу. Проведення шліфування та полірування торців оптичних кварцових волокон згідно запропонованої методики приводить до вирівнювання їх поверхні, усунення сколів та тріщин. В свою чергу однорідна гладка поверхня приводить до рівномірного розподілу плівкоутворюючої суміші, покращення адгезії та однорідності отриманих плівок. Додаткова механічна обробка ніяким чином не впливає на оптичні властивості бактеріородопсину, водночас інтенсивність корисного сигналу зростає за рахунок зменшення розсіювання на неоднорідностях плівки.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Krohn D. A. Fiber Optic Sensors: Fundamentals and Applications / D. A. Krohn, T. W. MacDougall, A. Mendez. – Bellingham: SPIE Press Book, 2015. – 332 с. – (Fourth Edition). – (PM247).
2. І. І. Сакалош, І.І. Трикур, Й. П. Шаркань, М.Ю. Січка, О.І. Корпош, І.Й. Цьома, В.В. Ярош, В.М. Різак “Одержання плівок бактеріородопсину в органічних та неорганічних матрицях на торці оптичного волокна” Науковий вісник Ужгородського університету, серія Фізика Т. 34, (2013) С. 230-235.
3. Трикур І. І. Одержання плівкових структур на основі бактеріородопсину та дослідження впливу вологості й аміаку на їх оптичні характеристики : автореф. дис. на здобуття наук. ступеня канд. фіз.-мат. наук : спец. 01.04.10 "Фізика напівпровідників і діелектриків" / Трикур Іван Іванович – Ужгород, 2015. – 20 с.
4. S.O. Korposh, M.Y. Sichka, I.I. Trikur, Y.P. Sharkany, D.H. Yang, S.W. Lee, J.J. Ramsden, “Films based on bacteriorhodopsin in sol-gel matrices”, Proc. SPIE № 5956, 2005, pp.312-320.
5. Плівкові структури фотохромного матеріалу бактеріородопсину (ФХМБР). ТУ У 02070832.008 – 97. від 25.12.1997.
6. J.P. Sharkany, I.I. Trikur, S.O. Korposh, J.J. Ramsden, “Sensitive elements based on bacteriorhodopsin for fiber–optics

sensors of chemical components" Proc. SPIE № 5855, 2005, pp. 411-414.
7. Й.П. Шаркань, Дж.Дж. Рамсден, І.І. Сакалош, М.Ю. Січка, С.О. Корпош, І.І. Трикур "Одержання та структурні особливості нанокомпозитних плівок бактеріородопсин - квантові точки CdSe/ZnS – мікропористазоль-гельна матриця" Фізика і хімія твердого тіла Т. 11, № 1 (2010) С. 170-175.

Стаття надійшла до редакції 3.12.2017.

И.И. Сакалош, И.И. Трикур, М.Ю. Сичка, И.И. Цьома, В.М. Ризак
Ужгородский национальный университет, 88000, г. Ужгород, ул. Волошина, 54

ОСОБЕННОСТИ ПОДГОТОВКИ ТОРЦОВ КВАРЦЕВЫХ ОПТИЧЕСКИХ ВОЛОКОН ДЛЯ НАНЕСЕНИЯ ПЛЕНОК БАКТЕРИОРОДОПСИНА

Приведены результаты адаптации методики шлифовки и полировки стеклообразных материалов для обработки торцов оптических кварцевых волокон, и результаты исследований пленочных структур на основе бактериородопсина в желатиновых и золь-гельных матрицах, нанесенных на торцы оптических волокон, подготовленных с помощью предложенной методики. С помощью оптической и атомно-силовой микроскопии показано, что предложенная методика вполне приемлема для подготовки торцов оптических кварцевых волокон для нанесения пленки чувствительного материала.
Ключевые слова: оптическое волокно, торец оптического волокна, бактериородопсин, шлифовка, полировка, оптическая микроскопия, атомно-силовая микроскопия.

PACS 42.81.-i, 42.81.Pa
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.27-34
I.I. Sakalosh, I.I. Trykur, M.Y. Sichka, I.Y. Tsoma, V.M. Rizak
Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Voloshin Str., 54

PREPARATION FEATURES OF THE END-FACES OF QUARTZ OPTICAL FIBERS FOR BACTERIORHODOPSIN FILMS DEPOSITION

In order to improve the performance of sensors based on bacteriorhodopsin with a sensitive element at the end-face of the quartz optical fiber, we have proposed and developed the technology of mechanical grinding and polishing of the end-faces of quartz optical fibers via adapting the existing methods and techniques for grinding and polishing of glass and glassy materials. After grinding the end-face of the quartz optical fiber was subjected to additional chemical treatment in a mixture of hydrogen peroxide and sulfuric acid in 30:70 (piranha) ratio.
The results of the grinding and polishing technique adaptation for the glass-like materials for the treatment of the end-faces of quartz optical fibers and the results of investigations of the polished end-faces of quartz optical fibers with the help of optical and atomic force microscopy and comparison of their characteristics with the raw fibers are presented. In addition, the results of investigations of film structures based

on bacteriorhodopsin in gelatin and sol-gel matrices deposited on the end-faces of quartz optical fibers pretreated with the help of the proposed procedure are presented. Microscopic studies of the surface of the end-faces of quartz optical fibers prepared with the help of the technology that we have worked out indicate that the surface roughness of the polished end-faces does not exceed 10 nm. Investigation of the characteristics of the obtained films showed that, at the end-faces of the quartz optical fiber, a homogeneous transparent film is formed, which has a good adhesion. Spectral studies of the obtained films showed the presence of a clear absorption band of bacteriorhodopsin at 570 nm, which indicates that it keeps its optical characteristics.
Keywords: optical fiber, optical fiber end-face, bacteriorhodopsin, grinding, polishing, optical microscopy, atomic force microscopy.

REFERENCES

1. Krohn D. A. Fiber Optic Sensors: Fundamentals and Applications / D. A. Krohn, T. W. MacDougall, A. Mendez. – Bellingham: SPIE Press Book, 2015. – 332 c. – (Fourth Edition). – (PM247).
2. Sakalosh, I. I., Trykur, I. I., Sharkany, Y. P., Sichka, M. Y., Korposh, O. I., Tsoma, I. Y., Yarosh, V. V., Rizak, V. M., (2013), "Obtaining of bacteriorhodopsin films in organic and inorganic matrices at the optical fiber end", [Oderzhannya plivok bakteriorodopsynu v orhanichnykh ta neorhanichnykh matrytsyakh na tortsi optychnoho volokna], Scientific Herald of Uzhhorod University. Series Physics [Nauk. Visn. Uzhhorod. Univ. Ser. Fiz.], No 34, pp. 230-235.
3. Trikur, I. I. (2015), Preparation film structures based on bacteriorhodopsin and study the influence of humidity and ammonia on their optical characteristics: Author's thesis [Oderzhannya plivkovykh struktur na osnovi bakteriorodopsynu ta doslidzhennya vplyvu volohosti y amiaku na yikh optychni kharakterystyky: avtoref. dys. na zdobuttya nauk. stupenya kand. fiz.-mat. nauk], Uzhhorod, 2015, 20 p.
4. S.O. Korposh, M.Y. Sichka, I.I. Trikur, Y.P. Sharkany, D.H. Yang, S.W. Lee, J.J. Ramsden, “Films based on bacteriorhodopsin in sol-gel matrices”, Proc. SPIE № 5956, 2005, pp. 312-320.
5. Film structures of the photochromic material of bacteriorhodopsin [Plivkovi struktury fotokhromnoho materialu bakteriorodopsynu (FKHMBR)]. ТУ У 02070832.008 – 97., 25.12.1997.
6. J.P. Sharkany, I.I. Trikur, S.O. Korposh, J.J. Ramsden, “Sensitive elements based on bacteriorhodopsin for fiber–optics sensors of chemical components” Proc. SPIE № 5855, 2005, pp. 411-414.
7. Sharkany, Y. P., Ramsden, J. J., Sakalosh, I. I., Sichka, M. Y., Korposh, S. O., Trykur, I. I. (2010), "Obtaining and Structural Features of Nano-Composite Film Bacteriorhodopsin – Quantum Dots CdSe/ZnS – Microporous Sol-Gel Matrix", [Oderzhannya ta strukturni osoblyvosti nanokompozytnykh plivok bakteriorodopsyn - kvantovi tochky CdSe/ZnS – mikroporysta zolʹ-helʹna matrytsya], Physics and Chemistry of Solid State [Fizyka i khimiya tverdoho tila] Vol. 11, No 1, p. 170-175.

© Ужгородський національний університет

УДК 534.1; 538.9
PACS 31.15.A, 31.15.ae, 71.15.Mb, 71.20.-b, 74.20.Pq, 63.20.–e, 78.30.–j
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.35-46

Л.Ю. Хархаліс[1], К.Є. Глухов[1], Т.Я. Бабука[1,2]
[1]Ужгородський національный університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54
[2] Інститут фізики, Університет ім. Яна Дуглоша в Ченстохові, ал. Армії Крайовей, 13/15, 42200 Ченстохова, Польща
e-mail: lkharkhalis@gmail.com

МОДЕЛЮВАННЯ ЕЛЕКТРОННОЇ І ГРАТКОВОЇ ПІДСИСТЕМ В ШАРУВАТОМУ КРИСТАЛІ β-InSe З ПЕРШИХ ПРИНЦИПІВ

Представлено першопринципні розрахунки електронної структури та динамічних властивостей шаруватого кристалу β-InSe. Одержано зонну структуру, енергетичні залежності коефіцієнта поглинання для різних поляризацій світла та розраховані динамічні характеристики для даного кристалу. Проаналізована дисперсія фононів та структура спектру комбінаційного розсіювання (КР) і інфрачервоного спектру (ІЧ). Визначена симетрія коливань, активних в КР та ІЧ спектрах. Вперше проведено розрахунки ефективних зарядів Борна, діелектричних констант та досліджені пружні властивості для гексагонального кристалу β-InSe.

Ключові слова: електронна зонна структура, фононний спектр, спектр комбінаційного розсіювання, інфрачервоний спектр, ефективні заряди Борна, діелектричні константи, пружні властивості.

Вступ

Кристали селеніду індію (β-InSe) – шаруваті напівпровідники з цікавими фізичними властивостями, які є перспективними матеріалами для нелінійної оптики, сонячної енергетики та спінтроніки [1-3]. Завдяки переважаючій анізотропній структурі з слабим ван-дер-Ваальсовим зв'язком кристал β-InSe має чудову здатність до інтеркаляції [4]. А також, цікавою та привабливою особливістю досліджуваного кристалу є можливість утворення, у поєднанні з іншими кристалами, високоякісних контактів різних гомо- і гетерошарів β-InSe (наприклад, β-InSe/In_4Se_3 [5,6], β-InSe/graphene [7], InSe/SiC [8], *p*-GaSe-*n*-InSe [9]).

Крім прикладного аспекту, селеніди індію привертають увагу з точки зору фундаментальної фізики. Найбільш вивченою є зонна структура кристалу β-InSe. Вперше розрахунки зонної структури кристалів InSe та ізоструктурного GaSe були проведені Шлютером [10], і було показано, що вони є прямозонними. Електронний спектр характеризується слабою дисперсією в напрямку, перпендикулярному до шарів, і містить деякі енергетично відокремлені елементи. В [10] також було встановлено, що суттєва дисперсія однієї з енергетичних віток в напрямку, що перетинає шари, може бути пояснена існуванням значної електронної густини, яка виходить за межі шарів в цьому напрямку. Із [11,12] випливає, що перекриття електронних хвильових функцій, або іншими словами, розподіл парціальної електронної густини визначає аномальний характер дисперсійної анізотропії. Незвичайна природа електронної взаємодії, як показано у недавніх роботах [13,14], може відігравати суттєву роль у можливості реалізації нетривіальних топологічних станів у гексагональних кристалах β-InSe і β-GaSe внаслідок дії біаксіальних напружень.

Дослідження фононного спектру уже раніше проводилось у роботах [15,16]. Розрахунок динамічної матриці для селеніду індію β-InSe у рамках моделі аксіальних міжатомних взаємодій вперше було представлено у роботі [16].

Новим напрямком для розглядуваних сполук є дослідження структурних, електронних та динамічних властивостей

нанотрубок β-InSe [17] та шарів типу In_nSe_n [18] з метою їх використання в термоелектриці та ультрафіолетових фотонних детекто-рах [19].

У даній роботі, використовуючи першопринципні розрахунки, ми вивчаємо властивості електронної і граткової підсистем. Одержана інформація про оптичні властивості, ефективні заряди Борна, діелектричні константи та пружні властивості. Вперше розраховані КР та ІЧ спектри, а також проведена їх ідентифікація з експериментальними даними.

Кристалічна будова, зонна структура та оптичні характеристики кристалу β-InSe

β-InSe кристалізується в гексагональній гратці, симетрія якої описується просторовою групою D_{6h}^4, і параметри гратки є рівними $a = b = 4.048$ Å, $c = 16.930$ Å [20]. Елементарна комірка β-InSe містить вісім атомів, які належать двом трансляційно-неекквівалентним шарам з Se–In–In–Se структурою. Ці шари розміщені перпендикулярно до гексагональної осі Oz (рис.1). Сильна ковалентна взаємодія в межах шару і слаба взаємодія між шарами дозволяє розглядати кристал β-InSe як квазідвовимірний матеріал.

На рис.2 представлено зонний енергетичний спектр та парціальні густини станів для досліджуваного кристалу. Як видно, вершина валентної зони формується в основному *p*- орбіталями, а дно зони провідності *s*- і *p*-орбіталями атомів In і Se. Основною особливістю їхньої енергетичної структури є поява давидівських дублетів, симетрійний опис яких був проведений у роботі [13].

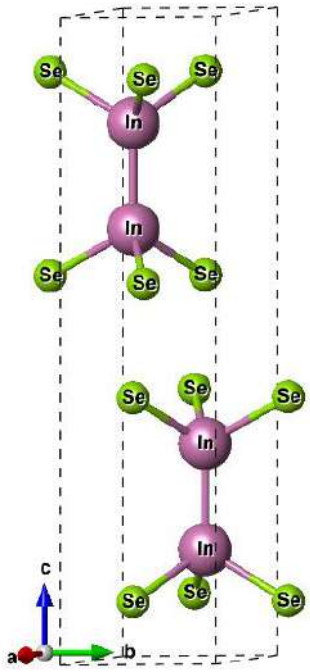


Рис. 1. Елементарна комірка кристалу β-InSe

Базуючись на розрахунках зонної структури, ми також одержали енергетичну залежність для коефіцієнта поглинання, яка характеризується наявністю ряду піків та суттєвою анізотропією. Згідно наших обчислень край поглинання знаходиться в області 1.1÷1.7 еВ (E_g~1.32 еВ [21]).

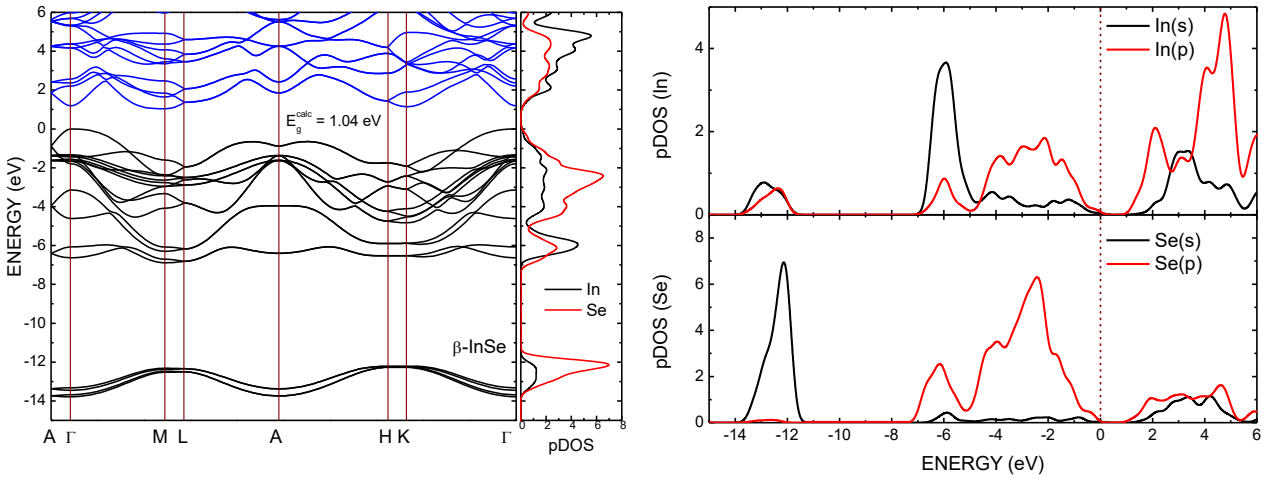


Рис.2 Розрахована енергетична зонна структура та густина станів β-InSe.

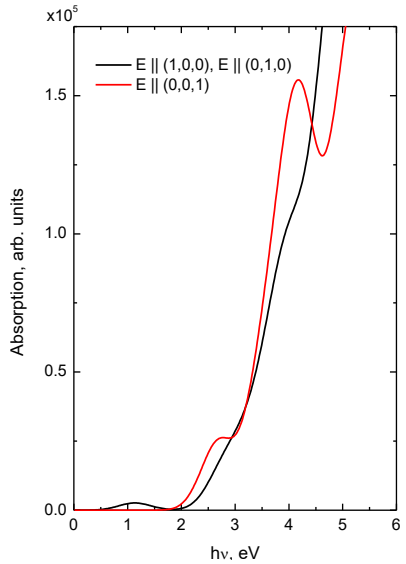
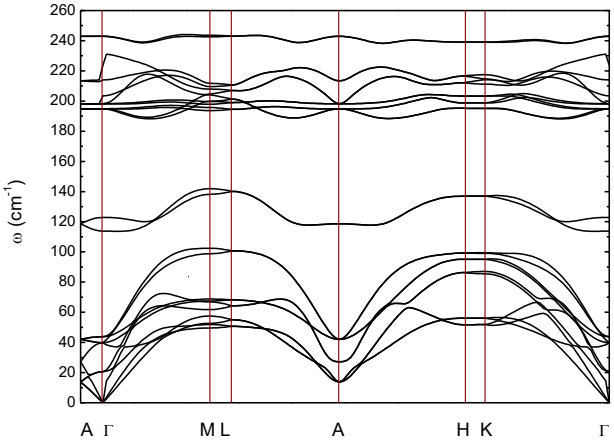


Рис.3. Енергетична залежність коефіцієнта поглинання для β-InSe

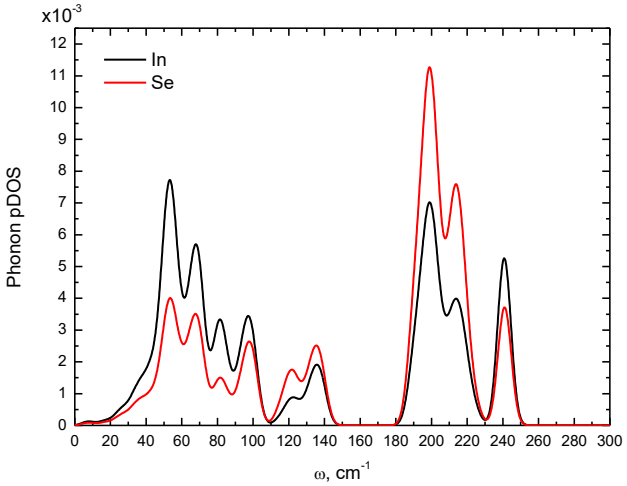
Першопринципні дослідження динаміки гратки кристала β-InSe

На рис.4 приведено першопринципні розрахунки фононного спектру вздовж основних напрямків зони Бріллюена та густини фононних станів для кристалу β-InSe. Обчислення проводились методом функціонала густини з використанням псевдопотенціалів і розкладу хвильових функцій по плоским хвилям. Обмінно-кореляційна взаємодія описується в наближенні локальної густини. В якості псевдопотенціалів використовувались нелокальні нормозберегаючі псевдопотенціали для атомів In і Se.

Як випливає з розрахунків коливного спектру, має місце суттєва анізотропія для низькочастотних віток коливань. Вздовж напрямку сильного зв'язку Г–М нахил акустичних віток більш різкий, ніж для напрямку слабого зв'язку Г–А. Також спостерігається наявність низькочастотних оптичних віток, яким відповідають зміщення шарів один відносного іншого. Причому поздовжні акустичні вітки взаємодіють з цими низькочастотними вітками коливань. Високочастотні оптичні моди є відокремлені в окремі групи, між якими наявна досить велика зонна щілина.



а)



б)

Рис.4. Фононний спектр кристала β-InSe вздовж основних напрямків у зоні Бріллюена (а) та парціальні густини фононних станів у кристалі β-InSe (б)

З рис. 4 б видно, що найбільший вклад у коливання з частотами у діапазоні 180÷220 см$^{-1}$ вносять атоми Se, а в області 40÷70 см$^{-1}$ – атоми In. Розщеплення піків може бути зумовлене слабою ван-дер-ваальсівською взаємодією. Проведені нами розрахунки фононного спектру співпадають з результатами, які були представлені в роботі [16] з використанням наближення аксіально-симетричних сил.

Згідно теоретико-групового аналізу нормальні моди (8 атомів в елементарній комірці, 24 фононні вітки) у центрі зони Бріллюена описуються незвідними зображеннями:

$$\chi_{tot} = 2A_{1g} + 2A_{2u} + 2B_{1g} + 2B_{2u} + 2E_{1g} + 2E_{1u} + 2E_{2g} + 2E_{2u}$$

з яких у КР спектрах активні шість коливань. Активними у ІЧ спектрі є тільки два коливання симетрії E_{1u} (ω = 198.12 см$^{-1}$) і симетрії A_{2u} (ω = 203.45 см$^{-1}$).

Частоти коливань у кристалі β-InSe, які отримані нами з розрахунку, та з експериментальних даних по комбінаційному розсіюванню світла приведені у таблиці 1.

На рис. 5 представлені вектори зміщень атомів, які відповідають цим довгохвильовим коливанням в ґратці β-InSe.

Таблиця 1. Частоти фононів у кристалі β-InSe, отримані з експериментальних даних по комбінаційному розсіюванню світла та отримані нами з першопринципних розрахунків

	E^2_{2g}	E^1_{1g}	A^1_{1g}	E^2_{1g}	E^1_{2g}	A^2_{1g}
ω, см$^{-1}$	20.65	43.76	122.92	194.90	198.26	242.83
ω, см$^{-1}$ [22]	18	41	113	174	225	–
ω, см$^{-1}$ [23]	17	42	117	179	228	–

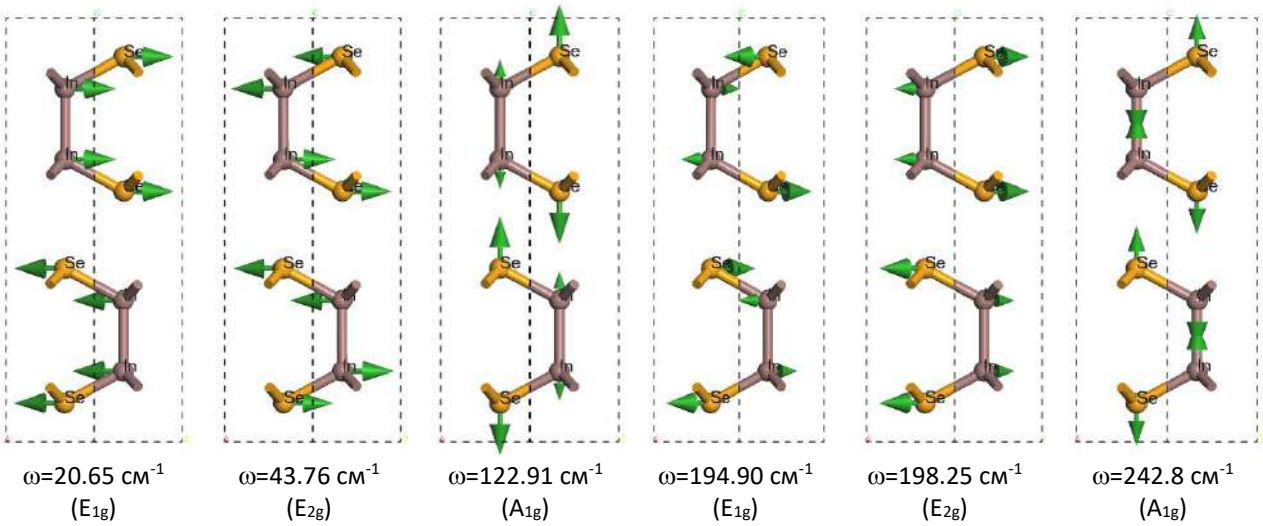
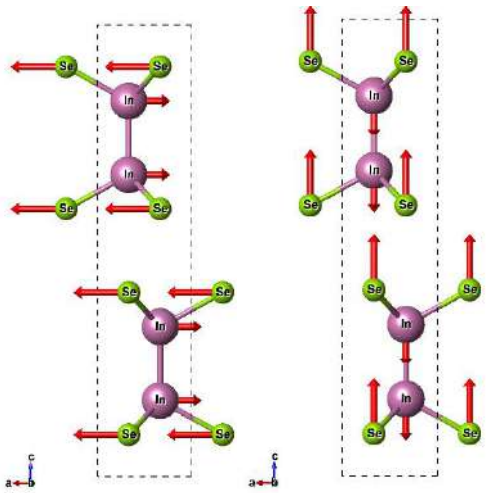


Рис.5. Зміщення атомів, які відповідають нормальним довгохвильовим коливанням в кристалі β-InSe

У напрямку Г–А та Г–М між коливаннями в області частот 198÷223 см$^{-1}$ виявлено LO–TO розщеплення (~10÷15 см$^{-1}$), яке зумовлене макроскопічним електричним полем, що створюється зміщенням заряду, і асоціюється з фононом симетрії E_{1u} та фононом симетрії (B_{1u}). Майже аналогічний результат був отриманий Мушинським і співавторами у напівемпіричному підході для селенідів індію : $\overline{\nu_{TO}}$ =194 см$^{-1}$, $\overline{\nu_{LO}}$ =212 см$^{-1}$ [24]. Зміщення атомів, які відповідають цим коливанням, мають вигляд, приведений на рис. 6.

Розраховані КР та ІЧ спектри для кристалу β-InSe представлені на рис.7. Порівняння з експериментальними дослідженнями [25,26] вказує на їх хороше співпадіння. Спостережувані піки в цих спектрах пов'язуються з нормальними коливаннями відповідної симетрії, які зображені на рис. 5.



ω=198.12 см$^{-1}$ (E_{1u}) ω=203.47 см$^{-1}$ (B_{1u})

Рис.6. Зміщення атомів, які відповідають за LO–TO розщеплення

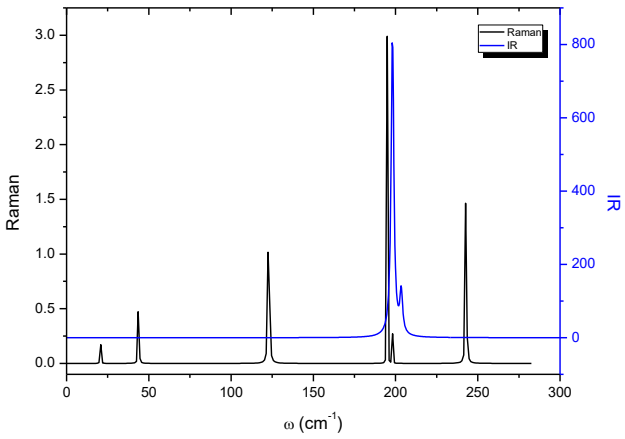


Рис.7. Розраховані КР та ІЧ спектри для кристалу β-InSe

Ефективні заряди Борна та діелектричні константи для β-InSe

Згідно теорії [27], ефективні заряди Борна для центра зони Бріллюена обчислюються як

$$Z_{\alpha\beta}(i) = \Omega \left. \frac{\delta P_\alpha}{\delta u_i^\beta (q=0)} \right|_{E=0}$$

де Ω – об'єм елементарної комірки, δP_α – поляризація, δu_i^β – зміщення i-го атома в напрямку β.

Для одержання ефективних зарядів Борна нами було розглянуто незалежні зміщення для всіх атомів In і Se. Ми отримали електронний вклад до зміни поляризації вздовж кожного напрямку. У таблиці 2 приведені компоненти тензора для ефективних зарядів Борна (тільки для одного атома In та одного атома Se, оскільки інші є еквівалентними, і ефективні заряди Борна співпадають) та діелектричної проникливості для кристалу β-InSe.

Завдяки гексагональній симетрії є тільки дві незалежні компоненти для тензора ефективного заряду Борна та тензора діелектричної проникливості, які характеризуються певною анізотропією.

Таблиця 2

Ефективні заряди Борна та діелектричні константи для кристалу β-InSe

$Z_{\alpha\beta}(i)$	In^1	Se^1	$\varepsilon_{\alpha\beta}^{\infty}$		$\varepsilon_{\alpha\beta}$
$Z_{xx,yy}$	2.21	–2.21	$\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy}$	8.91	11.38
Z_{zz}	1.17	–1.17	ε_{zz}	6.78	7.43
$Z_{xx,yy} / Z_{zz}$	1.89	1.89	$\varepsilon_{xx,yy} / \varepsilon_{zz}$	1.31	1.53

Як випливає з таблиці 2, більший перенос динамічного заряду відбувається в площині шару, ніж вздовж напрямку слабого зв'язку. Величина високочастотної діелектричної константи для кристалу β-InSe рівна $\varepsilon_\infty(E \perp c) = 7.8$ і $\varepsilon_\infty(E \parallel c = 8.9)$ та низькочастотна діелектрична константа $\varepsilon_0(E \perp c) = 10.9$ і $\varepsilon_0(E \parallel c = 9.9)$ [25].

Пружні властивості β-InSe

Знання пружних модулів дає інформацію про сили взаємодії у шаруватому кристалі. Пружні константи C_{11} і C_{12} характеризують зв'язок всередині шару, а C_{33}, C_{13} і C_{44} – міжшаровий зв'язок. Пружні

властивості гексагонального кристалу в площині симетрії ізотропні. C_{44} характеризує напруги, які виникають при зсуві в базисній площині. Щоб отримати пружні константи, до елементарної комірки β-InSe застосовувались малі аксіальні та зсувні деформації. Одержані нами значення пружних модулів приведені в таблиці 3. Як видно, має місце хороше співпадіння з результатами інших авторів [28-31] та експериментом, проведеним ультразвуковими методами [32].

Також розраховані об'ємний модуль, який рівний B = 33.28 ГПа, та модулі Юнга E_{xx}= E_{yy} = 72.51 і E_{zz} = 41.31 ГПа.

Таблиця 3

Порівняння експериментальних та розрахованих значень пружних модулів кристалу β-InSe

	C_{11}	C_{12}	C_{33}	C_{44}	C_{66}	C_{13}
Експеримент , ГПа [30]	118.1	–	38.2	11.7	35.3	32
Розрахунок, ГПа [28]	106.4	–	42.1	8.65	35.3	7.7
Беленький Г.Л. [29]	73	27	36	12	–	30
Наші розрахунки, ГПа	84.92	28.81	45.86	12.17	28.05	16.07

Нами також проведено розрахунок швидкостей розповсюдження ультразвуку вздовж різних кристалографічних напрямків у шаруватому кристалі β-InSe. Швидкості розповсюдження поздовжніх хвиль в площині шару і вздовж осі Oz, визначені за допомогою рівнянь Крістофеля, є, відповідно, рівними: v_{xx} = v_{yy} = 4.8 км/с і v_{zz} = 3.5 км/с. Згідно експериментальних досліджень швидкість ультразвуку у даному кристалі складає v_{zz}= 2.5 км/с [33]. Отримані в розрахунку більші значення швидкості зумовлені використанням наближення LDA, яке систематично переоцінює жорсткість хімічних зв'язків. На рис.8 представлено кутові залежності розподілу швидкостей розповсюдження поздовжніх і поперечних хвиль в площинах (100) і (001), які підтверджують анізотропний характер структури та сил міжатомної взаємодії в кристалі β-InSe.

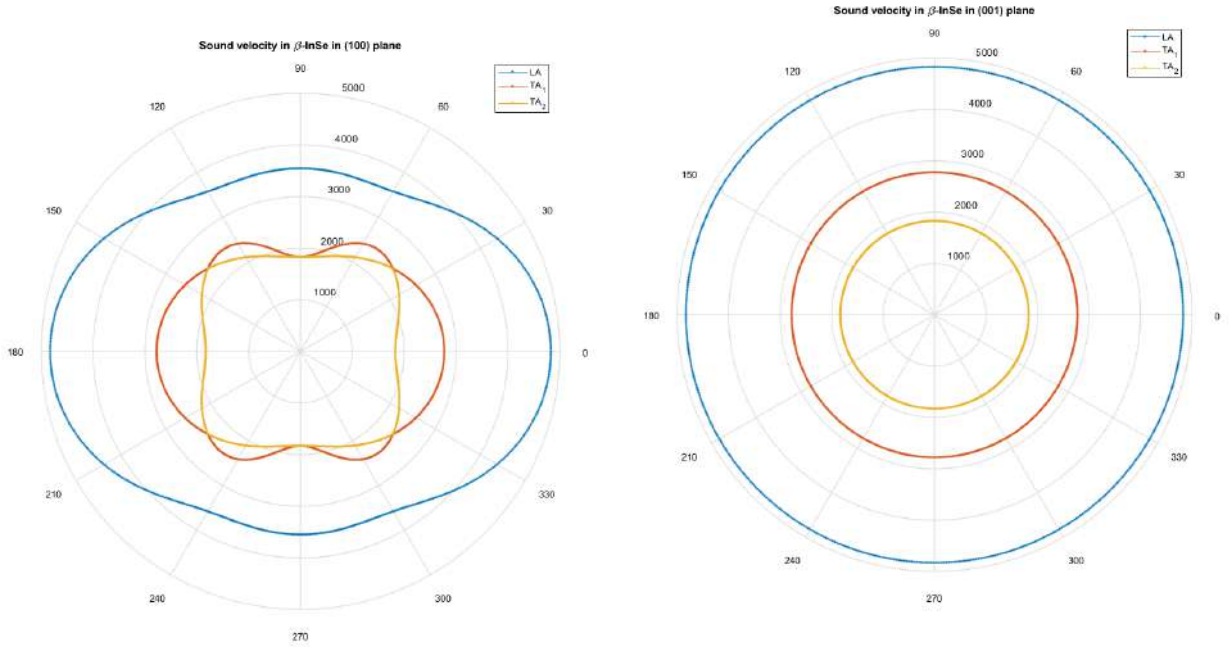


Рис.8. Кутові залежності розподілу швидкостей поширення поздовжніх і поперечних коливань в площинах (100) і (001) в кристалі β-InSe.

Висновки

У даній роботі проведено першопринципні дослідження електронних та коливних характеристик для шаруватого кристалу β-InSe. Розраховано електронний зонний спектр, парціальні густини станів, енергетичні залежності для коефіцієнта поглинання та динамічні параметри. Із обчислень фононного спектру випливає, що має місце суттєва анізотропія для низькочастотних акустичних віток коливань. Також спостерігається наявність низькочастотних оптичних віток, які взаємодіють з акустичними, та LO–TO розщеплення в напрямках Г–А і Г–М в області високих оптичних гілок. Одержані КР та ІЧ спектри і побудовані вектори зміщень атомів, які відповідають нормальним коливанням, активних в даних спектрах. Оцінки ефективних зарядів Борна, діелектричних констант, пружних модулів та швидкостей поширення ультразвуку в кристалі β-InSe вказують на їхню анізотропію в напрямку сильного та слабого зв'язку, та добре корелюють з експериментальними даними.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Segura A., Bouvier J., Andre´s M.V. et.al. Strong optical nonlinearities in gallium and indium selenides related to inter-valence-band transitions induced by light pulses// Phys. Rev. B.- 1997.-V. 56.- No.7. - P. 4075-4084.
2. Segura A., Guesdon J.P., Besson J.M., Chevy A. Photoconductivity and photovoltaic effect in indium selenide// J. Appl, Phys.- 1983. -V.54.- P. 876-881.
3. Slyn'ko V.V., Khandozhko A.G., Kovalyuk Z.D. et.al. Weak Ferromagnetism in InSe:Mn Layered Crystals// Semiconductors.- 2005.- V.39. - No. 7. - P. 772–776.
4. Grygorchak I.I., Seredyuk B.O., Tovstyuk K.D., Bakhmatyuk B.P. New Trends in Intercalation. Compounds for Energy Storage, – Paris: Kluwer acad. Publ, 2002. – P.543-545.
5. Ковалюк З.Д., Катеринчук В.М., Кушнір Б.В., Товарницький М.В. Гетеропереходи на основі шаруватих кристалів In_4Se_3 // Журнал фізики та інженерії поверхні. – 2016. – Т.1. – №3 – С. 242-245.
6. Kharkhalis L.Yu., Glukhov K.E., Babuka T.Ya. Electronic and optical properties of heterostructures based on indium chalcogenides//Acta Physica Polonica A. - 2017. -V. 132. - No. 2. - P. 319-321.
7. Svatek S.A., Mudd G.W., Kudrynskyi Z.R. et.al. Graphene-InSe-graphene van der Waals heterostructures// J Physics: Conf. Ser. - 2015.-V.647.- P.012001- 5.
8. Лебедев А.А., Рудь В.Ю., Рудь Ю.В. Создание и фоточувствительность гетероструктур на основе анодизированного карбида кремния // ФТП. – 1998. – Т.32. – №3 – С. 326-328.
9. Kovalyuk Z.D., Makhniy V.P., Yanchuk O.I. The mechanisms forming photoelectrical properties of *p*-GaSe-*n*-InSe// Telecommun. Radio Eng.- 2002.- V. 57. - No. 12.- P. 60-63.
10. Schluter, M. Band structure of GaSe// Nuovo Cimento.- 1973.- V. B13.- P. 313-320.
11. Sznajder M., Rushchanskii K.Z., Kharkhalis L.Yu. et.al., "Similarities of the band structure of In_4Se_3 and InSe under pressure and peculiarities of the creation of the band gap", Phys. Stat. Sol. (b). - 2006.- V. 243.-No. 3. -P. 592–609.
12. Glukhov K.E., Tovstyuk N.K. Elementary energy bands concept, band structure and peculiarities of bonding in β-InSe crystal// Phys. Stat. Sol. (b).- 2010.- V. 247.- No. 2.- P. 318-324.
13. Yandong M., Ying D., Lin Y., Chengwang N., Baibiao H. Engineering a topological phase transition in β-InSe via strain// New Journals of Physics. - 2013 .-V.15.- P. 073008-11.
14. Zhu Z., Cheng Yi, Schwingenschlögl U. Topological Phase Transition in Layered GaS and GaSe// Phys. Rev. Letters.- 2012.- V. 108.- P. 266805.
15. Balkanski M., P.G. da Costa, Wallis R.F., Electronic energy bands and lattice

dynamics of pure and lithium-intercalated InSe// Phys. Stat. Sol. (b).- 1996.- V. 194.- No. 1.- P. 175-185.
16. Bercha D.M., Rushchanskii K.Z., Kharkhalis L.Yu. Structure similarity and lattice dynamics of InSe and In_4Se_3 crystals// Condensed Matter Physics. - 2000.- V. 3. - No. 4(24). - P. 749-757.
17. Hai G.S, Yuan X.W., Yu L.Y., Guang B.Z. Structural, Electronic, and Thermoelectric Properties of InSe Nanotubes: First-Principles Calculations// J. Phys. Chem. C. - 2012.- V. 116.- P. 3956−3961.
18. Z'olyomi V., Drummond N.D., Fal'ko V.I. Electrons and phonons in single layers of hexagonal indium chalcogenides from *ab initio* calculations// Phys. Rev. B.- 2014.- Vol. 89, pp. 205416-1- 205416-8.
19. Srinivasa R.T., Yi-Ying L., Rajesh K.U. et.al. High Performance and Bendable Few-Layered InSe Photodetectors with Broad Spectral Response// Nanoletters.- 2014.- V. 14.- P. 2800-2806.
20. Ман Л.И., Имамов Р.М., Семилетов С.А. Типы кристаллических халькогенидов Ga, In и Tl // Кристаллография – 1976. – Т.21. – №3. – С. 628-639.
21. Evtodiev I., Caraman Ju., Kantser V. et.al. Optical and Photoelectric properties of GaS, GaSe, GaTe and InSe Semiconductors and Nanocomposites Obtained by Heat Treatment in Cd and Zn Vapor// Nanostruct. and Thin Films for Multifuctional Applications.- 2016.- P. 381-413.
22. Алиева Л.Н., Беленький Г.Л., Решина И.И., Салаев Э.Ю., Штейнштрайбер В.Я. Комбинационное рассеяние света и межслоевое взаимодействие в кристаллах InSe // ФТТ. – 1979. – Т.21. – №1. – С. 155–160.
23. Водопьянов Л.К., Голубев Л.В., Алещенко Ю.А., Алахвердиев К.Р., Салаев Э.Ю. Спектры комбинационного рассеяния света в кристаллах InSe // ФТТ – 1978. – Т.20. – №9. – С. 2803–2805.
24. Мушинский В.П., Коболев В.И. Исследование оптических свойств кристаллов $In_2Se_{3x}Te_{3(1-x)}$ // ФТТ. – 1972 – Т. 14. – С. 1275-1279.
25. Kuroda N., Nishina Y., "Resonance Raman scattering study on exciton and polaron anisotropies in InSe// Solid State Commun.- 1980.- V. 34.- P. 481-484.
26. Ikari T., Shigetomi T.S., Hashimo K. Crystal Structure and Raman Spectra of InSe// Phys. stat. sol. (b). - 1982.- V. 111.- P. 477 -481.
27. Zhou B., Su Q., He De-Yan. First-principles calculations on the electronic and vibrational properties of β-V_2O_5// Chin. Phys. B.- 2009. - V. 18.- P. 4988.
28. Рущанський К.З. Спектри елементарних збуджень гратки кристалів групи In–Se, In–Te. - Автореферат на здоб. ступеня канд.ф-м.наук, 2000.- Ужгород, 17 с.
29. Беленький Г.Л., Салаев Э.Ю., Сулейманов Р.А. Деформационные явления в слоистых кристалах // УФН. – 1988 – Т.155 – №1 – С. 89-127.
30. Ghalouci L., Taibi F., Bensaid M.O. Ab initio investigation into structural, mechanical and electronic properties of low pressure, high pressure and high pressure-high temperature phases of Indium Selenide// Computational Materials Science .- 2016.- V. 124.- P. 62–77.
31. Gatulle M., Fischer M., Chevy A. Elastic constants of the layered compounds GaS, GaSe, InSe, and their pressure dependence I. Experimental part// Phys. Status Solidi B.- 1983.- V. 119.- P. 327–336.
32. Искандер–Заде З.А., Фараджев В.Д., Агаев А.И. Упругие свойства InSe // ФТТ. – 1972 – Т.19 – №3. – С. 851–853.
33. Ferrer Ch., Segura A., Andrés M.V., Muñoz V., Pellicer J. The application of the photoacoustic transmittance oscillations for determining elastic constants in gallium and indium selenides//J. Appl. Phys., 1996.- V. 79(6).- No.15.- P. 3200-3204.

Стаття надійшла до редакції 29.11.2017.

Л.Ю. Хархалис[1], К.Е. Глухов[1], Т.Я. Бабука[1,2]
[1]Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, ул.Волошина, 54;
[2] Институт физики, Университет им. Яна Длугоша в Ченстохове, ал. Армии Крайовой, 13/15, 42200 Ченстохова, Польша

МОДЕЛИРОВАНИЕ ЭЛЕКТРОННОЙ И РЕШЕТОЧНОЙ ПОДСИСТЕМ В СЛОИСТОМ КРИСТАЛЛЕ β-InSe ИЗ ПЕРВЫХ ПРИНЦИПОВ

Представлены первопринципные расчёты электронной структуры и динамических свойств слоистого кристалла β-InSe. Получены зонная структура, энергетические зависимости коэффициента поглощения для разных поляризаций света и вычислены динамические характеристики для данного кристалла. Проанализирована дисперсия фононов и структура спектра комбинационного рассеяния света (КР) и инфракрасного (ИК) спектра. Определена симметрия колебаний, активных в КР и ИК спектрах. Впервые для гексагонального кристалла β-InSe проведены расчёты эффективных зарядов Борна, диэлектрических констант и исследованы упругие свойства.
Ключевые слова: электронная зонная структура, фононный спектр, спектры комбинационного рассеяния света, инфракрасный спектр, эффективные заряды Борна, диэлектрические константы, упругие свойства.

PACS 31.15.A, 31.15.ae, 71.15.Mb, 71.20.-b, 74.20.Pq, 63.20.–e, 78.30.–j
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.35-46

L.Yu. Kharkhalis[1], K.E. Glukhov[1], T.Ya. Babuka[1,2]
[1]Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Voloshin Str., 54
[2]Institute of Physics, Faculty of Mathematics and Natural Science, Jan Dlugosz University in Czestochowa, Al. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Czestochowa, Poland

MODELING OF ELECTRONIC AND LATTICE SUBSYSTEMS IN β-InSe LAYERED CRYSTAL FROM FIRST-PRINCIPLES

Introduction. The study of the β-InSe crystals is motivated by the potential application of their physical properties in nonlinear optics, solar energy and spintronics. Recently, indium selenide has also attracted considerable attention in view of its use in heterostructures based on the homo- and heterojunctions β-InSe (β-InSe/In_4Se_3, β-InSe/graphene, InSe/SiC, *p*-GaSe-*n*-InSe). In addition to the applied aspects, the β-InSe material is interested from its electronic and dynamical properties related with the layered structure.
Purpose. In this work, we present a combined *ab initio* study of the electronic, structural, dynamical, and elastic properties of the β-InSe layered crystal
Methods. Quantum chemical calculations in this work were performed in the framework of density functional theory (DFT) within local approximation for exchange-correlation interaction (LDA) and dispersion correction (DFT-D) methodology.

Results. The band structure, the energy dependences of the absorption coefficient for different light polarizations and the dynamic characteristics have been obtained for the β- InSe crystal. We found a direct band gap of about 1.04 eV located at the Γ-point in the hexagonal Brillouin zone (E_g^{exp}~1.32 eV). The contribution of different bands was analyzed from the partial density of states curves. The phonon dispersion curves and phonon density of states of the material were obtained too. It is shown that the presence of low-frequency optical vibration branches which interact with acoustic vibrations, and LO–TO splitting in the Γ–A and Γ–M directions in the high-energy region are observed. We carried out the Raman and IR spectra calculations and constructed the vectors of atom displacements corresponding to normal vibration active in these spectra. For the first time calculations of Born effective charges, dielectric constants, and velocities of the sound propagations were carried out for the hexagonal crystal β-InSe.

Conclusion. This study reports a detailed investigation on the electronic, the dynamic, the optical and elastic properties for the β-InSe layered crystal using the first-principles method. The calculation provides an excellent description of the electronic band structure and the phonon spectrum. From the calculations of the phonon spectrum, it follows that there is a significant anisotropy for low-frequency acoustic vibration. We have determined the phonon frequencies of the active vibration modes in Raman and IR spectra. Estimates of the Born effective charge, dielectric constants, elastic modules, and ultrasound propagation velocities in the β-InSe crystal show their anisotropy in the direction of strong and weak coupling, and well correlate with the experimental data.

Keywords: Electron band structure; Phonon spectrum; Raman-spectra; Infrared spectra; Effective Born charges; Dielectric constants; Elastic properties; Sound velocities

REFERENCES

1. Segura A., Bouvier J., Andre´s M.V. et.al. (1997), “Strong optical nonlinearities in gallium and indium selenides related to inter-valence-band transitions induced by light pulses”, Phys. Rev. B., V. 56, No.7, pp. 4075-4084.
2. Segura A., Guesdon J.P., Besson J.M., Chevy A. (1983), “Photoconductivity and photovoltaic effect in indium selenide”, J. Appl, Phys., V.54, pp.876-881.
3. Slyn’ko V.V., Khandozhko A.G., Kovalyuk Z.D. et.al. (2005), “Weak Ferromagnetism in InSe:Mn Layered Crystals”, Semiconductors, V. 39, No.7, pp. 772–776.
4. Grygorchak I.I., Seredyuk B.O., Tovstyuk K.D., Bakhmatyuk B.P. (2002), “New Trends in Intercalation. Compounds for Energy Storage”, – Paris: Kluwer acad. Publ, 2002. – pp.543-545.
5. Kovalyuk, Z.D., Katerynchuk, V.M., Kushnir, B.V., Tovarnytskyi, M.V.(2016), “Heterojunctions based on In_4Se_3 layered crystals” [“Heteroperekhody na osnovi sharuvatykh krystaliv In_4Se_3”, Zhurnal fiziky ta inzhenerii poverkhni], Journal of Surface Physics and Engineering, V. 1, No. 3, pp. 242–245.
6. Kharkhalis L.Yu., Glukhov K.E., Babuka T.Ya. (2017), “Electronic and optical properties of heterostructures based on indium chalcogenides”, Acta Physica Polonica A, V. 132, No. 2, pp. 319-321.
7. Svatek S.A., Mudd G.W., Kudrynskyi Z.R. et.al. (2015), “Graphene-InSe-graphene van der Waals heterostructures”, J Physics: Conf. Ser., V.647, pp.012001 -5.
8. Lebedev, A.A., Lebedev, A.A., Rud’ V.Yu., Rud’, Yu.V. (1998), “Creation and photosensitivity of anodized SiC-based heterostructures” [Sozdanie i fotochuvstvitelnost heterostructur na osnove anodizirovannogo karbida kremnia”], Semicoductors, Vl. 32, No. 3, pp. 326-328.
9. Kovalyuk Z.D., Makhniy V.P., Yanchuk O.I. (2002), “The mechanisms forming photoelectrical properties of *p*-GaSe-*n*-InSe”, Telecommun. Radio Eng., V. 57, No 12, pp.60-63.
10. Schluter, M. (1973) “Band structure of GaSe”, Nuovo Cimento, V. B13, pp. 313-320.

11. Sznajder M., Rushchanskii K.Z., Kharkhalis L.Yu. et.al. (2006), “Similarities of the band structure of In_4Se_3 and InSe under pressure and peculiarities of the creation of the band gap”, Phys. Stat. Sol. (b).,V. 243,No.3, pp. 592–609.
12. Glukhov K.E., Tovstyuk N.K. (2010), “Elementary energy bands concept, band structure and peculiarities of bonding in β-InSe crystal”, Phys. Stat. Sol. (b), V. 247, No. 2, pp. 318-324.
13. Yandong M., Ying D., Lin Y., Chengwang N., Baibiao H. (2013), “Engineering a topological phase transition in β-InSe via strain”, New Journals of Physics, V.15, pp. 073008-11.
14. Zhu Z., Cheng Yi, Schwingenschlögl U. (2012), “Topological Phase Transition in Layered GaS and GaSe”, Phys. Rev. Letters, V. 108, p. 266805-6.
15. Balkanski M., P.G. da Costa, Wallis R.F. (1996), “Electronic energy bands and lattice dynamics of pure and lithium-intercalated InSe¨, Phys. Stat. Sol. (b). V. 194, No. 1, pp. 175-185.
16. Bercha D.M., Rushchanskii K.Z., Kharkhalis L.Yu. (2000), “Structure similarity and lattice dynamics of InSe and In_4Se_3 crystals”, Condensed Matter Physics, V. 3, No. 4(24), pp. 749-757.
17. Hai G.S, Yuan X.W., Yu L.Y., Guang B.Z. (2012) “Structural, Electronic, and Thermoelectric Properties of InSe Nanotubes: First-Principles Calculations”, J. Phys. Chem. C, V. 116, pp 3956−3961.
18. Z’olyomi V., Drummond N.D., Fal’ko V.I. (2014), “Electrons and phonons in single layers of hexagonal indium chalcogenides from *ab initio* calculations”, Phys. Rev. B, V. 89, pp. 205416-1- 205416-8.
19. Srinivasa R.T., Yi-Ying L., Rajesh K.U. et.al. (2014), “High Performance and Bendable Few-Layered InSe Photodetectors with Broad Spectral Response”, Nanoletters, V. 14, pp. 2800-2806.
20. Man, L.I., Imamov, R.M., Semiletov, S.A. (1976), “Types of Ga, In and Tl crystalline halcogenides” [“Typy kristallicheskikh khalkogenodov Ga, In i Tl“, Kristallografiya, V. 21, No. 3, pp. 628-639.
21. Evtodiev I., Caraman Ju., Kantser V. et.al. (2016), “Optical and Photoelectric properties of GaS, GaSe, GaTe and InSe Semiconductors and Nanocomposites Obtained by Heat Treatment in Cd and Zn Vapor”, Nanostruct. and Thin Films for Multifuctional Applications, pp. 381-413.
22. Alieva, L.N., Belenkii, G.L., Reshina I.I. et.al. (1979), “Raman scattering and interlayer interaction in the InSe crystals” [“Kombintsionnoie rasseianie i mezhsloevoe vzaimodeistvie v kristallakh InSe”], Physics of the Solid State, V. 21, No 1, pp. 155–160.
23. Vodopyanov, L.K., Golubev, L.V. , Allakhverdiev, K.R., Salaev, E.Yu. (1978), ”Raman spectra in the InSe crystals”, Semiconductors” [“Spectry kobinatsionnogo rasseiania v kristallakh InSe”], Fiz. tverd. Tela, V. 20, No. 9, pp. 2803-2805.
24. Mushinskii, V.P., Kobolev, V.I. (1972), "Investigation of the optical properties of $In_2Se_{3x}Te_{3(1-x)}$ single crystals" ["Issledovanie opticheskikh svoistv kristallov $In_2Se_{3x}Te_{3(1-x)}$], Fiz. Tverd. Tela, V. 14, pp. 1275-1279.
25. Kuroda N., Nishina Y. (1980), “Resonance Raman scattering study on exciton and polaron anisotropies in InSe”, Solid State Commun.,V. 34, pp. 481-484.
26. Ikari T., Shigetomi T.S., Hashimo K. (1982), “Crystal Structure and Raman Spectra of InSe”, Phys. stat. sol. (b) V. 111, pp. 477 -481.
27. Zhou B., Su Q., He De-Yan (2009), ”First-principles calculations on the electronic and vibrational properties of β-V_2O_5”, Chin. Phys. B, V. 18, p. 4988.
28. Rushchanskii, K.Z. (2000), “Spectra of lattice elementary excitation of the group In-Se, In-Te crystals” [Spectry elementarnykh

zbudzhen' gratky krystaliv grupy In-Se, In-Te"], avtoref. disert. na zdobuttya nauk.stupenya kand.fiz.-mat. nauk], Uzhhorod, 17 p.

29. Belen'kii, G.L., Salaev E.Yu., Suleimanov, R.A. (1988), "Deformation effects in layer crystals", Advances in Physical Sciences, ["Deformatsionnie yavlenia v sloistykh kristallakh "], Sov. Phys. Usp., V. 31, No. 5, pp. 434–455.
30. Ghalouci L., Taibi F., Bensaid M.O. (2016) "Ab initio investigation into structural, mechanical and electronic properties of low pressure, high pressure and high pressure-high temperature phases of Indium Selenide," Computational Materials Science , V. 124, pp. 62–77.
31. Gatulle M., Fischer M., Chevy A. (1983) "Elastic constants of the layered compounds GaS, GaSe, InSe, and their pressure dependence I. Experimental part.", Phys. Status Solidi B 119, pp. 327–336.
32. Iskander-Zade, Z.A., Faradzhaev, V.D., Agaev, A.I. (1972), ''Elastic properties of InSe", ["Uprugie svoistva InSe", Physics of the Solid State, V. 19, No. 3, pp. 851–853.
33. Ferrer Ch., Segura A., Andrés M.V., Muñoz V., Pellicer J. (1996), "The application of the photoacoustic transmittance os cillations for determining elastic constants in gallium and indium selenides", J. Appl. Phys., V. 79(6), No.15, pp. 3200-3204.

© Ужгородський національний університет

УДК 548.3
PACS 61.66.Fn
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.47-53

І.І. Небола, А.Я. Штейфан, А.Ф. Катаниця, І.П. Студеняк
Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54
e-mail: ivan.nebola@uzhnu.edu.ua

ФОНОННІ СПЕКТРИ СІМЕЙСТВА АРГІРОДИТІВ

На прикладі Cu_6PS_5Br розглянута кристалічна структура сімейства аргіродитів. В концепції надпросторової симетрії описана кристалічна структура, представлено повний (3+3)-мірний базис, сукупність векторів модуляції та масових модуляційних функцій. Проведено розрахунок дисперсії фононного спектру, наведено дисперсійні залежності фононного спектру у високосиметричних напрямках (Г – X – M – R – Г – M) зони Бриллюена даного кристалу

Ключові слова: аргіродити, кристалічна структура, надґратка, над просторова симетрія, фононний спектр, Maple.

Вступ

В останні десятиріччя іоніка твердого тіла розвинулася в широку міжгалузеву науку, що охоплює фізику, хімію, матеріалознавство та приладобудування. Так, суперіонні провідники (СІП) знайшли широке застосування як акумуляторні батареї, паливні комірки, газові сенсори та інші електрохімічні пристрої [1-3]. Крім того, СІП успішно використовуються для розробки іонно-селективних електродів [4], високотемпературних нагрівних елементів [2], інтеграторів, генераторів з автоматичною розгорткою і т.д. [5]. Одним з найбільш яскравих представників СІП є представник сімейства аргіродитів – кристал сполуки Cu_6PS_5Br, дослідження й моделювання властивостей якого лягли в основу цієї нашої роботи.

Кристалічна структура сполуки Cu_6PS_5Br

Дослідження кристалічної структури високотемпературної фази сполуки Cu_6PS_5Br було розпочато у роботах [6-10], де наведено параметри ґратки, координати атомів, температурні коефіцієнти зміни параметрів, заселеність, кути і відстані, що характеризують розміщення атомів у кристалічній ґратці.

Аналіз кристалічної структури сімейства аргіродиту вказує на значну зміну заселеності ряду кристалографічних позицій.

Для розрахунку методом ab initio значень фононних частот в точці Г для кристалу Cu_6PS_5Br в роботі [11] була вибрана модель кристалічної структури з координатами атомів і їх заселеністю, які представлені в табл.1 Це дало можливість для модельних розрахунків дисперсійних залежностей фононного спектру по зоні Бриллюена в даній роботі вибрати структуру з позиціями атомів, наведених в табл.1.

Таблиця 1. Кристалографічні позиції атомів модельних кристалічних структур

Атом	Координати згідно [10]	Засе-леність згідно [10]	Координати згідно [11]	Засе-леність згідно [11]	Координати згідно нашої роботи	Засе-леність згідно нашої роботи
Cu(1)	(0.02362,0.25,0.25)	0.624	(0.01747, 0.25, 0.25)	1.0	(0.0,1/4,1/4)	1.0
Cu(2)	(0.01914,0.30918,0.30918)	0.376		0.0		0.0

Br	(0,0,0)	0.989	(0,0,0)	1.0	(0,0,0)	1.0
S(1)	(0.25, 0.25, 0.25)	0.989	(0.25,0.25,0.25)	1.0	(1/4,1/4,1/4)	1.0
S(2)	(0.62183,0.62183, 0.62183)	1.0	(0.62183,0.62183,0.62183)	1.0	(5/8,5/8,5/8)	1.0
P	(0.5,0.5,0.5)	1,0	(0.5,0.5,0.5)	1.0	(1/2,1/2,1/2)	1.0

Така кристалічна структура, слідуючи за [12, 13], може біти описана, як окупаційно-модульована гранецентрована кубічна (ГЦУ) надґратка ((4a,4a,0), (4a,0,4a), (0,4a,4a)).

Для цього використаємо (3+3) - мірний простір з базисами прямого і оберненого простору в метриці об'ємноцентрованої ґратки (ОЦК) ((-a,a.a), (a,-a,a), (a,a,-a)):

$$
\begin{aligned}
a_1&=(-a,\ a,a,{}_{1/4}b,\ -{}_{1/4}b,\ -{}_{1/4}b); & a_1^*&=(0,\pi/a,\pi/a,0,0,0);\\
a_2&=(a,-\ a,a,-{}_{1/4}b,\ {}_{1/4}b,\ -{}_{1/4}b); & a_2^*&=(\pi/a,0,\pi/a,0,0,0);\\
a_3&=(a,\ a,-a,-{}_{1/4}b,\ -{}_{1/4}b,{}_{1/4}b); & a_3^*&=(\pi/a,\pi/a,0,0,0,0);\\
a_4&=(0,0,0,0,b,b); & a_4^*&=(-{}_{1/4}\ \pi/a,{}_{1/4}\ \pi/a,\ {}_{1/4}\ \pi/a,\ -\pi/b,\ \pi/b,\ \pi/b);\\
a_5&=(0,0,0,b,0,b); & a_5^*&=(1/4\ \pi/a,-{}_{1/4}\ \pi/a,\ {}_{1/4}\ \pi/a,\ \pi/b,-\ \pi/b,\pi/b);\\
a_6&=(0,0,0,b,b,0). & a_6^*&=({}_{1/4}\ \pi/a,\ {}_{1/4}\ \pi/a,-{}_{1/4}\ \pi/a,\ \pi/b,\ \pi/b,-\ \pi/b).
\end{aligned}
\tag{1}
$$

Використовуючи базиси (1), були з генеровані сукупності позицій надґратки та векторів модуляції $\boldsymbol{q}_i$ (Таблиця 2.).

Повна сукупність 32-ох можливих позицій атомів охоплює 10 орбіт, а множина 32-х векторів модуляції розбивається на 10 зірок.

Це дозволяє записати систему рівнянь для визначення амплітуд функції масової модуляції $\rho_i(\boldsymbol{q}_i, \boldsymbol{b}^*)$.

Для тривимірної проекції структури:

$$M(n,0)=\sum_{l=1}^{10}\rho_l(\mathbf{q}_l,0)\sum_{m=1}^{позірці} e^{i(\mathbf{q}_{l_m}n)} \tag{2}$$

де M (n, 0) – маса атома в позиції n, ($\Delta n = 0$), l - задає номер зірки, а m – номер вектора зірки.

Розв'язавши її отримаємо $\rho_i(\boldsymbol{q}_i, \boldsymbol{0}^*)$:

$$
\begin{aligned}
&32\rho_1=M_1+M_2+M_3+M_4+6M_5+6M_6+4M_7+4M_8+4M_9+4M_{10};\\
&32\ \rho_2=M_1+M_2+M_3+M_4+6M_5+6M_6-4M_7-4M_8-4M_9-4M_{10};\\
&32\ \rho_3=M_1+M_2-M_3-M_4-6M_5+6M_6+4iM_7-4iM_8-4iM_9+4iM_{10};\\
&32\ \rho_4=M_1+M_2-M_3-M_4-6M_5+6M_6-4iM_7+4iM_8+4iM_9-4iM_{10};\\
&32\ \rho_5=M_1+M_2-M_3-M_4+2M_5-2M_6\\
&32\ \rho_6=M_1+M_2+M_3+M_4-2M_5-2M_6;\\
&32\ \rho_7=M_1-M_2-M_3+iM_4+\sqrt{2}(1+i)M_7+\sqrt{2}(1-i)M_8-\sqrt{2}(1-i)M_9-\sqrt{2}(1+i)M_{10};\\
&32\ \rho_8=M_1-M_2+M_3-iM_4+\sqrt{2}(1-i)M_7+\sqrt{2}(1+i)M_8-\sqrt{2}(1+i)M_9-\sqrt{2}(1-i)M_{10};\\
&32\ \rho_9=M_1-M_2-M_3+iM_4-\sqrt{2}(1-i)M_7-\sqrt{2}(1+i)M_8+\sqrt{2}(1+i)M_9+\sqrt{2}(1-i)M_{10};\\
&32\ \rho_{10}=M_1-M_2+M_3-iM_4-\sqrt{2}(1+i)M_7-\sqrt{2}(1-i)M_8+\sqrt{2}(1-i)M_9+\sqrt{2}(1+i)M_{10}.
\end{aligned}
\tag{3}
$$

Наведений розв'язок задає бездефектну узагальнену структуру з хімічною формулою $VHEFC_6D_6A_4B_4K_4M_4$, а XY_2O_4 буде окремим випадком при V=E=X; H=F=C=D=A=0; D=K=O; M=Y. Для того, щоб отримати амплітуди модуляційних функцій суперіоніка Cu_6PS_5Br підставимо $M_1=M_{Br}$; $M_3=M_P$; $M_4=M_{S(1)}$; $M_6=M_{Cu(1)}$; $M_{10}=M_{S(2)}$; $M_2=M_5=M_7=M_8=M_9=0$. Тоді для нашого випадку матимемо:

$$
\begin{aligned}
&\rho_1=1/32(M_{Br}+M_P+M_{S(1)}+6M_{Cu}+4M_{S(2)});\\
&\rho_2=1/32(M_{Br}+M_P+M_{S(1)}+6M_{Cu}-4M_{S(2)});\\
&\rho_3=1/32(M_{Br}-M_P-M_{S(1)}+6M_{Cu}+4iM_{S(2)});\\
&\rho_4=1/32(M_{Br}-M_P-M_{S(1)}+6M_{Cu}-4iM_{S(2)});\\
&\rho_5=1/32(M_{Br}-M_P-M_{S(1)}-2M_{Cu});\\
&\rho_6=1/32(M_{Br}+M_P+M_{S(1)}-2M_{Cu});\\
&\rho_7=1/32(M_{Br}-iM_P+iM_{S(1)}-\sqrt{2}(1+i)M_{S(2)});\\
&\rho_8=1/32(M_{Br}+iM_P-iM_{S(1)}-\sqrt{2}(1-i)M_{S(2)});\\
&\rho_9=1/32(M_{Br}-iM_P+iM_{S(1)}+\sqrt{2}(1-i)M_{S(2)});\\
&\rho_{10}=1/32(M_{Br}+iM_P-iM_{S(1)}+\sqrt{2}(1+i)M_{S(2)}).
\end{aligned}
\tag{4.}
$$

Таблиця 2.Сукупності позицій об’єднаних в орбіти та модуляційних векторів у – зірки.

Атоми	**№ орбіти (позиції)**	**Позиції атомів, об’єднані в орбіти**	**№ зірки (модуля-ційного вектора)**	**Модуляційні вектори, об’єднані в зірки**
Br	1 (1)	[0, 0, 0]	1 (1)	[0, 0, 0]
P	2 (2)	[4a, 0, 0]	2 (2)	[π/*a*, 0, 0]
S(1)	3 (3)	[2*a*, 2*a*, 2*a*]	3 (3)	[π/2*a*, π/2*a*, π/2*a*]
	4 (4)	[-2*a*, -2*a*, -2*a*]	4 (4)	[-π/2*a*, -π/2*a*, -π/2*a*,]
	5 (5-10)	[2*a*, 0, 0]; [0, 2*a*, 0]; [0, 0, 2*a*];[-2*a*, 0, 0]; [0, -2*a*, 0]; [0, 0, -2*a*];	5 (5-10)	[π/2*a*, 0, 0]; [0, π/2*a*, 0]; [0, 0, π/2*a*]; [-π/2*a*, 0, 0]; [0,-π/2*a*,0]; [0, 0, -π/2*a*]
Cu(1)	6 (11-16)	[2*a*, 2*a*, 0]; [0, 2*a*, 2*a*]; [2*a*, 0, 2*a*]; [-2*a*, 2*a*, 0]; [0, 2*a*, -2*a*]; [-2*a*, 0, 2*a*]	6 (11-16)	[π/2*a*, π/2*a*, 0]; [0, π/2*a*, π/2*a*]; [π/2*a*, 0, π/2*a*]; [-π/2*a*, π/2*a*, 0]; [0, π/2*a*, -π/2*a*]; [-π/2*a*, 0, π/2*a*]
	7 (17-20)	[*a*, *a*, *a*]; [-*a*,- *a*, *a*]; [-*a*, *a*,- *a*]; [*a*,- *a*,- *a*]	7 (17-20)	[π/4*a*, π/4*a*, π/4*a*]; [-π/4*a*, -π/4*a*, π/4*a*]; [-π/4*a*, π/4*a*, -π/4*a*]; [π/4*a*, -π/4*a*, -π/4*a*]
	8 (21-24)	[-*a*, -*a*, -*a*]; [-*a*, *a*, *a*]; [*a*, *a*, -*a*]; [*a*, -*a*, *a*]	8 (21-24)	[-π/4*a*, -π/4*a*, -π/4*a*]; [-π/4*a*, π/4*a*, π/4*a*]; [π/4*a*, π/4*a*, -π/4*a*]; [π/4*a*, -π/4*a*, π/4*a*]
	9 (25-28)	[3*a*, 3*a*, 3*a*]; [-3*a*, -3*a*, 3*a*]; [-3*a*, 3*a*, -3*a*]; [3*a*, -3*a*, -3*a*]	9 (25-28)	[3π/4*a*, 3π/4*a*, 3π/4*a*]; [-3π/4*a*, -3π/4*a*, 3π/4*a*]; [-3π/4*a*, 3π/4*a*, -3π/4*a*]; [3π/4*a*, -3π/4*a*, -3π/4*a*]
S(2)	10(29-32)	[-3*a*, -3*a*, -3*a*]; [-3*a*, 3*a*, 3*a*]; [3*a*, 3*a*, -3*a*]; [3*a*, -3*a*, 3*a*]	10(29-32)	[-3π/4*a*, -3π/4*a*, -3π/4*a*]; [-3π/4*a*, 3π/4*a*, 3π/4*a*]; [3π/4*a*, 3π/4*a*, -3π/4*a*]; [3π/4*a*, -3π/4*a*, 3π/4*a*]

Дисперсійні криві фононних спектрів складних кристалів визначаються як розв'язки матричного рівняння при умові рівності нулю визначника [14-16]:

$$\left|D_{\alpha\beta}(\mathbf{k}+\mathbf{q}_i)-\omega^2\delta_{\alpha\beta}\delta_{ij}-\omega^2\rho_{(i-j)}\delta_{\alpha\beta}\right|=0 \quad (5)$$

де α, β – x, y, z, $\boldsymbol{k}$ – хвильовий вектор, $\boldsymbol{q}_i$ – вектори модуляції, ρ_i ($\boldsymbol{q}_i$,$\boldsymbol{b}$*) амплітуди функції масової модуляції задані для модуляційних векторів $\boldsymbol{q}_i$ –$\boldsymbol{q}_j$ а $D_{\alpha\beta}(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}_i)$ – динамічні матриці одноатомного ОЦК кристалу, визначені у $\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}_i$ точці зони Бриллюена (i = 1, 2,..., 32) згідно [17] :

$$D_{\alpha\beta}(\mathbf{k}+\mathbf{q}_i)=\sum_{(n\neq 0)}\alpha_n\frac{n_\alpha n_\beta}{n^2}(1-e^{i(\mathbf{k}+\mathbf{q}_i)\mathbf{n}}) \quad (6)$$

де α_n силова постійна між 0 і n сусідом, n_α, n_β – проекції вектора $\boldsymbol{n}$ на осі α, β.

Розрахунок фононних спектрів проводився в програмному середовищі Maple. Розраховані графічні залежності дисперсії фононних віток кристалу Cu_6PS_5Br вздовж ліній Γ – X – M – R – Γ – M приведені на (Рис.1.). Отримані результати для точки Γ і їх порівняння з літературними даними представлено у Таблиці 3.

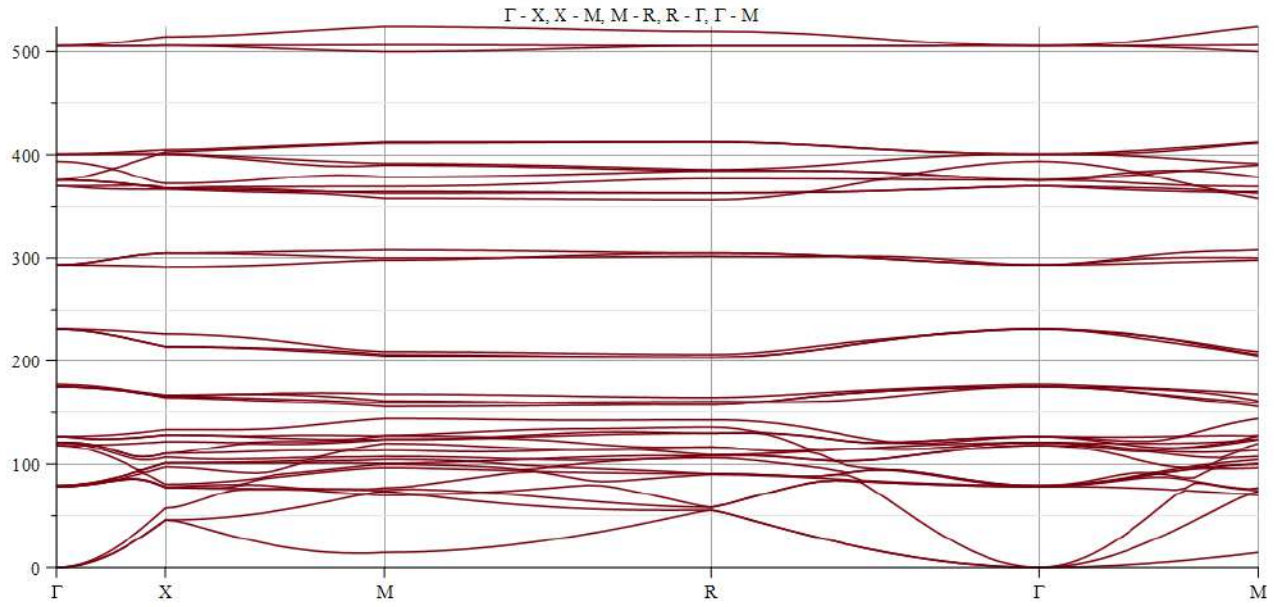


Рис.1. Фононні спектри кристалу Cu_6PS_5Br

Таблиця 3. Довгохвильові частоти коливань (в $см^{-1}$) в кубічній фазі кристалу Cu_6PS_5Br

Симетрія	**Теорія [11]**	**Експеримент [11]**	**Експеримент (наші дані)**
F_2	72.3i (TO); 59i (LO)		
F_1	51.7i (TO); 20i (LO)		
F_2	74.2	74	78.3
F_1	80.8	78	79.3
F_2	109.2		121.1
E	147.6	156	118.2
A	206.0	234	177.5
F_2	211.0	245	126.8
F_1	317.5		293.7
F_2	320.0	316	375.4
E	347.0		369.6
F_2	348.9		400.5
A	415.4	427	393.6
F_2	511.3i (TO); 521i (LO)	547 (TO); 558 (LO)	505.7

Висновки

Порівняння розрахованих нами дисперсних кривих (Рис. 1.) з даними комбінаційного розсіювання та першопринципних розрахунків [11] кристалів Cu_6PS_5Br (Табл. 3) показало, що результати добре узгоджуються між собою.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Julien C. Technological application of solid state ionics // Mater. Sci. Eng.: B. – 1990. – V.6, No.1. – P.9-28.
2. Yugami H., Ishigame M. Fundamental Physics and Promising Applications of Superionic Conductors // Jpn. J. Appl. Phys. – 1993. – V.32., Pt.1., No.2. – P.853-859.
3. Linford R.G., Hackwood S. Physical techniques for the study of solid electrolytes // Chem Rev. – 1981. – V.81, No.4. – P.327-364.

4. Huggins R.A. Some non-battery applications of solid electrolytes and mixed conductors // Solid State Ionics. – 1981. – V.5. – P. 15-20.
5. Укше Е.А., Вершинин Н.Н., Малов Ю.И. Функциональные элементы твердотельной электроники на суперионных проводниках // Зарубежная радиоэлектроника. – 1982. – №7. – С.53-67.
6. Aizu K. Possible Species of Ferro-magnetic, Ferroelectric and Ferroelastic Crystals // Phys. Review B. – 1970. – V.2, No.3. – P. 754-772.
7. Aizu K. Group-Theoretical Interpretation of Faintness Index for Ferroelectricity or Ferroelastictiy. II. Faintness Index of a Ferroic Phase // J. Phys. Soc. Jpn. – 1974. – V. 36, No.5. – P.1273-1279.
8. Aizu K. Considerations of Partially Ferroelastic and Partially Antiferroelastic Crystals and Partially Ferroelectric and Partially Antiferroelectric Crystals // J. Phys. Soc. Jpn. – 1970. – V.28, N.3. – P.717-722.
9. Aizu K. Determination of the State Parameters and Formulation of the Spontaneous Strain for Ferroelastics // J. Phys. Soc. Jpn. – 1970. – V.28, N.3. – P.706-716.
10. Haznar A., Pietraszko A., Studenyak I.P., X-ray Study of the Superionic Phase Transition in Cu_6PS_5Br // Solid State Ionics – 1999. – V.119, No.1-4. – P.31-36.
11. Studenyak I.P., Rushchanskii K.Z., Buchuk R.Yu., Stephanovich V.O. Phonon spectra of Cu_6PS_5Br superionic ferroelastic: experimental and theoretical studies // Condensed Matter Physics – 2007. – V.10. – No.1(49). – P.11-16.
12. De Wolf P.M. Symmetry operations for displacively modulated structures. // Acta Crystallogr. (A). – 1977. – V.33, No.3. – P.493-497.
13. Janssen J. On the lattice dynamics of incommensurate crystal // J. Phys. C: Solid State Phys. – 1979. – V.12., No.24. – P.5381-5392.
14. Небола И.И., Хархалис Н.Р., Копцик А.В. Дисперсия фононного спектра сложных кристаллов типа NaCl в коцепции сверхпространственной симметрии // ФТТ. – 1987. – Т.29, № 11. – С. 3223–3232.
15. Небола И.И, Хархалис Н.Р., Копцик А.В. Динамика решетки алмазоподобных полупроводников в концепции сверхпространственной симметрии // ФТТ. – 1990. – Т.32, №4. – С.972-979.
16. Небола И.И, Иваняс А.Ф., Киндрат В.Я. Генезис структуры и колебательных спектров кристаллов с ($Sa\times Sa\times Sa$) сверхрешеткой // ФТТ. – 1993. – Т.35, №7. – С.1852-1866.
17. Ансельм А.И., Введение в теорию полупроводников, Изд. 2-е. – М.: Наука, 1978. – 616 с.

Стаття надійшла до редакції 3.12.2017.

И.И. Небола, А.Я. Штейфан, А.Ф. Катаница, И.П. Студеняк
Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54

ФОНОННЫЕ СПЕКТРЫ СЕМЕЙСТВА АРГИРОДИТОВ

На примере Cu_6PS_5Br рассмотрена кристаллическая структура семейства аргиродитов. В концепции сверхпространственной симметрии описана кристаллическая структура, представлены (3+3)-мерный базис, совокупность векторов модуляции и массовых модуляционных функций. Проведен расчет дисперсии фононного спектра, приведены дисперсионные зависимости

фононного спектра в высокосимметрических направлениях (Г – X – M – R – Г – M) зоны Бриллюэна данного кристалла.

Ключевые слова: аргиродиты, кристаллическая структура, сверхрешетка, сверхпространственная симметрия, фононный спектр, Maple.

PACS 61.66.Fn
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.47-53

I.I. Nebola, A.Ya. Shteyfan, A.F. Katanytsia, I.P. Studenyak
Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Voloshin Str., 54

PHONON SPECTRA OF ARGYRODITES FAMILY

Introduction: The compound Cu_6PS_5Br belongs to the large family of complex chalcohalides crystallizing in the argyrodite structures. At ambient temperature, the crystals under investigation are characterized by high symmetry: cubic syngony, space group F–43m, lattice parameter a = 9.708 Å. The main peculiarity of the copper-containing argyrodites is high solid-state ionic conductivity of the Cu^+ ions, which makes it possible to use these argyrodite crystals as functional electronic materials.
Purpose: The main goal of the present work was to develop (within the superspace symmetry concept) the program suitable for theoretical calculation of the phonon spectra for the Cu_6PS_5Br argyrodites and to conduct the relevant calculations.
Methods: In the present study, the crystal structure of the Cu_6PS_5Br argyrodites have been analyzed and described by using the superspace symmetry concept.
Results: The program operating under the Maple environment and suitable for theoretically calculating the phonon spectra of the Cu_6PS_5Br argyrodite crystals has been developed. Zone structures have been calculated and presented for a series of model Cu_6PS_5Br phases. The eigenvalues of the generalized dynamic matrix have been found, and the dispersion dependencies have been built for the directions Г – X – M – R – Г – M of the Brillouin zone.
Keywords: argyrodites, crystal structure, protocrystal, phonon spectrum, Maple.

REFERENCES

1. Julien, C. (1990), “Technological application of solid state ionics”, *Mater. Sci. Eng.: B.*, vol.6, no.1, pp.9-28.
2. Yugami, H. and Ishigame, M. (1993), “Fundamental Physics and Promising Applications of Superionic Conductors”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol.32., pt.1., no.2, pp.853-859.
3. Linford, R.G. and Hackwood, S. (1981), “Physical techniques for the study of solid electrolytes”, *Chem Rev.* vol.81, no.4, pp.327-364.
4. Huggins, R.A. (1981), “Some non-battery applications of solid electrolytes and mixed conductors”, *Solid State Ionics*, vol.5, pp.15-20.
5. Ukshe, E.A., Vershinin, N.N. and Malov, Yu.I. (1982), “Functional elements of solid-state electronics on superionic conductors”, *Zarubezhnaya radio-elektronika*, no.7., pp.53-67.
6. Aizu, K. (1970), “Possible Species of Ferromagnetic, Ferroelectric and Ferroelastic Crystals”, *Phys. Review B*, vol.2, no.3., pp. 754-772.
7. Aizu, K. (1974), “Group-Theoretical Interpretation of Faintness Index for Ferroelectricity or Ferroelastictiy. II. Faintness Index of a Ferroic Phase”, *J. Phys. Soc. Jpn.* vol.36, no.5, pp.1273-1279.
8. Aizu, K. (1970), “Considerations of Partially Ferroelastic and Partially Antiferroelastic Crystals and Partially Ferroelectric and Partially Anti-ferroelectric Crystals”, *J. Phys. Soc. Jpn.*, vol.28, no.3, pp.717-722.
9. Aizu, K. (1970), “Determination of the State Parameters and Formulation of the

Spontaneous Strain for Ferroelastics", *J. Phys. Soc. Jpn.*, vol.28, no.3, pp.706-716.

10. Haznar, A., Pietraszko, A. and Studenyak, I.P. (1999), "X-ray Study of the Superionic Phase Transition in Cu_6PS_5Br", *Solid State Ionics*, vol.119, no.1-4, pp.31-36.
11. Studenyak, I.P., Rushchanskii, K.Z., Buchuk, R.Yu., Stephanovich, V.O. (2007), "Phonon spectra of Cu_6PS_5Br superionic ferroelastic: experimental and theoretical studies", *Condensed Matter Physics*, vol.10, no.1(49), pp.11-16.
12. De Wolf, P. M. (1977), "Symmetry operations for displacively modulated structures", *Acta Crystallogr. (A)*, vol.33, no.3., pp.493-497.
13. Janssen, J. (1979), "On the lattice dynamics of incommensurate crystal", *J. Phys. C: Solid State Phys.*, vol.12., no.24., pp.5381-5392.
14. Nebola, I.I., Kharkhalis, N.R. and Koptsik, A.V. (1987), "The dispersion of the phonon spectrum of the complex NaCl-type crystals in the superspace symmetry concept" ["Dispersiya fononnogo spektra slozhnikh kristallov tipa NaCl v kontseptsii sverkhprostranstvennoy simmetrii"], *Solid State Physics* [*Fiz. Tv. Tel.*], vol.29, no.11, pp.3223-3232.
15. Nebola, I.I., Kharkhalis, N.R. and Koptsik, A.V. (1990), "Lattice dynamics of the diamond-like semiconductors in the superspace symmetry concept" ["Dinamika reshetki almazopodobnykh poluprovodnikov v kontseptsii sverhprostranstvennoy simmetrii"], *Solid State Physics* [*Fiz. Tv. Tel.*], vol.32, no.4, pp. 972-979.
16. Nebola, I.I., Ivanyas, O.F. and Kindrat, V.Y. (1993), "The genesis of the structure and vibrational spectra of crystals with the ($Sa\times Sa\times Sa$) superlattice" ["Genesis struktury i kolebatel'nikh spektrov kristallov s ($Sa\times Sa\times Sa$) - sverkhreshetkoy"], *Solid State Physics* [*Fiz. Tv. Tel.*], vol.35, no.7, pp.1852-1866.
17. Anselm, A.I. (1978), *Introduction to the theory of semiconductors*, 2nd ed. [*Vvedenie v teoriyu poluprovodnikov*, Izd. 2-e.], Nauka, Moscow, USSR.

© Ужгородський національний університет

УДК 621.315 : 535.215
PACS 31.15.A, 31.15.ae,71.15.Mb, 71.20.-b, 74.20.Pq, 73.21.Cd, 78.20.Ci
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.54-61

К.Є. Глухов[1], Л.Ю. Хархаліс[1], Т.Я. Бабука[1,2]
[1]Ужгородський національный університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54
[2] Інститут фізики, Університет ім. Яна Дуглоша в Ченстохові, ал. Армії Крайовей, 13/15, 42200 Ченстохова, Польща;
e-mail: lkharkhalis@gmail.com

AB INITIO ДОСЛІДЖЕННЯ ОПТИЧНИХ ХАРАКТЕРИСТИК АНТИФЕРОМАГНЕТИКА $FePS_3$

У даній роботі проведено дослідження електронних та оптичних властивостей шаруватого кристалу $FePS_3$. Вперше розраховано енергетичний зонний спектр та парціальні густини станів з використанням *ab initio* підходу. Базуючись на розрахунках зонної структури, одержано енергетичні залежності для оптичних характеристик, а саме дійсна і уявна частина діелектричної проникливості та показник заломлення і показник поглинання кристала $FePS_3$.
Ключові слова: Електронна зонна структура; Парціальні густини станів; Оптичні коефіцієнти

Вступ

Серед великої кількості сполук з аніонним комплексом $[P_2Se_6]^{4-}$ значний інтерес представляють кристали типу MPS_3 (M-Fe, Mn, Co). Дані матеріали є парамагнетиками при кімнатній температурі і антиферомагнетиками при низьких температурах. Завдяки незвичайним електричним, оптичним і магнітним властивостям в останній час вони широко застосовуються в якості нелінійних оптичних, магнітних, фотомагнітних і катодних матеріалів [1,2]. Також дані кристали характеризуються слабким міжшаровим ван дер Ваальсівським зв'язком, що дозволяє інтеркалювати їх різними лужними металами. Це відкриває можливість їх використання як електроактивних елементів у літієвих комір- ках [3].

Фізичні властивості чистого та інтеркальованого кристалів $FePS_3$ були вивчені раніше авторами робіт [4-7]. Електронні спектри для даного матеріалу та споріднених з ним сполук MPS_3 (M = Mn, Ni) представлені в роботі [8]. Авторами [6, 9-11] проводились експериментальні дослідження фотоемісійних спектрів, спектрів відбивання і поглинання та спектрів комбінаційного розсіювання для об'ємного кристалу $FePS_3$ і шарів на його основі [12,13]. 2D-матеріали типу MPS_3 (M = Fe, Mn, Ni, Cd, Zn) і $MPSe_3$ (M = Fe, Mn) викликають підвищений інтерес завдяки новим електронним, механічним і фотокаталітичним властивостям та перспективам їх використання в фотокаталізі [14].

Метою даної роботи є детальний аналіз електронних і оптичних властивостей антиферомагнетика $FePS_3$, одержаних квантово-механічними розрахунками із перших принципів.

Особливості кристалічної структури антиферомагнетика $FePS_3$

Згідно рентгеноструктурних досліджень [15, 16] $FePS_3$ кристалізується в моноклінній сингонії і описується просторовою групою C2/*m*. Параметри гратки рівні a = 5.946 Å, b = 10.300 Å, c = 6.7222 Å, і β = 107.16°. Координати атомів приведені в таблиці 1. Елементарна комірка (рис.1) містить 20 атомів, які утворюють перпендикулярно до напрямку Oz два відокремлені шари, між якими наявний слабкий ван дер Ваальсовий зв'язок.

Таблиця 1. Координати атомів в комірці $FePS_3$

Атом	***x***	***y***	***z***	**Позиція Викоффа**
Fe	0.0000	0.3326	0.0000	4g
P1	0.0566	0.0000	0.1692	4i
S1	0.7501	0.0000	0.2470	4i
S2	0.2488	0.1655	0.2485	8j

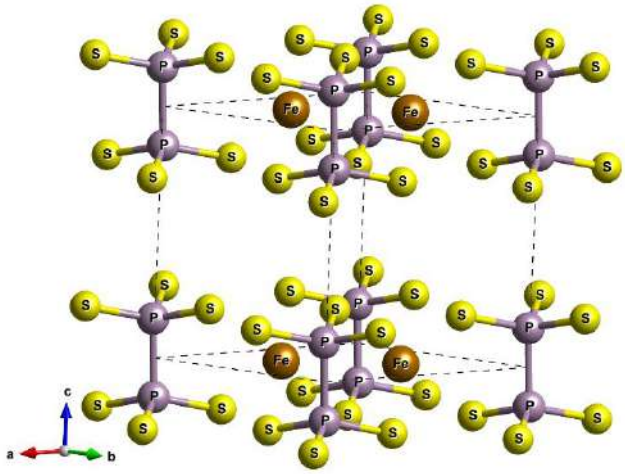


Рис.1. Елементарна комірка $FePS_3$

Зонний спектр та парціальні густини станів

Розрахунки електронного спектру шаруватого кристалу $FePS_3$ проведено в *ab initio* підході при використанні теорії функціонала електронної густини, реалізовану у пакеті ABINIT [17]. Обмінно-кореляційна взаємодія враховувалася у лінійному наближенні (LDA) [18,19], псевдопотенціали атомів вибиралися у параметризації Хорвігзена-Гоедекера-Хаттера [20]. Електронні конфігурації атомів заліза, фосфору та сірки були наступні: Fe – $3d^6 4s^2$, P – $3s^2 3p^3$, S –$3s^2 3p^4$.

База плоских хвиль, що використовувалися для розкладу псевдохвильових функцій, була обмежена енергією відсічки 720 еВ. Інтегрування по зоні Бріллюена здійснювалося методом тетраедрів, побудованих по сітці особливих точок, обраних за алгоритмом Монхорста-Пака [21] зі щільністю 3x3x2. Також були враховані спінові ступені вільності електронів.

Обчислення повної енергії для різних спінових конфігурацій свідчить про те, що кристал $FePS_3$ є антиферомагнетиком.

На рис. 3 приведена зонна структура та парціальні густини *s*, *p* і *d*-станів для $FePS_3$. Валентна зона складається з 62 підзон. Максимум валентної зони зосереджений в т. Г, а мінімум зони провідності – в напрямку M–A зони Бріллюена (рис.2). Ширина непрямої забороненої зони згідно наших розрахунків складає E_g^{calc}=0.985 еВ (E_g^{exp}~1.59 еВ [4], E_g^{exp}~1.3 еВ [12]). Краї валентної зони та зони провідності в основному формуються, як випливає з рис.3 (а,б,в), *p*-орбіталями фосфору і сірки, та *d*-орбіталями заліза. *s*-орбіталі атомів P і S вносять суттєвий вклад в низькоенергетичну частину валентної зони в області енергій –18 ÷ –12 еВ.

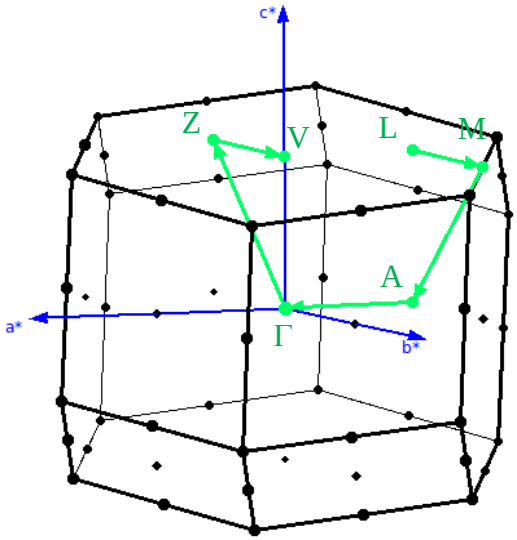


Рис.2. Зона Бріллюена та координати високосиметричних точок вздовж контуру обходу L(–½, 0, ½), M(–½, ½, ½), A(–½, 0, 0), Г(0, 0, 0), Z(0, –½, ½), V(0, 0, ½)

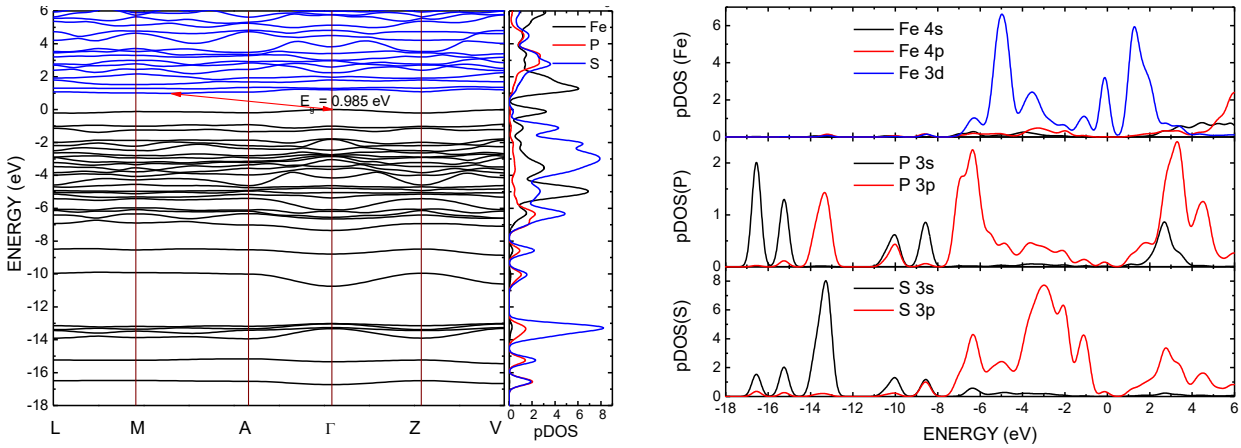


Рис.2 Зонна структура та парціальні густини станів для $FePS_3$

Оптичні властивості $FePS_3$

З розрахованої зонної структури для кристалу $FePS_3$ нами одержано енергетичні залежності для реальної та уявної частин діелектричної проникливості, та, відповідно, енергетичні залежності для показника заломлення і показника поглинання для різних поляризацій світла.

Як відомо, комплексна діелектрична функція, яка відображає лінійний відклик системи на зовнішнє електромагнітне поле, має вигляд:

$$\varepsilon(\omega)=\varepsilon_1(\omega)+i\varepsilon_2(\omega), \qquad (1)$$

де $\varepsilon_2(\omega)$ визначається з перших принципів [22,23]:

$$\varepsilon_2(\vec{q}\to 0,\hbar\omega)=\frac{4e^2\pi}{m^2\omega}\int d^3\vec{k}\sum_{n.n'}\left|\left\langle \vec{k}n\left|\vec{P}\right|\vec{k}n'\right\rangle\right|^2 f_{\vec{k}n}(1-f_{\vec{k}n'})\delta\left(E_{\vec{k}n}-E_{kn'}-\hbar\omega\right) \qquad (2)$$

а $\varepsilon_1(\omega)$ за допомогою співвідношення Крамерса-Кроніга [24]:

$$\varepsilon_1(\omega)=1+\frac{2}{\pi}P\int_{-\infty}^{\infty}\frac{\omega'\varepsilon_2(\omega')}{\omega'^2-\omega^2}d\omega'$$

Оптичні константи, які використовуються при феноменологічному описі оптичних властивостей, зв'язані між собою рівняннями

$$\varepsilon_1=n^2-k^2,\quad \varepsilon_2=2nk, \qquad (3)$$

де n показник заломлення, а k – показник поглинання.

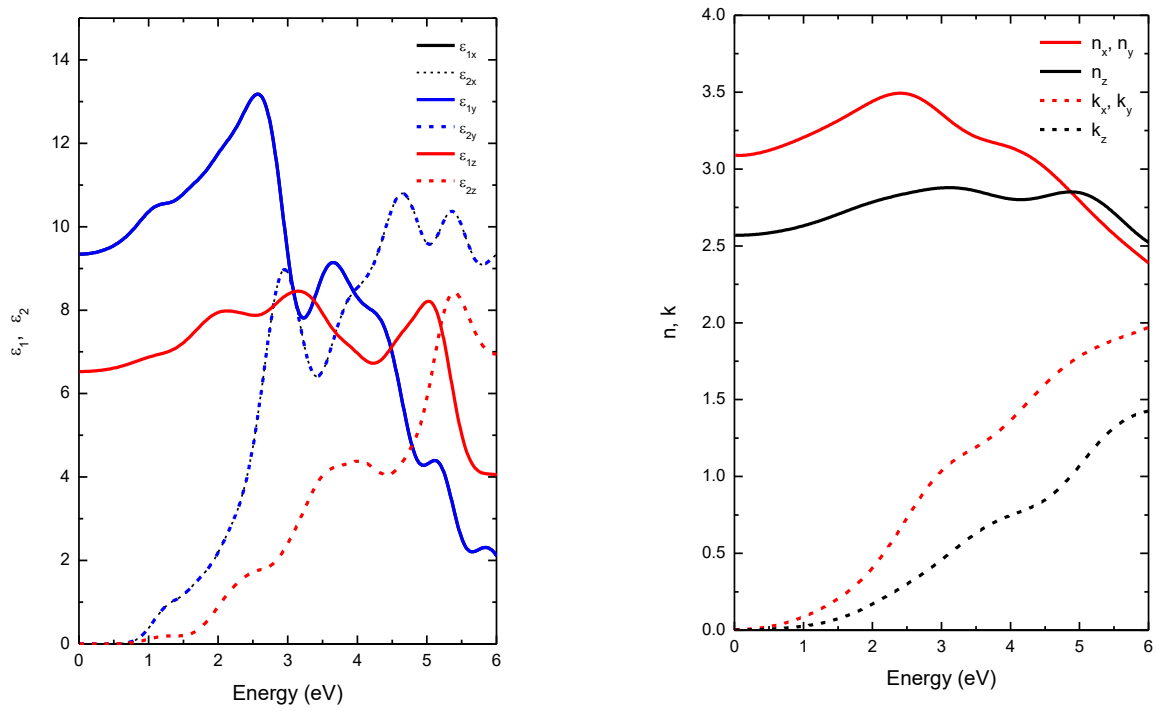
Для розрахунку $\varepsilon_2(\omega)$, який включає дипольні матричні елементи, вибиралось 30 ***k***-точок в зоні Бріллюена.

Одержані нами оптичні спектри приведені на рис.3 *а*, *б*. Слід відмітити, що енергетичні залежності для $\varepsilon_1(\omega),\varepsilon_2(\omega)$, $n(\omega)$ і $k(\omega)$ для поляризацій світла $E \parallel x$ і $E \parallel y$ вздовж x і y напрямків повністю співпадають, що пов'язується з симетрією кристалу $FePS_3$. При енергії E=0 $n_x=n_y=3.1$, а $n_z=2.51$ (n_{exp}~2.49 [6]). Максимальний для показника заломлення пік ($n_{x,y}$~3.5) для випадків $E \parallel x$ і $E \parallel y$ і для $E \parallel z$ (n_{zz}~2.75) спостерігається в області енергій E~ 2.5 еВ, що відповідає ближній інфрачервоній області спектру. Основною особливістю для даного параметра, як видно з рис.3 б, є виявлена анізотропія ($n_{x,y}/n_z$ = 1.27). Цікаво відмітити, що в області енергій E~5 еВ має місце інверсія анізотропії для даного оптичного параметра та її зменшення при E>5 еВ ($n_z/n_{x,y}$ =1.1) . Подібна анізотропна тенденція зберігається і для дійсної частини діелектричної проникливості. Найбільше значення є для $\varepsilon_{1x,y}(\omega)$~13 при E~2.2.еВ і $\varepsilon_{1z}(\omega)$~8.2 при E~3.2 еВ. Для енергії E=0 ці параметри рівні $\varepsilon_{1x,y}$~9.3 і ε_{1z}~6.5.

Як видно з рис.3.а, енергетична залежність для уявної частини діелектричної проникливості характеризується наявністю

декількох піків в області 2.5÷6 еВ. Для поляризацій світла в x і y напрямках найбільш інтенсивні піки мають місце при 2.8; 4.5 і 5.5 еВ, а для z-напрямку наявні більш пологі піки при 2.5, 4, 5.5 еВ, що корелює з даними авторів [6, 8].

З рис.3 а і 3 б випливає, що енергетичний край як для $\varepsilon_2(\omega)$, так і для $k(\omega)$ реалізуються при енергії E~1 еВ, що відповідає ширині забороненої зони, і є оптичним відображенням електронної зонної структури для антиферомагнетика $FePS_3$.



а) *б)*

Рис.4. Енергетичні залежності для оптичних характеристик: а) дійсної і уявної частин діелектричної проникливості: б) показника заломлення і показника поглинання.

Висновки

У даній роботі представлені результати першопринципних розрахунків в теорії функціоналу густини електронної структури та оптичних властивостей для антиферомагнетика $FePS_3$. Проаналізовано електронний зонний спектр, парціальні густини станів, енергетичні залежності для показника заломлення і коефіцієнта поглинання. Виявлена суттєва анізотропія в оптичних константах для різних областей енергії та кореляція з експериментальними даними.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Ismail N., El-Meligi A.A., Temerk Y.M., Badr M.A., Madian M. Synthesis and characterization of $MnPS_3$ for hydrogen sorption// J. of Solid State Chem.- 2010.- V. 183.- P. 984.
2. El-Meligi A.A., Madian M., Ismail N. Fabrication and Characterization Single Crystal of $FePS_3$ Layered Materal//International Advanced Research Journal in Science, Engineering and Technology.- 2015.- V. 2- No. 12.- P. 117-120.
3. Kuzminskii Y.V., Voronin B.M., Redin N.N. Iron and nickel phosphorus trisulfides as electroactive materials for primary lithium batteries// J. of Power Sources 1995. - V. 55(2). - P. 133-141.
4. Foot P.J.S., Suradi J., Lee P.A. Optical and electronic properties of the layered

semiconductors $NiPS_3$ and $FePS_3$// Mat. Ress. Bull.- 1980.- V. 15.- P. 189-193.

5. Barj M., Sourisseau C., Ouvrard G., Brec R. Infrared studies of lithium intercalation in the $FePS_3$ and $NiPS_3$ layer-type compounds//Solid State Ionics.- 1983.- V. 11.- No.2.- P. 179-183.
6. Piacentni M., Grasso V., Santangelo S., Fanfoni M., Modesti S., Savoia A. (Soft x-ray absorption of $FePS_3$ and $NiPS_3$//Solid State Communications.- 1984.- V. 51.- No. 7.- P. 467-472.
7. Kristie J.K., Cui Y. The new skinny in two-dimensional nanomaterials// ACS NANO (in press).
8. Kurita N., Nakao K. Band Structures and physical properties of magnetic layered semiconductors $FePS_3$// Journ. of the Physical Society of Japan.- 1989.- V.58.- No2.- P.610-621.
9. Cleary D.A., Francis A.H. Analysis of the Mid-IR Electronic Absorption Spectra of $Fe_2P_2S_6$ and $Co_2P_2S_6$// J. Phys. Chem.- 1988. - V. 92.- P. 2415-2419.
10. Piacentini M., Khumalo F.S., Leveque G., Olson C.G., Lynch D.W. X-ray photoemission and optical spectra of $NiPS_3$, $FePS_3$ and $ZnPS_3$// Chemical Physics.- 1982.- V. 72.- P. 61-71.
11. Khumalo F.S., Hughes H.P. Reflectance spectra of some $FePS_3$-type layer compounds in the vacuum ultraviolet//Phys. Rev. B.- 1981.- V. 23.- P. 5375-5383.
12. Du K.-Z., Wang X.-Z., Liu Y., Hu P., Utama M. I. B.C., Gan K., Xiong Q., Kloc C. Weak van der Waal stacking , wide-range band gap and Raman study on ultrathin layers of metal phosphorous trichalcogenides//ACS Nano.- 2016.- V. 10.- P. 1738- 1757.
13. Wang X., Du K., Yang Yu., Liu F., Hu P. et.al. Raman spectroscopy of atomically thin two-dimensional magnetic iron phosphorrus trisulfide ($FePS_3$) crystals// 2D Mater.- 2016. -V. 3.- P. 031009-1 - 031009-9.
14. ıZhang, X., Zhao, X.D, Wu, D.H, Jing, Y., Zhou, Z. $MnPSe_3$ Monolayer: A Promising 2D Visible-Light Photohydrolytic Catalyst with High Carrier Mobility// Advanced Science.- 2016.- V. 3.- P. 1600062-1- 1600062-5.
15. Clement R., Lomas L., Audiere J.P. Intercalation chemistry of layered iron trithiohypophosphate ($FePS_3$). An approach toward insulating magnets below 90 K// Chem. Mater.- 1990.- V. 2.- No. 6.- P. 641-643.
16. Joy P.A., Vasudevan S. Magnetism in the layered transition-metal thiophosphates MPS_3 (M=Mn, Fe, and Ni)// J. Am. Chem. Soc. -1992.- V. 114.-P. 7792.
17. Gonze X., Beuken J.M., Caracas R., Detraux F., Fuchs M., Rignanese G.M., Sindic L., Verstraete G., Zerah G., Jollet F., Torent M., Roy A., Mikami M., Ghosez Ph., Raty J.-Y., Allan D.C. First-prin-ciples computation of material prope-rties: the ABINIT software project// Comput. Mater. Sci. - 2002.- V. 25.- P. 478.
18. Hohenberg P., Kohn W. Inhomogeneous Electron Gas// Phys. Rev., 1964.- V. 136.- No. 3.- P. B864–B871.
19. Kohn W., Sham L.J. Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects// Phys. Rev., 1965. - V. 140. - No. 4. -P. A1133–A1138.
20. Hartwigsen C., Goedecker S., Hutter J. Relativistic separable dual-space Gaussian pseudopotentials from H to Rn// Phys. Rev. B.- 1998.- V. 58.- P. 3641–3662.
21. Monkhorst H.J., Pack J.D. Special points for Brillouin-zone integrations// Phys. Rev. B.- 1976.- V. 13. No. 12.- P. 5188–5192.
22. Read A. J., Needs R. J. Calculation of optical matrix elements with nonlocal pseudopotentials.- Phys. Rev. B.- 1991.- V. 44.- P. 13071-13073.
23. Palik E. D. Handbook of optical constants of solids. – Orlando: Academic Press, 1985.
24. Бассани, Ф., Пастори Парравичини, Дж. Электронные состояния и оптические переходы в твердых телах. – Москва: Наука, 1982. – 388 с.

Стаття надійшла до редакції 29.11.2017

К.Е. Глухов[1], Л.Ю. Хархалис[1], Т.Я. Бабука[1,2]
[1]Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54;
[2] Институт физики, Университет им. Яна Длугоша в Ченстохове, ал. Армии Крайовой, 13/15, 42200 Ченстохова, Польша

AB INITIO ИССЛЕДОВАНИЕ ОПТИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК АНТИФЕРРОМАГНЕТИКА $FePS_3$

В данной работе проведено исследование электронных и оптических свойств слоистого кристалла $FePS_3$. Впервые рассчитаны энергетический зонный спектр и парциальные плотности состояний с использованием *ab initio* подходов. Основываясь на расчётах зонной структуры, получены энергетические зависимости оптических характеристик, а именно, действительная и мнимая части диэлектрической проницаемости, показатель преломления и показатель поглощения кристалла $FePS_3$.
Ключевые слова: Электронная зонная структура; Парциальные плотности состояний; Оптические коэффициенты

PACS 31.15.A, 31.15.ae,71.15.Mb, 71.20.-b, 74.20.Pq, 73.21.Cd, 78.20.Ci
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.54-61
K.E. Glukhov[1], L.Yu. Kharkhalis[1], T.Ya. Babuka[1,2]
[1]Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Voloshin Str., 54
[2]Institute of Physics, Faculty of Mathematics and Natural Science, Jan Dlugosz University in Czestochowa, Al. Armii Krajowej 13/15, 42-200 Czestochowa, Poland

AB INITIO INVESTIGATIONS OF THE OPTICAL CHARACTERISTICS OF $FePS_3$ ANTIFERROMAGNETIC

Introduction. Layered thiophosphates $FePS_3$ is the van-der-Waals crystal with interesting physical and chemical properties. In particular, its layered structure gives a clear pathway to obtain the 2D material by exfoliation method. Exhibiting high structural anisotropy, the mentioned material can be intercalated by alkali metal ions without any significant distortion of lattice parameters, making it promising candidate for the creation of low-cost cathodes for high-energy-density batteries. An electronic band-structure model for $FePS_3$ crystal is needed for both academic and technological reason.
Purpose. The main aim of our paper is to carry out a complete DFT-based search to investigate of the electronic and optical properties for the antiferromagnetic compound $FePS_3$.
Methods. Quantum chemical calculations in this work were performed in the framework of density functional theory (DFT) within local approximation for exchange-correlation interaction (LDA) and dispersion correction (DFT-D) methodology. Optical properties obtained from calculated ε_1 and ε_2 energy dependencies.
Results. In the results of our work, the electronic and optical properties of $FePS_3$ crystal were investigated. In addition, the energy band spectra and partial density of state for the antiferromagnetic phase of $FePS_3$ crystal were calculated. Also, the real and imaginary part of dielectric insensitivity, refractive index and absorption index from first principle calculations were obtained.
Conclusion. For the first time we carried out the investigations of the optical characteristics for the $FePS_3$ layered antiferromagnetic on the basis of the electronic band spectrum calculation. The detail analysis of the optical spectra and the evaluations of the refractive index and dielectric constants shows the essential anisotropy in the different energy ranges. Our results for electronic and optical properties are compared with the experimental and other theoretical results.
Keywords: Electronic band structure, partial density of state, optical characteristics

REFERENCES

1. Ismail N., El-Meligi A.A., Temerk Y.M., Badr M.A., Madian M. (2010), "Synthesis and characterization of $MnPS_3$ for hydrogen sorption", J. of Solid State Chem., V. 183, p. 984.
2. El-Meligi A.A., Madian M., Ismail N. (2015), "Fabrication and Characterization Single Crystal of $FePS_3$ Layered Material", International Advanced Research Journal in Science, Engineering and Technology, V. 2, No.12, pp. 117-120.
3. Kuzminskii Y.V., Voronin B.M., Redin N.N. (1995), "Iron and nickel phosphorus trisulfides as electroactive materials for primary lithium batteries", J. of Power Sources, V. 55(2), pp. 133-141.
4. Foot P.J.S., Suradi J., Lee P.A. (1980), "Optical and electronic properties of the layered semiconductors $NiPS_3$ and $FePS_3$", Mat. Ress. Bull., V. 15, pp. 189-193.
5. Barj M., Sourisseau C., Ouvrard G., Brec R. (1983), "Infrared studies of lithium intercalation in the $FePS_3$ and $NiPS_3$ layer-type compounds", Solid State Ionics, V. 11, No. 2, pp. 179-183.
6. Piacentni M., Grasso V., Santangelo S., Fanfoni M., Modesti S., Savoia A. (1984), "Soft x-ray absorption of $FePS_3$ and $NiPS_3$", Solid State Communications, V. 51, No.7, pp. 467-472.
7. Kristie J.K., Cui Y., "The new skinny in two-dimensional nanomaterials", ACS NANO (in press).
8. Kurita N., Nakao K. (1989), "Band Structures and physical properties of magnetic layered semiconductors $FePS_3$", Journ. of the Physical Society of Japan, V. 58, No. 2, pp. 610-621.
9. Cleary D.A., Francis A.H. (1988), "Analysis of the Mid-IR Electronic Absorption Spectra of $Fe_2P_2S_6$ and $Co_2P_2S_6$", J. Phys. Chem., V. 92, pp. 2415-2419.
10. Piacentini M., Khumalo F.S., Leveque G., Olson C.G., Lynch D.W. (1982), "X-ray photoemission and optical spectra of $NiPS_3$, $FePS_3$ and $ZnPS_3$", Chemical Physics, V. 72, pp. 61-71.
11. Khumalo F.S., Hughes H.P. (1981), "Reflectance spectra of some $FePS_3$-type layer compounds in the vacuum ultraviolet", Phys. Rev. B, V. 23, pp. 5375-5383
12. Du K.-Z., Wang X.-Z., Liu Y., Hu P., Utama M. I. B.C., Gan K., Xiong Q., Kloc C. (2016), "Weak van der Waal stacking, wide-range band gap and Raman study on ultrathin layers of metal phosphorous trichalcogenides", ACS Nano, V. 10, pp. 1738- 1757.
13. Wang X., Du K., Yang Yu, Liu F., Hu P. et.al. (2106), "Raman spectroscopy of atomically thin two-dimensional magnetic iron phosphorus trisulfide ($FePS_3$) crystals", 2D Mater., V. 3, pp. 031009-1 - 031009-9.
14. Zhang X., Zhao X. D, Wu D. H, Jing Y., Zhou Z. (2016), "$MnPSe_3$ Monolayer: A Promising 2D Visible-Light Photohydrolytic Catalyst with High Carrier Mobility", Advanced Science, V. 3, pp. 1600062-1-1600062-5.
15. Clement R., Lomas L., Audiere J. P. (1990), "Intercalation chemistry of layered iron trithiohypophosphate ($FePS_3$). An approach toward insulating magnets below 90 K", Chem. Mater., V. 2, 6, pp. 641-643.
16. Joy P.A., Vasudevan S. (1992), "Magnetism in the layered transition-metal thiophosphates MPS_3 (M=Mn, Fe, and Ni)" J. Am. Chem. Soc., V. 114, p. 7792.
17. Gonze X., Beuken J.M., Caracas R., Detraux F., Fuchs M., Rignanese G.M., Sindic L., Verstraete G., Zerah G., Jollet F., Torent M., Roy A., Mikami M., Ghosez Ph., Raty J.-Y., Allan D.C. (2002), „First-principles computation of material properties: the ABINIT software project" Comput. Mater. Sci., V. 25, p. 478.
18. Hohenberg P., Kohn W. (1964), "Inhomogeneous Electron Gas", Phys. Rev., V. 136, No.3. pp. B864–B871.
19. Kohn W., Sham L.J. (1965), "Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects", Phys. Rev., V. 140, No.4. pp. A1133–A1138.
20. Hartwigsen C., Goedecker S., Hutter J. (1998), "Relativistic separable dual-space

Gaussian pseudopotentials from H to Rn", Phys. Rev. B, V. 58, pp. 3641–3662.
21. Monkhorst H.J., Pack J.D. (1976), "Special points for Brillouin-zone integrations", Phys. Rev. B., V. 13, No.12, pp. 5188–5192.
22. Read A. J., Needs R. J. (1991), "Calculation of optical matrix elements with nonlocal pseudopotentials", Phys. Rev. B, V. 44, pp. 13071-13073.
23. Palik, E. D., Handbook of optical constants of solids. – Orlando: Academic Press, 1985.
24. Bassani, F., Pastori Parraichini, Dzh. (1982), „Electronic states and optical transitions in solids" [„Electronnie sostojanija I opticheskije perekhody v terdykh telakz"], Moskva.: Nauka, Moscow, 388 p.

© Ужгородський національний університет

УДК 539.186
PACS: 03.65.–w, 34.50.–s, 34.80.Dp, 34.70.+e
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.62-72

В. Ю. Лазур[1], М. І. Карбованець[1], В. В. Алексій[1], С. І. Мигалина[2]
[1]Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54
[2]Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Університетська, 14а
e-mail: volodymyr.lazur@uzhnu.edu.ua

МЕТОД ФУНКЦІЙ ГРІНА В ТЕОРІЇ ОДНОЕЛЕКТРОННОЇ ПЕРЕЗАРЯДКИ МОЛЕКУЛЯРНОГО ІОНА ВОДНЮ НА ГОЛИХ ЯДРАХ

В рамках наближення Оппенгеймера-Брінкмана-Крамерса (ОБК) досліджується процес кулонівської перезарядки голого або екранованого іону на орієнтованій молекулі або молекулярному іоні. Для розрахунку ймовірностей і перерізів перезарядки розвинуто метод функцій Гріна, який дозволяє провести підсумовування за дискретним і інтегрування за неперервним спектром налітаючого іону. Застосування розробленої теорії продемонстровано на прикладі реакції перезарядки протона на повздовжньо орієнтованому (по відношенню до вектора швидкості) молекулярному іоні водню.
Ключові слова: ОБК-наближення, функція Гріна, перезарядка, молекулярний іон, електрон.

Вступ

Захоплення електрона багатозарядними іонами є одним із основних процесів, який відіграє важливу роль в енергетичному балансі високотемпературної плазми. Для оцінки потоку випромінювання збуджених іонів, що виникають, необхідно знати перерізи захоплення електрона як функції від енергії зіткнення. Крім того, в ряді випадків дуже корисним виявляється знання залежностей імовірностей окремих зв'язано-зв'язаних і зв'язано-вільних переходів від прицільного параметра.

Зітнення не повністю іонізованих атомів з атомами інертних газів, молекулами і молекулярними іонами теоретично вивчені в роботах [1, 2], а експериментально в роботах [3, 4]. В даній праці виконані розрахунки ймовірностей і перерізів захоплення електрона молекулярного іона водню багатозарядними іонами, які мають, взагалі кажучи, довільне число залишкових електронів, типу

$$A^{Z_p^{'}+} + H_2^+ \to A^{(Z_p^{'}-1)+} + H^+ + H^+ . \quad (1)$$

Вважаємо, що швидкості зіткнень більше орбітальної швидкості електронів мішені.

Іони H_2^+ є компонентами термоядерної плазми, тому для фізики керованого термоядерного синтезу найбільший інтерес представляють залежності ймовірностей і перерізів процесу (1) від зараду і швидкості налітаючого іона, а токож від заселеності електронних станів новоствореного іона $A^{(Z_p^{'}-1)+}$ за головним і орбітальним квантовими числами. Специфікою процесів перезарядки з участю молекулярних іонів є багатоцентровий характер розподілу електронної густини, що призводить, як показано в цій роботі, до осциляцій в перерізах цих процесів.

Загальні співвідношення

Вважатимемо, що налітаючий іон $A^{Z_p^{'}+}$ має N електронів, які рухаються в полі ядра з зарядом Z. Потенціал взаємодії електрона молекулярного іона H_2^+ з іоном $A^{Z_p^{'}+}$ виберемо у вигляді екранованого кулонівського:

$$V_p = -\frac{Z_p^{'}}{r_p} - \frac{N}{r_p}\exp(-\alpha r_p),$$

$$Z_p^{'} = Z - N, \quad \alpha = Z^{1/3}. \qquad (2)$$

Перший доданок в правій частині (2) має вигляд кулонівського потенціала з екранованим зарядом $Z_p^{'}$, а другий – враховує відхилення реального потенціала поля, в якому знаходиться електрон, від кулонівського; $\vec{r}$, $\vec{r}_0 = \vec{r} + \alpha\vec{R}$ і $\vec{r}_p = \vec{r} - (1-\alpha)\vec{R}$ позначають радіус-вектори електрона відносно центрів мас відповідно системи $H_2^+ + A^{Z_p^{'}+}$, мішені H_2^+ і налітаючого іона $A^{Z_p^{'}+}$; $\alpha = M_p/(M_p + M_0)$, M_0 і M_p – маси частинки-мішені і налітаючого іона. Траєкторію руху іона $A^{Z_p^{'}+}$ вважаємо прямолінійною: $\vec{R} = \vec{\rho} + \vec{\upsilon}t$ (ρ - прицільний параметр).

Амплітуда процесу (1) в наближенні Оппенгеймера-Брінкмана-Крамерса (ОБК) може бути записана у вигляді [5]

$$\Re_{if} = -i\int_{-\infty}^{\infty} dt \left\langle \Psi_f \left| V_p \right| \Psi_i \right\rangle, \qquad (3)$$

де

$$\Psi_i(\vec{r}) = \varphi_i(\vec{r}_0, \vec{b}) \times$$

$$\times \exp\left[-iE_0 t - i\alpha\vec{\upsilon}\vec{r} - \frac{i}{2}(1-\alpha)^2\upsilon^2 t\right], \quad (4а)$$

$$\Psi_f(\vec{r}) = \varphi_f(\vec{r}_p)\exp\left[-iE_p t + \right.$$

$$\left. + i(1-\alpha)\vec{\upsilon}\vec{r} - \frac{i}{2}(1-\alpha)^2\upsilon^2 t\right], \quad (4б)$$

Тут φ_i і φ_f - хвильові функції іонів H_2^+, $A^{(Z_p^{'}-1)+}$; $E_0 = -Z_0^2/2$ і $E_p = -Z_p^2/2n^2$ - енергії зв'язку електрона до і після переходу відповідно.

Ефективний заряд Z_p в багатозарядному іоні визначається за експериментальним значенням енергії зв'язку основного стану створюваного іона $A^{(Z_p^{'}-1)+}$. Для одноелектронного захоплення повністю обідраними іонами $A^{(Z_p^{'}-1)+}$ заряд $Z_p = Z_p^{'}$. У випадку багатоелектронного іона $A^{(Z_p^{'}-1)+}$ хвильова функція φ_f вибирається у вигляді водневоподібної хвильової функції з ефективним зарядом Z_p.

Молекулярну хвильову функцію φ_i виберемо у вигляді

$$\varphi_i(\vec{r}_0, \vec{b}) = N_g[\varphi_g(\vec{r}_0 + \vec{b}/2) + \varphi_g(\vec{r}_0 - \vec{b}/2)],$$

$$N_g = (2 + 2\Delta)^{-1/2},$$

$$\Delta = \int d^3r\, \varphi_g(\vec{r}_0 + \vec{b}/2) + \varphi_g(\vec{r}_0 - \vec{b}/2), \quad (5)$$

$\vec{b}$ - між'ядерна відстань.

У випадку, коли молекулярний зв'язок створюється 1s-орбіталями,

$$\varphi_g = (Z_0^3/\pi)^{1/2}\exp(-Z_0 r_0), \qquad (6)$$

де Z_0 - ефективний заряд, пов'язаний з енергією зв'язку E_0 електрона в рівноважному стані іона H_2^+ співвідношенням $Z_0 = (2|E_0|)^{1/2}$.

Використовуючий інтегральний фур'є-розклад для експоненціального фактору в (6)

$$\exp(-Z_0 r_0) = \frac{Z_0}{\pi^2}\int d^3p \frac{\exp(-i\vec{p}\vec{r}_0)}{(p^2 + Z_0^2)^2},$$

Запишемо

$$\Re_{if} = i\pi^{-1}\eta(2Z_0)^{5/2} Z_p^{'} N_g \int_{-\infty}^{\infty} d\xi \int d^3p\, g_p^*(\vec{p}+\vec{\upsilon})\cos(\vec{p}\vec{b}/2)(p^2+Z_0^2)^{-2} \times$$

$$\times \exp\left[iE\eta\xi + i(1-2\alpha)\upsilon\xi/2 - i(1-\alpha)\vec{\upsilon}\vec{R} - i\vec{p}\vec{R}\right], \quad (7)$$

де

$$g_f(\vec{q}) = g_f^{(1)}(\vec{q}) + \frac{N}{Z_p^{'}} g_f^{(2)}(\vec{q}), \quad (8)$$

$$g_f^{(1)}(\vec{q}) = (2\pi)^{-3/2} \int d^3r \frac{\varphi_f(\vec{r})}{r} \exp(i\vec{q}\vec{r}), \quad (9а)$$

$$g_f^{(2)}(\vec{q}) = (2\pi)^{-3/2} \int d^3r \frac{\varphi_f(\vec{r})}{r} \exp(i\vec{q}\vec{r} - \alpha r),$$

$$E \equiv E_p - E_0, \quad \xi \equiv t\upsilon, \quad \eta \equiv \upsilon^{-1}. \quad (9б)$$

Проінтегрувавши в (7) за ξ, отримаємо

$$\Re_{if} = i\eta 2^{7/2} Z_0^{5/2} Z_p^{'} N_g \int d^3p\, g_p^*(\vec{p}+\vec{\upsilon})(p^2+Z_0^2)^{-2} \cos(\vec{p}\vec{b}/2)\exp(i\vec{p}\vec{\rho})\,\delta(p_z - E\eta + \upsilon/2), \quad (10)$$

Просумувавши за всіма можливими кінцевими станами електрона $|f\rangle$ ймовірність процесу (1) визначається виразом

$$W(\vec{\rho}) = \sum_f |\Re_{if}(\vec{\rho},\upsilon)|^2, \quad (11)$$

а відповідний переріз

$$\sigma = \int d^2\rho\, W(\vec{\rho}). \quad (12)$$

Сума в (11) за кінцевими електронними станами представляє собою уявну частину функції G^{ij}, обчислену в Додатку.

З урахуванням виразу для амплітуди переходу (10) сумарна ймовірність та проінтегрований за прицільним параметром переріз (12) запишуться у вигляді

$$W(\vec{\rho},\upsilon) = \frac{-2^7 Z_0^5 Z_p^{'2} N_g^2}{\pi\upsilon} \iint d^3p_1\, d^3p_2\, \delta(p_{1z} - p_{2z}) \exp[i\vec{\rho}(\vec{p}_{2\rho} - \vec{p}_{1\rho})] \frac{\cos(\vec{p}_1\vec{b}/2)\cos(\vec{p}_2\vec{b}/2)}{(p_1^2+Z_0^2)^2(p_2^2+Z_0^2)^2} \times$$

$$\times \mathrm{Im}\Big[G^{11}(\vec{p}_1+\vec{\upsilon}, \vec{p}_2+\vec{\upsilon}, \vec{p}_1\vec{\upsilon}+\upsilon^2/2+E_0) + (2N/Z_p^{'})G^{12}(\vec{p}_1+\vec{\upsilon}, \vec{p}_2+\vec{\upsilon}, \vec{p}_1\vec{\upsilon}+\upsilon^2/2+E_0) +$$

$$+ (N/Z_p^{'})^2 G^{22}(\vec{p}_1+\vec{\upsilon}, \vec{p}_2+\vec{\upsilon}, \vec{p}_1\vec{\upsilon}+\upsilon^2/2+E_0)\Big], \quad (13)$$

$$\sigma(\upsilon) = -2^9\eta\pi Z_0^5 Z_p^{'2} N_g^2 \int d^3p \cos^2(\vec{p}\vec{b}/2)(p^2+Z_0^2)^{-4} \mathrm{Im}\Big[G^{11}(\vec{p}+\vec{\upsilon}, \vec{p}+\vec{\upsilon}, \vec{p}\vec{\upsilon}+\upsilon^2/2+E_0) +$$

$$+ (2N/Z_p^{'})G^{12}(\vec{p}+\vec{\upsilon}, \vec{p}+\vec{\upsilon}, \vec{p}\vec{\upsilon}+\upsilon^2/2+E_0) + (N/Z_p^{'})^2 G^{22}(\vec{p}+\vec{\upsilon}, \vec{p}+\vec{\upsilon}, \vec{p}\vec{\upsilon}+\upsilon^2/2+E_0)\Big]. \quad (14)$$

Функція G^{ij}, що фігурує в (13) і (14), визначається виразом

$$G^{ij}(\vec{k}_2, \vec{k}_1, \omega) = (2\pi)^{-3} \iint d^3r_1\, d^3r_2 \times$$

$$\times \exp[-i(\vec{k}_2\vec{r}_2 - \vec{k}_1\vec{r}_1)] f_i(r_2) f_j(r_1) G,$$

$$f_\kappa(r) = \exp(-\mu_\kappa r)/r, \quad \mu_1 = 0, \quad \mu_2 = b,$$

$$\kappa = 1,2. \quad (15)$$

Тут $G(\vec{r}_2, \vec{r}_1, \omega)$ - функція Гріна налітаючого іона.

В рамках використаної моделі хвильових функцій (5), (6) формули (13), (14) являються точними. Оскільки подальші розрахунки можливі тільки для конкретної моделі налітаючого іона, то хвильові функції φ_f виберемо рівними водневоподібним хвильовим функціям з ефективним зарядом Z_p. З їх використанням і пов'язані наближення, що виникають при обчисленні G^{ij}. Як було зазначено в [5], точність розрахунку перерізу одноелектронного захоплення з використанням водневоподібних хвильових функцій лише трохи менше точності розрахунку з використанням власних хвильових функцій модельного гамільтоніана. Перейдемо до розрахунку ймовірності та перерізу перезарядки (1) з допомогою функцій G^{ij}, що були отримані в Додатку у водневоподібному наближенні.

Розрахунок ймовірності та перерізу

Відзначимо, що інтегрування за повздовжнім імпульсом p_z в (13) і (14) еквівалентно підсумовуванню за всіма кінцевими електронними станами. Дійсні значення параметра p в (П.1) і (П.6) (див. Додаток) відповідають зв'язано-зв'язаним переходам, а уявні – зв'язано-вільним. Процедура обчислення G^{ij} вимагає особливої уваги, оскільки полюси у виразах (П.6), (П.7) при захопленні в стани дискретного і неперервного спектрів мають різне походження. Далі розглянемо захоплення в зв'язані стані налітаючого іона. У цьому випадку уявна частина G^{ij} визначається сингулярністю множника в (П.6):

$$\mathrm{Im}G^{ij}(\ldots) \approx \mathrm{Im}\left[\sin(\lambda\pi / p - i0)\right]^{-1} = \\ = \sum_{p=1}^{\infty}(-1)^n \delta(\lambda / p - n), \quad (16)$$

де $p = [-2(\vec{p}\vec{\upsilon} + E_0 + \upsilon^2/2)]^{1/2}$.

Підставляючи в праву частину (13) вираз для $\mathrm{Im}\,G^{ij}$, отримаємо

$$W(\vec{\rho},\upsilon) = \sum_{n=1}^{\infty} W_n(\vec{\rho},\upsilon), \quad (17)$$

$$W_n(\vec{\rho},\upsilon) = -i\frac{2^4 Z_p^3 Z_p'^2 Z_0^5 N_g}{\upsilon^2\pi^3 n^4}\iint \frac{d^2p_{1\rho}\,d^2p_{2\rho}}{(p_{1\rho}^2 + p_{0z}^2 + Z_0^2)^2}\frac{\exp[i\vec{\rho}(\vec{p}_{2\rho} - \vec{p}_{1\rho})]}{(p_{2\rho}^2 + p_{0z}^2 + Z_0^2)^2}\cos\left[(\vec{p}_{1\rho}\vec{b}_\rho + p_{0z}b_z)/2\right]\times$$

$$\times\cos\left[(\vec{p}_{2\rho}\vec{b}_\rho + p_{0z}b_z)/2\right]\int_1^{(0+)}\frac{dZ}{Z^n}\left[T(\lambda_1,\lambda_1) + \frac{2N}{Z_p'}T(\lambda_1,\lambda_2) + \left(\frac{N}{Z_p'}\right)^2 T(\lambda_2,\lambda_2)\right], \quad (18)$$

$$A_{1,2} = \left[(Z_p/n \mp \mu_1)^2 + p_{1\rho}^2 + (p_{0z} + \upsilon)^2\right]\left[(Z_p/n \mp \mu_2)^2 + p_{2\rho}^2 + (p_{0z} + \upsilon)^2\right], \quad (19)$$

$$T(\lambda_i,\lambda_j) = (A_1 Z^2 - 2BZ + A_2)^{-1}\Big|_{\lambda_i=\mu_1;\lambda_j=\mu_2}, \quad p_{0z} \equiv -\upsilon/2 + E\eta, \quad \lambda_1 = 0, \quad \lambda_2 = b,$$

$$B = 4(Z_p/n)^2\left[\vec{p}_{1\rho}\vec{p}_{2\rho} + (p_{0z} + \upsilon)\right]^2 + \left[\mu_1^2 + p_{1\rho}^2 + (p_{0z} + \upsilon)^2 - Z_p^2/n^2\right]\left[\mu_2^2 + p_{2\rho}^2 + (p_{0z} + \upsilon)^2 - Z_p^2/n^2\right].$$

Для обчислення контурного інтеграла від першого члена в правій частині (18) скористаємось співвідношенням (див. [6])

$$(Z^2 - 2xZ + 1)^{-1} = Z^{-1}\sum_{\mu=0}^{\infty} Z^\mu C_\mu^\nu(x),$$

де $C_\mu^\nu(x)$ - поліном Гегенбауера. Корені квадратних тричленів в знаменнику інших двох членів підінтегрального виразу (18) комплексні і по модулю більше одиниці. Відтак, для перезарядки в стани дискретного спектру підінтегральна

функція в (18) не має інших особливостей, крім полюса n-го порядку в точці $Z=0$. Тому в точці $Z=1$ контур можна замкнути и використати для обчислення інтегралу теорему про лишки. В результаті отримаємо

$$W_n(\vec{\rho},\upsilon)=2^8 Z_p^3 Z_p^{'2} Z_0^5 \upsilon^{-2} N_g^2 (\pi m^2)^{-2} \iint \frac{d^2 p_{1\rho}\, d^2 p_{2\rho}}{(p_{1\rho}^2+p_{0z}^2+Z_0^2)^2} \frac{\exp[i\vec{\rho}(\vec{p}_{2\rho}-\vec{p}_{1\rho})]}{(p_{2\rho}^2+p_{0z}^2+Z_0^2)^2} \cos\left[(\vec{p}_{1\rho}\vec{b}_\rho + p_{0z}b_z)/2\right]\times$$

$$\times\cos\left[(\vec{p}_{2\rho}\vec{b}_\rho + p_{0z}b_z)/2\right]\left\{F(\lambda_1,\lambda_1)+(2N/Z_p^{'})F(\lambda_1,\lambda_2)+\left(N/Z_p^{'}\right)^2 F(\lambda_2,\lambda_2)\right\}, \quad (20)$$

$$F(\lambda_i,\lambda_j)=\frac{\sin(n\Phi)}{\sin(\Phi)}\frac{A_1^{(n-1)/2}}{A_2^{(n-1)/2}}\Bigg|_{\lambda_i=\mu_1;\lambda_j=\mu_2},$$

$$\Phi=\mathrm{arctg}\left(A_1A_2/B-1\right)^{1/2}. \quad (21)$$

Оскільки подальше спрощення формули (20) без будь-яких обмежень не представляється можливим, тому звернемося до асимптотичних оцінок для деяких важливих частинних випадків. Так, для ймовірності захоплення електрона атомними ядрами із основного стану H_2^+ отримаємо вираз:

$$W_n=\frac{4N_g^2}{\upsilon^2 n^3}(Z_p^{'}Z_0)^5\left|\frac{(\vec{b}_\rho/2-\vec{\rho})^2}{(p_{0z}^2+Z_0^2)}K_2\left[|\vec{b}_\rho/2-\vec{\rho}|(p_{0z}^2+Z_0^2)^{1/2}\right]\exp(ip_{0z}b_z/2)+\frac{(\vec{b}_\rho/2+\vec{\rho})^2}{(p_{0z}^2+Z_0^2)}\times\right.$$

$$\left.\times K_2\left[|\vec{b}_\rho/2+\vec{\rho}|(p_{0z}^2+Z_0^2)^{1/2}\right]\exp(ip_{0z}b_z/2)\right|^2, \quad (22)$$

$K_\nu(x)$ - модифікована функція Бесселя.

У випадку повздовжньої орієнтації іона молекули водню, коли напрямок його осі $\vec{b}$ і швидкості співпадають, то вираз (22) набуває вигляду

$$W_n=\frac{2^3 N_g^2 (Z_p^{'}Z_0)^5 \rho^4}{\upsilon^2 n^3 (p_{0z}^2+Z_0^2)^2}\cos^2\left(p_{0z}b_z/2\right)\times$$

$$\times K_2^2\left(\rho\sqrt{p_{0z}^2+Z_0^2}\right). \quad (23)$$

В границі $b\to 0$ цей вираз співпадає з виразом, отриманим для перезарядки на атомарному водні [7].

Наведемо результати розв'язку задачі про переріз процесу перезарядки (1):

$$\sigma_n(\upsilon)=2^{10}N_g^2 Z_p^3 Z_p^{'2} Z_0^5 \pi \upsilon^{-2} n^{-3}\int_0^\infty \frac{dp_\rho\, p_\rho}{(p_\rho^2+p_{0z}^2+Z_0^2)^4}\left[1+\cos(p_{0z}b_z)J_0(p_\rho b_\rho)\right]\times$$

$$\times\left[(p_\rho^2+p_{0z}^2+Z_0^2)^{-1}+\frac{N}{Z_p^{'}}\frac{(p_\rho^2+p_{0z}^2+Z_0^2-2Z^{1/3}Z_p/n+Z^{2/3})^{(n-1)/2}}{(p_\rho^2+p_{0z}^2+Z_0^2-2Z^{1/3}Z_p/n+Z^{2/3})^{(n+1)/2}}\right]^2, \quad (24)$$

де $J_0(x)$ - функція Бесселя нульового порядку.

Переріз захоплення електрона із молекулярного іона водню, проінтегрований за ρ, рівний

$$\sigma_n(\upsilon)=\frac{2^9\pi N_g^2(Z_p^{'}Z_0)^5}{\upsilon^2 n^3}\left[\frac{1}{5(p_{0z}^2+Z_0^2)^5}+\right.$$

$$\left.+\frac{\cos(p_{0z}b_z)}{5!2^4}\left(\frac{b_\rho}{(p_{0z}^2+Z_0^2)^{1/2}}\right)^5\times\right.$$

$$\times K_5\left(b_\rho\sqrt{p_{0z}^2+Z_0^2}\right)\Bigg]. \quad (25)$$

Аналогічно знаходяться і ймовірності захоплення молекулярного електрона в стани неперервного спектру налітаючого іону:

$$\frac{dW}{d\kappa}=\frac{2^8 Z_p^{'2} Z_0^5 N_g^2}{\pi^2\upsilon^2}\frac{\kappa}{1-\exp(-2\pi Z_p/\kappa)}\iint\frac{d^2p_{1\rho}\,d^2p_{2\rho}}{(p_{1\rho}^2+p_{0z}^2+Z_0^2)^2}\frac{\exp[i\vec{\rho}(\vec{p}_2-\vec{p}_1)]}{(p_{2\rho}^2+p_{0z}^2+Z_0^2)^2}\cos\left[\vec{p}_1\vec{b}/2\right]\times$$
$$\times\cos\left[\vec{p}_2\vec{b}/2\right]\left\{\tilde{F}(\lambda_1,\lambda_1)+(2N/Z_p^{'})\tilde{F}(\lambda_1,\lambda_2)+\left(N/Z_p^{'}\right)^2\tilde{F}(\lambda_2,\lambda_2)\right\}, \quad (26)$$

В окремому випадку перезарядки на молекулярному іоні голого іона маємо

$$\frac{dW}{d\kappa}=\frac{4Z_p^{'2}Z_0^5N_g^2}{\upsilon^2}\frac{\kappa}{1-\exp(-2\pi Z_p/\kappa)}\times$$
$$\times\left|\frac{(\vec{\rho}-\vec{b}_\rho/2)^2}{p_{0z}^2+Z_0^2}K_2\left(\left|\frac{2\vec{\rho}-\vec{b}_\rho}{2}\right|\sqrt{p_{0z}^2+Z_0^2}\right)\times\right.$$
$$\times\exp(ip_{0z}b_z/2)+(\vec{\rho}+\vec{b}_\rho/2)^2/(p_{0z}^2+Z_0^2)\times$$
$$\left.\times K_2\left(\left|\frac{2\vec{\rho}-\vec{b}_\rho}{2}\right|\sqrt{p_{0z}^2+Z_0^2}\right)\exp\left(\frac{ip_{0z}b_z}{2}\right)\right|^2. \quad (27)$$

Якщо напрямки осі $\vec{b}$ і швидкості $\vec{\upsilon}$ співпадають, то диференціальна ймовірність захоплення електрона запишеться у вигляді

$$\frac{dW}{d\kappa}=\frac{2^3Z_p^{'3}Z_0^5N_g^2\rho^4}{\upsilon^2(p_{0z}^2+Z_0^2)}\frac{\kappa}{1-\exp(-2\pi Z_p/\kappa)}\times$$
$$\times\cos^2(p_{0z}^2b_z/2)K_2^2\left(\rho\sqrt{p_{0z}^2+Z_0^2}\right). \quad (28)$$

Приведемо також вираз для перерізу захоплення в стани неперервного спектру:

$$\frac{d\sigma}{d\kappa}=\frac{2^9\pi Z_p^{'2}Z_0^5N_g^2Z_p}{\upsilon^2(1-\exp(-2\pi Z_p/\kappa))}\int_0^\infty\frac{d(p_\rho^2)[1+\cos(p_{0z}b_z)J_0(p_\rho b_\rho)]}{[p_\rho^2+(p_{0z}+\upsilon)^2-\kappa^2]^4}\left\{\frac{1}{p_\rho^2+(p_{0z}+\upsilon)^2-\kappa^2}+\right.$$
$$\left.+\frac{N}{Z_p^{'}}\frac{\exp\left\{(-Z_p/\kappa)\,\mathrm{arctg}(2\kappa Z^{1/3}/[p_\rho^2+(p_{0z}+\upsilon)^2+Z^{2/3}-\kappa^2])\right\}}{\left\{[p_\rho^2+(p_{0z}+\upsilon)^2+Z^{2/3}-\kappa^2]^2+4Z^{2/3}\kappa^2\right\}^{1/2}}\right\}. \quad (29)$$

Для перерізу перезарядки голого іона на молекулярному іоні водню звідси знайдемо $(Z_p=Z_p^{'},\ N=0)$:

$$\frac{d\sigma}{d\kappa}=\frac{2^9\pi N_g^2Z_0^5Z_p^3\kappa}{\upsilon^2(1-\exp(-2\pi Z_p/\kappa))}\left[\frac{1}{5(p_{0z}^2+Z_0^2)^5}+\right.$$
$$+\frac{\cos(p_{0z}b_z)}{2^4\,5!}\left(\frac{b_\rho}{\sqrt{p_{0z}^2+Z_0^2}}\right)\times$$
$$\left.\times K_5\left(b_\rho\sqrt{p_{0z}^2+Z_0^2}\right)\right]. \quad (30)$$

Формули (24), (25), (29) і (30) описують переріз одноелектронного захоплення із орієнтованого молекулярного іона. Значення цих формул полягає в тому, що вони дозволяють якісно оцінити залежності перерізів перезарядки (1) від багатоцентрового характеру розподілу електронної густини в молекулярних об’єктах.

Проілюструємо застосування формули (25) для розрахунку перерізів одноелектронного захоплення на прикладі реакції

$$\mathrm{H}_2^+ + \mathrm{p} = 2\mathrm{p} + \mathrm{H(n)} \quad (31)$$

при $\vec{b} \parallel \vec{\upsilon}$. Результати розрахунку представленні на рис. 1. Криві I і II відносяться, відповідно, до перезарядки з переходом електрона в стани з головним квантовим числом $n = 1$ і 2. Штрихова лінія відповідає випадку об'єднаних ядер в іоні молекули водню.

Потрібно зазначити, що в досліджуваному діапазоні енергій електрон з найбільшою ймовірністю захоплюється в основний стан атома водню; на частку збуджених станів припадає не більше 10% величини повного перерізу.

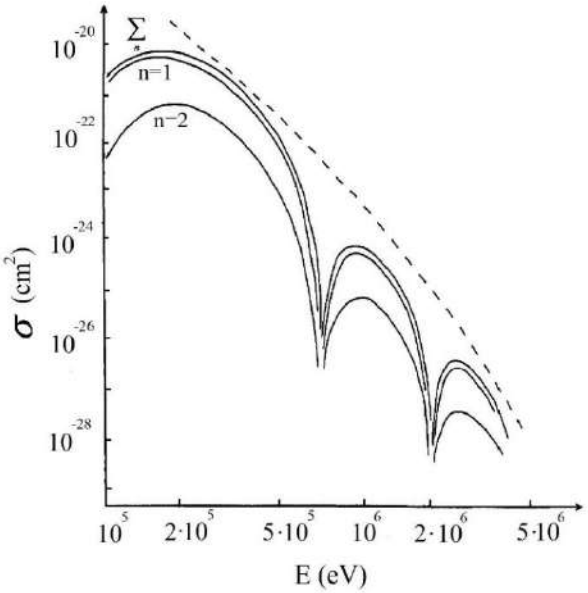


Рис. 1. Переріз процесу перезарядки протона на H_2^+

Осцилюючий фактор в (25) (другий доданок в квадратних дужках) специфічний саме для молекул і відсутній у випадку перезарядки на атомах [8]. Як випливає із виразу (23), дана молекулярна специфіка (двоцентровість в електронному розподілі в молекулярному іоні H_2^+) приводить до того, що ймовірність перезарядки прямує до нуля при $p_{0z} b_z / 2 = \pi / (k + 1/2)$ і досягає максимальних значень при $p_{0z} b_z / 2 = \pi k$, де $k = 0, 1, 2, \ldots$. Аналогічну поведінку мають і перерізи перезарядки (25).

Висновок

В зв'язку з активним вивченням та використанням пучків молекулярних іонів в експериментальних установках для фізико-хімічного дослідження матеріалів та високотемпературних процесів, нами, в рамках ОБК-наближення, було досліджено процес кулонівської перезарядки голого або екранованого іону на орієнтованій молекулі або молекулярному іоні. Для розрахунку ймовірностей і перерізів перезарядки, просумованих за всіма кінцевими станами снаряду, розвинуто метод функцій Гріна, аналогічний тому, який використовувався нами раніше [7, 8, 9] в теорії іон-атомної перезарядки. Даний метод дозволяє провести підсумовування за дискретним і інтегрування за неперервним спектром налітаючого іону. Застосування розвинутої нами теорії продемонстровано на прикладі чисельних розрахунків перерізів перезарядки протонів на повздовжньо орієнтованому (по відношенню до вектора швидкості) молекулярному іоні водню.

Додаток

Обчислимо функцію G^{ij} у випадку, коли налітаючий іон є голим ядром. Інтегральне представлення для функції Гріна $G(\vec{r}_2, \vec{r}_1, \omega)$, згідно з [10] має вигляд

$$G(\vec{r}_2, \vec{r}_1, \omega) = \frac{ip}{8\pi} \frac{\exp(-\lambda\pi / p)}{\mathrm{sh}(\lambda\pi / p)} \times$$
$$\times \int_{\infty}^{(1+)} d\xi \left(\frac{\xi + 1}{\xi - 1} \right)^{i\lambda / p} D(\vec{r}_2, \vec{r}_1, \omega), \quad (\text{П.1})$$

$$D(\vec{r}_2, \vec{r}_1, \omega) = I_0 \left[-ip(x^2 - y^2)^{1/2} (\xi^2 - 1)^{1/2} \right] \times$$
$$\times \exp(ipx\xi), \quad (\text{П.2})$$

$$x = r_2 + r_1, \quad y = \left| \vec{r}_2 - \vec{r}_1 \right|,$$
$$p^2 = -2(\omega + i0)/\hbar, \quad \mathrm{Re}\, p > 0. \quad (\text{П.3})$$

Дотримуючись [10], запишемо

$$I_0(Z) = \frac{1}{2\pi i} \int_{c-i\infty}^{c+i\infty} dt \frac{1}{t} \exp(t + Z^2 / 4t). \quad (\text{П.4})$$

Інтеграли в (15) з врахуванням (П.1)-(П.4) обчислюються спочатку

інтегруванням за $\vec{r}_1$ з використанням співвідношення

$$\int d^3r \exp(-\vec{A}\vec{r} - \vec{B}\vec{r}) = 8\pi A/(A^2 - B^2), \quad (\text{П}.5)$$

а потім за t з врахуванням того, що

$$\frac{1}{2\pi i}\int_{c-i\infty}^{c+i\infty} dt\, e^t (t-a)^{-\lambda} = \frac{e^a}{\Gamma(\lambda)}, \quad |\mathrm{arc}(t-a)| < \frac{\pi}{2},$$

$$c > \mathrm{Re}(a), \qquad \mathrm{Re}(\lambda) > 0. \qquad (\text{П}.6)$$

Після інтегрування за $\vec{r}_2$ з допомогою (П.5) отримаємо

$$G^{ij} = \frac{2P}{\pi^2}\frac{i\exp(i\pi\lambda/p)}{2\sin(\pi\lambda/p)} \times$$

$$\times \int_1^{(0+)} dZ\, Z^{-\lambda/p}(A_1 Z^2 + A_2 - 2BZ)^{-1},$$

$$A_{1,2} = \left[(p \mp \mu_1)^2 + k_1^2\right]\left[(p \mp \mu_2)^2 + k_2^2\right],$$

$$B = 4p^2(\vec{k}_1\vec{k}_2) + (\mu_1^2 + k_1^2 - p^2) \times$$

$$\times (\mu_2^2 + k_2^2 - p^2). \quad (\text{П}.7)$$

Контур інтегрування в (П.7) проходить вздовж одиничної окружності від $Z = 1 + i0$ до $Z = 1 - i0$.

На закінчення відзначимо, що функція типу G^{22} використовувалась раніше в роботі [11] в квазікласичному трактуванні кулонівського збудження атомів швидкими іонами.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Belkic Dz., Quantum theory of highenergy ion-atom collisions. – London: Taylor & Francis, 2009. – 416 p.
2. Lazur V.Yu., Khoma M.V. Distorted wave theories for one- and two- electron capture in fast atomic collisions // Advances in Quantum Chemistry. – 2013. – V.65. – PP. 363-405.
3. Janev R.K., Presnyakov L.P. Collision processes of multiple charged ions with atoms // Phys. Rep. – 1981. – V. 70. – No.1. – PP.1-107.
4. Afrosimov V.V., Basalaev A.A., Donets E.D. et.al. Processes involving the capture of an electron by the nuclei of atoms near helium atoms and hydrogen molecules at low energies // JETP Letters. –1981. – Vol. 34. – No. 4. – PP. 171-174.
5. Eichler J.K.M., Tsuji A., Ishihara T. Electron capture into partially stripped projectile ions // Phys. Rev. A. – 1981. – 23. – No. 6. – PP. 2833-2840.
6. Bateman H., Erdelyi A. Higher transcendental functions. Vol. II. – New York: McGraw-Hill Book Company, 1953. – 414 p.
7. Лазур В.Ю., Карбованець М.І., Алексій В.В., Мигалина С.І. Метод функцій гріна в реакціях одноелектронної перезарядки // Науковий вісник Ужгородського університету. Серія Фізика. – 2017. – Вип. 41 – С. 85-93.
8. Lazur V.Yu., Aleksiy V.V., Migalina S.I., Pop V.V. The distorted wave method for capture with ionization in high-energy ion-atom collisions: The 18-th Small Triangle Meeting on theoretical physics (October 16-19, 2016, Ptičie, Slovakia), Košice: IEP SAS, 2017. – 225 p.
9. Lazur V.Yu., Aleksiy V.V. The method of Green's functions in the Coulomb charge-exchange theory: Book of abstracts of the International Conference of Students and Young Scientists in Theoretical and Experimental Physics HEUREKA-2017 (May 16-18, 2017, Lviv, Ukraine). – Львів: ЛНУ ім. І.Франка, 2017. – 134 с.
10. Hostler L. Coulomb Green's functions // J. Math. Phys. – 1964. – 5. – PP. 1235-1242.
11. Ryabov V.A., Yudin G.L. Coulomb excitation of atoms by fast protons // JETP. – 1980. – Vol. 51. – No. 2. – PP. 239-244.

Стаття надійшла до редакції 22.12.2017.

В. Ю. Лазур[1], М. И. Карбованец[1], В. В. Алексий[1], С. И. Мигалина[2]
[1]Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54
[2]Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, ул. Университетская, 14а
e-mail: volodymyr.lazur@uzhnu.edu.ua

МЕТОД ФУНКЦИЙ ГРИНА В ТЕОРИИ ОДНОЭЛЕКТРОННОЙ ПЕРЕЗАРЯДКИ МОЛЕКУЛЯРНОГО ИОНА ВОДОРОДА НА ГОЛЫХ ЯДРАХ

В рамках приближения Оппенгеймера-Бринкмана-Крамерса (ОБК) исследуется процесс кулоновской перезарядки голого или экранированного иона на ориентированной молекуле или молекулярном ионе. Для расчета вероятностей и сечений перезарядки развит метод функций Грина, позволяющий провести суммирование по дискретному и интегрирование по непрерывному спектру налетающего иона. Применение разработаной теории продемонстрировано на примере реакции перезарядки протона на продольно ориентированном (по отношению к вектору скорости) молекулярном ионе водорода.
Ключевые слова: ОБК-приближение, функция Грина, перезарядка, молекулярный ион, электрон.

PACS: 03.65.–w, 34.50.–s, 34.80.Dp, 34.70.+e
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.62-72

V. Yu. Lazur[1], M. I. Karbovanets[1], V. V. Aleksiy[1], S. I. Myhalyna[2]
1Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Voloshin Str., 54,
2Uzhhorod National University, 88000 Uzhhorod, 14A Universytetska Str.
e-mail: volodymyr.lazur@uzhnu.edu.ua

GREEN'S FUNCTIONS METHOD IN SINGLE-ELECTRON CHARGE EXCHANGE THEORY OF THE HYDROGEN MOLECULAR ION ON THE NAKED NUCLEUSES

Introduction. The capture of an electron by multi-charge ions is one of the main processes that plays an important role in the energy balance of high-temperature plasma. To estimate the radiation flux of the excited ions that arise, it is necessary to know the cross sections of the capture of the electron as a function of the collision energy. And in some cases, it is very useful to know the dependence of the probabilities of bound-bound and bound-free transitions from the impact parameter.

Purpose. Research the Coulomb charge exchange process of a naked or screened ion on an oriented molecule or a molecular ion. Make a calculations of the probabilities and cross sections of electron capture of a hydrogen molecular ion by multi-charged ions, which have an arbitrary number of residual electrons.

Methods. To describe the single-electron charge exchange process we use OBK-approximation. To calculate the probabilities and cross sections for charge exchange reactions, summed over all finite states of the projectile, a method of Green's functions were developed.

Results. We obtained formulas, which allow us to describe the cross-section of one-electron capture from an oriented molecular ion. The meaning of these formulas is that they allow a qualitative estimate of the dependence of charge exchange cross sections on the multicenter character of the distribution of electron density in molecular objects.

Conclusion. The application of the developed theory is demonstrated by the example of numerical calculations of charge exchange cross sections of protons on a longitudinally oriented (in relation to the velocity vector) hydrogen molecular ion. In the investigated range of energies, electron is most likely to be absorbed into the ground state of the hydrogen atom; the share of excited states accounts for no more than 10% of the total cross-sectional value.
Keywords: OBK-approximation, Green's function, charge exchange reaction, molecular ion, electron.
PACS: 03.65.–w, 34.50.–s, 34.80.Dp, 34.70.+e

REFERENCES

1. Belkic, Dz. (2009), “Quantum theory of high-energy ion-atom collisions”, Taylor & Francis, London, 416 p.
2. Lazur, V.Yu., Khoma, M.V. (2013), “Distorted wave theories for one- and two-electron capture in fast atomic collisions”, Advances in Quantum Chemistry, V. 65, pp. 363-405.
3. Janev, R.K., Presnyakov, L.P. (1981), “Collision processes of multiple charged ions with atoms”, Phys. Rep., V. 70, No.1, pp. 1-107.
4. Afrosimov, V.V., Basalaev, A.A., Donets, E.D., Lozhkin, K.O., Panov, M.N. (1981), “Processes involving the capture of an electron by the nuclei of atoms near helium atoms and hydrogen molecules at low energies”, JETP Letters, Vol. 34, No. 4, pp. 171-174.
5. Eichler, J.K.M., Tsuji, A., Ishihara, T. (1981), “Electron capture into partially stripped projectile ions”, Phys. Rev. A, Vol. 23, No. 6, pp. 2833-2840.
6. Bateman, H., Erdelyi, A. (1953), “Higher transcendental functions. Vol. II”, McGraw-Hill Book Company, New York, 414 p.
7. Lazur, V.Yu., Karbovanets, M.I., Aleksiy, V.V., Myhalyna, S.I. (2017), “Green's functions method in the reactions of a single-electron charge-exchange” [“Metod funktsii Hrina v reaktsiiakh odnoelektronnoi perezariadky”], Scientific Herald of Uzhhorod University. Series Physics [Nauk. Visn. Uzhhorod. Univ. Ser. Fiz.], No 41, pp. 85-93.
8. Lazur, V.Yu., Aleksiy, V.V., Migalina, S.I., Pop, V.V. (2017), “The distorted wave method for capture with ionization in high-energy ion-atom collisions: The 18-th Small Triangle Meeting on theoretical physics” (October 16-19, 2016, Ptičie, Slovakia), Košice, IEP SAS, 225 p.
9. Lazur, V.Yu., Aleksiy, V.V. (2017), “The method of Green’s functions in the Coulomb charge-exchange theory: Book of

abstracts of the International Conference of Students and Young Scientists in Theoretical and Experimental Physics HEUREKA-2017" (May 16-18, 2017, Lviv, Ukraine), Lviv, LNU im. I.Franka, 134 p.

10. Hostler, L. (1964), "Coulomb Green's functions", J. Math. Phys., Vol. 5, pp. 1235-1242.
11. Ryabov, V.A., Yudin, G.L. (1980), "Coulomb excitation of atoms by fast protons", JETP, Vol. 51, No. 2, pp. 239-244.

© Ужгородський національний університет

УДК 621.373.826.038.823
PACS 42.72.Bj, 52.80.-s, 52.80.Yr
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.73-79

А.О. Малініна, О.М. Малінін
Ужгородський національний університет, вул. Волошина, 54, Ужгород, 88000
e-mail: ant.malinina2018@gmail.com, alex.malinin@uzhnu.edu.ua

ОПТИЧНІ ХАРАКТЕРИСТИКИ ДВОСМУГОВОЇ ЕКСИЛАМПИ БАР'ЄРНОГО РОЗРЯДУ НА МОЛЕКУЛАХ МОНОЙОДІДУ ТА МОНОБРОМІДУ РТУТІ

Приведено результати дослідження оптичних характеристик (спектральних, інтегральних і ресурсних) випромінювання газорозрядної плазми атмосферного тиску на сумішах парів дийодиду та дибромiду ртуті з малими добавками молекулярного азоту. Виявлено випромінювання у видимій області спектру спектральних смуг ексиплексних молекул монойодиду і монобромiду ртуті, молекул молекулярного азоту і гелію, а також атомів гелію і ртуті. Встановлено закономірності в змінах оптичних характеристик плазми в залежності від частоти слідування імпульсів накачки і кількісного складу сумішей. Дані досліджень становлять інтерес для створення потужних ексиламп, що одночасно випромінюють дві смуги у видимому спектральному діапазоні.

Ключові слова: ексилампа, галогеномісні молекули, монойодид і монобромід ртуті, видимий спектральний діапазон, бар'єрний розряд.

Вступ

Важливим напрямком в розробки ексиламп є дослідження робочих середовищ, що випромінюють одночасно декілька молекулярних смуг різних ексиплексних молекул і або ексимерних молекул у видимому і ультрафіолетовому спектральних діапазонах. Багатосмугове випромінювання було здобуто в умовах тліючого розряду низького тиску, а також в бар’єрному розряді [1-4].

На енергетичні і спектральні характеристики таких джерел можуть істотно впливати малі домішки газів: молекулярного азоту, ксенону, елегазу та ін. [2].

У даній роботі представлені результати досліджень оптичних характеристик двохсмугової ексилампи на молекулах монойодиду та монобромiду ртуті, робочою речовиною якої є газорозрядна плазма бар’єрного розряду на суміші парів дийодиду і дибромiду ртуті з гелієм і малою домішкою молекулярного азоту.

Техніка експерименту

Плазма бар'єрного розряду в робочій суміші ексилампі створювалася в міжелектродному просторі усередині кварцової трубки товщиною стінки 2 мм, зовнішнім діаметром 34 мм і довжиною 20 см (конструкція обладнання для створення плазми бар'єрного розряду подібна до застосовуваного нами в роботі [5]). Відстань між внутрішнім електродом круглого перетину (діаметром 4 мм) і зовнішнім електродом складала 15 мм. Внутрішній електрод розташований по осі трубки, а зовнішній (перфорований з коефіцієнтом пропускання випромінювання 72%) - на поверхні трубки. Торці трубки заварені, на одному з них вварений металевий ввід, що забезпечує підведення енергії від джерела живлення на електрод. На протилежній торцевій поверхні розташований патрубок із кварцового скла з капіляром (діаметр 1 мм, довжина 20 мм) через який проводилася відкачка трубки і її

наповнення досліджуваними компонентами суміші.

Живлення розряду здійснюється від генератора наносекундних імпульсів. В якості комутатора в генераторі використовувався тиратрон ТГИ 2-130 / 10. В процесі експериментів імпульсні напруга і струм (тривалість імпульсів ~ 150 нс) на електродах ексилампи підтримувалися на рівні 22÷30 кВ і 280 А, відповідно, частота слідування імпульсів становила 1÷20 кГц.

Оптичні характеристики випромінювання ексилампи, а також електричні і часові характеристики досліджувались за допомогою експериментальної установки, що приведена в статті [5].

Дигалогеніди ртуті: дибромід ртуті ($HgBr_2$) і дийодид ртуті (HgI_2) в кількості по 60 мг попередньо завантажувалися в між електродний простір. Парціальний тиск парів $HgBr_2$ і HgI_2 в робочих сумішах створювалося за рахунок нагріву суміші при дисипації енергії імпульсно-періодичного розряду. Вимірювання його здійснювалося за температурою найбільш холодної частини трубки на підставі лінійної інтерполяції довідкових даних роботи [6]. Парціальні тиску газів вимірювалися зразковим мембранним вакуумметром і манометром.

Спектральні і інтегральні характеристики

На рис.1 представлений оглядовий спектр випромінювання плазми бар'єрного розряду на суміші парів дийодиду і дибромiду ртуті, азоту і гелію. Парціальні тиски азоту і гелію були 2 кПа і 180 кПа, відповідно. Частота слідування імпульсів накачки - 18 кГц, амплітуда напруги на електродах і струм через газорозрядний проміжок 30 кВ і 280 А, відповідно.

Характерним у спектрі випромінювання для цієї суміші є наявність систем спектральних смуг електронно-коливального переходу $B^2\Sigma^+_{1/2} \rightarrow X^2\Sigma^+_{1/2}$ ексиплексних молекул HgI* і HgBr* з максимумами випромінювання на довжинах хвиль λ=444 нм і λ=502 нм, відповідно, крутим ростом інтенсивності цих спектральних смуг з боку довгохвильової ділянки і повільним спадом у короткохвильовій області [7]. Канти спектральних смуг перекривають діапазон довжин хвиль 370÷510 нм. Зі зміною частоти слідування імпульсів накачки в межах 1-20 кГц форма, діапазон, положення максимумів випромінювання спектральних смуг не міняється, змінюється лише їхня інтенсивність і співвідношення інтенсивностей у кантах смуг. Крім цих смуг спостерігається також випромінювання на лінії ртуті λ=546 нм, спектральні смуги молекулярного азоту (N_2^*) з максимумами випромінювання на довжинах хвиль λ=337 нм, λ=357 нм, λ=375 нм і λ=654 нм, що відповідають переходу $C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$ (друга позитивна система) [7, 8].

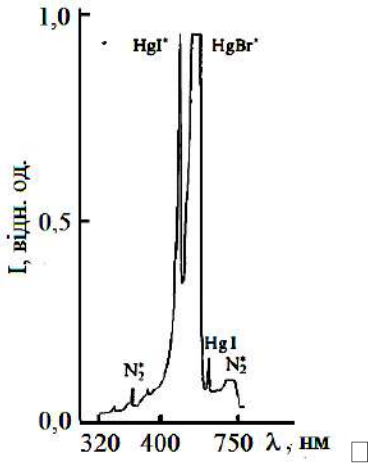


Рис.1. Спектр випромінювання суміші HgI_2:$HgBr_2$:N_2:He. Парціальні тиски: азоту 2 кПа, гелію 182 кПа. Амплітуда напруги, струм і частота слідування імпульсів - 30 кВ, 280 А і 18 кГц, відповідно.

Результати досліджень залежності середньої потужності випромінювання від тиску суміші від 140 кПа до 200 кПа (змінювався парціальний тиск гелію, а парціальний тиск азоту підтримувалося на рівні 2 кПа) представленні на рис. 2. Спостерігається зростання середньої потужності, досягнення її максимального значення при 180 кПа і спад при подальшому збільшенні тиску суміші . При збільшенні напруги на електродах джерела і частоти слідування імпульсів накачки спостерігається лінійне зростання

середньої потужності випромінювання. Вона досягає значення 13.3 Вт при напрузі 30 кВ і частоті слідування імпульсів 18 кГц.

На рис. 3 приведені залежності інтенсивності випромінювання ексиплексних молекул монойодиду ртуті і монобромiду ртуті від парціального тиску молекулярного азоту (межі зміни парціальних тисків азоту визначалися стійкістю однорідного горіння розряду). Спостерігаються закономірності: слабка залежність інтенсивності випромінювання молекул HgI * і HgBr * від парціального тиску азоту і більш інтенсивне випромінювання молекули монобромiду ртуті.

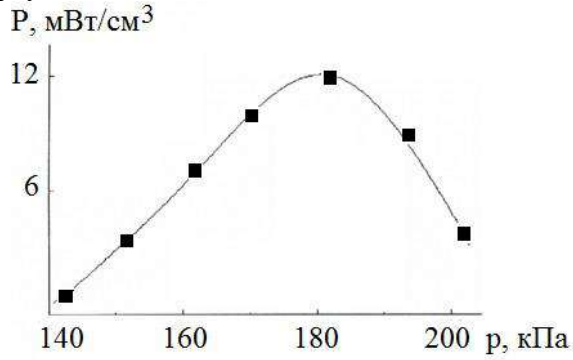


Рис. 2. Залежність питомої середньої потужності випромінювання від парціального тиску гелію в при: частоті слідування імпульсів накачки 18кГц, амплітуді напруги - 30 кВ.

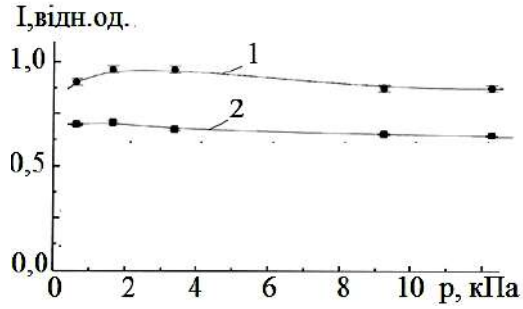


Рис. 3. Залежності інтенсивності випромінювання молекул HgBr* (крива1) і HgI* (крива2) від парціального тиску азоту. Парциальний тиск гелію 180 кПа.

На рис.4 представлені залежності інтенсивності випромінювання моногалогенідів ртуті у відносних одиницях від числа імпульсів накачки (для суміші співвідношення газових компонент вибиралося оптимальним - при якому спостерігаються максимальні інтенсивності випромінювання молекул HgI* і HgBr*). Для сумішей спостерігається перевага випромінювання монобромiду ртуті (крива 1, рис.4).

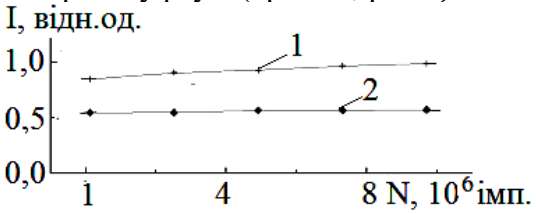


Рис.4.Залежність інтенсивності випромінювання моногалогенідів ртуті від загального числа імпульсів: 1. Молекула HgBr*, 2. Молекула HgI. Загальний тиск суміші 180 кПа. Частота слідування імпульсів накачки 18 кГц.

На рис. 5 приведені характерні осцилограми розрядного струму і імпульсної потужності випромінювання. Спостерігається двогорба часова залежність, як для випромінювання ексиплексних молекул HgI *, так і HgBr *, амплітуди імпульсів випромінювання і імпульсів струму за часом збігаються. Амплітуда другого імпульсу випромінювання для обох молекул вище першого. Для другого імпульсу випромінювання характерно також збільшення його тривалості в порівнянні з першим імпульсом.

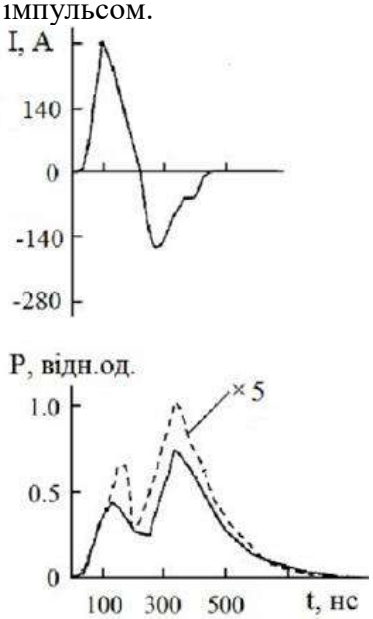


Рис.5. Осцилограми імпульсів струму (I) і випромінювання (P), - - - молекула HgI*, - молекула HgBr*.

Наявність у спектрах випромінювання (рис.1) лінії атомів Hg λ=546 нм викликано процесом деградації суміші. Молекули монойодиду і монобромiду ртуті не встигають асоціювати в процесах:

$HgX(X^2\Sigma^+_{1/2})+X_2 \rightarrow HgX_2+X$, (1)

$HgX(X^2\Sigma^+_{1/2})+X+R \rightarrow HgX_2+R$, (2)

де – X=I, Br, R – буферний газ гелій і дисоціюють на атоми ртуті і галогену при зіткненнях з електронами в газорозрядній плазмі [9]. Атоми галогенів йдуть на поверхню електрода лампи й утворюють галогеніди металів [10]. Атоми ртуті накопичуються і при зіткненнях з електронами збуджуються, і випромінюють на довжині хвиль λ=546 нм.

Більш висока інтенсивність випромінювання ексиплекних молекул HgBr* в порівнянні з HgI * викликана процесом передачі заселеності від молекули азоту в метастабільному стані N_2 ($A^3\Sigma^+_u$) в процесах:

$N_2^*+HgBr_2 \rightarrow HgBr^*+Br+N_2 \rightarrow HgBr+Br+h\nu+N_2$

$N_2^*+HgI_2 \rightarrow HgI^*+I+N_2 \rightarrow HgI+I+h\nu+N_2$

Константа швидкості першого процесу має більшу величину в порівнянні з другим процесом [11].

Наявність оптимального парціального тиску для буферного газу гелію (рис. 2), пов'язане з динамікою процесів втрати енергії розряду на нагрів суміші парів двох дигалогенідів ртуті і гелію та гасіння $B^2\Sigma^+_{1/2}$-стану моногалогенідів ртуті [12].

Хід залежності інтенсивності випромінювання молекул HgI * і HgBr * від парціальних тиску молекулярного азоту (рис.4) визначається ефективністю процесів, які ведуть до їх збудження і гасіння - $B^2\Sigma^+_{1/2}$ - станів цих молекул в газорозрядній плазмі бар'єрного розряду [12]. Константи швидкості збудження $B^2\Sigma^+_{1/2}$ - стану молекул HgI * і HgBr * і його гасіння азотом в умовах експерименту складають величини 1.7×10^{-14} m^3 / s , 1.8×10^{-14} m^3/ s, и $2.9 \cdot \times 10^{-14}$ $см^3$/с и $<3.4 \times \cdot 10^{-14}$ $см^3$/с, відповідно [13,14].

Часова залежність імпульсів струму (рис.5) викликана перезарядкою ланцюга діелектрик-плазма. Підвищення значення амплітуди другого імпульсу випромінювання, його тривалості і тривалості заднього фронту, в порівнянні з першим імпульсом (рис.5) викликано процесами збільшення заселеності $B^2\Sigma^+_{1/2}$ - стану молекул HgI* і HgBr*, які проходять по часу пізніше основного (диссоциативного збудження електронами в зіткненнях з молекулами дигалогенідів ртуті):

$HgX^+_2 + e \rightarrow HgX\ (B^2\Sigma^+_{1/2}) + X$ (3)

$HgX^+_2 + X^- \rightarrow HgX\ (B^2\Sigma^+_{1/2}) + X_2$ (4)

$HgX(X^2\Sigma^+_{1/2}) + e \rightarrow HgX\ (B^2\Sigma^+_{1/2}) + e$ (5)

Процес рекомбінації позитивних іонів дигалогенідів ртуті з електронами (3), як вважають автори роботи [15], може відігравати суттєву роль при густині струму ~ 1000 А / $см^2$, що в умовах нашого експерименту не спостерігається. Розрахункова константа швидкості процесу рекомбінації позитивного іона з негативним іоном (4) висока (для молекули $HgBr_2$ ~ $3 \cdot 10^{-7}$ $см^3$/с), проте, в газорозрядних умовах через малі концентрації атомарного іона (константа процесу утворення негативного іона Br- ~ 10^{-10} $см^3$ /с [16]) його роль незначна. Збудження радикалів електронами в $B^2\Sigma^+_{1/2}$- стан (5) можливе в наших експериментальних умовах.

Висновки

В результаті комплексного дослідження оптичних характеристик випромінювання (спектральних, інтегральних та ресурсних) двох смугової ексилампи бар'єрного розряду атмосферного тиску на сумішах парів дийодиду та дибромiду ртуті з малими добавками молекулярного азоту виявлено співвідношення парціальних тисків компонент, які дають максимальний вихід випромінювання на довжинах хвиль λ_{max}=502 нм и λ_{max}=444 нм , а саме: HgI_2:$HgBr_2$:N_2:He = 0.1 кПа : 0.5 кПа : 2 кПа : 180 кПа. Досягнуті питомі потужності випромінювання: імпульсна 15.9 Вт / $см^3$ і середня 12 мВт / $см^3$ при частоті слідування імпульсів накачки 18 кГц, відповідно, ККД перетворення потужності накачування в потужність випромінювання ~ 15%. Виявлено довготривалу (~ 10^7 імпульсів стабільну (в межах помилки вимірювань 10%)) роботу ексилампі при підвищених частотах слідування імпульсів накачки, а саме ≥18 кГц, відповідно. Виявлено додаткові

процеси, що підвищують заселеність верхнього $B^2\Sigma^+_{1/2}$ -стану моногалогенідів ртуті в газорозрядної плазмі, якими є: додаткові процеси збудження молекул монобромiду ртуті ($B^2\Sigma^+_{1/2}$- стану) - процес передачі заселеності від молекули азоту в метастабільних станів N_2 ($A^3\Sigma^+_u$), а також збудження радикалів $HgX(X^2\Sigma^+_{1/2})$ електронами в $B^2\Sigma^+_{1/2}$- стан монойодіду і монобромiду ртуті.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Шевера, В.С., Шуаібов, А.К., Малинин, А.Н., Герц,С.Ю. Исследование ефективности образования моногалогенидов инертных газов в мпульсном разряде через диєлектрик//Оптика и спектроскопия.- 1980, - Т.49, -№5, - С.1205-1206.
2. Boichenko, A M, Lomaev, M I, Panchenko, A. N, et al., Ultraviolet and Vacuum Ultraviolet Excilamps:Physics, Engineering, and Applications, STT, Tomsk, 2011.-512 p. [in Russian].
3. Malinina, Antonina. Diagnostics of Optical Characteristics and Parameters of Gas-Discharge Plasma Based on Mercury Diiodide and Heliuierm Mixture// Open Journal of Applied Science.- 2015, -No 5, - P. 826-832.
4. Malinina, A.A., Malinin, A.N. Optical Characteristics of a Gas Discharge Plasma Based on a Mixture of Mercury Diiodide Vapor, Nitrogen, and Helium// Journal of Applied Spectroscopy.- 2016, -V. 83, -No. 4,-P. 592-597.
5. Малинина, А. А., Малинин, А. Н. Оптические характеристики и параметры газоразрядной плазмы на смеси паров дибромида ртути и аргона//Физика плазмы.-2015,- Т. 41, -№ 3, -С. 307–316.
6. Efimov, A.I, Belorukova, L P, Vasil'kova, I V, Chechev, V. P., Properties of Inorganic Compounds, Handbook, Khimiya, Leningrad, 1983.- 392 p.
7. Pearse, R. W., Gaydon, A. G., "The Identification of Molecular Spectra", Wiley, New York, 1963.- 347 p.
8. Zaidel, A. N, Prokof'ev, V. K., Raiskii, S. M., Slavnyi, V. A. and Shreider ,E Ya, 'Tables of Spectral Lines", Nauka, Moscow, 1977. - 800 p.
9. Erlandson, A.C., Cool, T.A. On the regeneration mechanismof HgBr in HgBr/HgBr dissociation lasers// Chem. Phys. Lett.- 1983,-V.96, -No 6, -P.685-689.
10. Liu, C.S., Liberman, Irving (1987), "Chemical Control of HgBr Lasers", IEEE Journal of Quntum Electronics,V.QE-23,No.2, pp..245-252.
11. Chang, R.S.T., Burnham, R. Dissociative excitation of HgBr by rare gas metastable atoms and N2 ($A^3\Sigma^+_u$) // Appl.Phys.Lett.- 1980,-V.36.,- №6,- P. 397-400.
12. Raizer Yu. P. (), Gas Discharge Physics, Nauka, Moscow, 1991.- 592 p.
13. Malinina, A. A., Malinin, A.N., Shuaibov, A. K. Optical characteristics and parameters of gas- discharge atmospheric pressure plasma in a mixture of mercury diiodide and mercury dibromide vapor, nitrogen and helium, Proceendings of the XVIII International scientists' conference of Electronics and Applied Physics, October, 24-27, 2017, Kyiv, Ukraine; Taras Shevchenko National University of Kiev. pp. 173-174
14. Roxlo, C.,Mandl, A. Quenching kinetics for the HgBr (B2Σ1/2) and HgJ ($B^2\Sigma_{1/2}$, $C^2\Pi_{1/2}$) states// J.Chem.Phys.-1980,- V.72,- No.1,-P. 541-543.
15. Burhman, R., Schimitschek, E.J. High-power blue-green lasers//Laser Focus.- 1981,- No. 6, -P. 54-61.
16. Малинин, А.Н., Шимон, Л.Л. Возбуждение состояния - B молекул HgBr* в газоразрядной плазме на смеси дибромида ртути с гелием//Квантовая электроника.-1996,- Т.23, -No.12,- С.1077-1080.

Стаття надійшла до редакції 3.12.2017.

А.А. Малинина, А.Н. Малинин
Ужгородский национальный университет, ул. Волошина, 54, Ужгород, 88000
e-mail: ant.malinina2018@gmail.com, alex.malinin@uzhnu.edu.ua

ОПТИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ДВУХПОЛОСНОЙ ЭКСИЛАМПЫ БАРЬЕРНОГО РАЗРЯДА НА МОЛЕКУЛАХ МОНОЙОДИДА И МОНОБРОМИДА РТУТИ

Приведены результаты исследования оптических характеристик (спектральных, интегральных и ресурсных) излучения газоразрядной плазмы атмосферного давления на смесях паров дийодиду и дибромида ртути с малыми добавками молекулярного азота. Выявлено излучения в видимой области спектра спектральных полос эксиплексных молекул монойодиду и монобромид ртути, молекул молекулярного азота и гелия , а также атомов гелия и ртути. Установлены закономерности в изменениях оптических характеристик плазмы в зависимости от частоты следования импульсов накачки, компонентного и количественного состава смесей. Данные исследований представляют интерес для создания мощных эксиплексных газоразрядных источников (ексиламп), одновременно излучают две полосы в видимом спектральном диапазоне.
Ключевые слова: ексилампа, галогеномисни молекулы, монойодид и монобромид ртути, видимый спектральный диапазон, барьерный разря

УДК 621.373.826.038.823
PACS 42.72.Bj, 52.80.-s, 52.80.Yr
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.73-79
A.A. Malinina, A.N. Malinin
Uzhgorod National University, Voloshin Str, 54, Uzhgorod, 88000
e-mail: ant.malinina2018@gmail.com, alex.malinin@uzhnu.edu.ua

OPTICAL CHARACTERISTICS OF THE TWO-BAND BARRIER DISCHARGE EXCILAMP ON MERCURY MONOIODIDE AND MERCURY MONOBROMIDE MOLECULES

Introduction: An important direction in the development of excilamps is the study of working media emitting simultaneously several molecular bands of various exciplex molecules and or excimer molecules in the visible and ultraviolet spectral ranges in connection with possible applications in biotechnologies, medicine, and others.
Purpose: The aim of the research was to determine the optical characteristics of a two-band excilamp on mercury monoiodide and monobromide molecules, the working media of which is a barrier discharge plasma on a mixture of mercury diiodide vapor and mercury dibromide vapor with helium and a small admixture of molecular nitrogen.
Methods: The development of a gas-discharge plasma and excitation of the components of the working mixture was carried out by a pulse-periodic barrier discharge with a pulse repetition rate of 1-20 kHz, pulse duration was 150 ns.
Results: The ratio of the partial pressures of the components that give the maximum radiation yield at the wavelengths λ_{max}== 502 nm and λ_{max}= = 444 nm, namely: HgI_2:$HgBr_2$:N_2:He = 0.1 kPa: 0.5 kPa: 2 kPa: 180 kPa are revealed. The following are achieved: the specific average and pulsed radiation power of 12 mW / cm^3 and 15.9 W / cm^3, respectively, at a pulse repetition rate of 18 kHz, the efficiency of excilamp is ~ 15%. The long-term operation of the excilampi was detected (~ 10^7 pulses). Additional processes were found, that increase the population of the upper $B^2\Sigma^+_{1/2}$-state of mercury monohalides in the gas-discharge plasma, which are: additional processes of excitation of mercury monobromide molecules ($B^2\Sigma^+_{1/2}$-state)- the process of transfer of the population from the nitrogen molecule in metastable states of N_2 ($A^3\Sigma^+_u$), as well as the excitation of radicals

$HgX(X\,^2\Sigma^+_{1/2})$ by electrons in $B^2\Sigma^+_{1/2}$-state of mercury monoiodide and mercury monobromide molecules.

Conclusion: The optical characteristics of a two-band barrier discharge excilamp on a mixture of mercury diiodide and mercury dibromide with helium and a small addition of molecular nitrogen are established. The radiation spectrum consists of the predominant radiation of two spectral bands of mercury monoiodide and mercury monobromide exciplex molecules, and low-intensity spectral bands of molecular nitrogen, lines of helium atoms and mercury. It is established the regularities in the change of the dependence in optical characteristics of plasma on repetition rate of the pump pulses of the discharge and quantitative composition of mixtures. These studies are of interest for the production of exciplex gas-discharge sources (excilamps) that simultaneously radiate two bands in a visible spectral range.

Keywords: excilamp, halogen-containing molecules, mercury monoiodide and mercury monobromide, visible spectral range, barrier discharge.

REFERENCES

1. Shevera, V.S., Shuaibov, A.K., Malinin, A.N., Herz, S.Yu. (1980), “ Issledovanie effektivnosti obrazovaniya monogalogenidov inertnih gazov v impulsnom razryade cherez dielectric”, Optika I spectroscopiya, V.49, No 5, pp.1205-1206.
2. Boichenko, A M, Lomaev, M I, Panchenko, A. N, et al. (2011), Ultraviolet and Vacuum Ultraviolet Excilamps:Physics, Engineering, and Applications, STT, Tomsk, 512 p. [in Russian].
3. Malinina, Antonina (2015), “Diagnostics of Optical Characteristics and Parameters of Gas-Discharge Plasma Based on Mercury Diiodide and Heliuierm Mixture”, Open Journal of Applied Science,No5,pp.826-832.
1. 4.Malinina, A.A., Malinin, A.N. (2016),“Optical Characteristics of a Gas Discharge Plasma Based on a Mixture of Mercury Diiodide Vapor, Nitrogen, and Helium”, Journal of Applied Spectroscopy, V. 83, No. 4, pp. 592-597.
4. Malinina, A.A., Malinin, A.N. (2015), “Optical characteristics and parameters of gas-discharge plasma in a mixture of mercury dibromide vapor with argon”, Plasma Physics Reports, V. 41, No 3, pp. 281-289.
5. Efimov, A. I, Belorukova, L P, Vasil’kova, I V, Chechev, V. P. (1983), Properties of Inorganic Compounds, Handbook, Khimiya, Leningrad, 392 p.
6. Pearse, R. W., Gaydon, A. G. (1963), “The Identification of Molecular Spectra”, Wiley, New York, 347 p.
7. Zaidel, A. N, Prokof’ev, V. K., Raiskii, S. M., Slavnyi, V.A. and Shreider, E.Ya (1977), ‘Tables of Spectral Lines” , Nauka, Moscow, 800 p.
8. Erlandson, A.C., Cool, T.A.(1983), “On the regeneration mechanismof HgBr in HgBr/HgBr dissociation lasers”, Chem. Phys. Lett., V.96, No 6, pp.685-689.
9. Liu, C.S., Liberman, Irving (1987), “Chemical Control of HgBr Lasers”, IEEE Journal of Quntum Electronics,V.QE-23,No.2, pp..245-252.
10. Chang, R.S.T., Burnham, R. (1980), “Dissociative excitation of HgBr by rare gas metastable atoms Appl.Phys.Lett.,V.36., №6, pp. 397-400.
11. Raizer Yu. P. (1991), Gas Discharge Physics, Nauka, Moscow, 592 p.
12. Malinina, A. A., Malinin, A.N., Shuaibov, A. K. “Optical characteristics and parameters of gas- discharge atmospheric pressure plasma in a mixture of mercury diiodide and mercury dibromide vapor, nitrogen and helium”, Proceendings of the XVIII International scientists’ conference of Electronics and Applied Physics, October, 24-27, 2017, Kyiv, Ukraine; Taras Shevchenko National University of Kiev. pp. 173-174
13. Roxlo, C.,Mandl, A “Quenching kinetics for the HgBr (B2Σ1/2) and HgJ ($B^2\Sigma_{1/2}$, $C^2\Pi_{1/2}$) states”, J.Chem.Phys.,(1980), V.72, No.1,.pp.541-543.
14. Burhman, R., Schimitschek, E.J. (1981), “High-power blue-green lasers”, Laser Focus, No. 6, pp.54-61.
15. Malinin, A.N., Shimon, L.L. (1996), “Vozbuzhdenie sostoyaniya - B molecul HgBr* v gazorazryadnoj plasme na smesi dibromida rtuti s geliem”, Kvantovaya electronika, V.23, No.12, pp.1077-1080.

© Ужгородський національний університет

УДК 535.34, 538.91
PACS: 78.20.Ci, 77.80.-e
DOI:10.24144/2415-8038.2017.42.80-84

П.П.Гуранич, О.В.Шуста, О.Г.Сливка, В.С.Шуста, P.Huranych
Ужгородський національний університет, вул.Волошина, 54, 88000, Ужгород
e-mail: pavlo.guranich@uzhnu.edu.ua

КРАЙ ФУНДАМЕНТАЛЬНОГО ПОГЛИНАННЯ ШАРУВАТИХ КРИСТАЛІВ $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$

Досліджено спектри оптичного поглинання шаруватих кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ в температурному інтервалі 200-400 К та під дією гідростатичного тиску до 350 МПа. Виявлено, що край фундаментального поглинання має експоненціальний характер та не підкоряється правилу Урбаха. Встановлено, що край оптичного поглинання формується непрямими міжзонними переходами. Визначено температурні та баричні коефіцієнти зсуву енергетичного положення КП в досліджуваних кристалах.

Ключові слова: сегнетиелектрики, фазові переходи, спектри поглинання, гідростатичний тиск.

Вступ

Кристали $Ag_xCu_{1-x}InP_2S_6$ належать до сімейства шаруватих кристалів $CuInP_2S_6$, які характеризуються наявністю сегнетиелектричних і п'єзоелектричних властивостей та змішаної електронно–іонної провідності, що обумовлює перспективність їх використання в якості матеріалів для функціональної електроніки [1]. Крім того кристали типу $CuInP_2S_6$ являються цікавими об’єктами для експериментальних досліджень так як володіють різними типами дипольного впорядкування і на фазових діаграмах яких реалізуються фазові переходи в антисегнето-, сегнети-, фази та фази дипольного скла [1,2].

Сегнетиелектрична поляризація при атмосферному тиску та температурі T_c=313К в кристалах $CuInP_2S_6$ [2] виникає в результаті фазового переходу (ФП) першого роду типу “лад - безлад”, перпендикулярно шарам і обумовлена антиколінеарними вкладами за рахунок впорядкування іонів міді і зміщення іонів індію. Все- бічне стиснення призводить до зміщення температури ФП в сторону висо- ких температур із баричним коефіцієнтом dT_c/dp=0,21 К/МПа. Навпаки, ізовалентне заміщення атомів Cu на Ag в твердих розчинах $Ag_xCu_{1-x}InP_2S_6$ зменшує температуру ФП до значення T_c=300К та T_c=283К відповідно для кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ та $Ag_{0.10}Cu_{0.90}InP_2S_6$. При цьому в кристалах $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ та $Ag_{0.10}Cu_{0.90}InP_2S_6$ спостерігається ФП аналогічний за характером ФП в $CuInP_2S_6$. Важливу інформацію про ФП в кристалах можна одержати із температурних досліджень краю оптичного поглинання (КП) світла. Вперше КП в кристалах $CuInP_2S_6$ було досліджено в роботі [3], де встановлено, що в сегнетиелектричній фазі КП кристалів $CuInP_2S_6$ формується прямими міжзонними переходами, а в парафазі – виконується правило Урбаха. Розрахована зонна енергетична структура сегнетиелектрика-напівпровідника [4] $CuInP_2S_6$ в обох фазах показала, що даний кристал є непрямозонним матеріалом. Теоретичні розрахунки про непрямозонний характер енергетичної структури $CuInP_2S_6$ підтверджені шляхом температурних досліджень краю оптичного поглинання світла сегнетиелектрика-напівпровідника $CuInP_2(Se_{0.1}S_{0.9})_6$, який є ізоструктурним $CuInP_2S_6$ [4]. Метою даної роботи було дослідження КП в шаруватих кристалах $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$.

Методика експерименту

Кристали $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ виро-щені за допомогою методу Бріджмена. Для вимірювань використовувалися зразки розмірами 4×4×0,06 мм, відколоті від вирощеного зразка перпендикулярно до осі *c*. Температура зразка контролювалась мідь-константановою термопарою з точністю

0,1 К. Гідростатичний тиск створювався за допомогою камери високого тиску і контролювався з точністю 1 МПа. Спектри поглинання досліджувались за допомогою дифракційного монохроматора МДР-2 та спектрометра USB400 фірми “Ocean optics”. з діапазоном реєстрації довжини хвиль 190-1100 нм. Для проведення оптичних досліджень нами використано оптичну тривіконну камера з неперервною зміною тиску.

Експериментальні результати

Спектральні залежності коефіцієнта поглинання кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ для різних температур наведені на рис.1. Виявлено, що у досліджуваному інтервалі температур край поглинання має експоненціальну форму.

Спектральні залежності коефіцієнта поглинання, в напівлогарифмічному масштабі для різних температурних областей наведені на рис. 2.

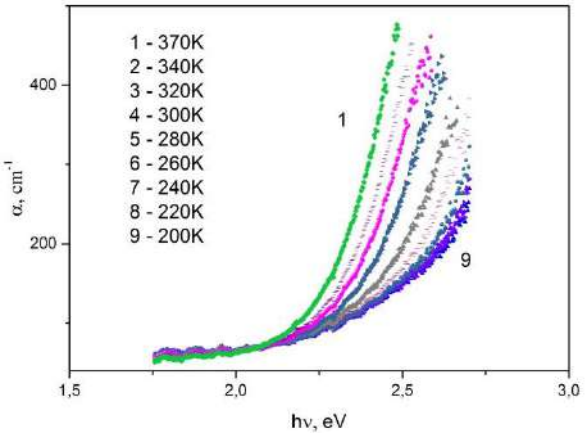


Рис. 1. Спектральні залежності коефіцієнта поглинання кристала $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ при різних температурах.

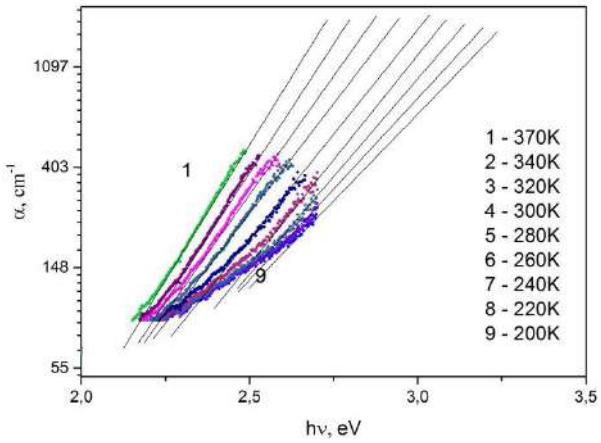


Рис. 2. Спектральні залежності коефіцієнта поглинання кристала $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$, в напівлогарифмічному масштабі для різних температур.

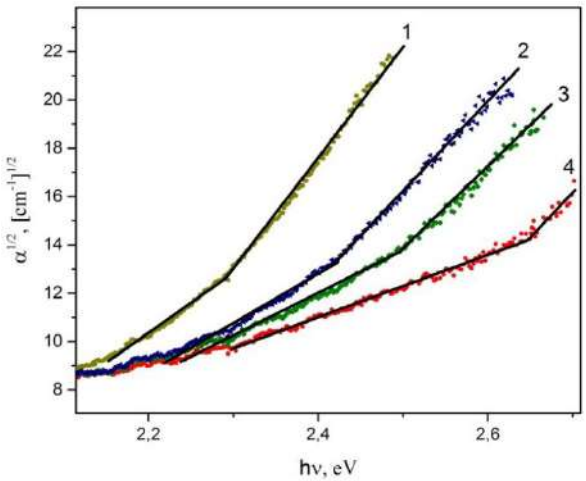


Рис. 3. Залежності $\alpha^{1/2}(h\nu)$ кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ при атмосферному тиску і різних температурах *T*,К:1-370; 2-300; 3-280; 4-211.

Як видно із рис. 3 в досліджуваній області температур правило Урбаха, характерне для кристалів $CuInP_2S_6$ не виконується.

На рис. 3 представлені залежності $\alpha^{1/2}(h\nu)$ кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ при атмосферному тиску і різних температурах. Видно злами в залежностях $\alpha^{1/2}(h\nu)$, які за теорією поглинання світла в напівпровідниках свідчать про непрямі оптичні переходи.

На основі проведених досліджень краю поглинання в кристалах $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ визначена температурна поведінка енергетичного положення краю поглинання кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ при атмосферному тиску та тиску *p*=330МПа приведена на рис. 4 та рис.5, відповідно.

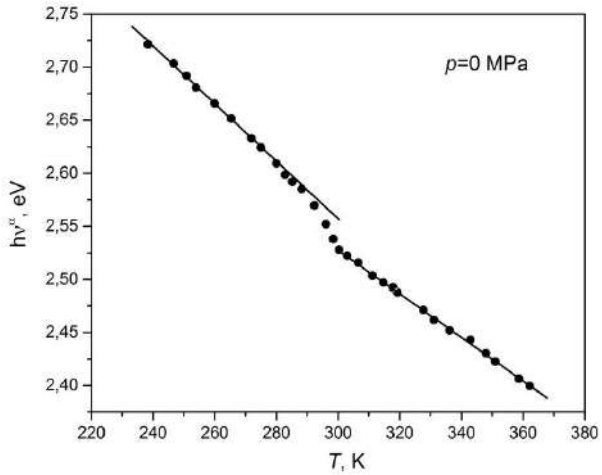


Рис. 4. Енергетичне положення $h\nu^{\alpha}$ (α= 300 см$^{-1}$) КП кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ при атмосферному тиску.

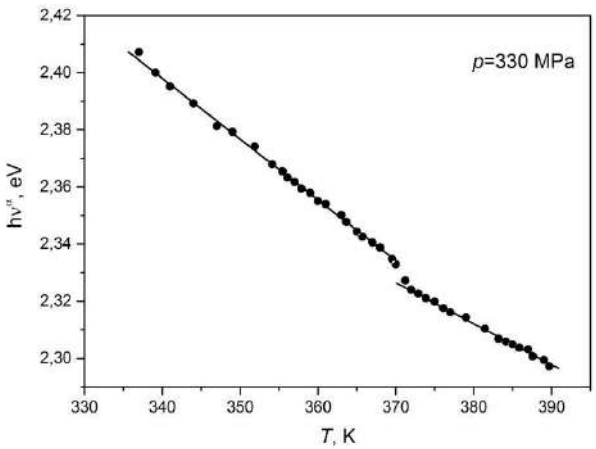


Рис. 5. Енергетичне положення $h\nu^{\alpha}$ (α= 300 см$^{-1}$) КП кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ при тиску p=330 МПа.

Видно, що при температурі T=300 К та T=370 К відповідно для тиску p=0 МПа та p=330 МПа має місце стрибок $h\nu^{\alpha}$(T), який відповідає фазовому переходу першого роду, що реалізується в цих кристалах. Температурні коефіцієнти зсуву енергетичного положення КП $d(h\nu^{\alpha})/dT$ приведені в таблиці 1.

На рис. 6 представлена барична поведінка енергетичного положення КП кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ при температурі T=330 К. При тиску p=150 МПа спостерігається аномалія енергетичного положення КП, яка відповідає ФП 1-го роду. Знайдені координати ФП з рис.4-6 добре узгоджуються із встановленою нами фазовою p,T-діаграмою кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ [5]. Баричний зсув температури фазового переходу для кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ описується співвідношенням:

$$T_c(p)=300\text{К}+0{,}21\text{К/МПа}\cdot p-5{,}3\cdot 10^{-5}\text{К/МПа}^2\cdot p^2 .$$

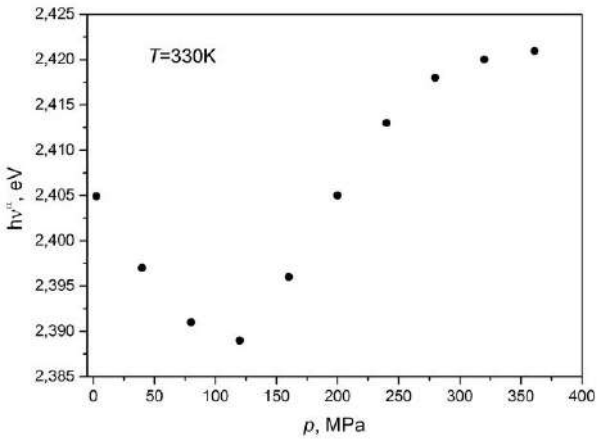


Рис. 6. Барична поведінка енергетичного положення $h\nu^{\alpha}$ (α= 300 см$^{-1}$) КП кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ при температурі T=300 К.

Таблиця 1. Температурні коефіцієнти зсуву енергетичного положення КП.

Фаза	$d(h\nu^{\alpha})/dT$, еВ/К (при p=0МПа)	$d(h\nu^{\alpha})/dT$, еВ/К (при p=330МПа)
Сегнети-електрична	-0,0027	-0,0021
Пара-електрична	-0,0020	-0,0014

Висновки

Досліджено спектри оптичного поглинання кристалів $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ в області фазових переходів в температурному інтервалі 200-400 К та при дії гідростатичного тиску до 350 МПа. Виявлено, що край фундаментального поглинання має експоненціальний характер і не підкоряється правилу Урбаха. В даних кристалах КП формується непрямими оптичними переходами.

На основі досліджень спектральних залежностей коефіцієнта поглинання в кристалах $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ визначено температурні та баричні коефіцієнти зсуву енергетичного положення КП.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Maisonneuve V., Cajipe V. B., Simon A., VonderMuhl R. and Ravez J. Ferrielectric ordering in lamellar $CuInP_2S_6$//Phys.Rev B.-1997.-v.56.-P. 10860-10867.
2. Simon A., Ravez J., Maisonneuve V.,Payen C., and Cajipe V.B. Paraelectric-Ferroelectric Transition in the LamellaThiophosphate $CuInP_2S_6$ // Chem. Mater. -1994. - 6. - P . 1575-1580.
3. Studenyak I. P., Mitrovcij V. V., Kovacs Gy. S., Gurzan M. I., Mykajlo O. A., Vysochanskii Yu. M , Cajipe V. B. Disordering effect on optical absorption processes in $CuInP_2S_6$ layered ferrielectrics//

Phys. stat. sol. (b).- 2003. - No. 3. - P . 678-686.
4. K.E. Glukhov, V.Yu. Bihanych, E.I. Gerzanych. The band energy structure of $CuInP_2S_6$ ferrielectric–semiconductor and indirect optical transitions in $CuInP_2(Se_{0.1}S_{0.9})_6$ // Uzhhorod University Scientific Herald. Series Physics. Issue 33. – 2013.-P.50-57.
5. O.V.Shusta, O.G.Slivka, V.S.Shusta, N.V.Lokota. Electrical conduc- tivity of $CulnP_2S_6$, $Culn_{1+\delta}P_2S_6$, $Ag_{0,05}Cu_{0,95}lnP_2S_6$ crystals under high hydrostatic pressure// Uzhhorod Univer-sity Scientific Herald. Series Physics. Issue 37. – 2015.-P.79-82.

Стаття поступила до редакції 20.10.2017.

П.П.Гуранич, О.В.Шуста, О.Г.Сливка, В.С.Шуста, P.Huranych
Ужгородский национальный университет, ул.Волошина, 54, 88000, Ужгород

КРАЙ ФУНДАМЕНТАЛЬНОГО ПОГЛОЩЕНИЯ СЛОИСТЫХ КРИСТАЛЛОВ $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$

Исследовано спектры оптического поглощения слоистых кристаллов $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ в температурном интервале 200-400 К при действии гидростатического давления до 350 МПа. Обнаружено, что край фундаментального поглощения имеет экспоненциальный характер и не подчиняется правилу Урбаха. Установлено, что оптический край поглощения формируется непрямыми межзонными переходами. Определены температурные и барические коэффициенты сдвига энергетического положения КП в исследованных кристаллах.

Ключевые слова: сегнетиэлектричество**,** фазовые переходы, спектры поглощения, гидростатическое давление.

P.P.Guranich, A.V.Shusta, A.G.Slivka, V.S.Shusta, P.Huranich
Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Ukraine.

THE OPTICAL ABSORPTION EDGE OF $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ LAYERED CRYSTALS

Purpose: $Ag_xCu_{1-x}InP_2S_6$ crystals belong to the family of $CuInP_2S_6$ layered crystals characterized by the presence of ferrielectric and piezoelectric properties and mixed electron-ion conductivity, which determines the prospect of their use as materials for functional electronics.

Methods: Crystals of $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ were grown using the Bridgman technique. For measurements, samples of size of 4×4×0.06 mm were used, splitted from the grown sample perpendicular to the axis c. The sample temperature was controlled by a copper-constantan thermocouple with an accuracy of 0.1 K. The hydrostatic pressure was created using a high pressure chamber and controlled with an accuracy of 1 MPa. Absorption spectra were investigated using the diffraction monochromator MDR-2 and the USB400 spectrometer “Ocean optics” in the interval of wavelength 190-1100 nm. For optical measurements we used an optical three-window chamber with a continuous change in pressure.

Results: The spectral dependences of the absorption coefficient of $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ crystals for different temperatures were studied in the range of hydrostatic pressures up to 350 MPa. It was found that in the investigated temperature range the absorption edge has an exponential shape. In the studied region of temperature and pressure for $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ crystals the Urbach's rule is not fulfilled. The dependences of $\alpha^{1/2}(h\nu)$ at atmospheric pressure and at different temperatures for $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$

crystals were built. Breaks on the dependencies $\alpha^{1/2}(h\nu)$ correspond indirect interband transitions. Based on the performed studies of the absorption edge of $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ crystals, the temperature and pressure behavior of the energy position of the absorption edge of $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ crystals were studied.
Conclusions: Optical absorption spectra of $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ layered crystals under hydrostatic pressure up 350 MPa were investigated in the temperature range of 200–400 K. It was found, that the absorption edge is increasing exponentially and is not explained using Urbach rule. The optical absorption edge of layered crystals of $Ag_{0.05}Cu_{0.95}InP_2S_6$ is formed by indirect allowed interband transitions. Pressure and temperature behavior of the characteristic parameters of the optical absorption edge in the phase transition regions of the paraelectric-ferrilectric phases were obtained.
Keywords: ferrielectrics, phase transitions, absorption spectra, hydrostatic pressure,
PACS NUMBER: 78.20.Ci, 77.80.-e

REFERENCES

1. Maisonneuve V., Cajipe V. B., Simon A., VonderMuhl R. and Ravez J. Ferrielectric ordering in lamellar $CuInP_2S_6$//Phys.Rev B.-1997.-v.56.-P. 10860-10867.
2. Simon A., Ravez J., Maisonneuve V., Payen C., and Cajipe V.B. Paraelectric-Ferroelectric Transition in the LamellaThiophosphate $CuInP_2S_6$ // Chem. Mater. -1994. - 6. - Р . 1575-1580.
3. Studenyak I.P., Mitrovcij V.V., Ko- vacs Gy. S., Gurzan M.I., Mykajlo O.A., Vysochanskii Yu.M, Cajipe V.B. Disor- dering effect on optical absorp- tion processesin $CuInP_2S_6$ layered ferrielectrics// Phys. stat. sol. (b).- 2003. - No. 3. - Р . 678-686.
4. Glukhov K.E., Bihanych V.Yu., Gerzanych E.I.. The band energy structure of $CuInP_2S_6$ ferrielectric–semiconductor and indirect optical transitions in $CuInP_2(Se_{0.1}S_{0.9})_6$ // Uzhhorod University Scientific Herald. Series Physics. Issue 33. – 2013.-P.50-57.
5. Shusta O.V., Slivka O.G., Shusta V.S., Lokota N.V. Electrical conduc- tivity of $CuInP_2S_6$, $CuIn_{1+\delta}P_2S_6$, $Ag_{0,05}Cu_{0,95}InP_2S_6$ crystals under high hydrostatic pressure// Uzhhorod University Scientific Herald. Series Physics. Issue 37. – 2015.-P.79-82.

© Ужгородський національний університет

УДК 539.186, 539.196
PACS 34.50.-s; 34.70.+e; 03.65.Ge; 03.65.Sq
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.85-94

Т.І. Велеган, М.М. Руснак, М.І. Карбованець
Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54
e-mail: m.karbovanets@gmail.com

ВПЛИВ ЕЛЕКТРОННИХ КОРЕЛЯЦІЙ НА ДИНАМІКУ ДВОЕЛЕКТРОННОЇ ПЕРЕЗАРЯДКИ ІОНІВ НА ПОЛЯРНИХ МОЛЕКУЛАХ

У рамках асимптотичної теорії одержано аналітичне представлення для матричного елемента двоелектронної обмінної взаємодії, що визначає процес постадійної двоелектронної перезарядки у повільних зіткненнях іонів з полярними молекулами.

Ключові слова*:* полярні молекули, повільні зіткнення, постадійна двоелектронна обмінна взаємодія, асимптотична теорія.

1. Вступ

Непружні зіткнення багатоелектронних атомних та молекулярних частинок супроводжуються низкою процесів зміни їх зарядових та електронних станів. Найпростішими, добре вивченими прикладами є одноелектронні іон-атомні процеси (перезарядка та іонізація), в яких змінює свій стан лише один електрон, а решту можна вважати “замороженими”. Однак, при теплових енергіях зіткнення настільки ж, а часто і більш ймовірними, ніж одноелектронні, виявляються двоелектронні процеси, зокрема, двоелектронна перезарядка та перезарядка з одночасним збудженням чи іонізацією.

Дана робота присвячена розвиненню асимптотичної теорії атомних зіткнень для описання процесів двоелектронного обміну при повільних зіткненнях багатозарядних іонів з полярними молекулами, які становлять значний інтерес для астрофізики, фізики плазми та квантової хімії (див., напр., [1,2]).

Відомо [1,2], що процес двоелектронного захоплення при низькоенергетичних зіткненнях багатозарядного іона B^{Z_b+} з полярною молекулою $A_p^{(Z_a-2)+}$ може здійснюватися як у результаті двох послідовних незалежних одноелектронних переходів в одному акті зіткнення

$$A_p^{(Z_a-2)+}(e_1,e_2)+B^{Z_b+}\to A_p^{(Z_a-1)+}(e_2)+B^{(Z_b-1)+}(e_1)\to A_p^{Z_a+}+B^{(Z_b-2)+}(e_1,e_2), \qquad (1)$$

так і шляхом одночасного переходу двох електронів від молекули $A_p^{(Z_a-2)+}$ до іона B^{Z_b+} в околі точки квазіперетину двоелектронних термів початкового $A_p^{(Z_a-2)+}+B^{Z_b+}$ та кінцевого $A_p^{Z_a+}+B^{(Z_b-2)+}$ квазімолекулярних станів:

$$A_p^{(Z_a-2)+}+B^{Z_b+}\to A_p^{Z_a+}+B^{(Z_b-2)+}. \qquad (2)$$

Тут Z_a і Z_b – ефективні заряди молекулярного залишку $A_p^{Z_a+}$ та іона B^{Z_b+}).

У випадку реалізації двоелектронного обміну шляхом двох послідовних одноелектронних переходів (1) початковий та кінцевий квазімолекулярні стани зв’язані через дві проміжні одноелектронні сильно взаємодіючі конфігурації у двох областях сильного неадіабатичного зв’язку. Хоча цей механізм визначає перебіг двоелект-

ронних процесів у багатьох квазімолекулярних системах, з теоретичної точки зору він менш цікавий, ніж прямий двоелектронний обмін (2), оскільки динаміка послідовних одноелектронних переходів наразі вивчена достатньо повно. Матричні елементи одноелектронної обмінної взаємодії, що визначають реакцію (1), можна обчислити методом, розвиненим у роботах [3,4]. У той же час, одноступінчатий двоелектронний процес (2) має чисто кореляційний характер – одночасний перехід двох електронів у такому процесі здійснюється внаслідок корельованої двоелектронної обмінної взаємодії, теорію якої було побудовано в праці [5].

Якщо захоплення електрона в реакції (1) призводить до утворення збудженого стану іона $B^{(Z_b-1)+*}$, то можуть відкриватися додаткові канали реакції двоелектронної перезарядки. Дійсно, електронний терм початкової конфігурації $A_p^{(Z_a-2)+}+B^{Z_b+}$, взагалі кажучи, може перетинатися з термами збуджених станів квазімолекулярної системи $A_p^{(Z_a-1)+}+B^{(Z_b-1)+*}$. Наявність таких квазіперетинів може призвести до того, що при зближенні молекули з багатозарядним іоном раніше відбудеться захоплення одного електрона у збуджений стан іона $B^{(Z_b-1)+*}$. Оскільки такий процес має, як правило, більший переріз, ніж пряме двоелектронне захоплення (2), то цей факт, здавалося б, закриває канал прямого двоелектронного обміну (2) тим сильніше, чим з більшою ймовірністю відбувається захоплення електрона у збуджений стан іона $B^{(Z_b-1)+*}$. Проте, така ситуація не завжди має місце. Наприклад, якщо дозволений дипольний перехід (або переходи вищої мультипольності) $B^{(Z_b-1)+*}\to B^{(Z_b-1)+}$, то в подальшому стають можливими двоелектронні процеси, у яких “активні” електрони, обмінюючись енергією, здійснюють наступні переходи: збуджений електрон e_1 іона $B^{(Z_b-1)+*}$ переходить в основний стан $B^{(Z_b-1)+}$, а інший електрон e_2, за рахунок міжелектронної взаємодії, захоплюється з основного стану молекулярного іона $A^{(Z_a-1)+}$ на зовнішню орбіту частинки $B^{(Z_b-2)+}$. Вказану послідовність електронних переходів, що відбуваються впродовж одного акту зіткнення, можна подати у такому вигляді:

$$A_p^{(Z_a-2)+}(e_1,e_2)+B^{Z_b+}\to A_p^{(Z_a-1)+}(e_2)+B^{(Z_b-1)+*}(e_1)\to A_p^{Z_a+}+B^{(Z_b-2)+}(e_1,e_2). \qquad (3)$$

Така двоступінчата реакція включає одноелектронну обмінну взаємодію на першому етапі зіткнення і корельовану двоелектронну обмінну взаємодію – на другому.

У даній роботі методами асимптотичної теорії атомних зіткнень досліджено асимптотику двоелектронного обмінного матричного елемента, відповідального за корельовану двоелектронну обмінну взаємодію для постадійного обміну двома електронами (3).

Використовується атомна система одиниць ($e^2=\hbar=m_e=1$).

2. Загальна структура обмінного матричного елемента

Дослідимо асимптотику двоелектронного обмінного матричного елемента H_{ab}, який визначає процес постадійного захоплення двох електронів при повільних зіткненнях полярної молекули $A_p^{(Z_a-2)+}$ з іоном B^{Z_b+} виду (3) (другий етап постадійної реакції (3)). Будемо вважати, що молекулярний $A_p^{Z_a+}$ та іонний B^{Z_b+} кістяки містять замкнуті електронні оболонки і не змінюють свого стану в процесі зіткнення. Тоді задача зводиться до розгляду руху двох активних електронів у полі двох іонів: молекулярного – $A_p^{Z_a+}$ і атомного – B^{Z_b+}. У рамках двоелектронного наближення електронний гамільтоніан квазімолекули запишемо у виді:

$$\hat{H}_{el}=\sum_{i=1}^{2}\left(-\frac{\Delta_{\vec{r}_i}}{2}+V_a(\vec{r}_{ia})+V_b(\vec{r}_{ib})\right)+r_{12}^{-1}, \qquad (4)$$

де $\vec{r}_{ia}$ ($\vec{r}_{ib}$) – радіус-вектор i-го електрона відносно центра мас $A_p^{Z_a+}$ (B^{Z_B+}) ($i=1,2$); r_{12} – відстань між електронами. Потенціали $V_a(\vec{r}_{ia})$ і $V_b(\vec{r}_{ib})$ взаємодії i-го електрона відповідно з іонними залишками $A_p^{Z_a+}$ і B^{Z_B+} мають наступні асимптотики:

$$V_{a,b}(\vec{r}) \xrightarrow[r\to\infty]{} -Z_{a,b}/r. \qquad (5)$$

Матричний елемент двоелектронної обмінної взаємодії H_{ab} задається канонічним виразом (див., напр., [1,2,5]):

$$H_{ab} = <\Psi_b|\hat{H}_{el}|\Psi_a> - \\ -<\Psi_b|\Psi_a><\Psi_a|\hat{H}_{el}|\Psi_a>. \qquad (6)$$

Для знаходження правильної асимптотики H_{ab} необхідно визначити збурені двоелектронні хвильові функції Ψ_a і Ψ_b квазімолекули $(A_pB)^{(Z_a+Z_b-2)+}$, які при $R\to\infty$ переходять у хвильові функції початкового $A_p^{(Z_a-1)+}+B^{(Z_b-1)+*}$ і кінцевого $A_p^{Z_a+}+B^{(Z_b-2)+}$ станів роз'єднаних частинок. Зауважимо, що хвильова функція Ψ_b центрована на іоні B^{Z_b+}.

Запровадимо системи координат $\{x,y,z\}$ та $\{\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}\}$ із спільним центром O у центрі мас полярної молекули так, щоб вісь z була направлена уздовж вектора $\vec{R}$, а вісь $\tilde{z}$ – уздовж напрямку дипольного моменту $\vec{d}_1$ молекулярного залишку $A_p^{(Z_a-1)+}$ (рис. 1; детальніше про вибір систем координат див. [5]).

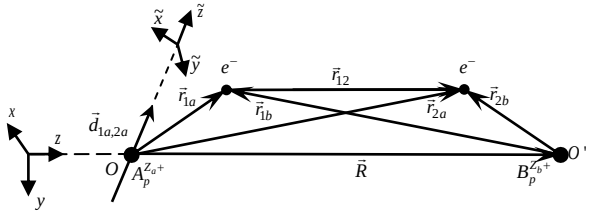


Рис.1. Геометрія квазімолекули

Знайдемо хвильову функцію Ψ_a, що описує електронну підсистему в початковому стані квазімолекули $A_p^{(Z_a-1)+}+B^{(Z_b-1)+*}$. Позначимо через S_a сумарний спіновий момент виділеної електронної пари, M_{S_a} – його проекцію на вісь $O\tilde{z}$, а m_{1a} та m_{2a} – проекції орбітальних моментів активних електронів на цю ж вісь. Симетризовану двоелектронну хвильову функцію Ψ_a запишемо у виді (у системі $\{\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}\}$):

$$\Psi_a = \frac{1}{\sqrt{2}}\left[\Phi_{1a}(\tilde{\vec{r}}_1,\tilde{\vec{r}}_2)+(-1)^{S_a}\Phi_{2a}(\tilde{\vec{r}}_1,\tilde{\vec{r}}_2)\right]\chi_{S_aM_{S_a}}, \qquad (7)$$

де $\chi_{S_aM_{S_a}}$ – спінова двоелектронна функція, $\Phi_{1a}(\tilde{\vec{r}}_1,\tilde{\vec{r}}_2)$ і $\Phi_{2a}(\tilde{\vec{r}}_1,\tilde{\vec{r}}_2)\equiv\Phi_{1a}(\tilde{\vec{r}}_1\leftrightarrow\tilde{\vec{r}}_2)$ – двоелектронні координатні хвильові функції.

Перейдемо до побудови електронної хвильової функції кінцевого стану Ψ_b. Позначимо через $\ell_{1b}m_{1b}$, $\ell_{2b}m_{2b}$ орбітальні моменти і їх проекції на міжцентрову вісь $\vec{R}$ електронів, що беруть участь у перезарядці і центровані на іоні B^{Z_b+}. Нехай L_b, S_b – їх повний орбітальний і спіновий моменти, а M_{L_b} і M_{S_b} – відповідні їм проекції на вісь $\vec{R}$. Тоді хвильова функція Ψ_b у схемі LS – зв'язку має вигляд (у системі координат $\{x,y,z\}$):

$$\Psi_b = \frac{1}{\sqrt{2}}\sum_{m_{1b},m_{2b}} C^{L_bM_{L_b}}_{\ell_{1b}m_{1b},\ell_{2b}m_{2b}}\times \\ \times\left[\Phi_{1b}(\vec{r}_1,\vec{r}_2)+(-1)^{S_b}\Phi_{2b}(\vec{r}_1,\vec{r}_2)\right]\chi_{S_bM_{S_b}}, \qquad (8)$$

де $C^{\cdots}_{\cdots}$ – коефіцієнти Клебша-Гордона.

Для встановлення правильної асимптотики матричного елемента H_{ab} необхідно знайти асимптотично точні (при $R\to\infty$) зображення для двоелектронних квазімолекулярних хвильових функцій $\Phi_{k\lambda}$. Очевидно, що при великих R функції Φ_{kb} і Φ_{ka} слабо відрізняються від незбурених атомної $\Phi_{kb}^{(0)}$ і молекулярної $\Phi_{ka}^{(0)}$ хвильових функцій: $\Phi_{k\lambda}\xrightarrow[R\to\infty]{}\Phi_{k\lambda}^{(0)}$. Про-

те, ця незначна відмінність, яка викликана спотворенням електронної густини атома або молекули чужим збурюючим центром при $R >> 1$, дуже істотна, оскільки саме вона визначає правильну асимптотику обмінної взаємодії.

Надалі обмежимося випадком, коли перший потенціал іонізації іона $B^{(Z_b-2)+}$ менший, ніж другий потенціал іонізації молекулярного іона $A_p^{(Z_a-2)+}$, тобто $1/n_{2a} > 1/n_{1b}$. У цьому випадку двоелектронний обмінний матричний елемент (6) визначається електронною конфігурацією, що відповідає рознесеним по різним центрам активним електронам, коли зовнішній (слабко зв'язаний) електрон заходить в область чужого атомного (молекулярного) залишку, а внутрішній (більш сильно зв'язаний) – залишається біля свого [5]. Це дозволяє записати двоелектронні координатні хвильові функції Φ_{1a} і Φ_{2b} у потрібних областях у вигляді простого добутку одноелектронних орбіталей

$$\Phi_{1a}(\vec{r}_1,\vec{r}_2) = \varphi_a^{(0)}(\vec{r}_2)\varphi_b^{(i)}(\vec{r}_1),$$

$$\Phi_{2b}(\vec{r}_1,\vec{r}_2) = \varphi_b^{(0)}(\vec{r}_1)\varphi_{ba}(\vec{r}_2), \qquad (9)$$

де $\varphi_{ba}(\vec{r}_2)$ є хвильовою функцією зовнішнього електрона атомної частинки $B^{(Z_b-2)+}$ у околі молекулярного залишку $A_p^{Z_a+}$ (другий індекс "a" функції φ_{ba} означає, що розглядається її значення поблизу центру $A_p^{Z_a+}$), $\varphi_a^{(0)}(\vec{r}_2)$ – хвильова функція основного електронного стану молекулярного іона $A_p^{(Z_a-1)+}$, $\varphi_b^{(0)}(\vec{r}_1)$ і $\varphi_b^{(i)}(\vec{r}_1)$– хвильові функції основного та збудженого станів іона $B^{(Z_b-1)+}$.

Важливою властивістю функцій Φ_{1a} і Φ_{2b} є їх наближена ортогональність [1,2,5]. Тому в матричному елементі H_{ab} (6) ненульовий внесок робить лише міжелектронна взаємодія, а для шуканої асимптотики обмінної взаємодії H_{ab} можна одержати наступне зображення через одноелектронні орбіталі:

$$H_{ab} \underset{R\to\infty}{\cong} (-1)^{S_b} \sum_{m_{1b},m_{2b}} C^{L_b M_{L_b}}_{\ell_{1b}m_{1b},\ell_{2b}m_{2b}} \times \qquad (10)$$

$$\times < \varphi_b^{(0)}(\vec{r}_{1b})\varphi_{ba}(\vec{r}_{2a})\left|\frac{1}{r_{12}}\right|\varphi_b^{(i)}(\vec{r}_{1b})\varphi_a^{(0)}(\vec{r}_{2a}) > .$$

Зазначимо, що матричний елемент (10) спадає при $R\to\infty$ пропорційно експоненті $\exp(-R/n_{1b})$, що не містить потенціал іонізації $1/2n_{2a}^2$ молекулярного іона $A_p^{(Z_a-1)+}$ (або другий потенціали іонізації молекули $A_p^{(Z_a-2)+}$). Добуток функцій $\varphi_b^{(0)}(\vec{r}_{1b})\varphi_b^{(i)}(\vec{r}_{1b})$ під інтегралом в (10) зосереджений в околі центра "b", а добуток іншої пари функцій $\varphi_{ba}(\vec{r}_{2a})\varphi_a^{(0)}(\vec{r}_{2a})$ – у околі центра "a". Тому основний внесок у обмінну взаємодію (10) робить конфігурація, коли електрони локалізовані далеко один від одного – біля різних центрів. Ця обставина спрощує обчислення обмінного матричного елемента (10), оскільки дозволяє використовувати хвильові функції нульового наближення, які не враховують кореляційну взаємодію електронів.

Для обчислення двоелектронного обмінного матричного елемента H_{ab} (10) необхідно конкретизувати одноелектронну хвильову функцію $\varphi_{ba}(\vec{r}_{2a})$ квазімолекулярної системи $A_p^{Z_a+} + B^{(Z_b-2)+}$ у області конфігураційного простору двоелектронних координат, що робить основний внесок у асимптотику H_{ab} – в околі іона полярної молекули $A_p^{Z_a+}$. Що ж стосується хвильових функції $\varphi_a^{(0)}(\vec{r})$, $\varphi_b^{(0)}(\vec{r})$ та $\varphi_b^{(i)}(\vec{r})$, то вони вважаються відомими, як незбурені хвильові функції відповідно основного електронного стану молекулярного іона $A^{(Z_a-1)+}$ та основного і збудженого станів іона $B^{(Z_b-1)+}$. Їх явний вид залежить від обраної моделі іонів $A_p^{Z_a+}$, B^{Z_b+} і буде конкретизовано нижче.

Оскільки найбільш ймовірними електронними переходами на іоні $B^{(Z_b-1)+}$ є диполь-дипольні переходи, представимо потенціал міжелектронної взаємодії в дипольному наближенні:

$$\frac{1}{r_{12}} = -\frac{8\pi}{3R^3}\sum_{q=-1}^{+1}\sum_{j=-1}^{+1}\frac{r_{2a}\mathrm{Y}_1^j\left(\tilde{\theta}_{2a},\tilde{\varphi}_{2a}\right)D_{qj}^{1*}(0,\beta,0)r_{1b}\mathrm{Y}_1^{-q}\left(\theta_{1b},\varphi_{1b}\right)}{(1+q)!(1-q)!}, \qquad (11)$$

$D_{km}^{\ell}(\alpha,\beta,\gamma)$ – функції Віґнера.

Підставивши тепер (11) у (10), одержимо наступний вираз для H_{ab}:

$$H_{ab}^{dd} = \frac{(-1)^{S+1}8\pi}{3R^3}\times$$

$$\sum_{m_{1b},m_{2b}} C_{\ell_{1b}m_{1b},\ell_{2b}m_{2b}}^{L_bM_{L_b}}\sum_{q=-1}^{+1}\sum_{j=-1}^{+1}\frac{D_{qj}^{1*}(0,\beta,0)}{(1+q)!(1-q)!}H_{1b}^{d}H_{2a}, \qquad (12)$$

де

$$H_{1b}^{d} = \int \varphi_b^{(i)}(\vec{r}_{1b})\varphi_b^{(0)*}(\vec{r}_{1b})r_{1b}\mathrm{Y}_1^{-q}(\theta_{1b},\varphi_{1b})d\vec{r}_{1b}, \qquad (13)$$

$$H_{2a} = \int \varphi_{ba}^{*}\left(\vec{\tilde{r}}_{2a}\right)\varphi_a^{(0)}\left(\vec{\tilde{r}}_{2a}\right)r_{2a}\mathrm{Y}_1^{j}\left(\tilde{\theta}_{2a},\tilde{\varphi}_{2a}\right)D_{qj}^{1*}d\vec{\tilde{r}}_{2a}. \qquad (14)$$

Із (12)-(14) випливає, що хвильові функції $\varphi_a^{(0)}$, $\varphi_b^{(0)}$ та $\varphi_b^{(i)}$ необхідно знати в областях, де вони максимальні. Їх можна вважати відомими, як незбурені одноелектронні хвильові функції відповідно молекулярного іона $A_p^{(Z_a-1)+}$ та атомного іона $B^{(Z_b-1)+}$. Явний вигляд функцій $\varphi_a^{(0)}$, $\varphi_b^{(0)}$ та $\varphi_b^{(i)}$ для модельного потенціалу приведений у наступному розділі.

Як зазначалося у вступі, в роботі [5] в рамках моделі кулоно-дипольного потенціалу були одержані асимптотика одноелектронної хвильової функції $\varphi_{ba}(\vec{r}_{2a})$ квазімолекулярної системи $A_p^{Z_a+}+B^{(Z_b-2)+}$ у області конфігураційного простору задачі, що робить основний внесок у асимптотику обмінного матричного елемента (10) – в околі іона полярної молекули A^{Z_a+}. У наступному розділі результати праці [5] використовуються для обчислення головного члена розкладу матричного елемента двоелектронної обмінної взаємодії H_{ab} за степенями $R^{-1} << 1$.

3. Асимптотика двоелектронної обмінної взаємодії

Для обчислення обмінної взаємодії H_{ab} конкретизуємо вид хвильових функцій, що входять у (13) і (14).

Хвильова функція $\varphi_{ba}\left(\vec{\tilde{r}}_{2a}\right)$ є розв'язком рівняння Шредінґера (у системі координат $\{\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}\}$):

$$\left(-\frac{\Delta}{2}+V_a(r_{2a})+U_b\left(\left|\vec{R}-\vec{\tilde{r}}_{2a}\right|\right)-E_{1b}\right)\varphi_{ba}\left(\vec{\tilde{r}}_{2a}\right)=0, \qquad (15)$$

де $V_a(r_a)$ – потенціал взаємодії електрона з молекулярним залишком $A_p^{Z_a+}$, а $U_b(r_b)$ – потенціал взаємодії електрона зі сферично симетричним полем багатозарядного іона $B^{(Z_b-1)+}$. У рамках моделі кулоно-дипольного потенціалу вважаємо, що "зовнішній" електрон іона $B^{(Z_b-2)+}$ рухається у ефективному аксіально-симетричному потенціалі $V_a(r_a)$, що включає взаємодію з кулонівським полем молекулярного залишку із зарядом Z_a та дипольним моментом $\vec{d}_2$ молекулярного іона $A_p^{Z_a+}$:

$$V_a(r_{2a}) = -\frac{Z_a}{r_{2a}} - \frac{\vec{d}_2\vec{\tilde{r}}_{2a}}{r_{2a}^3}. \qquad (16)$$

Потенціал $U_b(r_{2b})$ має наступну асимптотику: $U_b(r)\xrightarrow[r\to\infty]{}-(Z_b-1)/r$. При $1<r_{2b}<<R$ функція $\varphi_{ba}(\vec{r}_{2b})$ збігається з незбуреною хвильовою функцією $\varphi_b(\vec{r}_{2b})$ ізольованого іона $B^{(Z_b-2)+}$. Як показано в [5], асимптотику хвильової функції $\varphi_{ba}\left(\vec{\tilde{r}}_{2a}\right)$ іона $B^{(Z_b-2)+}$ у околі молекулярного іона $A_p^{Z_a+}$ можна представити у виді:

$$\varphi_{ba}\left(\tilde{\vec{r}}_{2a}\right)\underset{r_{2a}\approx 1}{\approx} D_b(R)\sum_{\tilde{\ell}=0}^{\infty}\sum_{\tilde{m}=-\tilde{\ell}}^{+\tilde{\ell}}\sum_{\lambda\geq|\tilde{m}|}\sum_{\mu\geq|\tilde{m}|}(-1)^{\lambda+|\tilde{m}|}a_{\lambda}^{\tilde{m}}a_{\mu}^{\tilde{m}}\left[\frac{(2\mu+1)(\mu+|m_{1b}|)!}{(\mu-|m_{1b}|)!}\right]^{1/2}\left[\frac{(2\lambda+1)(\lambda-|\tilde{m}|)!}{(\lambda+|\tilde{m}|)!}\right]^{1/2}\times$$

$$\times D_{m_{1b}\tilde{m}}^{\mu*}(0;\beta;0)\frac{\tilde{f}_{1\tilde{\ell}}^{(0)}(r_{2a})}{r_{2a}}P_{\lambda}^{|\tilde{m}|}(\tilde{\theta}_{2a})e^{i\tilde{m}\tilde{\phi}_{2a}}\,. \qquad (17)$$

Функції $\tilde{f}_{1\tilde{\ell}}^{(0)}(r_{1b})$ є регулярними в нулі розв'язками рівняння

$$\frac{d^2\tilde{f}_{1\tilde{\ell}}^{(0)}}{dr^2}+2\left(E_{1b}+\frac{Z_a}{r}-\frac{s_{\tilde{\ell}}(s_{\tilde{\ell}}+1)}{2r^2}\right)\tilde{f}_{1\tilde{\ell}}^{(0)}=0\,. \qquad (18)$$

Величина $D_b(R)$ дається виразом:

$$D_b(R)=\frac{(-1)^{\ell_{1b}+1}B_1}{2\pi^{1/2}|m_{1b}|!}\left(\frac{n_{1b}}{2}\right)^{|m_{1b}|+1}\left(\frac{n_{1b}^2}{2e}\right)^{n_{1b}(Z_a+Z_b-1)}Z_a^{n_{1b}Z_a}(Z_b-1)^{n_{1b}(Z_b-1)}\times$$

$$\times\left[\frac{(2\ell_{1b}+1)(\ell_{1b}+|m_{1b}|)!}{2(\ell_{1b}-|m_{1b}|)!}\right]^{1/2}R^{-|m_{1b}|-1}\exp(-\mathrm{I}_b(R))\,. \qquad (19)$$

Тут $\mathrm{I}_b(R)$ – бар'єрний інтеграл:

$$\mathrm{I}_b(R)=\int_{z_{1b}}^{z_{2b}}|p_b(z)|dz\,, \qquad (20)$$

квазіімпульс $p_b(z)$ в (20) має вид:

$$p_b^2(z_b)=2\left(|E_{1b}|-\frac{Z_a}{R-z_b}-\frac{Z_b-1}{z_b}\right),$$

де z_b – компонента вектора $\vec{r}_b$ уздовж $\vec{R}$, а z_{1b}, z_{2b} – точки повороту на між'ядерній осі:

$$p_b(z_{1b})=p_b(z_{2b})=0\,.$$

Обчисливши бар'єрний інтеграл $\mathrm{I}_b(R)$ (20), одержимо:

$$\mathrm{I}_b(R)=\frac{1}{n_{1b}\sqrt{(R-z_{1b})z_{2b}}}\Big\{\left[-R^2+(z_{1b}+z_{2b})R-z_{1b}z_{2b}\right]K(k_b)+(R-z_{1b})z_{2b}E(k_b)+$$

$$+\left[R^2-(z_{1b}-2z_{2b})R+z_{1b}z_{2b}+z_{2b}^2\right]\Pi(\nu_b,k_b)\Big\}\,, \qquad (21)$$

де $K(k)$, $E(k)$ і $\Pi(\nu,k)$ - повні еліптичні інтеграли відповідно першого, другого та третього роду [5], а величини ν_b, k_b задаються такими співвідношеннями:

$$\nu_b=\frac{z_{2b}-z_{1b}}{R-z_{1b}},\quad k_b=\left(\frac{\nu_b R}{z_{2b}}\right)^{1/2}. \qquad (22)$$

Для обчислення двоелектронного матричного елемента H_{ab}^{dd} (12) необхідно визначити функції $\tilde{f}_{1\tilde{\ell}}^{(0)}(r_{2a})$, що є розв'язками рівняння (18).

Запишемо розв'язок рівняння (18):

$$\tilde{f}_{1\tilde{\ell}}^{(0)}(r_{2a})=\left(\frac{2}{n_{1b}}\right)^{n_{1b}Z_a}\frac{\Gamma(1+s_{\tilde{\ell}}-n_{1b}Z_a)}{\Gamma(2s_{\tilde{\ell}}+2)}\times$$

$$\times\mathrm{M}_{n_{1b}Z_a;s_{\tilde{\ell}}+1/2}(2r_{2a}/n_{1b}), \qquad (23)$$

$\mathrm{M}_{\mu;\nu}(x)$ – функції Уіттекера.

У якості потенціалу $V_b(r_b)$ візьмемо модельний потенціал виду:

$$V_b(r_b) = -\frac{Z_b}{r_b} + \frac{C}{r_b^2} \qquad (24)$$

(процедура обчислення параметру C в (24) приведена в праці [5]).

Нормована хвильова функція електрона “1” у основному стані іона $B^{(Z_b-1)+}$ для модельного потенціалу (24) має вид:

$$\varphi_b^{(0)}(\vec{r}_{1b}) = B_2 r_{1b}^{n_{2b}Z_b-1} e^{-r_{1b}/n_{2b}} \mathrm{Y}_{\ell_{2b}}^{m_{2b}}(\theta_{1b}, \varphi_{1b}), \quad (25)$$

$$B_2 = \left(\frac{2}{n_{2b}}\right)^{n_{2b}Z_b+1} \frac{1}{2Z_B^{1/2}\Gamma^{1/2}(2n_{2b}Z_b)}.$$

Нормована хвильова функція $\varphi_b^{(i)}(\vec{r}_{1b})$ збудженого стану іона $B^{(Z_b-1)+}$ для модельного потенціалу (24) має вид:

$$\varphi_b^{(i)}(\vec{r}_{1b}) = B_1 r_{1b}^{s_{\ell_{1b}}} e^{-r_{1b}/n_{1b}} \times$$

$$\times {}_1F_1\left(-p,\, 2s_{\ell_{1b}}+2;\, \frac{2r_{1b}}{n_{1b}}\right) \mathrm{Y}_{\ell_{1b}m_{1b}}(\theta_{1b}, \phi_{1b}), \quad (26)$$

$$B_1 = \left(\frac{2}{n_{1b}}\right)^{s_{\ell_{1b}}+2} \frac{1}{2Z_b^{1/2}\Gamma(2s_{\ell_{1b}}+2)} \times$$

$$\times \left[\frac{\Gamma(n_{1b}Z_b + s_{\ell_{1b}} + 1)}{(n_{1b}Z_b - s_{\ell_{1b}} - 1)!}\right]^{1/2}.$$

Тут ${}_1F_1(...)$ – вироджена гіпергеометрична функція, $p = n_{1b}Z_b - s_{\ell_{1b}} - 1$ – ціле додатне число (для основного стану $p = 0$).

Нарешті, нормована хвильова функція електрона “2” у основному стані молекулярного іона $A_p^{(Z_a-1)+}$ в рамках кулоно-дипольного (16) має вид [3,5]:

$$\varphi_a^{(0)}(\tilde{\vec{r}}_{2a}) = A_2 r_{2a}^{n_{2a}Z_a-1} e^{-r_{2a}/n_{2a}} \sum_{\kappa \ge |m_{2a}|} b_k^{m_{2a}} \mathrm{Y}_k^{m_{2a}}(\tilde{\theta}_{2a}, \tilde{\varphi}_{2a}), \quad (27)$$

$$A_2 = \frac{1}{2Z_a^{1/2}\Gamma^{1/2}(2n_{2a}Z_a)} \left(\frac{2}{n_{2a}}\right)^{n_{2a}Z_a+1}.$$

Обчисливши інтеграл (13) з одержаними виразами для хвильових функцій (25) та (26), знайдемо H_{1b}^d:

$$H_{1b}^d = B_1 B_2 \left[\frac{3}{4\pi}(2\ell_{1b}+1)(2\ell_{2b}+1)\right]^{1/2} \begin{pmatrix} \ell_{1b} & \ell_{2b} & 1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \ell_{1b} & \ell_{2b} & 1 \\ m_{1b} & m_{2b} & -q \end{pmatrix} J_b(n_{1b}, n_{2b}), \qquad (28)$$

де

$$J_b(n_{2b}, s_{\ell'}) = \left(\frac{2}{n_{1a}}\right)^{n_{1a}Z_b+s_{\ell'}+1} \frac{\Gamma(1+s_{\ell'}-n_{1a}Z_b)\Gamma(s_{\ell_{2b}}+s_{\ell'}+4)}{\Gamma(2s_{\ell'}+2)} \left(\frac{n_{1a}n_{2b}}{n_{1a}+n_{2b}}\right)^{s_{\ell_{2b}}+s_{\ell'}+4} \times$$

$$\times {}_2F_1\left(-n_{1a}Z_b + s_{\ell'} + 1, s_{\ell_{2b}} + s_{\ell'} + 4; 2s_{\ell'} + 2; \frac{2n_{2b}}{n_{1a}+n_{2b}}\right), \qquad (29)$$

${}_2F_1(...)$ – гіпергеометрична функція, а $(:::)$ - 3j – символи Віґнера. Аналогічно обчислюється інтеграл (14) з хвильовими функціями (17), (24) та (27). Результат має вид:

$$H_{2a} = D_b(R) A_2 \sqrt{3} D_{qj}^{1*}(0,\beta,0) \sum_{\tilde{\ell}=0}^{\infty} \sum_{\tilde{m}=-\tilde{\ell}}^{+\tilde{\ell}} \sum_{\lambda \ge |\tilde{m}|} \sum_{\mu \ge |\tilde{m}|} a_\lambda^{\tilde{m}} a_\mu^{\tilde{m}} D_{m_{1b}\tilde{m}}^{\mu*}(0,\beta,0) \sqrt{\frac{(2\mu+1)(\mu+|m_{1b}|)!}{(\mu-|m_{1b}|)!}} \sqrt{2\lambda+1} \times$$

$$\times \sum_{n \ge |m_{2a}|} b_n^{m_{2a}} \sqrt{2n+1} \begin{pmatrix} \lambda & n & 1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \lambda & n & 1 \\ \tilde{m} & m_{2a} & j \end{pmatrix} J_a(n_{2a}, s_{\tilde{\ell}}). \qquad (30)$$

Тут

$$J_a(n_{2a}, s_{\tilde{\ell}}) = \left(\frac{2}{n_{1b}}\right)^{n_{1b}Z_a+s_{\tilde{\ell}}+1} \frac{\Gamma(1+s_{\tilde{\ell}}-n_{1b}Z_a)\Gamma(n_{2a}Z_a+s_{\tilde{\ell}}+3)}{\Gamma(2s_{\tilde{\ell}}+2)} \left(\frac{n_{2a}n_{1b}}{n_{2a}+n_{1b}}\right)^{n_{2a}Z_a+s_{\tilde{\ell}}+3} \times$$

$$\times {}_2F_1\left(-n_{1b}Z_a + s_{\tilde{\ell}} + 1, n_{2a}Z_a + s_{\tilde{\ell}} + 3; 2s_{\tilde{\ell}} + 2; \frac{2n_{2a}}{n_{2a} + n_{1b}}\right). \quad (31)$$

Квазікласичний вираз для двоелектронної обмінної взаємодії (12), (28)-(31) справедливий для міжцентрових відстаней $R >> R_0$, де R_0 – відстань між молекулою та іоном, при якій зникає потенціальний бар'єр при тунелюванні електрона з енергією E_{1b}:

$$R_0 = \left(2\sqrt{Z_a(Z_b - 1)} + Z_a + (Z_b - 1)\right)/|E_{1b}|. \quad (32)$$

Умову застосовності (32) розробленого методу можна інтерпретувати як вимогу, що для асимптотично великих R області класично дозволеного електронного руху навколо кожного із іонів відокремлені широким потенціальним бар'єром, а електронний перехід здійснюються між центрами $A_p^{Z_a+}$ і $B^{(Z_b-1)+}$ в класично забороненій області.

4. Висновки

У роботі одержано аналітичне зображення у термінах повних еліптичних інтегралів для головного члена розкладу експоненціально малої двоелектронної обмінної взаємодії полярної молекули з атомним іоном для постадійних електронних переходів у квазікласичному варіанті асимптотичної теорії. Отриманий результат (12), (28)-(31) є достатньо загальним, що містить різноманітні граничні випадки. Так, якщо замість точного обчислення бар'єрного інтегралу $\mathrm{I}_b(R)$ використати його асимптотичний розклад [2], то одержане при цьому представлення для H_{ab} у границі об'єднаних атомів полярної молекули переходить у відповідний результат, який можна одержати методом Ландау-Херрінга.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Лендьел В.И. Введение в теорию атомных столкновений / В.И. Лендьел, В.Ю. Лазур, М.И. Карбованец, Р.К. Янев. – Львов: Выща школа, 1989. – 192 с.
2. Chibisov M.I., Janev R.K. Asymptotic exchange interactions in ion-atom systems // Physics Peports. – 1988. – Vol.166. – №1. – P. 1-87.
3. Khoma M.V. A simple theoretical approach of charge transfer processes in collisions of atomic ions with polar targets / M.V. Khoma, M. Imai, O.M. Karbovanets , Y. Kikuchi, M. Saito, Y. Haruyama, M.I. Karbovanets, I.Yu. Kretinin , A. Itoh, R.J. Buenker // Chemical Physics – 2008. – Vol.352. – P. 142-146.
4. Khoma M.V. On the semiclassical approach in the theory of ion-diatomic exchange interaction: its application to charge exchange reactions / M.V. Khoma, O.M. Karbovanets, M.I. Karbovanets, R.J. Buenker // Physica Scripta. – 2008. – Vol.78. – P. 065201 (10 pp).
5. Karbovanets O. M. Two-electron exchange interaction between polar molecules and atomic ions – Asymptotic approach / O. M. Karbovanets, M. I. Karbovanets, M. V. Khoma, V. Yu. Lazur // European Physical Journal D. – 2015. – Vol. 69. – P. 94 (10 pp).

Стаття надійшла до редакції 20.12.2017

Т.И. Велеган, М.М. Руснак, М.И. Карбованец
Ужгородский национальний университет, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54, Украина
e-mail: m.karbovanets@gmail.com

ВЛИЯНИЕ ЭЛЕКТРОННЫХ КОРРЕЛЯЦИЙ НА ДИНАМИКУ ДВУХЭЛЕКТРОННОЙ ПЕРЕЗАРЯДКИ ИОНОВ НА ПОЛЯРНЫХ МОЛЕКУЛАХ

В рамках асимптотической теории получено аналитическое представление для матричного элемента двухэлектронного обменного взаимодействия, определяющего процесс постадийной двуэлектронной перезарядки при медленных столкновениях ионов с полярними молекулами.

Ключевые слова*:* полярные молекулы, медленные столкновения, постадийное двухэлектронное обменное взаимодействие, асимптотическая теория.

PACS 34.50.-s; 34.70.+e; 03.65.Ge; 03.65.Sq
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.85-94

T.I. Velehan, M.M. Rusnak, M.I. Karbovanets
Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Voloshin Str., 54, Ukraine
e-mail: m.karbovanets@gmail.com

THE INFLUENCE OF THE ELECTRON CORRELATIONS ON DYNAMIC OF TWO-ELECTRON CHARGE EXCHANGE BETWEEN IONS AND POLAR MOLECULES

Introduction. In the theory of electron capture the exchange interactions at large internuclear distances R between projectile and target particles are the most important ones, since they are associated with the largest cross sections. However, their accurate calculation in the asymptotic region of large R by standard *ab initio* techniques still requires significant computational effort. In the case of two-electron exchange interaction the situation is much complicated due to necessity of the usage of analytic approximation for the two-electron wave function which must have correct asymptotic (at large R) behavior in whole configuration space of the electronic coordinates. This requirements can be satisfied by using the method of surface integrals and the Green's function formalism. The present studies devoted to construction of asymptotically correct two-electronic wave function and two-electronic exchange interaction of the system which consist of the atomic ion and polar molecule.

Purpose. To construct a closed analytical expression for two-electron exchange interaction potential, which defines the charge-exchange processes between the polar molecule and multicharged ion.

Results. Within the framework of a semiclassical approach and approximation of a coulomb-dipole potential the closed analytical expression of the two-electron exchange interaction responsible for two-step mechanism of charge-exchange between the polar molecule and multicharged ion has been obtained.

Conclusion. We have constructed the semiclassical representation for two-electron wave function of the quasimolecular system which consist of polar molecule and atomic ion for large separation R between heavy particles. Using obtained results a closed analytical form (in terms of full elliptic integrals) of the

leading asymptotic term of exponentially small two-electron exchange interaction between the polar molecule and atomic ion has been obtained. The derived expression for exchange interaction can be used for study of the two-electron transfer processes in collision of polar molecules with atomic ions.

Keywords: polar molecules, slow ion-molecular collisions, two-electron exchange interaction, asymptotic theory.

PACS NUMBER: 34.50.-s; 34.70.+e; 03.65.Ge; 03.65.Sq.

REFERENCES

1. Lengyel V.I., Lazur V.Yu., Karbovanets M.I., Yanev R.K. (1989) Introduction to the Theory of Atomic Collisions [Vvedeniye v teoriiu atomnykh stolknovenii], Vyshcha Shkola, L'vov, 192 p.
2. Chibisov M.I., Janev R.K. (1988) "Asymptotic exchange interactions in ion-atom systems", Physics Peports, V. 166, Iss. 1, pp. 1-87.
3. Khoma M.V., Imai M., Karbovanets O.M., Kikuchi Y., Saito M., Haruyama Y., Karbovanets M.I., Kretinin I.Yu., Itoh A., Buenker R.J. (2008) "A simple theoretical approach of charge transferprocesses in collisions of atomic ions with polar targets", Chemical Physics, V. 352, pp. 142-146.
4. Khoma M.V., Karbovanets O.M., Karbovanets M.I., Buenker R.J. (2008) "On the semiclassical approach in the theory of ion-diatomic exchange interaction: its application to charge exchange reactions", Physica Scripta, V. 78, pp. 065201 (10 pp).
5. Karbovanets O.M., Karbovanets M.I., Khoma M.V., Lazur V.Yu. (2015) "Two-electron exchange interaction between polar molecules and atomic ions – Asymptotic approach", European Physical Journal D, V. 69, pp. 94 (10 pp).

© Ужгородський національний університет

УДК 530.145, 539.182, 539.186
PACS 31.15.-p, 31.15.xh, 03.65.Ge
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.95-103

В.М. Хмара[1], М. Гнатіч[1,2], В.Ю. Лазур[3], О.К. Рейтій[4], В.В. Рубіш[3]
[1] Інститут фізики університету Павла Йозефа Шафарика в Кошицях, 040 01 Кошице, Парк Ангелінум, 9, Словаччина
[2] Інститут експериментальної фізики Словацької Академії Наук, 040 01, Кошице, вул. Ватсонова, 47, Словаччина
e-mail: hnatic@saske.sk
[3] Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54, Україна
[4] Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Університетська, 14, Україна
e-mail: volodymyr.lazur@uzhnu.edu.ua

ДВОЦЕНТРОВІ ПОПРАВКИ ДО СФЕРИЧНОГО І ПАРАБОЛІЧНОГО БАЗИСІВ АТОМА ВОДНЮ

Введено сферичний, параболічний та сфероїдальний базиси атома водню, а також приведено додаткові інтеграли руху. Обчислено сфероїдальні поправки до сферичного і параболічного базисів атома водню методами теорії збурень при великих та малих відстанях R між фокусами сфероїдальної системи координат. Показано, що в кожному порядку теорії збурень поправки до кулонівських сфероїдальних хвильових функцій виражаються через скінчене число базисних функцій зображення.

Ключові слова: атом водню, сферичний базис, параболічний базис, теорія збурень, двоцентрові поправки, додатковий інтеграл руху.

Вступ

Задача квантування атома водню (АВ) або водневоподібного іона в сферичній, параболічній і витягнутій сфероїдальній системах координат розглядалась багатьма авторами. Оскільки рівні енергії при квантуванні в будь-якій системі координат одні і ті ж, то мова йде тільки про визначення хвильових функцій.

При теоретичному описі поведінки водневоподібного атома у зовнішніх електричних і магнітних полях зручно використовувати кулонівські сфероїдальні хвильові функції, які визначались різними авторами як прямим шляхом, який використовує явний вигляд базисних функцій [1, 2, 3], так і опосередкованим – за допомогою додаткових інтегралів руху [4–9]. Для заданих n і m (n – головне квантове число, m – магнітне квантове число) задача зводиться до розв'язування системи лінійних однорідних алгебраїчних рівнянь порядку $n-|m|$. При малих $n-|m|$ цю систему рівнянь можна розв'язати аналітично. Однак для довільних $n-|m|$ і R (R – відстань між фокусами сфероїдальної системи координат) отримати загальний розв'язок неможливо.

В загальному вигляді кулонівські сфероїдальні хвильові функції визначені в двох граничних випадках великих та малих R. В першому випадку вони представляються у вигляді лінійної комбінації кулонівських параболічних функцій [1, 10], а в другому – у вигляді лінійної комбінації кулонівських сферичних функцій [10]. В даній праці визначено сфероїдальні поправки до сферичного і параболічного базисів атома водню при великих і малих R. Наш підхід базується на використанні стандартного апарата теорії збурень (ТЗ) Релея-Шредінгера і додаткових інтегралів руху. В першому розділі введено сферичний, параболічний та сфероїдальний базиси атома водню, а також приведено додаткові інтеграли руху. У другому розділі методом теорії збурень обчислено сфероїдальні поправки до сферичного і параболічного базисів атома водню при

малих та великих міжцентрових відстанях. Показано, що в кожному порядку теорії збурень поправки до кулонівських сфероїдальних хвильових функцій виражаються через скінчене число базисних функцій зображення.

1. Сферичний, параболічний та сфероїдальний базиси атома водню

Одноцентрова кулонівська задача допускає відокремлення змінних в трьох системах координат: сферичній, параболічній і витягнутій сфероїдальній, причому перші дві координатні системи є граничними випадками третьої (див. §1 книги [1]). Тому розв'язки водневоподібної задачі в сфероїдальних координатах можна знайти, не звертаючись до рівнянь для кулонівських сфероїдальних квазірадіальних та квазікутових хвильових функцій. У цьому розділі ми побудуємо розв'язки водневоподібної задачі, користуючись додатковими інтегралами руху та відомими розв'язками цієї ж задачі в інших координатних системах [5, 10].

Спочатку введемо позначення та дамо означення сферичного $\psi_{nlm}^{сф}$, параболічного $\psi_{n_1 n_2 m}^{пар}$ та сфероїдального $\psi_{nqm}^{сфр}$ базисів АВ в дискретному спектрі.

А. Сферичний базис. Хвильова функція АВ у сферичних координатах $\psi_{nlm}^{сф}$ є власною функцією для операторів (тут і нижче прийнято атомну систему одиниць: $e = m_e = \hbar = 1$):

$$\hat{H}\psi_{nlm}^{сф} = E_n \psi_{nlm}^{сф}, \quad \hat{\vec{L}}^2 \psi_{nlm}^{сф} = l(l+1)\psi_{nlm}^{сф},$$
$$\hat{L}_z \psi_{nlm}^{сф} = m\psi_{nlm}^{сф}. \qquad (1)$$

Тут $\hat{\vec{L}} = [\vec{r} \times \hat{\vec{p}}]$ і $\hat{L}_z$ – оператори орбітального моменту кількості руху та його проекції на міжцентрову вісь $\vec{R}$, $\hat{H}$ – гамільтоніан одноцентрової кулонівської задачі:

$$\hat{H} = \frac{\hat{\vec{p}}^{\,2}}{2m} - \frac{1}{r}, E_n = -\frac{1}{2n^2}, n = l + n_r + 1. \qquad (2)$$

У співвідношеннях (1), (2) числа $n > l \geq m$ – цілі, l – орбітальне квантове число.

Б. Параболічний базис. Хвильова функція АВ в параболічних координатах $\psi_{n_1 n_2 m}^{пар}$ є власною функцією для набору операторів

$$\hat{H}\psi_{n_1 n_2 m}^{пар} = E_n \psi_{n_1 n_2 m}^{пар},$$
$$\hat{A}_z \psi_{n_1 n_2 m}^{пар} = (n_1 - n_2)\psi_{n_1 n_2 m}^{пар},$$
$$\hat{L}_z \psi_{n_1 n_2 m}^{пар} = m\psi_{n_1 n_2 m}^{пар}, \qquad (3)$$

де цілі невід'ємні n_1, n_2 – параболічні квантові числа, так що $n = n_1 + n_2 + m + 1$. Оператор, що фігурує в рівняннях (3), є вектором Рунге-Ленца

$$\hat{\vec{A}} = n\left\{\frac{1}{2}[\hat{\vec{L}} \times \hat{\vec{p}}] - \frac{1}{2}[\hat{\vec{p}} \times \hat{\vec{L}}]\frac{\vec{r}}{r}\right\}, \qquad (4)$$

який комутує з гамільтоніаном атома водню $\hat{H}$ і, отже, є інтегралом руху.

В. Сфероїдальний базис. Хвильова функція АВ в сфероїдальних координатах $\psi_{nqm}^{сфр}$ є власною функцією для набору операторів

$$\hat{H}\psi_{nqm}^{сфр} = E_n \psi_{nqm}^{сфр}, \quad \hat{\Lambda}\psi_{nqm}^{сфр} = \lambda_q \psi_{nqm}^{сфр},$$
$$\hat{L}_z \psi_{nqm}^{сфр} = m\psi_{nqm}^{сфр}, \qquad (5)$$

де k та q – сфероїдальні квантові числа, причому $k + q + m + 1 = n$. Відокремлення змінних для розглядуваної кулонівської задачі у витягнутих сфероїдальних координатах [1] можливе тому, що поряд з гамільтоніаном $\hat{H}$ і проекцією моменту на міжцентрову вісь $\hat{L}_z$ в задачі присутній також додатковий інтеграл руху – константа відокремлення:

$$\hat{\Lambda} = -\hat{\vec{L}}^2 - \frac{R}{n}\hat{A}_z. \qquad (6)$$

Тут R – параметр, який входить в означення сфероїдальних координат.

Із властивостей алгебри SO(4) випливає, що ненульові матричні елементи третьої компоненти $\hat{A}_z$ вектора Рунге-Ленца $\hat{\vec{A}}$ (4) у сферичному базисі (1) задаються формулою [11]

$$\left(\hat{A}_z\right)_{l'l} = \int\left(\psi^{сф}_{nl'm}\right)^* \hat{A}_z \psi^{сф}_{nlm} dV =$$
$$-\left\{\frac{(l+|m|)(l-|m|)(n-l)(n+l)}{(2l+1)(2l-1)}\right\}^{1/2} \delta_{l',l-1} -$$
$$-\left\{\frac{(l+|m|+1)(l-|m|+1)}{(2l+1)} \times \right.$$
$$\left. \times \frac{(n-l-1)(n+l+1)}{(2l+3)}\right\}^{1/2} \delta_{l',l+1}. \qquad (7)$$

Запишемо за допомогою коефіцієнтів Клебша-Гордана перетворення, які зв'язують між собою сферичні і параболічні хвильові функції атома водню в дискретному спектрі [10, 11]:

$$\psi^{пар}_{n_1 n_2 m} = (-1)^{n_2 + \frac{m-|m|}{2}} \times$$
$$\times \sum_{l=|m|}^{n-1} (-1)^l C^{l,|m|}_{\frac{n-1}{2},\frac{n_1-n_2+|m|}{2};\frac{n-1}{2},\frac{n_2-n_1+|m|}{2}} \psi^{сф}_{nlm}, \qquad (8а)$$

$$\psi^{сф}_{nlm} = (-1)^{l+\frac{m-|m|}{2}} \times$$
$$\times \sum_{n_2=0}^{n-|m|-1} (-1)^{n_2} C^{l,|m|}_{\frac{n-1}{2},\frac{n-1}{2}-n_2;\frac{n-1}{2},n_2+|m|-\frac{n-1}{2}} \psi^{пар}_{n_1 n_2 m}. \qquad (8б)$$

Такий розклад зводить обчислення матричних елементів від оператора $\hat{\vec{L}}^2$ за параболічними функціями $\psi^{пар}_{n_1 n_2 m}$ (3) до простішої задачі обчислення матричних елементів від того ж оператора $\hat{\vec{L}}^2$ за сферичним базисом (1). Отриманий таким чином (див. [10]) вираз для $(\hat{\vec{L}}^2)_{n_2 n_2'}$ можна записати у вигляді

$$\left(\hat{\vec{L}}^2\right)_{n_2 n_2'} = [(n_2+1)(n-|m|-n_2-1) +$$
$$+(n-n_2)(n_2+|m|)]\delta_{n_2',n_2} -$$
$$-[(n_2+1)(n-|m|-n_2-1)(n-n_2-1)\times$$
$$\times(n_2+|m|+1)]^{1/2}\delta_{n_2',n_2+1} -$$
$$-[n_2(n-|m|-n_2)(n-n_2)\times$$
$$\times(n_2+|m|)]^{1/2}\delta_{n_2',n_2-1}. \qquad (9)$$

Нарешті, приведемо розклад сфероїдального базису (5) за параболічним базисом (3):

$$\psi^{сфр}_{nqm} = \sum_{n_2=0}^{n-|m|-1} U^{n_2}_{nqm} \psi^{пар}_{n_1 n_2 m}. \qquad (10)$$

Для коефіцієнтів $U^{n_2}_{nqm}$ цього розкладу в статті [10] було отримано наступні тричленні рекурентні співвідношення:

$$[\lambda_q + (n_2+1)(n-|m|-n_2-1) +$$
$$+(n-n_2)(n_2+|m|) +$$
$$+\frac{R}{n}(n-|m|-2n_2-1)]U^{n_2}_{nqm} =$$
$$=\left[n_2(n-|m|-n_2)(n-n_2)(n_2+|m|)\right]^{1/2} U^{n_2-1}_{nqm} +$$
$$+[(n_2+1)(n-|m|-n_2-1)(n-n_2-1)\times$$
$$\times(n_2+|m|+1)]^{1/2} U^{n_2+1}_{nqm}. \qquad (11)$$

Наведені вище інтеграли руху разом з гамільтоніаном $\hat{H}$ (2) АВ утворюють квадратичну алгебру. При фіксованих від'ємних значеннях енергії інтеграли руху утворюють алгебру SO(4), а при додатніх значеннях енергії – SO(3.1). Завдяки прихованій симетрії задача про атом водню факторизується не тільки в сферичних та параболічних, але і в сфероїдальних координатах.

2. Теорія збурень Релея-Шредінгера

Розглянемо рівняння на власні значення оператора $\hat{\Lambda}$ при малих R:

$$\left(-\hat{\vec{L}}^2 - \frac{R}{n}\hat{A}_z\right)\psi^{сфр}_{nqm} = \lambda_q \psi^{сфр}_{nqm}. \qquad (12)$$

При $R \ll 1$ другий доданок в лівій частині рівняння (12) є збуренням, а сфероїдальний базис формує незбурені

функції нульового наближення. Використовуючи явний вигляд (7) матричних елементів оператора $\hat{A}_z$ і стандартні формули звичайної теорії збурень Релея-Шредінгера [12], отримуємо власні значення $\lambda_q(R)$ і хвильові функції $\psi_{nqm}^{сфр}$ аж до членів 3-ого порядку включно:

$$\lambda_q(R) = -l(l+1) + \frac{R^2}{2n^2}\left[\frac{A_{n,l+1}B_{l+1,m}}{l+1} - \frac{A_{n,l}B_{l,m}}{l}\right] + \mathrm{O}(R^4), \tag{13}$$

$$\begin{aligned}
\psi_{nqm}^{сфр} = {} & \psi_{nlm}^{сф} - \frac{R}{2n}\frac{\sqrt{A_{n,l}B_{l,m}}}{l}\psi_{n,l-1,m}^{сф} + \frac{R}{2n}\frac{\sqrt{A_{n,l+1}B_{l+1,m}}}{l+1}\psi_{n,l+1,m}^{сф} - \\
& - \frac{R^2}{8n^2}\left[\frac{A_{n,l+1}B_{l+1,m}}{(l+1)^2} + \frac{A_{n,l}B_{l,m}}{l^2}\right]\psi_{nlm}^{сф} + \frac{R^2}{4n^2}\frac{\sqrt{A_{n,l-1}A_{n,l}B_{l-1,m}B_{l,m}}}{l(2l-1)}\psi_{n,l-2,m}^{сф} + \\
& + \frac{R^2}{4n^2}\frac{\sqrt{A_{n,l+2}A_{n,l+1}B_{l+2,m}B_{l+1,m}}}{(2l+3)(l+1)}\psi_{n,l+2,m}^{сф} - \\
& - \frac{R^3}{24n^3 l(l-1)}\sqrt{\frac{A_{n-2,l}A_{n-1,l}A_{n,l}B_{l-2,m}B_{l-1,m}B_{l,m}}{(2l+1)(2l-3)(2l-1)^3}}\psi_{n,l-3,m}^{сф} + \\
& + \frac{R^3}{24n^3}\frac{\sqrt{A_{n,l+3}A_{n,l+2}A_{n,l+1}B_{l+3,m}B_{l+2,m}B_{l+1,m}}}{(l+1)(l+2)(2l+3)}\psi_{n,l+3,m}^{сф} + \\
& + \frac{R^3\sqrt{A_{n,l+1}B_{l+1,m}}}{16n^3(l+1)^3}\left[\frac{2(l+1)A_{n-1,l}B_{l+2,m}}{(2l+3)(2l+5)} - \frac{l^2-1}{l^2}A_{n,l}B_{l,m} + \right. \\
& \left. + 3A_{n,l+1}B_{l+1,m}\right]\psi_{n,l+1,m}^{сф} - \frac{R^3\sqrt{A_{n,l}B_{l,m}}}{16n^3 l^3}\left[\frac{2l^2 A_{n,l-1}B_{l-1,m}}{2l-1} - 3A_{n,l}B_{l,m} + \right. \\
& \left. + \frac{l(l+2)A_{n,l+1}B_{l+1,m}}{(l+1)^2}\right]\psi_{n,l-1,m}^{сф} + \mathrm{O}(R^4),
\end{aligned} \tag{14}$$

де

$$A_{n,l} = \frac{n^2 - l^2}{2l+1}, \quad B_{l,m} = \frac{l^2 - m^2}{2l-1}.$$

Відмітимо, що поправки до власних значень першого $\lambda_q^{(1)} \sim R^1$ і третього $\lambda_q^{(3)} \sim R^3$ порядків тут рівні нулю. Це пов'язано з тим, що матричний елемент $(A_z)_{ll}$ для поправок усіх непарних степенів тотожно рівний нулю.

Розглянемо теперь область великих R. Домножимо рівняння (12) на n/R і перепишемо його в наступній формі:

$$\left(\hat{A}_z - \frac{n}{R}\hat{\vec{L}}^2\right)\psi_{nqm}^{сфр} = \frac{n}{R}\lambda_q\psi_{nqm}^{сфр}. \tag{15}$$

Як видно з цього рівняння, роль оператора збурення тепер відіграє другий член $n\hat{\vec{L}}^2/R$ в лівій частині (15). В рамках теорії збурень за $n\hat{\vec{L}}^2/R$ параболічний базис набуває при великих R статус незбурених хвильових функцій, за якими слід проводити розклад (10) кулонівських сфероїдальних функцій $\psi_{nqm}^{сфр}$. Ця обставина сильно спрощує побудову теорії збурень на основі базису (3) при значних між'ядерних відстанях R. Враховуючи явний вигляд (9) матричних елементів оператора збурення $n\hat{\vec{L}}^2/R$ і використовуючи стандартну схему теорії збурень Релея-Шредінгера [12] до 3-го порядку включно, отримуємо власні значення $\lambda_q(R)$ та хвильові функції $\psi_{nqm}^{сфр}$ у вигляді асимптотичних рядів за степенями R^{-1}:

$$\lambda_q(R) = -\frac{R}{n}\left(n-|m|-2n_2-1\right)-(n_2+1)(n-|m|-n_2-1)-$$
$$-(n-n_2)(n_2+|m|)+\frac{n}{2R}[n_2(n-|m|-n_2)(n-n_2)(n_2+|m|)-$$
$$-(n_2+1)(n-|m|-n_2-1)(n-n_2-1)(n_2+|m|+1)]-$$
$$-\frac{n^2}{2R^2}[(2n_2-n-|m|)n_2(n-|m|-n_2)(n-n_2)(n_2+|m|)-$$
$$-(2n_2-n+|m|+2)(n_2+1)(n-|m|-n_2-1)(n-n_2-1)(n_2+|m|+1)], \qquad (16)$$

$$\psi_{nqm}^{сфр} = \psi_{n_1n_2m}^{пар} - \frac{n}{2R}\sqrt{C_{n_2+1/2,|m|}}\psi_{n_1-1,n_2+1,m}^{пар} + \frac{n}{2R}\sqrt{C_{n_2-1/2,|m|}}\psi_{n_1+1,n_2-1,m}^{пар} -$$
$$-\frac{n^2}{8R^2}[C_{n_2+1/2,|m|}+C_{n_2-1/2,|m|}]\psi_{n_1n_2m}^{пар}+$$
$$+\frac{n^2}{4R^2}\left\{\sqrt{C_{n_2-1/2,|m|}}\left[(n-n_2)(2n-2n_2-|m|-3)+2(n_2+|m|)\right]\psi_{n_1+1,n_2-1,m}^{пар}+\right.$$
$$\left.+\sqrt{C_{n_2+1/2,|m|}}\left[(n-n_2)(2n-2n_2-|m|-3)+2(n_2+|m|+2)\right]\psi_{n_1-1,n_2+1,m}^{пар}\right\}+$$
$$+\frac{n^2}{8R^2}\left[\sqrt{C_{n_2+1/2,|m|}C_{n_2+3/2,|m|}}\psi_{n_1-2,n_2+2,m}^{пар}+\sqrt{C_{n_2-1/2,|m|}C_{n_2-3/2,|m|}}\psi_{n_1+2,n_2-2,m}^{пар}\right]-$$
$$-\frac{n^3}{4R^3}[C_{n_2+1/2,|m|}(2n_2-n+|m|+2)+C_{n_2-1/2,|m|}(2n_2-n+|m|)]\psi_{n_1n_2m}^{пар}+$$
$$+\frac{n^2}{16R^3}\sqrt{C_{n_2+1/2,|m|}}\left[8(2n_2-n+|m|+2)^2+C_{n_2-1/2,|m|}-3C_{n_2+1/2,|m|}+\right.$$
$$\left.+C_{n_2+3/2,|m|}\right]\psi_{n_1-1,n_2+1,m}^{пар}-\frac{n^3}{16R^3}\sqrt{C_{n_2-1/2,|m|}}\left[8(2n_2-n+|m|)^2+\right.$$
$$\left.+C_{n_2+1/2,|m|}-3C_{n_2-1/2,|m|}+C_{n_2-3/2,|m|}\right]\psi_{n_1+1,n_2-1,m}^{пар}+$$
$$+\frac{n^3}{8R^3}(4n_2-2n+2m+5)\sqrt{C_{n_2+1/2,|m|}C_{n_2+3/2,|m|}}\psi_{n_1-2,n_2+2,m}^{пар}+$$
$$+\frac{n^3}{8R^3}(4n_2-2n+2m-1)\sqrt{C_{n_2-1/2,|m|}C_{n_2-3/2,|m|}}\psi_{n_1+2,n_2-2,m}^{пар}+$$
$$+\frac{n^3}{48R^3}\sqrt{C_{n_2+1/2,|m|}C_{n_2+3/2,|m|}C_{n_2+5/2,|m|}}\psi_{n_1-3,n_2+3,m}^{пар}-$$
$$-\frac{n^3}{48R^3}\sqrt{C_{n_2-1/2,|m|}C_{n_2-3/2,|m|}C_{n_2-5/2,|m|}}\psi_{n_1+3,n_2-3,m}^{пар}, \qquad (17)$$

де

$$C_{n_2,|m|} = (n_2+1/2)(n-|m|-n_2-1/2)\times$$
$$\times(n-n_2-1/2)(n_2+|m|+1/2)$$

Підкреслимо, що формули (13)-(14) та (16)-(17) отримані в третьому порядку теорії збурень. Відмітимо також, що в приведеній в [10] у першому порядку ТЗ формули для сфероїдальних функцій $\psi_{nqm}^{сфр}$ при великих R двійка у другому і третьому доданках повинна фігурувати замість чисельника в знаменнику.

4. Висновки

В даній праці проведено короткий аналіз фундаментальних базисів атома

водню, тобто базисів, які є власними функціями гамільтоніану $\hat{H}$ (2) і одного з генераторів групи прихованої симетрії $SO(4)$. Проаналізовано розклади одного з фундаментальних базисів за іншим з точки зору додаткових інтегралів руху. Інформація про додаткові інтеграли руху дозволила за допомогою чисто алгебраїчної схеми теорії збурень Релея-Шредінгера обчислити сфероїдальні поправки до сферичного і параболічного базисів атома водню при малих та великих міжцентрових відстанях *R*. Показано, що в кожному порядку теорії збурень поправка до хвильової функції виражається через скінчене число базисних функцій.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Комаров И.В. Сфероидальные и кулоновские сфероидальные функции / Комаров И.В., Пономарев Л.И., Славянов С.Ю. – М: Наука, 1976. – 320 с.
2. Tarter C.B. Coefficients Connecting the Stark and Field-Free Wavefunctions for Hydrogen / C.B. Tarter // Journal of Mathematical Physics. – 1970. – V. 11. – Iss. 11. – P. 3192–3195.
3. Mardoyan L.G. Spheroidal analysis of the hydrogen atom / L.G. Mardoyan, G.S. Pogosyan, A.N. Sissakian, V.M. Ter-Antonyan // Journal of Physics A: Mathematical and General. – 1983. – V. 16. – Iss. 4. – P. 711–728.
4. Park D. Relation between the parabolic and spherical eigenfunctions of hydrogen / D. Park // Zeitschrift fur Physik. – 1960. – V. 159. – Iss. 2. – P. 155–157.
5. Coulson C.A. Spheroidal wave functions for the hydrogen atom / C.A. Coulson, A. Joseph // Proceedings of the Physical Society. – 1967. – V. 90. – Iss. 4. – P. 887– 893.
6. Rubish V.V. Non-geometrical symmetry and separation of variables in the two-centre problem with a confinement-type potential / V.V. Rubish, V.Yu. Lazur, V. M. Dobosh, S. Chalupka, M. Salak // Journal of Physics A: Mathematical and General. – 2004. – V. 37. – P. 9951–9963. [doi:10.1088/0305-4470/37/42/008].
7. Lazur V.Yu. Hidden symmetry and separation of variables in the two-center problem with a confinement-type potential / V.Yu. Lazur, V. M. Dobosh, V.V. Rubish, S. Chalupka, M. Salak // Acta Physica Slovaca. –2002. – V. 52. – No.2. – P. 41 – 54.
8. Лазур В.Ю. Динамічна симетрія і відокремлення змінних у рівнянні Шредінгера з двоцентровим потенціалом утримуючого типу / В.Ю. Лазур, В.М. Добош, В.В. Рубіш, М.Д. Меліка // Український фізичний журнал. – 2002. – Т. 47. – № 1. – С. 90 – 98.
9. Лазур В.Ю. Прихована симетрія і відокремлення змінних в задачі двох центрів з потенціалом утримуючого типу / В.Ю. Лазур, В.М. Добош, В.В. Рубіш, М.Д. Меліка // Науковий вісник Ужгородського університету. Серія: Математика і інформатика. – 2001. – вип. 6. – С. 82 – 94.
10. Мардоян Л.Г. Сфероидальные поправки к сферическому и параболическому базисам атома водорода / Л.Г. Мардоян, Г.С. Погосян, А.Н. Сисакян, В.М. Тер-Антонян // Теоретическая и математическая физика. – 1985. – Т. 64. – № 1. – Р. 171–175.
11. Englefield M.J. Group Theory and the Coulomb Problem / Englefield M.J. – New-York – Sydney – Toronto: Wiley-Interscience. – 1972, – 128 p.
12. Ландау Л.Д. Теоретическая физика в 10 томах. Том III. Квантовая механика (нерелятивистская теория) / Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. – М: Наука, 1989. – 768 с.

Стаття надійшла до редакції 20.12.2017

В.М. Хмара[1], М. Гнатич[1,2], В.Ю. Лазур[3], А.К. Рейтий[4], В.В. Рубиш[3]
[1] Институт физики университета Павла Йозефа Шафарика в Кошицах, 040 01 Кошице, ул. Парк Ангелинум, 9,Словакия
[2] Институт экспериментальной физики Словацкой Академии Наук, 040 01 Кошице, ул. Ватсонова, 47, Словакия
e-mail: hnatic@saske.sk
[3] Ужгородский национальний университет, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54, Украина
[4] Ужгородский национальний университет, 88000, Ужгород, ул. Университетская, 14, Украина
e-mail: volodymyr.lazur@uzhnu.edu.ua

ДВУХЦЕНТРОВЫЕ ПОПРАВКИ К СФЕРИЧЕСКОМУ И ПАРАБОЛИЧЕСКОМУ БАЗИСАМ АТОМА ВОДОРОДА

Введены сферический, параболический и сфероидальный базисы атома водорода, а также приведены дополнительные интегралы движения. Вычислены сфероидальные поправки к сферическому и параболическому базисам атома водорода методами теории возмущений при больших и малых расстояниях *R* между фокусами сфероидальной системы координат. Показано, что в каждом порядке теории возмущений поправки к кулоновским сфероидальным волновым функциям выражается через конечное число базисных функций представления.
Ключевые слова: атом водорода, сферический базис, параболический базис, теория возмущений, двохцентровые поправки, дополнительный интеграл движения.

PACS 31.15.-p, 31.15.xh, 03.65.Ge
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.95-103
V.M. Khmara[1], M. Hnatič[1,2], V.Yu. Lazur[3], O.K. Reity[4], V.V. Rubish[3]
[1] Institute of Physics, Pavol Jozef Šafárik University, Park Angelinum 9, 040 01 Košice, Slovak Republic
[2] Institute of Experimental Physics, Slovak Academy of Sciences, Watsonova 47, 040 01 Košice, Slovak Republic
e-mail: hnatic@saske.sk
[3] Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Voloshina Str., 54, Ukraine
[4] Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Universytetska Str., 14, Ukraine
e-mail: volodymyr.lazur@uzhnu.edu.ua

TWO-CENTER CORRECTIONS TO THE SPHERICAL AND PARABOLIC BASES OF THE HYDROGEN ATOM

Introduction. In the theoretical description of the behavior of a hydrogen-like atom in external electric and magnetic fields, it is convenient to use Coulomb spheroidal wave functions. Generally, they are defined in two limiting cases of large and small distances *R* between the foci of the spheroidal coordinate system. The Coulomb spheroidal wave functions are presented in the form of a linear combination of the Coulomb parabolic functions in the first case and the spherical functions in the second case. In order to find the expansions, which connect these bases, the standard perturbation theory as well as the additional integrals of motion were used.

Purpose. Determine the spheroidal corrections to the spherical and parabolic bases of the hydrogen atom at large and small intercenter distances *R*.

Results. The asymptotical expressions for the eigenvalues and eigenfunctions (the Coulomb spheroidal functions $\psi_{nqm}^{сфр}$) of the hydrogen atom system in the form of series in *R* for small (*R*<<1) and in R^{-1} for large (*R*>>1) internuclear distances were obtained. For this purpose, the additional integrals of motion and the standard Raeleigh-Schrödinger perturbation theory scheme within the terms of 3rd order were used. It is shown that in each order of perturbation theory the corrections to the Coulomb spheroidal functions are expressed in a finite number of the basic functions of the corresponding representation.

Conclusion. In this paper, a brief analysis of the fundamental bases of the hydrogen atom, which are the eigenfunctions of its Hamiltonian and of the one of the generators of the hidden symmetry group SO (4) is carried out. The expansion of the one of the fundamental bases with respect to another one was analyzed in terms of additional integrals of motion. The information about additional integrals of motion allowed to calculate the spheroidal corrections to the spherical and parabolic bases of the hydrogen atom at small and large intercenter distances R using a purely algebraic scheme of the Rayleigh-Schrödinger perturbation theory.

Keywords: hydrogen atom, spherical basis, parabolic basis, perturbation theory, two-center corrections, additional integral of motion.

PACS NUMBER: 31.15.-p, 31.15.xh, 03.65.Ge

REFERENCES

1. Komarov, I.V., Ponomarev L.I., Slavyanov S.Yu. (1976), Spheroidal and Coulomb spheroidal functions [Sferoidalnye i kulonovskie sferoidalnye funktsii], Nauka, Moskow, 320 p.
2. Tarter, C.B (1970), "Coefficients Connecting the Stark and Field-Free Wavefunctions for Hydrogen", Journal of Mathematical Physics, V. 11, Iss. 11, pp. 3192–3195.
3. Mardoyan, L.G., Pogosyan, G.S., Sissakian, A.N., Ter-Antonyan, V.M. (1983), "Spheroidal analysis of the hydrogen atom", Journal of Physics A: Mathematical and General, V. 16, Iss. 4, pp. 711–728.
4. Park, D. (1960), "Relation between the parabolic and spherical eigenfunctions of hydrogen", Zeitschrift fur Physik, V. 159, Iss. 2, pp. 155–157.
5. Coulson, C.A., Joseph, A. (1967), "Spheroidal wave functions for the hydrogen atom", Proceedings of the Physical Society, V. 90, Iss. 4, pp. 887– 893.
6. Rubish, V.V., Lazur, V.Yu., Dobosh, V.M., Chalupka, S., Salak, M. (2004), "Non-geometrical symmetry and separation of variables in the two-centre problem with a confinement-type potential", Journal of Physics A: Mathematical and General, V. 37, pp. 9951–9963. [doi:10.1088/0305-4470/37/42/008].
7. Lazur, V.Yu., Dobosh, V.M., Rubish, V.V., Chalupka, S., Salak, M. (2002), "Hidden symmetry and separation of variables in the two-center problem with a confinement-type potential", Acta Physica Slovaca, V. 52, No.2, pp. 41 – 54.
8. Lazur, V.Yu., Dobosh, V.M., Rubish, V.V., Melika M.D. (2002), "Dynamical symmetry and separation of variables the Schrodinger equation with a two-center confinement-type potential" ["Dynamichna symetriia i vidokremlennia zminnykh u rivnianni Shredinhera z dvotsentrovym potentsialom utrymuiuchoho typu"], Ukrainian Journal of Physics [Ukrainskyi fizychnyi zhurnal], V. 47, No. 1, pp. 90 – 98.
9. Lazur, V.Yu., Dobosh, V.M., Rubish, V.V., Melika M.D. (2001), "Hidden symmetry and separation of variables in the two-center problem with a confinement-type potential" ["Prykhovana symetriia i vidokremlennia zminnykh v zadachi dvokh tsentriv z potentsialom utrymuiuchoho typu"], Scientific bulletin of Uzhhorod university. Series of

Mathematics and Informatics [Naukovyi visnyk Uzhhorodskoho universytetu. Seriia: Matematyka i informatyka], Iss. 6, pp. 82 – 94.

10. Mardoyan, L.G., Pogosyan, G.S., Sissakyan, A.N., Ter-Antonyan, V.M. (1985), "Spheroidal corrections to the spherical and parabolic bases of hydrogen atom" ["Sferoidalnye popravki k sfericheskomu i parabolicheskomu bazisam atoma vodoroda"], Theoretical and Mathematical Physics [Teoreticheskaia i matematicheskaia fizika], V. 64, No. 1. pp. 171–175.
11. Englefield, M.J. (1972), Group Theory and the Coulomb Problem, Wiley-Interscience, New-York – Sydney – Toronto, 128 p.
12. Landau, L.D., Lifshits, E.M. (1989), Theoretical physics in 10 volumes. V. III. Quantum Mechanics (Non-Relativistic Theory) [Teoreticheskaia fizika v 10 tomah. Tom III. Kvantovaia mehanika (nerelyativistskaia teoriia)], Nauka, Moskow, 768 p.

© Ужгородський національний університет

УДК 658.562:621
PACS 32.80.Fb, 34.80.Qb, 32.80.Rm
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.104-111.

І.І. Бондар, В.В. Суран, І.І. Аксенюк, Т.В. Дубровка
Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54
e-mail: ivan.bondar@gmail.com

ЗАЛЕЖНІСТЬ ПРОЦЕСУ УТВОРЕННЯ ІОНІВ Ba^{2+} ВІД ІНТЕНСИВНОСТІ ВИПРОМІНЮВАННЯ ПРИ РЕАЛІЗАЦІЇ ДВОЕЛЕКТРОННОГО МЕХАНІЗМУ В ДВОХ ЛАЗЕРНИХ ПОЛЯХ

Досліджено механізм утворення двозарядних іонів при нелінійній іонізації атомів *Ba* під одночасним впливом випромінювань лазера на ітрій-алюмінієвому гранаті і його другої гармоніки. Показано, що механізм утворення цих іонів являється двоелектронним.

Ключові слова: багатофотонна іонізація, двозарядні іони, двоелектронний механізм, динамічний ефект Штарка.

Вступ

В ряді попередніх робіт було показано, що реалізація двоелектронного механізму утворення двозарядних іонів (A^{2+}) при нелінійній іонізації атомів пов'язана зі збудженням і подальшою іонізацією сильно збурених станів цих атомів [1-6]. Збурення атомних станів в цьому випадку зумовлено динамічним ефектом Штарка. При цьому налаштування динамічного резонансу зі збуреним станом відбувається при інтенсивності лазерного випромінювання F_0, яка відповідає умові:

$$\Delta E = -\alpha F_0/4 \qquad (1)$$

де ΔE – зміна енергії відповідних станів, яка необхідна для реалізації динамічного резонансу, α – динамічна поляризовність цього стану.

В роботі [6] було показано, що залежність виходу двозарядних іонів (N^{2+}) від інтенсивності лазерного випромінювання F при реалізації двоелектронного механізму в умовах насичення процесу іонізації нейтральних атомів описується формулою:

$$N^{2+}(F) = Cn_0V_0(F) \qquad (2)$$

де: n_0 – концентрація нейтральних атомів в об'ємі взаємодії; C – коефіцієнт, який враховує зміну концентрації нейтральних атомів внаслідок утворення з них однозарядних іонів; V_0 – об'єм області взаємодії, в якій створюється інтенсивність випромінювання, яка відповідає умові (1); F – інтенсивність лазерного випромінювання, яка є максимальною в області взаємодії. При фокусуванні гаусових лазерних пучків залежність $V_0(F)$ описується наступною формулою [6]:

$$V_0 = C_1\left[\left(\frac{1}{9}\right)\beta^{\frac{3}{2}}\left(\frac{2}{3}\right)\beta^{\frac{1}{2}}\left(\frac{2}{3}\right)arctg\left(\beta^{\frac{1}{2}}\right)\right], \qquad (3)$$

де: $\beta=(F/F_0)-1$, $C_1=2\pi z_0 r_0^2$, r_0 – мінімальний радіус фокусування (радіус околу в центрі області фокусування, в якому інтенсивність випромінювання зменшується в e раз по відношенню до її максимального значення), $z_0=\pi r_0^2/\lambda$ - релеївська довжина, λ - довжина хвилі лазерного випромінювання.

В роботі [6] було показано, що формулами (2) і (3) добре описують залежності виходу іонів A^{2+} від інтенсивності лазерного випромінювання, які виміряні для двоелектронного механізму під дією на лужноземельні атоми одного лазерного випромінювання.

В даній роботі приведені результати досліджень залежності виходу двозарядних іонів від інтенсивності лазерного випромінювання при реалізації двоелектронного механізму під дією на лужноземельні атоми

двох лазерних випромінювань. Ми приводимо результати досліджень такої залежності для іонізації атомів *Ba* в результаті одночасної дії на них основного випромінювання (ОВ) лазера на ітрій-алюмінієвому гранаті (ЛІАГ) з частотою ω_1 = 9395 см$^{-1}$ і випромінювання його другої гармоніки (ВДГ) (ω_2 = 18790 см$^{-1}$).

Постановка експерименту

Випромінювання від ЛІАГ направлялось на кристал KDP для перетворення на ВДГ. Потім ВДГ і ОВ, які пройшли крізь кристал розділялися світлоподільною пластинкою. Після розділення кожен промінь проходив крізь систему двох поляризаторів. Потім промені знову з'єднувались в просторі і фокусувались в пучкові атомів *Ba*. Така постановка експерименту дозволяла змінювати інтенсивність кожного випромінювання незалежно один від іншого. Максимальні інтенсивності ОВ і ВДГ в наших дослідженнях були відповідно рівними F_{1m}=2×10^{11}Вт/см^2 і F_{2m}=10^{10} Вт/см^2. Поляризація обох випромінювань була лінійною. Світлові вектори цих двох випромінювань були орієнтовані паралельно. В усьому іншому постановка експерименту була звичайною для досліджень за методом багатофотонної іонізаційної спектроскопії.

Результати досліджень

Результати досліджень наведені на рис.1. На цьому рисунку приведені результати вимірювань виходів іонів Ba^+ і Ba^{2+}, отриманих в умовах, коли інтенсивність ОВ (F_1) змінювалась, а інтенсивність ВДГ (F_2) підтримувалась постійною і рівною приведеному вище значенню F_{2m}. Тут і надалі F_1 і F_2 - максимальні в області лазерного імпульсу інтенсивності ОВ і ВДГ відповідно. На цьому ж рисунку приведені виходи іонів Ba^+, які отримані в умовах, коли ОВ і ВДГ діяли на пучок атомів *Ba* окремо один від одного.

Як слідує з рис.1, при одночасному впливі ОВ і ВДГ на атоми *Ba* вихід іонів Ba^+ приблизно співпадає з їх виходом у випадку дії лише одного ВДГ. Це обумовлено сильним насиченням процесу іонізації атома *Ba* під дією ВДГ.

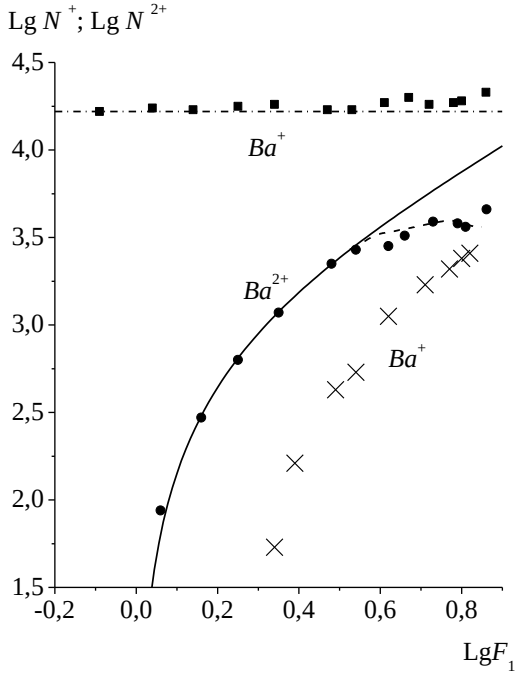


Рис.1. Залежності виходу іонів Ba^+ і Ba^{2+} при нелінійній іонізації атомів *Ba* від інтенсивності ОВ (F_1): точки – вихід іонів Ba^{2+}, які утворились в результаті одночасного впливу ОВ та ВДГ; квадрати – вихід іонів Ba^+, які утворились в результаті одночасного впливу ОВ та ВДГ; суцільна лінія – результати розрахунку виходу іонів Ba^{2+}, які утворились в результаті одночасного ОВ та ВДГ; штрих-пунктирна – середнє значення іонів Ba^+, які утворились в результаті впливу лише ВДГ; хрестики – вихід іонів Ba^+, які утворились в результаті впливу лише ОВ.

Що ж стосується виходу іонів Ba^{2+}, то одночасний вплив ОВ і ВДГ на атоми *Ba* призводить до його сильного збільшення в порівнянні з виходом цих іонів при окремій дії ОВ і ВДГ. Відмітимо, що вихід іонів Ba^{2+}, які утворились при окремій дії ОВ і ВДГ на атоми *Ba*, не перевищував поріг чутливості апаратури. Тобто, вихід іонів Ba^{2+} при іонізації атомів *Ba* під дією одного лише ОВ (або під дією одного лише ВДГ) був не менше ніж на два порядки менше виходу іонів Ba^{2+}, які утворились в результаті одночасного впливу ОВ і ВДГ з інтенсивностями F_{1m} і F_{2m}.

Таке сильне збільшення виходу іонів Ba^{2+} в результаті одночасної дії ОВ і ВДГ на атоми *Ba* не може бути пояснено

реалізацією каскадного механізму утворення цих іонів, коли вони утворюються в результаті іонізації іонів Ba^+. Якщо б у даному випадку реалізувався каскадний механізм, то збільшення виходу двозарядних іонів можливо лише у випадку, коли при одночасній дії ОВ і ВДГ реалізуються резонанси як із збуреними, так і з незбуреними станами іона Ba^+. Однак, аналіз показує, що при одночасному впливі вказаних випромінювань на іон Ba^+ такі резонанси в його спектрі не можуть реалізуватись.

Разом з тим збільшення виходу іонів Ba^{2+}, а також характер виміряних залежностей $N^{2+}(F_1)$ добре пояснюються в моделі двоелектронного механізму утворення двозарядних іонів – коли ці іони утворюються в результаті збудження і іонізації станів нейтральних атомів, сильно збурених в результаті динамічного ефекту Штарка. Покажемо це більш детально.

При одночасній дії ОВ і ВДГ на атом *Ba* можливе збудження сильно збуреного стану, який не може збуджуватись при окремій дії ні ОВ, ні ВДГ. Так, частота ОВ (ω = 9395 см$^{-1}$) близька до частоти ω_{nm} = 9544см$^{-1}$, яка відповідає однофотонному переходу між станами $6s7s\ ^1S_0$ і $6s9p\ ^1P_1^0$. Динамічні поляризовності α цих двох станів в околі частоти ω_{nm} мають великі абсолютні величини і протилежні знаки. У відповідності до знаків динамічних поляризовностей в околі частоти ω_{nm} при дії ОВ на атом *Ba* енергія стану $6s7s\ ^1S_0$ буде зменшуватись, а енергія стану $6s9p\ ^1P_1^0$ – збільшуватись. Тому в результаті одночасної дії ОВ і ВДГ на атом *Ba* повинен налаштовуватися динамічний резонанс зі станом $6s7s\ ^1S_0$. Збудження цього стану повинно відбуватись в результаті одночасного поглинання одного фотона ОВ і одного фотона ВДГ. Зміна енергії стану $6s7s\ ^1S_0$, яка необхідна для того, щоб воно могло збуджуватись в результаті описаного вище динамічного резонансу, дорівнює ΔE = 45 см$^{-1}$. Схема реалізації цього динамічного резонансу приведена на рис.2.

Розглянемо тепер отриману нами залежність $N^{2+}(F_1)$. Як уже відмічалось, в даному випадку індукований динамічним ефектом Штарка резонанс зі станом $6s7s^1S_0$ налаштовується під дією ОВ.

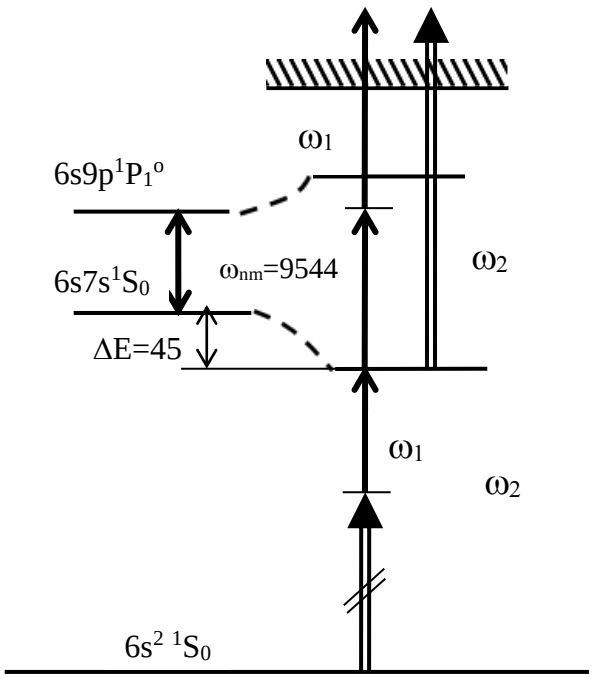


Рис.2. Схема збурення і збудження стану $6s7s\ ^1S_0$ атома *Ba* в результаті одночасної дії ОВ (ω_1) і ВДГ (ω_2). Штриховою лінією вказано зміну енергії станів атома в результаті дії ОВ. Цифрами вказано значення зсуву ΔE в см$^{-1}$.

Його налаштування реалізується при інтенсивності випромінювання ОВ, яке відповідає умові (1), тобто коли інтенсивність ОВ дорівнює F_0. При цьому в формулі (1) ΔE – зміна енергії стану $6s7s\ ^1S_0$, яка необхідна для того, щоб воно могло збуджуватись в результаті одночасної взаємодії випромінювання ОВ і ВДГ (ΔE = 45 см$^{-1}$), α - значення динамічної поляризовності цього стану, яке відповідає частоті ОВ.

Таким чином, збудження стану $6s7s^1S_0$ можливо лише в тій частині області взаємодії, в якій створюється інтенсивність ОВ, яка дорівнює F_0. Якщо умови експерименту такі, що зміна концентрації нейтральних атомів до моменту налаштування динамічного резонансу незначна, а процес іонізації збуреного стану насичений, то вихід іонів A^{2+} повинен бути пропорційний тому об'ємі V_0 області взаємодії, у якому в межах лазерного імпульсу створюється інтенсивність ОВ, яка рівна F_0. Тобто в цьому випадку залежність $N^{2+}(F_1)$ повинна

описуватись формулами (2) і (3), якщо в формулі (3) прийняти:

$$\beta = \frac{F_1}{F_0} - 1 \qquad (4)$$

Апроксимація виміряної нами залежності виходу іонів Ba^{2+} від інтенсивності ОВ залежністю $N^{2+}(F_1)$, розрахованою з використанням формул (2) – (4), зображена на рис.1 суцільною лінією. Як слідує з цього рисунка, вихід іонів Ba^{2+} для невеликих значень інтенсивності ОВ добре описується залежністю $N^{2+}(F_1)$. Для великих значень цієї інтенсивності має місце відхилення експериментально виміряної залежності $N^{2+}(F_1)$ від розрахованої по формулам (2) – (4) – реальний вихід іонів Ba^{2+} менше розрахованого.

Це відхилення зумовлене тим, що при збільшенні інтенсивності ОВ процес утворення іонів Ba^{2+} в деякій частині об'єму V_0 із насиченого стає ненасиченим. Така незвична поведінка процесу утворення іонів Ba^{2+} при збільшенні інтенсивності випромінювання пояснюється особливостями реалізації індукованих резонансів в двох лазерних полях. Покажемо це більш детально.

При великих значеннях інтенсивності ОВ значення F_0 в межах лазерного імпульсу досягається раніше, ніж при малих значеннях інтенсивності ОВ. Оскільки характеристики ВДГ при збільшенні інтенсивності ОВ не змінюються, то значення інтенсивності ВДГ (F'_2) в момент, коли інтенсивність ОВ досягає значення F_0, буде зменшуватись. Тобто при збільшенні інтенсивності ОВ налаштування динамічного резонансу зі станом $6s7s\ ^1S_0$ буде здійснюватись при все менших і менших значеннях інтенсивності ВДГ. В умовах наших експериментів залежність $F'_2 = F'_2(F_1)$ для кожної точки із області взаємодії має вигляд:

$$F_2' = F_2^* \left(\frac{F_0}{F_1^*}\right)^2 \qquad (5)$$

де під F_1^* і F_2^* позначені максимальні в межах лазерного імпульсу інтенсивності ОВ і ВДГ в даній точці області взаємодії.

Таким чином, при збільшенні інтенсивності ОВ в 7 раз (що відповідає умовам проведення наших експериментів) зменшення інтенсивності F'_2 в різних точках області взаємодії повинно скласти до 49 раз. Таке сильне зменшення інтенсивності F'_2 при збільшенні інтенсивності F_1 може призвести до того, що заселення збуреного стану $6s7s\ ^1S_0$ і в подальшому його іонізація (в тому числі і з утворенням іонів Ba^{2+}) в таких точках області взаємодії будуть ненасичені. Тому результуючий вихід іонів Ba^{2+} буде меншим, ніж їх вихід, який відповідає розрахованій з використанням формул (2) – (4) залежності $N^{2+}(F_1)$.

Описаний вище ефект зменшення інтенсивності F'_2 при збільшенні інтенсивності F_1 приводить також до того, що суттєве збудження стану $6s7s\ ^1S_0$ і відповідно утворення двозарядних іонів під дією двох полів лазерного випромінювання відбувається не в центрі області, в якій створюється інтенсивність ОВ, яка рівна F_0, а на її периферії. Для ілюстрації цього ефекту нами виконані розрахунки просторового розподілу концентрації атомів Ba (n), збуджених в збуреному стані $6s7s\ ^1S_0$. Для розрахунку значень n нами використовувалась формула:

$$n = n_0[1 - exp(-\int W(t)dt)] \qquad (6)$$

де n_0 – початкова концентрація атомів в основному стані, W – імовірність збудження стану $6s7s\ ^1S_0$ в результаті одночасної дії ОВ і ВДГ.

Імовірність збудження стану $6s7s^1S_0$ в загальному випадку складним чином залежить від інтенсивності обох використаних випромінювань. Однак, в даному випадку можна отримати порівняно простий вираз для цієї імовірності. Як відмічалось вище, збудження стану $6s7s\ ^1S_0$ починається з моменту, коли інтенсивність ОВ досягає значення F_0. Тривалість періоду, в межах якого можливе збудження цього стану (Δt), приблизно дорівнює тривалості налаштування динамічного резонансу. Для наших умов експерименту, коли $\Delta\omega \leq \Gamma$ ($\Delta\omega$ – ширина спектру використаного випромінювання, Γ – ширина рівня), вона може бути розрахована за формулою $\Delta t = 4\Gamma/4\alpha v_0$, де α - значення динамічної поляризовності стану $6s7s\ ^1S_0$, яка відповідає частоті ОВ, $v_0 = dF_1/dt$ – швидкість зміни інтенсивності ОВ в точці F_0.

Відмітимо, що при зміні інтенсивності ОВ значення Δt змінюється від мінімального (коли інтенсивність F_0 досягається на початку або в кінці лазерного

імпульсу) до максимального (коли інтенсивність F_0 досягається в середині лазерного імпульсу). Оцінки показують, що для умов експерименту максимальне значення тривалості Δt значно менше тривалості лазерного імпульсу. Тому значення інтенсивності ОВ в межах тривалості Δt не сильно відрізняється від F_0. Таким чином, незалежно від значень інтенсивності F_1, збудження стану $6s7s\ ^1S_0$ відбувається приблизно при однаковій інтенсивності ОВ, яка дорівнює F_0. Внаслідок цього імовірність збудження збуреного стану $6s7s\ ^1S_0$ не повинна залежати від інтенсивності F_1.

Інтенсивність ВДГ в межах тривалості Δt також не сильно змінюється відносно значення F'_2. Разом з цим, як було показано вище, саме значення F'_2 при зміні інтенсивності ОВ змінюється. Для збудження стану $6s7s\ ^1S_0$ необхідно поглинання одного фотона ВДГ. В таких умовах імовірність збудження стану $6s7s\ ^1S_0$ повинна бути пропорційною інтенсивності ВДГ в момент налаштування резонансу, тобто інтенсивності F'_2: $W \sim F'_2/\Gamma$. Для описаних вище умов формула (6) може бути записана у вигляді:

$$n = n_0\left[1 - exp\left(-\frac{C_2F_2}{V_0}\right)\right] \qquad (7)$$

де C_2 – постійна.

Для розрахунку просторового розподілу концентрації збуджених атомів по формулі (7) нами були визначено просторовий розподіл величин F'_2 і v_0. При цьому використались формули, які описують просторово – часові розподіли випромінювання при фокусуванні гаусових пучків [6], а також формула (5). В результаті були отримані наступні вирази для розрахунку величин F'_2 і v_0 в області взаємодії вздовж (вісь z) і поперек (вісь r) напрямку поширення обох пучків випромінювання:

$$F'_2(z) = \frac{F_2F_0^2(1+z^2)^2}{F_1^2\left[1+\frac{(z+k)^2}{2}\right]^2},$$

$$F'_2(r) = \frac{F_2F_0^2\exp[4r^2-2r^2/(1+k^2/4)]}{F_1^2/(1+k^2/4)}, \qquad (8)$$

$$V_0(z) = \left(\frac{4F_0}{\tau}\right)\sqrt{\left(\frac{1}{2}\right)\ln\left[\frac{F_1}{F_0}(1+z^2)^2\right]},$$

$$V_0(r) = \left(\frac{4F_0}{\tau}\right)\sqrt{\left(\frac{1}{2}\right)\ln\frac{F_1}{F_0} - r^2}. \qquad (9)$$

В формулах (8) і (9) введені позначення $z=z/z_0$ і $r=r/r_0$. Тут r_0 – мінімальний радіус фокусування ОВ, $z_0=\pi r^2/\lambda$, λ - довжина хвилі ОВ, k – коефіцієнт, який враховує різницю фокусних відстаней Δf при фокусуванні двох випромінювань з різною довжиною хвилі ($k = \Delta f/z_0$). Початок системи координат (z=0, r=0), який відповідає формулам (8) і (9), співпадає з фокусом лінзи для фокусування ОВ. Результати розрахунків просторового розподілу концентрації збуджених в стані $6s7s\ ^1S_0$ атомів Ba з використанням формул (7) – (9) приведені на рис.3. Розрахунки проводились для умов нашого експерименту, в якому використовувалась лінза з фокусною відстанню f =120 мм (для неї $r_0 = 2{,}7\times10^{-3}$ мм, $z_0 = 0{,}22$ мм і $\Delta f = 3{,}5$ мм), тривалість імпульсу ОВ дорівнювала $\tau = 4\times10^{-8}$с, а інтенсивність ВДГ була постійною і рівною $F_2=F_{2m}$. На рис.3 приведені розрахунки для двох значень інтенсивності ОВ: $F_1= 2F_0$, $7F_0$. Ці значення відповідають випадкам, коли процес збудження стану $6s7s^1S_0$ насичений у всій області, де створюється інтенсивність ОВ, яка рівна F_0, і коли цей процес ненасичений у всій цій області. Відмітимо, що значення інтенсивності F_0, отримане з апроксимації експериментал- ьних даних для іонів Ba^{2+} залежністю $N^{2+}(F_0)$, розрахованій за формулами (2) – (4), дорівнює приблизно 3×10^{11} Вт/см^2.

Значення константи C_2 в формулі (7) визначалось з умов насичення процесу збудження стану $6s7s\ ^1S_0$ – тобто, для тих значень F'_2/v_0, для яких експериментальна залежність $N^{2+}(F_1)$ починає відхилятись від розрахованої за формулами (2) – (4). При цьому приймалося, що концентрація збуджених атомів n в цьому випадку складає 0,9 від максимальної.

Як слідує з рис.3, при великих значеннях інтенсивності концентрація атомів у збудженому стані $6s7s\ ^1S_0$ в центрі області, де в межах тривалості лазерного імпульсу утворюється інтенсивність ОВ, яка дорівнює F_0, значно менше, ніж на периферії цієї області.

Якщо процес іонізації збуреного стану $6s7s\ ^1S_0$ з утворенням іонів Ba^{2+} буде насиченим, то відповідно, що просторовий розподіл цих іонів буде повторювати просторовий розподіл атомів *Ba*, які збуджені в цьому стані. Відмітимо, що коректний розрахунок залежності виходу іонів Ba^{2+} від інтенсивності F_1 для даного випадку з урахуванням описаного вище впливу просторово – часового розподілу ОВ і ВДГ представляє досить складну задачу. Однак, оскільки перехід до насичення процесу збудження стану $6s7s\ ^1S_0$ при віддаленні від початку координат відбувається досить різко (рис.3), то в даному випадку залежність $N^{2+}(F_1)$ може бути представлена у вигляді:

$$N^{2+}(F_1) \approx Cn_0[V_1(F_1) - V_2(F_1)] \qquad (10)$$

де V_1 – об'єм області взаємодії, в якій утворюється інтенсивність ОВ, яка дорівнює F_0; V_2 – частина об'єму V_1, в якій у момент налаштування динамічного резонансу створюється інтенсивність ВДГ $F'_2 \leq F^s_2$ (F^s_2 – інтенсивність ВДГ, при якій наступає насищення процесу збудження стану $6s7s\ ^1S_0$). Залежність $V_1(F_1)$ так само описується виразом (3) при $\beta = F_1/F_0 - 1$.

Що ж стосується залежності $V_2(F_1)$, то з врахуванням того, що розподіл $n(r)$ симетричний, а розподіл $n(z)$ близький до симетричного, а також з урахуванням формули (5) її можна також представити формулою (3), прийнявши в ній $\beta=(F_1/F^s_1 - 1)^2$, де F^s_1 – інтенсивність ОВ, при якій експериментально виміряна залежність $N^{2+}(F_1)$ починає відхилятись від розрахованої за формулами (2) – (4).

Результати розрахунку залежності $N^{2+}(F_1)$ з використанням формули (10) приведені на рис.1 штриховою лінією. Як видно, вони добре згоджується з експериментальними даними для великих значень F_1.

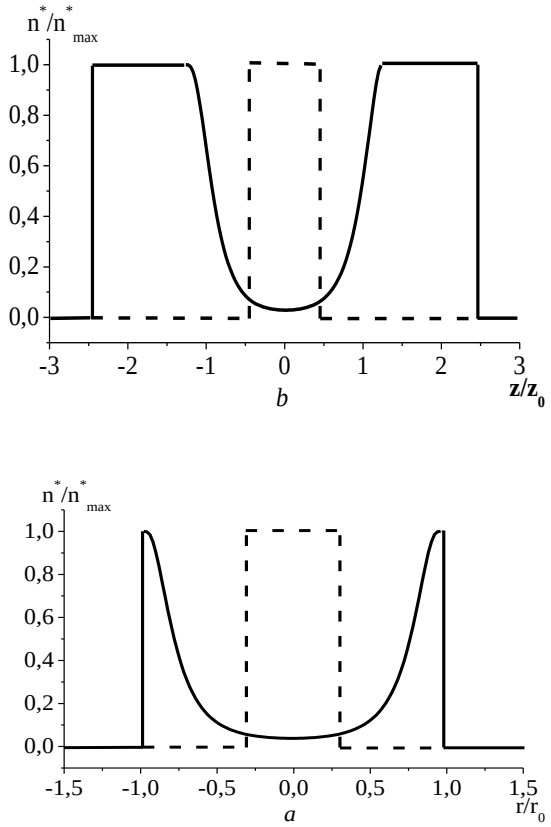


Рис.3. Результати розрахунку розподілу концентрації атомів *Ba* у збуреному стані $6s7s\ ^1S_0$ в області взаємодії в поперечному (а) і повздовжньому (б) напрямках відносно напрямку поширення пучків ОВ і ВДГ. Суцільна і штрихова лінії відповідають значенням інтенсивності ОВ, рівним $7F_0$ і $2F_0$.

Висновок

Таким чином, приведені в даній роботі результати експериментальних досліджень процесу утворення двозарядних іонів при нелінійній іонізації атомів *Ba* в результаті одночасного впливу на них випромінювання лазера на ітрій-алюмінієвому гранаті і його другої гармоніки добре пояснюється в моделі двоелектронного механізму утворення двозарядних іонів.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Bondar I.I., Suran V.V., Bondar D.I. Multiphoton - double-ionization probability linearly depends on laser intensity: Experimental studies of barium. // Phys. Rev. A. 88, 2013, 023407. P.1-6.
2. Bondar I.I., Suran V.V., Bondar D.I. Probability of the Two Electron Mechanism of the Formation of Doubly Charged Barium Ions As a Function of Laser Radiation Intensity. // Journal of

Experimental and Theoretical Physics, 2013, Vol. 116, No. 6, P. 887–891.
3. Бондарь И.И., Суран В.В. Резонансная структура образования двухзарядных ионов при реализации двухэлектронного механизма ионизации атомов лазерным излучением. // Письма в ЖЭТФ. 1998. Т.68. С.796-800.
4. Bondar I.I.,. Suran V.V. Formation of doubly charged ions in the ionization of Sr atoms with radiation of color-center lasers // Laser Physics. 1999. V.9. P. 660-665.
5. Bondar I.I, Suran V.V., Dudich M.I. Resonant structure in doubly charged ion formation during multiphoton ionization of Sr and Ba atoms by infrared laser radiation // J. Phys.B: At. Mol. Opt. Phys. 2000. V.33, P. 4243-4254.
6. 6. Бондарь И.И., Суран В.В., Бондарь Д.И. Зависимость процесса образования двухзарядных ионов от интенсивности лазерного излучения при реализации двухэлектронного механизма // Опт. и спектр. 2004. Т. 96. №1. С.21-26.

Стаття надійшла до редакції 3.12.2017.

И.И. Бондар, В.В. Суран, И.И. Аксенюк, Т.В. Дубровка
Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54.
e-mail: ivan.bondar@gmail.com

ЗАВИСИМОСТЬ ПРОЦЕССА ОБРАЗОВАНИЯ ИОНОВ Ba^{2+} ОТ ИНТЕНСИВНОСТИ ИЗЛУЧЕНИЯ ПРИ РЕАЛИЗАЦИИ ДВОЕЛЕКТРОННОГО МЕХАНИЗМА В ДВУХ ЛАЗЕРНЫХ ПОЛЯХ

Исследован механизм образование двухзарядных ионов при нелинейной ионизации атомов Ba в результате одновременного воздействия излучений лазера на иттрий-алюминиевом гранате и его второй гармоники. Показано, что этим механизмом является двухэлектронный механизм
Ключевые слова: Многофотонная ионизация, двухзарядные ионы, двухэлектронний механизм, динамический эффект Штарка.

PACS 32.80.Fb, 34.80.Qb, 32.80.Rm
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.104-111.
I.I. Bondar, V.V. Suran, I.I. Aksenjuk, T.V. Dubrovka
Uzhhorod National University, 88000, Uzhgorod, Voloshin Str., 54.
e-mail: ivan.bondar@gmail.com

THE DEPENDENCE OF BA^{2+}IONS FORMATION ON RADIATION INTENSITY AT TWO-ELECTRON MECHANISM REALIZATION IN TWO LASER FIELDS

Introduction: Previous studies have showed that the mechanism of doubly charged ions formation is different for different ionization regimes and different laser wavelengths. In particular, the cascade creation of doubly charged ions dominates when the visible radiation interacts with the alkaline-earth atoms. In the case of the multiphoton ionization of the alkaline-earth atoms by the infrared laser radiation, the two-electron process occurs.

Purpose: The aim of this research was to study the formation mechanism of doubly charged multiphoton ionization of the Ba atoms resulting from the simultaneous action of two laser radiations: visible and infrared.

Methods: The experiments employ the method of crossed atomic and laser beams. The laser radiations are focused into the beam of Ba atoms. The ions are pulled from the beams interaction region by an electric field, separated with respect to the charge and mass in the time-of-flight mass spectrometer, and detected by an electron multiplier. We used the fundamental radiation of laser on yttrium-aluminum garnet (LYAG) (ω = 9395 cm^{-1}) and the LYAG second harmonic (ω = 18790 cm^{-1}).

Results: The experiments on the simultaneous action of the fundamental LYAG radiation and its second harmonic on the atomic barium show that the Ba^{2+} ions yield significantly (by two orders of magnitude) increases in comparison with the ion yields corresponding to the separate action of the two laser beams. We measured the dependence of the Ba^{2+} ions yield on the laser intensity upon the multiphoton ionization of the Ba atoms resulting from the simultaneous action of the mentioned two lasers. The obtained dependence is in good agreements with calculations made in the framework of the two-electron mechanism.

Conclusion: The investigation results show that the Ba^{2+} ions are produced in accordance with the two-electron mechanism under the simultaneous action of the fundamental and the second harmonic of LYAG radiation.

Keywords: multiphoton ionization, doubly charged ions, two-electron mechanism, the dynamic Stark effect.

REFERENCES

1. Bondar I.I., Suran V.V., Bondar D.I. Multiphoton - double-ionization probability linearly depends on laser intensity: Experimental studies of barium. // Phys. Rev. A. 88, 2013, 023407. P.1-6.
2. Bondar I.I., Suran V.V., Bondar D.I. Probability of the Two Electron Mechanism of the Formation of Doubly Charged Barium Ions As a Function of Laser Radiation Intensity. // Journal of Experimental and Theoretical Physics, 2013, Vol. 116, No. 6, P. 887–891.
3. Бондарь И.И., Суран В.В. Резонансная структура образования двухзарядных ионов при реализации двухэлектронного механизма ионизации атомов лазерным излучением. // Письма в ЖЭТФ. 1998. Т.68. С.796-800.
4. Bondar I.I., Suran V.V. Formation of doubly charged ions in the ionization of Sr atoms with radiation of color-center lasers // Laser Physics. 1999. V.9. P. 660-665.
5. Bondar I.I, Suran V.V., Dudich M.I. Resonant structure in doubly charged ion formation during multiphoton ionization of Sr and Ba atoms by infrared laser radiation // J. Phys.B: At. Mol. Opt. Phys. 2000. V.33, P. 4243-4254.
6. 6. Бондарь И.И., Суран В.В., Бондарь Д.И. Зависимость процесса образования двухзарядных ионов от интенсивности лазерного излучения при реализации двухэлектронного механизма // Опт. и спектр. 2004. Т. 96. №1. С.21-26.

© Ужгородський національний університет

PACS 78.40.Ha; 77.80.Bh
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.112-120
O.K. Reity[1], V.Yu. Lazur[2], V.K. Reity[2]

[1]Uzhhorod National University, 14 Universytetska Str., 88000 Uzhhorod, Ukraine
[2]Uzhhorod National University, 54 Voloshyna Str., 88000 Uzhhorod, Ukraine
e-mail: oleksandr.reity@uzhnu.edu.ua

QUASICLASSICAL THEORY OF TUNNEL IONIZATION OF AN ATOM BY PARALLEL ELECTRIC AND MAGNETIC FIELDS

The method of quasiclassical localized states is developed for the stationary Schrödinger equation with an arbitrary axially symmetrical electric potential of barrier type and potential of uniform magnetic field directed along the symmetry axis. Using this method in classically forbidden and allowed regions quasiclassical wavefunctions for an arbitrary atom in the parallel uniform electric and magnetic fields are constructed. The general analytical expressions for leading term of the asymptotic (at small intensities of electrostatic and magnetic fields) behaviour of ionization rate of an atom in such electromagnetic field are found.
Keywords: tunneling ionization, Stark effect, quasiclassical approximation.

Introduction

The problem of an atom in an electromagnetic field plays the fundamental role in quantum mechanics and atomic physics and has many applications (see, for example, [1-3] and the references therein). Since the twenties [4] of the previous century, properties of an energy spectrum of hydrogen atom and other atoms in external fields of various configurations were intensively studied in the framework of the Schrödinger equation.

In order to construct a consistent theory of tunnel ionization of atoms, one should solve the problem of electron motion in the field created by nucleus and external electromagnetic field. In the case of parallel electric and magnetic fields, the Schrödinger equation does not permit complete separation of variables in any orthogonal system of coordinates. Therefore, the given problem has no exact analytical solution, and numerical methods are still demand significant computational efforts.

The quasiclassical theory of atomic particles decay elaborated in sixties (see for instance [3]) has allowed obtaining useful analytical formulae for ionization rate which are asymptotic in the limit of “weak” fields. Both neutral atom [1, 5, 6, 7] and negative ions like H^-, J^- etc. [5, 8] (the first of these problems is more complicated due to necessity of taking into account the Coulomb interaction between outgoing electron and atomic core) were considered.

Subsequently (see papers [9, 10] and references therein), the imaginary time method (ITM) was elaborated for study ionization of atoms by electric and magnetic fields where classical trajectories used but with imaginary time. Although this method is physically obvious, it is not able to take into account the Coulomb interaction between an atom and outgoing electron consequently. Second limitation of this method is accounting only *s*-states.

Among the relatively new quantum-mechanical methods for studying the processes of interaction of atomic particles with electric and magnetic fields, $1/n$ expansion method (n – principal quantum number), which is quite effective for highly excited (Rydberg) states of atoms and molecules, including the

consideration of effects in strong external fields (see, for instance, [11]) occupies a special place.

Additionally, of practical interest is the case when the intensities of the external electric and magnetic fields are much smaller than the intensity of the characteristic atomic fields. If this condition is satisfied the breakup of the atomic particle occurs slowly compared to the characteristic atomic times and the leaking out of the electron takes place primarily in directions close to the direction of the electric field. Therefore, in order to determine the frequency of the passage of the electron through the barrier it is convenient to solve the Schrödinger equation near an axis directed along the electric field and passing through the atomic nucleus. This idea was used for solving the relativistic two-centre problem at large intercentre distances [12], for calculating the leading term (in intensity of electric field F) of the tunnel ionization rate of an atom in a constant uniform electric field in non-relativistic [5, 13] and relativistic [14-17] cases, and first two terms in non-relativistic case [18]. In our papers, such method called "*the method of quasiclassical localized states*" (MQLS) is shown to be free from the limitations of ITM.

In the present paper, our aim is to apply the MQLS to solving the problem of an arbitrary atom in the constant uniform electric and magnetic fields being parallel between themselves.

The paper is organized as follows. In section 2, the method of quasiclassical localized states is developed for the problem of atom in the barrier-type axially symmetrical electrostatic and constant uniform magnetic fields. In section 3, we analytically solve the Schrödinger equation for an atom in the parallel electric and magnetic fields in sub-barrier region. In section 4, we find the wavefunction in classically allowed range, calculate the leading term of tunnel ionization rate, and compare our results with ones of other authors in some limiting cases. In the last section of the paper, we discuss advantages of the elaborated method and further perspectives concerning its extension.

The MQLS in the problem of an atom in the axially symmetrical electrostatic and constant uniform magnetic fields

The Hamiltonian for an electron in the electromagnetic field is ($m_e = |e| = \hbar = 1$)

$$\hat{H} = \frac{1}{2}\left(\hat{\vec{p}} - \frac{1}{c}\vec{A}\right)^2 - \hat{\vec{\mu}}\vec{H} + V, \qquad (1)$$

where $\hat{\vec{p}} = -i\vec{\nabla}$, $\vec{A}$ and V are the vector and electrostatic potentials, respectively, $\hat{\vec{\mu}} = \mu_B \hat{\vec{s}}$ is the spin magnetic moment, $\mu_B = 1/2c$.

Consider the magnetic field directed along the negative z axis:

$$\vec{H} = (0,0,-H), \quad \vec{A} = \left(\frac{H}{2}y, -\frac{H}{2}x, 0\right). \qquad (2)$$

If the potential V is axially symmetrical, the Hamiltonian (1) can be rewritten in the form

$$\hat{H} = \frac{1}{2}\hat{\vec{p}}^2 + \frac{H}{2c}(m_l + 2m_s) + \frac{H^2\rho^2}{8c^2} + V, \qquad (3)$$

where $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$, $m_l = 0, \pm 1, \pm 2, \ldots \pm l$, l and m_l are respectively the orbital quantum number and its projection onto z axis, $m_s = \pm 1/2$ is the spin quantum number.

The spectrum of such quantum mechanical problem is a quasistationary. The energy of an electron is complex

$$E_c = E - i\Gamma/2, \qquad (4)$$

where E gives a position of a quasistationary level, $\Gamma = w/\hbar$ is its width, w is the rate of ionization.

Taking into account all the above mentioned, we obtain the following wave equation:

$$\Delta\Psi + 2\left[E - \tilde{V} - (H/2c)(m_l + 2m_s)\right]\Psi = 0, \qquad (5)$$

where $\tilde{V} = V + \left(H^2/8c^2\right)\rho^2$.

Since the potential $V(z,\rho)$ is axially symmetrical, the Hamiltonian (3) commutes with the operator of projection of total angular momentum of the electron onto a potential symmetry axis z, and equation (5) allows us to separate the azimuthal angle ϕ. For this purpose, we represent the solution of (5) in the form

$$\Psi = \psi(z,\rho)e^{im_l\phi}, \tag{6}$$

where $\psi(z,\rho)$ is a new unknown function.

Having substituted (6) into (5), we obtain the differential equation

$$\Delta\psi + \left[\frac{2}{\hbar^2}\left(E-\tilde{V}\right) - \frac{H}{\hbar c}(m_l+2m_s) - \frac{m^2}{\rho^2}\right]\psi = 0, \tag{7}$$

where the Planck constant $\hbar$ is renewed, and $m = |m_l|$.

We seek a solution of equation (7) in the form of the WKB expansion:

$$\psi = e^{S/\hbar}\sum_{n=0}^{\infty}\hbar^n\varphi^{(n)}. \tag{8}$$

Having substituted (8) into (7) and equated to zero the coefficients of each power of $\hbar$, we arrive at the hierarchy of equations

$$\left(\vec{\nabla}S\right)^2 = q^2, \qquad q^2 = 2\left(\tilde{V}-E\right); \tag{9}$$

$$2\vec{\nabla}S\vec{\nabla}\varphi^{(0)} + \left[\Delta S - \frac{H}{c}\left(m_l+2m_s\right)\right]\varphi^{(0)} = 0; \tag{10}$$

$$2\vec{\nabla}S\vec{\nabla}\varphi^{(n+1)} + \left[\Delta S - \frac{H}{c}\left(m_l+2m_s\right)\right]\varphi^{(n+1)} = \\ = (m^2/\rho^2)\varphi^{(n)} - \Delta\varphi^{(n)}, \tag{11}$$

where $n = 0,1,2,\ldots$. Unfortunately, equations (9)-(11), similarly to the initial equation (5), do not permit exact separation of variables. In order to solve this problem, we use the idea of the localized states consisting in the following.

There are many cases when for solving quantum mechanical problem it is sufficient to find a wavefunction not in the whole configurational space but in the neighbourhood of manifold M of less dimension. States describes by such wavefunctions are called “localized states”. In the sub-barrier region, unlike for the classically allowed range, the wavefunction is localized in the vicinity of the most probable tunnelling direction. It is natural to expand all the quantities in inseparable equations including their solutions, in the vicinity of the z axis. This idea was founded by Fock and Leontovich [19] and employed at solving diffraction problems [20] (the boundary-layer method), some quantum mechanical problems [21] (the parabolic equation method), and, finally, in the MQLS [14, 17]. Here we generalize the MQLS on equation (5).

Consider equation (9) and assume that

$$V(z,\rho) = V_0(z) + V_1\rho^2 + V_2(z)\rho^4 + \ldots, \\ V_k = \frac{1}{k!}\frac{\partial^k V(z,0)}{\partial\rho^{2k}}. \tag{12}$$

Solution of equation (9) can also be represented in the form of an expansion in powers of coordinate the ρ:

$$S(z,\rho) = s_0(z) + s_1(z)\rho^2 + s_2(z)\rho^4 + \ldots. \tag{13}$$

By inserting (13) into (9) and equating to zero the coefficients of each power of ρ, we obtain

$$(s_0')^2 = q_0^2, \quad q_0 = \sqrt{2(V_0-E)}; \tag{14}$$

$$s_0's_1' + 2s_1^2 = V_1 + \frac{H^2}{8c^2}; \tag{15}$$

$$s_0's_2' + 8s_1s_2 = V_2 - \frac{1}{2}\left(s_1'\right)^2; \tag{16}$$

$$s_0's_k' + 4ks_1s_k = V_k - \frac{1}{2}\sum_{j=1}^{k-1}s_j's_{k-j}' - \\ - 2\sum_{j=1}^{k-2}(j+1)(k-j)s_{j+1}s_{k-j}. \tag{17}$$

It is easy to show that in the sub-barrier region the solution of equation (14) is

$$s_0 = -\int q_0 dz + \text{const}. \tag{18}$$

Equation (15) is the nonlinear Riccati differential equation and are not solvable ana-

lytically in a general case. By making the substitution

$$s_1 = \frac{q_0(z)}{2}\left(\frac{1}{2}\frac{q_0'(z)}{q_0(z)} - \frac{\sigma'(z)}{\sigma(z)}\right), \qquad (19)$$

one can proceed from (15) to the linear second-order equation

$$\sigma'' + \left[\frac{1}{4}\left(\frac{q'_0}{q_0}\right)^2 - \frac{1}{2}\frac{q_0''}{q_0} - \frac{H^2}{4c^2q_0^2} - \frac{2V_1}{q_0^2}\right]\sigma = 0, \qquad (20)$$

which after substitution $q_0 \to \pm ip_0$ coincides with the equation obtained by Sumetskii within the parabolic equation method [21].

All the equations for s_2, s_3,... are linear, of first order and integrated in quadratures:

$$s_2 = \frac{q_0^2}{\sigma^4}\left\{\int \frac{\sigma^4}{q_0^3}\left[\frac{(s_1')^2}{2} - V_2\right]dz + \text{const}\right\}, \qquad (21)$$

$$s_k = \left(\frac{q_0}{\sigma^2}\right)^k \left\{\int \frac{\sigma^{2k}}{q_0^{k+1}}\left[\frac{1}{2}\sum_{j=1}^{k-1} s_j' s_{k-j}' + \right.\right.$$
$$\left. + 2\sum_{j=1}^{k-2}(j+1)(k-j)s_{j+1}s_{k-j} - V_k\right]dz +$$
$$\left. + \text{const}\right\}. \qquad (22)$$

The solutions of the equations (10), (11) are sought in the form

$$\varphi^{(n)} = \rho^m \sum_{k=0}^{\infty} \varphi_k^{(n)}(z)\rho^{2k}. \qquad (23)$$

By substituting (23) into the corresponding equations and equating to zero the coefficients of each power of ρ, we obtain the system of ordinary first-order linear differential equations solvable in quadratures.

The leading term of the wavefunction in the sub-barrier region is:

$$\Psi = \frac{C}{\sigma}\left(\frac{\rho\sqrt{q_0}}{\sigma}\right)^m \exp\left\{-\int_{z_1}^{z}\left[q_0(x) - \frac{H(m_l + 2m_s)}{2cq_0(x)}\right]dx + \right.$$
$$\left. + h_1(z)\rho^2 + im_l\phi\right\}. \qquad (24)$$

The MQLS in the problem of an atom in the parallel constant uniform electric and magnetic fields

If an arbitrary (not H-like) atom is placed in the constant uniform electric field, then an interaction potential at $r \gg 2Z/\gamma^2$ ($\gamma = \sqrt{-2E}$) is

$$V(z,\rho) \simeq -\frac{Z}{r} - Fz. \qquad (25)$$

The leading term $V_0(z) = -Z/z - Fz$ of expansion of (25) in powers of ρ^2 has a form of barrier (see Figure 1).

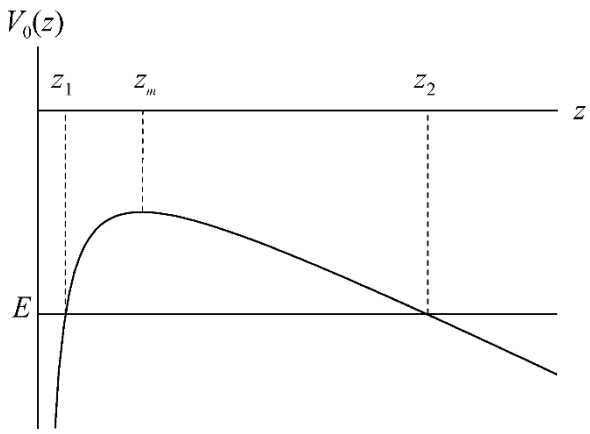


Fig. 1: The "potential" $V_0(z) = V(z,0)$; z_1, z_2 are roots of equation $q_0(z) = 0$, $z_m = \sqrt{Z/F}$ is the maximum point.

If $F \ll \gamma^3$ then the sub-barrier region is quite wide ($z_1 \ll z \ll z_2$). There is the range $z_1 \ll z \ll z_m$ where

$$\Psi \underset{z_1 \ll z \ll z_m}{\simeq} \Psi_0^{(as)}. \qquad (26)$$

Here $\Psi_0^{(as)}$ is the asymptotics (when $z \gg z_1$) of the unperturbed atomic wavefunction.

Using the MQLS elaborated one can find the quasiclassical localized wavefunction Ψ in the sub-barrier region $z_1 \ll z < z_2$ under the boundary condition (26). However, for this purpose we should solve the Riccati equation (15) writing

$$-2q_0 s_1' + 4s_1^2 = \frac{Z}{z^3} + \frac{H^2}{4c^2}. \qquad (27)$$

We seek a solution of (27) in the form

$$s_1(z) = s_{10}(z) + s_{11}(z) + \ldots, \qquad (28)$$

where $s_{1i+1}(z)/s_{1i}(z) \sim 1/z$. Then in zero approximation

$$-2q_0 s_{10}' + 4s_{10}^2 = \frac{H^2}{4c^2}. \qquad (29)$$

The replacement $s_{10}(z) = H/4c + \chi_0(z)$ leads (29) to the Bernoulli equation for $\chi_0(z)$ which is solved analytically. Finally, the solution of (29) under the condition (26) is of the form

$$s_1(z) = -\frac{H}{4c}\coth\left[\frac{H}{2c}\int_{z_1}^{z}\frac{dx}{q_0(x)}\right]. \qquad (30)$$

In the sub-barrier region, we obtain the wavefunction

$$\Psi_{II} = \frac{C_{II}\rho^m e^{im_l\phi}}{\sqrt{q_0(z)}\left\{\sinh\left[\frac{H}{2c}\int_{z_1}^{z}\frac{dx}{q_0(x)}\right]\right\}^{m+1}} \times$$
$$\times \exp\left\{-\int_{z_1}^{z}\left[q_0(x) - \frac{H(m_l+2m_s)}{2cq_0(x)}\right]dx + \right.$$
$$\left. + s_1(z)\rho^2\right\}, \qquad (31)$$

where normalization constant

$$C_{II} = a\sqrt{\gamma}\left(\frac{H}{2c\gamma}\right)^{m+1}\left(\frac{Z}{2\gamma^2 e}\right)^{Z/\gamma} \times$$
$$\times \frac{(-1)^{\frac{m_l+m}{2}}}{2^m m!}\sqrt{\frac{2l+1}{4\pi}\frac{(l+m)!}{(l-m)!}}, \qquad (32)$$

a is the asymptotic coefficient of asymptotic behaviour (at $r \gg 2Z/\gamma^2$) of unperturbed radial wavefunction:

$$R^{as}(r) = ar^{Z/\gamma-1}e^{-\gamma r}. \qquad (33)$$

The wavefunction in the classically allowed region. The ionization probability

Continuing Ψ_{II} to classically allowed region $z > z_2$ we find

$$\Psi_{III} = \frac{C_{II}\exp\left\{-J_1 + \frac{H(m_l+2m_s)}{2c}J_2 + \frac{i\pi}{4}\right\}}{\sqrt{p_0(z)}\left\{\sinh\left[\frac{H}{2c}\left(J_2 + i\int_{z_2}^{z}\frac{dx}{p_0(x)}\right)\right]\right\}^{m+1}} \times$$
$$\times \rho^m \exp\left\{-i\int_{z}^{z_2}p_0(x)dx + s_1(z)\rho^2 + im_l\phi\right\}, \qquad (34)$$

where

$$p_0(z) = iq_0(z) = \sqrt{\frac{2Z}{z} + 2Fz - \gamma^2}, \qquad (35)$$

$$s_1(z) = \frac{H}{4c}\coth\left[\frac{H}{2c}\left(J_2 + i\int_{z_2}^{z}\frac{dx}{p_0(x)}\right)\right], \qquad (36)$$

$$J_1 = \int_{z_1}^{z_2}q_0(z)dz, \; J_2 = \int_{z_1}^{z_2}\frac{dz}{q_0(z)}. \qquad (37)$$

Here J_1 is the so-called “barrier integral”.

As it is known [1], the ionization probability (rate) is equal to

$$w = \int_S \vec{j}d\vec{s}, \; \vec{j} = \frac{i}{2}\left(\Psi_{III}\vec{\nabla}\Psi_{III}^* - \Psi_{III}^*\vec{\nabla}\Psi_{III}\right). \qquad (38)$$

Here S is a plane perpendicular to axis z and crossing it at $z > z_2$.

Substituting Ψ_{III} into the formula one can obtain the leading term of the ionization rate

$$w = \frac{\gamma a^2(2l+1)(l+m)!}{m!(l-m)!}\left(\frac{Z}{2\gamma^2 e}\right)^{2Z/\gamma} \times$$
$$\times \frac{\exp\left[-2J_1 + \frac{H(m_l+2m_s)}{c}J_2\right]}{\left(\frac{4c\gamma^2}{H}\sinh\frac{HJ_2}{c}\right)^{m+1}}. \qquad (39)$$

After asymptotical (when $F \ll \gamma^3$) calculation of the integrals J_1 and J_2 we obtain the following result

$$w = \frac{a^2(2l+1)}{2^{m+1} m!\gamma^m} \frac{(l+m)!}{(l-m)!} \left[\frac{H\gamma/cF}{\sinh(H\gamma/cF)} \right]^{m+1} \times$$
$$\times \left(\frac{2\gamma^2}{F} \right)^{2Z/\gamma - m - 1} \exp\left[-\frac{2\gamma^3}{3F} + \frac{H\gamma(m_l + 2m_s)}{cF} \right]. \quad (40)$$

In the case of s-states ($l = m = 0$), after neglecting the electron spin ($m_s = 0$) formula (40) coincides with the result [22] obtained by ITM.

When $H \to 0$ the expression (40) is transformed into the well-known result of Smirnov and Chibisov [5] for ionization rate of an atom in electrostatic field.

In order to find the tunnel ionization rate of singly charged negative ions (i.e. H^-, J^-, etc.), in (40) it is necessary to put $Z = 0$. If the particle is in weakly bound states in the central field with small radius of action r_0 then beyond this radius the asymptotic behaviour of the unperturbed ($F = 0$) radial wavefunction is of the form [1]

$$R_{lm}^{(as)} = ar^{-1}e^{-\gamma r}, \quad (41)$$

where a is determined by means of normalization. When $\gamma r_0 \ll 1$ the behaviour of the wavefunction within the potential well $0 \leqslant r \leqslant r_0$ is inessential because the particle stands basically beyond the well. This gives $a \approx \sqrt{2\gamma}$ and the ionization rate

$$w = \frac{a^2(2l+1)}{m!\gamma^m} \frac{(l+m)!}{(l-m)!} \left[\frac{H}{2c\gamma \sinh(H\gamma/cF)} \right]^{m+1} \times$$
$$\times \exp\left[-\frac{2\gamma^3}{3F} + \frac{H\gamma(m_l + 2m_s)}{cF} \right]. \quad (42)$$

In the case of s-states ($l = m = 0$), after neglecting the electron spin ($m_s = 0$) formula (42) coincides with the result [22] obtained by ITM or (when $H \to 0$) with the known result of Demkov and Drukarev [1, 8].

Conclusions

The method of quasiclassical localized states is elaborated to solve asymptotically the Schrödinger equation with barrier-type potentials which do not permit a complete separation of variables. It is based on physically clear ideas, applicable to arbitrary states (not only *s*-states as ITM) and takes into account the Coulomb interaction between the outgoing electron and atomic core during tunneling correctly. This method has allowed us to obtain for the first time the wavefunctions and general analytical expression for leading term of the asymptotic behaviour of ionization rate of an arbitrary atom (and negative ion) in the parallel electric and magnetic fields whose intensities F and H are much smaller than intensity of intra-atomic field.

Our next tasks are to generalize MQLS on other configurations of electric and magnetic fields (perpendicular, of arbitrary orientations, ununiform, non-stationary, laser fields of various polarizations, etc.) and to obtain higher orders of ionization probability expansion in powers of F and H in both the nonrelativistic and relativistic cases.

REFERENCES

1. Landau, L.D., Lifshitz, E.M. (1981), Quantum Mechanics: Nonrelativistic Theory, Butterworth-Heinemann, Oxford, 689 p.
2. Bethe, H.A. and Salpeter, E.E. (2013), Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms, Courier Corporation, Massachusetts, 384 p.
3. Smirnov, B.M. (2003), Physics of Atoms and Ions, Springer, New York, 456 p.
4. Rydberg States of Atoms and Molecules (1983), edited by Stebbings, R.F. and Dunning, F.B., Cambr. Univ. Press, Cambridge, 524 p.
5. Smirnov, B.M., Chibisov, M.I. (1965), “The Breaking Up of Atomic Particles by an Electric Field and by Electron Collisi-

ons", Sov. Phys. JETP, V. 22, No. 3, pp. 585-592.
6. Perelomov, A.M., Popov, V.S., Terent'ev, M.V. (1966), "Ionization of atoms in an alternating electric field", Sov. Phys. JETP, V. 23, No. 5, pp. 924-934.
7. Nikishov, A.I., Ritus, V.I. (1966), "Ionization of Systems Bound by Short-range Forces by the Field of an Electromagnetic Wave", Sov. Phys. JETP, V. 23, No. 1, pp. 168-177.
8. Demkov, N.N. and Drukarev, G.F. (1964), "Decay and the polarizability of the negative ion in an electric field", Sov. Phys. JETP, V. 20, No. 3, pp. 614–618.
9. Popov, V.S., Karnakov, B.M., Mur, V.D. (1998), "Ionization of atoms in electric and magnetic fields and the imaginary time method", JETP, V. 86, No. 5, pp. 860-874.
10. Popov, V.S., Sergeev, A.V. (1998), "Ionization of atoms in weak fields and the asymptotic behavior of higher-order perturbation theory", JETP, V. 86, No. 6, pp. 1122-1126.
11. Popov, V.S., Sergeev, A.V., Shcheblykin, A.V. (1992), "Structure of higher orders of the 1/n expansion", Sov. Phys. JETP, V. 75, No. 5, pp. 787-795.
12. Reity, O.K., Lazur, V.Yu., Katernoha, A.V. (2002), "The quantum mechanical two-Coulomb-centre problem in the Dirac equation framework", J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., V. 35, No. 1, pp. 1-17.
13. Reity, O.K., Reity, V.K., Lazur, V.Yu. (2015), "On one version of WKB method in the problem of tunnel ionization of an atom by uniform electric field", *16-th Small Triangle Meeting on Theoretical Physics*. Ptičie, Slovakia, 5-8 October, 2014. Košice: Inst. Exp. Phys. SAS., pp. 122-131.
14. Reity, O.K., Reity, V.K., Lazur, V.Yu. (2012), "Relativistic version of the boundary-layer method in the tunnel ionization of atoms by a constant uniform electric field", *3-th Small Triangle Meeting on Theoretical Physics*. Stará Lesná, Slovakia, 14-16 November, 2011. Košice: Inst. Exp. Phys. SAS., pp. 94-103.
15. Reity, O.K., Reity, V.K., Lazur, V.Yu. (2010), "Quasiclassical theory of the tunnel ionization of the relativistic atom in the constant homogeneous electric field" [Kvaziklasychna teoriia tunelnoi ionizatsii reliatyvistskoho atoma v postiinomu odnoridnomu elektrychnomu poli], Uzhhorod University Scientific Herald, Series Physics [Nauk. Visn. Uzhhorod. Univ. Ser. Fiz.], No. 27, pp. 97-102.
16. Reity, O.K., Reity, V.K., Lazur, V.Yu. (2016), "Quasiclassical theory of the ionization of the hydrogen-like atom by an external electrostatic field", *17-th Small Triangle Meeting on Theoretical Physics*. Sveta Nedelja, Hvar, Croatia, 7-11 September, 2015. Košice: Inst. Exp. Phys. SAS., pp. 104-111.
17. Reity, O.K., Reity, V.K., Lazur, V.Yu. (2016), "Quasiclassical approximation in the non-relativistic and relativistic problems of tunneling ionization of a hydrogen-like atom in a uniform electric field", EPJ Web of Conf., V. 108, 02039 (6 pp.).
18. Reity, O.K., Reity, V.K., Lazur, V.Yu. (2014), "Boundary-layer method in the theory of tunnel ionization of an atom by constant uniform electric field", *15-th Small Triangle Meeting on Theoretical Physics*. Stara Lesna, Slovakia, 27-30 October, 2013. Košice: Inst. Exp. Phys. SAS., pp. 126-135.
19. Leontovich, M.A., Fock, V.A. (1946), "Solution of the problem of propagation of electromagnetic waves along the Earth's surface by method of parabolic equations", Journal of Physics – USSR, V. 10, No. 1, pp. 13-23.
20. Babich, V.M., Kirpichnikova, N.Y. (1985), the Boundary-Layer Method in the Diffraction Problems, Springer-Verlag, Berlin, 140 p.
21. Sumetskii, M.Yu. (1980), "Probability of tunneling through potential barriers in more than one dimension", Theor. Math. Phys., V. 45, No. 1, pp. 886-894.
22. Karnakov, B.M., Mur, V.D., Popruzhenko, S.V., Popov, V.S. (2015), "Current progress in developing the nonlinear ionization theory of atoms and ions", Physics – Uspekhi, V. 58, No. 1, pp. 3-32.

Стаття надійшла до редакції 3.12.2017

А.К. Рейтий[1], В.Ю. Лазур[2], В.К. Рейтий[2]
[1]Ужгородский национальний университет, 88000, Ужгород, ул. Университетская, 14
[2]Ужгородский национальний университет, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54
e-mail: oleksandr.reity@uzhnu.edu.ua

КВАЗИКЛАССИЧЕСКАЯ ТЕОРИЯ ТУННЕЛЬНОЙ ИОНИЗАЦИИ АТОМА ПАРАЛЛЕЛЬНЫМИ ЭЛЕКТРИЧЕСКИМ И МАГНИТНЫМ ПОЛЯМИ

Метод квазиклассических локализованных состояний разработан для стационарного уравнения Шредингера с произвольным осесимметричным электрическим потенциалом барьерного типа и потенциалом однородного магнитного поля, направленного вдоль оси симметрии. С помощью этого метода построены квазиклассические волновые функции в классически запрещенной и разрешенной областях для произвольного атома в параллельных электрическом и магнитном полях. Найдены общие аналитические выражения для главного члена асимптотического (по напряженностях электростатического и магнитного полей) разложения вероятности ионизации атома в таком поле.
Ключевые слова: туннельная ионизация, эффект Штарка, квазиклассическое приближение.

УДК 539.184
О.К. Рейтій[1], В.Ю. Лазур[2], В.К. Рейтій[2]
[1]Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Університетська, 14
[2]Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54
e-mail: oleksandr.reity@uzhnu.edu.ua

КВАЗІКЛАСИЧНА ТЕОРІЯ ТУНЕЛЬНОЇ ІОНІЗАЦІЇ АТОМА ПАРАЛЕЛЬНИМИ ЕЛЕКТРИЧНИМ ТА МАГНІТНИМ ПОЛЯМИ

Метод квазікласичних локалізованих станів розроблено для стаціонарного рівняння Шредінгера з довільним аксіально-симетричним електричним потенціалом бар'єрного типу та потенціалом однорідного магнітного поля, напрямленого вздовж осі симетрії. За допомогою цього методу побудовано квазікласичні хвильові функції в класично забороненій та дозволеній областях для довільного атома в паралельних електричному та магнітному полях. Отримано загальний аналітичний вираз для головного члена асимптотичного (за напруженостями електростатичного та магнітного полів) розкладу ймовірності іонізації атома в такому полі.
Ключові слова: тунельна іонізація, ефект Штарка, квазікласичне наближення.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Квантовая механика (нерелятивистская теория). – М.: Наука, 1974. – 760 с.
2. Бете Г., Солпитер Э. Квантовая механика атомов с одним и двумя электронами. – М.: Физматиздат, 1960. – 586 с.
3. Смирнов Б.М. Физика атома и иона. – М.: Энергоатомиздат, 1986. – 216 с.
4. Ридберговские состояния атомов и молекул / Под ред. Р. Стеббингса, Ф. Даннинга; перевод с англ. М.Р. Алиева и др. – М.: Мир, 1985. – 496 с.
5. Смирнов Б.М., Чибисов М.И. Разрушение атомных частиц электрическим полем и электронным ударом // Жур.

Эксп. Теор. Физ. – 1965. – Т. 49. – № 3. – С. 841-851.
6. Переломов А.М., Попов В.С., Терентьев М.В. Ионизация атомов в переменном электрическом поле // Жур. Эксп. Теор. Физ. – 1966. – Т. 50. – № 5. – С. 1393-1409.
7. Никишов А.И., Ритус В.И. Ионизация систем, связанных короткодействующими силами, полем электромагнитной волны // Жур. Эксп. Теор. Физ. – 1966. – Т. 50. – № 1. – С. 255-270.
8. Демков Н.Н., Друкарев Г.Ф. Распад и поляризуемость отрицательного иона в электрическом поле // Жур. Эксп. Теор. Физ. – 1964. – Т. 47. – № 3. – С. 918-924.
9. Попов В.С., Карнаков Б.М., Мур В.Д. Ионизация атомов в электрическом и магнитных полях и метод мнимого времени // Жур. Эксп. Теор. Физ. – 1998. – Т. 113. – № 5. – С. 1579-1605.
10. Попов В.С., Сергеев А.В. Ионизация атомов в слабых полях и асимптотика высших порядков теории возмущений // Жур. Эксп. Теор. Физ. – 1998. – Т. 113. – № 6. – С. 2047-2055.
11. Попов В.С., Сергеев А.В., Щеблыкин А.В. О структуре высших порядков 1/*n*-разложения // Жур. Эксп. Теор. Физ. – 1992. – Т. 102. – № 5. – С. 1453-1463.
12. Reity O.K., Lazur V.Yu., Katernoha A.V. The quantum mechanical two-Coulomb-centre problem in the Dirac equation framework // J. Phys. B. – 2002. – V. 35. – No 1. – P. 1-17.
13. Reity O.K., Reity V.K., Lazur V.Yu. On one version of WKB method in the problem of tunnel ionization of an atom by uniform electric field: proc. 16-th Small Triangle Meeting on Theoretical Physics (Ptičie, Slovakia, 5-8 October, 2014). – Košice: Inst. Exp. Phys. SAS. – 2015. – P. 122-131.
14. Reity O.K., Reity V.K., Lazur V.Yu. Relativistic version of the boundary-layer method in the tunnel ionization of atoms by a constant uniform electric field: proc. 13-th Small Triangle Meeting on Theoretical Physics (Stará Lesná, Slovakia, 14-16 November, 2011). – Košice: Inst. Exp. Phys. SAS. – 2012. – P. 94-103.
15. Рейтій О.К., Рейтій В.К., Лазур В.Ю. Квазікласична теорія тунельної іонізації релятивістського атома в постійному однорідному електричному полі // Науковий вісник Ужгородського університету. Серія Фізика. – 2010. – №27. – С. 97-102.
16. Reity O.K., Reity V.K., Lazur V.Yu. Quasiclassical theory of the ionization of the hydrogen-like atom by an external electrostatic field: proc. 17-th Small Triangle Meeting on Theoretical Physics (Sveta Nedelja, Hvar, Croatia, 7-11 September, 2015). – Košice: Inst. Exp. Phys. SAS. – 2016. – P. 104-111.
17. Reity O.K., Reity V.K., Lazur V.Yu. Quasiclassical approximation in the non-relativistic and relativistic problems of tunneling ionization of a hydrogen-like atom in a uniform electric field // EPJ Web of Conferences. – 2016. – V. 108. – 02039 (6 pp.).
18. Reity O.K., Reity V.K., Lazur V.Yu. Boundary-layer method in the theory of tunnel ionization of an atom by constant uniform electric field: proc. 15-th Small Triangle Meeting on Theoretical Physics (October 27-30, 2013, Stara Lesna, Slovakia). – Košice: Inst. Exp. Phys. SAS. – 2014. – P. 126-135.
19. Леонтович М.А., Фок В.А. Решение задачи о распространении электромагнитных волн вдоль поверхности земли по методу параболического уравнения // Жур. Эксп. Теор. Физ. – 1946. – Т. 16. – №7. – С. 557-573.
20. Бабич В.М., Булдырев В.С. Асимптотические методы в задачах дифракции коротких волн. – М.: Наука, 1972. – 372 с.
21. Сумецкий М.Ю. Вероятность туннелирования через неоднородные потенциальные барьеры // Теор. Мат. Физ. – 1980. – Т. 45. – №1. – С. 64-75.
22. Карнаков Б.М., Мур В.Д., Попруженко С.В., Попов В.С. Современное развитие теории нелинейной ионизации атомов и ионов // Усп. Физ. Наук. – 2015. – Т. 185. – №1. – С. 3-34.

© Ужгородський національний університет

УДК 539.186
PACS 34.80.Dp, 34.80.Gs
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.121-127

С.В. Гедеон, В.Ф. Гедеон, В.Ю. Лазур, Є.А. Нодь
Ужгородський національний університет, вул. Волошина, 54, 88000, Ужгород
e-mail: sergej.gedeon@uzhnu.edu.ua, viktor.gedeon@uzhnu.edu.ua, volodymyr.lazur@uzhnu.edu.ua, elizabeth.nagy@uzhnu.edu.ua

ДИФЕРЕНЦІАЛЬНІ 3D-ПЕРЕРІЗИ РОЗСІЯННЯ ЕЛЕКТРОНІВ НА АТОМІ ФТОРУ

У рамках методу *R*-матриці з *B*-сплайнами (БСР) розраховані диференціальні перерізи (ДП) розсіяння електронів на атомі фтору в області енергій до 110 еВ. Розклад сильного зв‘язку включав 39 зв‘язаних станів атома F. Отримані енергетично-кутові залежності ДП і побудовані відповідні 3D-поверхні для перерізів пружного розсіяння та збудження п’яти нижчих станів атома F. Обговорено зв’язок енергетично-кутових 3D-залежностей ДП від типу спектральних переходів у атомі F.
Ключові слова: атом F, розсіяння електронів, метод *R*-матриці з *B*-сплайнами, диференціальні перерізи розсіяння, 3D-поверхні.

Вступ

Фтор є достатньо поширеним елементом у Всесвіті. При проходженні багатьох процесів у плазмі атоми фтору використовуються в якості домінуючих присадок. Перерізи електронних зіткнень у газах фтору необхідні в якості вхідних даних для розрахунків хімічних і електричних властивостей технологічної плазми та лазерів на інертних газах і фторі. Атомарні перерізи можуть бути також використані для передбачення перерізів різних сполук фтору. Проте, висока реактивність цього елементу робить важким отримання надійних значень перерізів електронних зіткнень шляхом прямих вимірювань. З наявних у літературі перерізів для атомарного фтору експериментально були визначені тільки перерізи іонізації [1]. Необхідні ж для застосувань моделювання перерізи пружного розсіяння, переносу імпульсу та збудження електронним ударом повинні братися з теоретичних оцінок. Огляд теоретичних праць з дослідження розсіяння низькоенергетичних електронів атомами фтору можна знайти в нашій недавній роботі [2].

Зрозуміло, що прогрес в області фізики електрон-атомних зіткнень залежить як від багатьох взаємозв’язаних факторів. Не останню роль відіграє використання в розрахунках нових теоретичних ідей та наявність у дослідника відповідних обчислювальних інструментів і засобів. Упродовж останнього десятиріччя нами, разом зі співавторами, детально вивчено процеси пружного і непружного зіткнення електронів з рядом атомних систем: Ca [3, 4], Mg [5], Sr [6], Si [7], F [2], Al [8, 9], B [10] і здійснено попередні розрахунки для ряду інших атомів та іонів. Вказані процеси електрон-атомних (ЕА) зіткнень [2-10] були розраховані нами у різних версіях методу *R*-матриці з *B*-сплайнами (БСР) [11]. У розрахунках структури мішеней були задіяні також одно- і багатоконфігураційний методи Хартрі-Фока (БКХФ) [10, 11].

Використання методу БСР [9] у розрахунках характеристик ЕА-розсіяння для нейтрального фтору [2] дозволило нам отримати інтегральні (ІП) та диференціальні (ДП) перерізи зіткнення з точністю, наразі недоступною для інших методів дослідження. У праці [2] основна увага була приділена дослідженню енергетичних залежностей ІП зіткнення *e*−F, зокрема збіжності розкладів сильного зв’язку в залежності від числа врахованих станів мішені та псевдостанів. У даній статті

ми акцентуємо увагу на дослідженні енергетично-кутових залежностей ДП розсіяння e–F, які мають вигляд 3D-поверхонь. Ці 3D-поверхні фактично містять найбільш повну і детальну інформацію про процеси ЕА-зіткнення. Проте трудність отримання цих поверхонь та складність їх подальшого аналізу наразі обмежує їх використання в науковій літературі. В даному дослідженні ми обмежилися розглядом переходів з основного стану $2p^5\ ^2P^o$ атома F у п'ять нижчих збуджених станів: $2p^4(^3P)3s\ ^{4,2}P$, $2p^4(^3P)3p\ ^4P^o$, $^{4,2}D^o$.

Таблиця 1. Енергії зв'язку (в еВ) для 39 нижніх станів мішені атома F. Дані БСР39 [2]порівняні з даними NIST [14] *). Тут $\Delta E = E_{БСР39} - E_{NIST}$

№	Стан	$E_{БСР39}$ [2]	E_{NIST} [14]	ΔE
1	$2p^5\ ^2Po$	−17.367	−17.406	0.039
2	$2p^4(^3P)3s\ ^4P$	−4.549	−4.706	0.157
3	$2p^4(^3P)3s\ ^2P$	−4.275	−4.424	0.149
4	$2p^4(^3P)3p\ ^4P^o$	−2.985	−3.041	0.056
5	$2p^4(^3P)3p\ ^4D^o$	−2.848	−2.899	0.051
6	$2p^4(^3P)3p\ ^2D^o$	−2.783	−2.827	0.044
7	$2p^4(^3P)3p\ ^2S^o$	−2.697	−2.742	0.045
8	$2p^4(^3P)3p\ ^4S^o$	−2.694	−2.740	0.046
9	$2p^4(^3P)3p\ ^2P^o$	−2.639	−2.671	0.032
10	$2p^4(^1D)3s\ ^2D$	−1.871	−2.059	0.188
11	$2p^4(^3P)4s\ ^4P$	−1.807	−1.827	0.020
12	$2p^4(^3P)4s\ ^2P$	−1.739	−1.753	0.014
13	$2p^4(^3P)3d\ ^4D$	−1.540	−1.541	0.001
14	$2p^4(^3P)3d\ ^2D$	−1.531	−1.532	0.001
15	$2p^4(^3P)3d\ ^4F$	−1.515	−1.500	−0.015
16	$2p^4(^3P)3d\ ^2F$	−1.514	−1.500	−0.014
17	$2p^4(^3P)3d\ ^4P$	−1.501	−1.487	−0.014
18	$2p^4(^3P)3d\ ^2P$	−1.499	−1.472	−0.027
19	$2p^4(^3P)4p\ ^4P^o$	−1.366	−1.373	0.007
20	$2p^4(^3P)4p\ ^4D^o$	−1.326	−1.331	0.005
21	$2p^4(^3P)4p\ ^2D^o$	−1.304	−1.297	−0.007
22	$2p^4(^3P)4p\ ^2S^o$	−1.281	−1.286	0.005
23	$2p^4(^3P)4p\ ^4S^o$	−1.280	−1.277	−0.003
24	$2p^4(^3P)4p\ ^2P^o$	−1.268	−1.254	−0.014
25	$2p^4(^3P)5s\ ^4P$	−0.968	−0.968	0.000
26	$2p^4(^3P)5s\ ^2P$	−0.941	−0.924	−0.017
27	$2p^4(^1D)3p\ ^2F^o$	−0.287		
28	$2p^4(^1D)3p\ ^2P^o$	−0.235		
29	$2p^4(^1D)3p\ ^2D^o$	−0.156	−0.226	0.070
30	$2p^4(^1D)4s\ ^2D$	0.802	0.762	0.040
31	$2p^4(^1S)3s\ ^2S$	0.955	0.791	0.164
32	$2p^4(^1D)3d\ ^2P$	1.055	1.043	0.012
33	$2p^4(^1D)3d\ ^2G$	1.059	1.047	0.012
34	$2p^4(^1D)3d\ ^2D$	1.078	1.066	0.012
35	$2p^4(^1D)3d\ ^2F$	1.088	1.076	0.012
36	$2p^4(^1S)3s\ ^2S$	1.100	1.074	0.026
37	$2p^4(^1S)3p\ ^2P^o$	2.747		
38	$2p^4(^1S)4s\ ^2S$	3.692		
39	$2p^4(^1S)3d\ ^2D$	4.057		

*) енергії триплетів усереднені по терму

Методи розрахунку

Особливості методики розрахунку структурних характеристик атома F достатньо детально висвітлені у вищезгаданій праці [2]. При цьому в розкладі сильного зв'язку для випадку F було враховано у різних варіантах наближення БСР від 39 станів мішені (БСР39), і до 39 станів мішені плюс 651 пседостан (великомасштабний розклад БСР690). Розрахунки структури атома F здійснювалися з використанням як пакету MCHF [10, 11], так і пакету BSR [9]. Переваги розрахунку структури мішені в рамках методу R-матриці з B-сплайнами (пакет BSR) у порівнянні з багатоконфігураційним методом Хартрі-Фока (пакет MCHF) висвітлені в [9]. Там же наведена загальна теорія БСР-розрахунків ЕА-розсіяння та опис комп'ютерних програм пакету BSR.

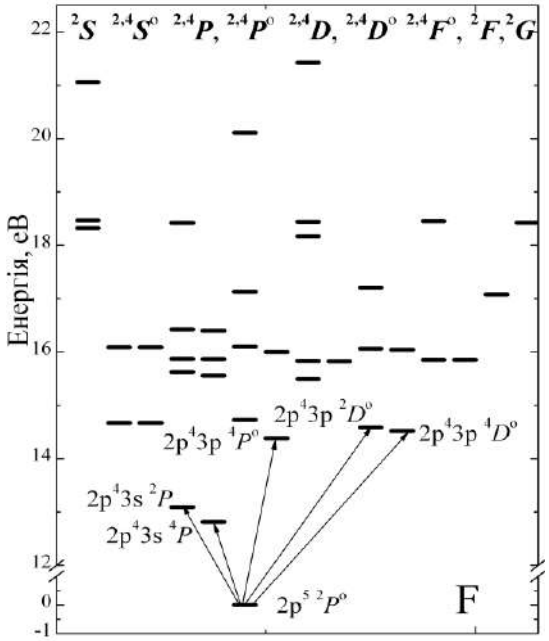


Рис. 1. Схема розміщення врахованих у БСР39-розрахунках e–F -розсіяння нижчих рівнів атома F [2]. Показано розглянуті в даній праці переходи з основного рівня $2p^5\ ^2P^o$ атома F у п'ять нижчих збуджених станів: $2p^4(^3P)3s\ ^{4,2}P$, $2p^4(^3P)3p\ ^4P^o$, $^{4,2}D^o$

У таблиці 1 показані результати БСР39-розрахунків енергій 39 нижніх рівнів атома F

[2], які порівняні з даними NIST [14]. Похибки в обчисленні як енергій рівнів, так і хвильових функцій (сил осциляторів), отримані нами, є меншими за ті, що мали місце в розрахунках структури мішеней атома F іншими авторами (див. [2]).

На рис. 1 показана схема розміщення врахованих у даній праці станів атома F, їх розподіл за термами, а також розглянуті нами збудження з основного стану. Звернемо увагу на дуже великий проміжок між енергією основного стану і енергією нижчого порогу збудження, яка перевищує 12 еВ. Подібний енергетичний зазор має місце ще тільки для двох елементів Періодичної таблиці, а саме інертних газів гелію та неону. Очевидно, що подібна обставина повинна якимось чином відбитися і на характері 3D-поверхонь енергетично-кутових залежностей ДП для процесів *e*–F-розсіяння.

Щодо параметрів розрахунків (N+1)-електронної задачі ЕА-розсіяння у внутрішній області ($r \le a$) для атома F, зокрема числі використовуваних при цьому *B*-сплайнів порядку 8, *R*-матричному радіусі та чисельно розрахованих парціально-хвильових вкладах, можна дізнатися з праці [2]. Зауважимо також, що розрахунки у зовнішній *R*-матричній області були здійснені нами з використанням розпаралеленої версії пакету STGF [15].

Результати й обговорення

На рис. 2 представлені енергетично-кутові залежності ДП пружного *e*–F-розсіян-ня та збудження з основного стану атома F.п'яти нижчих вище розміщених станів: Кінцеві стани згаданих переходів вказані у відповідних графічних вікнах. На рис. 3 показані кутові залежності ДП при кількох фіксованих енергіях для чотирьох вибраних переходів. Звернемо увагу як на повну відмінність у характері енергетично-кутових залежностей кожної з 3D-поверхонь, наведених на рис. 2, так і значну розмаїтість кутових залежностей при різних енергіях для одних і тих же переходів (рис. 3). З рис. 2 також видно, що 3D-поверхні містять локалізовані в енергетично-кутовій площині особливості, які можна трактувати як „топологічні резонанси", або як „критичні мінімуми". У рамках методу BSR39 нами була досліджена поведінка енергетично-кутових залежностей ДП (і відповідних їм 3D-поверхонь) для окремих переходів в атомі фтору під дією електронного удару. Як зазначалося вище, ці 3D-поверхні містять практично повну інформацію про енергетично-кутові параметри ДП розсіяння і слугують чутливим тестом для оцінювання точності здійснених обчислень. Для прикладу, розглянемо зображений на рис. 2 один з можливих ракурсів такої 3D-поверхні для збудження $2p^5\,{}^2P^o - 2p^4({}^3P)3s\,{}^4P$. Гладкість 3D-поверхні ДП свідчить про достатню кількість врахованих членів у парціально-хвильовому розкладі. Навпаки, наявність збрижень і дрібних складчастих структур на 3D-поверхні (перехід $2p^5\,{}^2P^o - 2p^4({}^3P)3s\,{}^2P$) сигналізує про необхідність збільшення числа врахованих парціальних хвиль. Для $2p^4 3s\,{}^4P$ -збудження на рис. 2 також відмічені точки т. з. критичних мінімумів: min 1 (E = 30.46 еВ, θ = 110.35°) та min 2 (E = 29.60 еВ, θ = 180.00°).

З абсолютної несхожості наведених на рис. 2 енергетично-кутових залежностей ДП випливає, що загальний характер різних спектроскопічних переходів, розглянутих нами для процесів *e*–F-розсіяння, у значній мірі визначає структуру і характер поведінки 3D-поверхонь ДП. Фактично, кожна з наведених на рис. 2 3D-поверхонь ДП збудження містить всю інформацію про енергетичні і кутові залежності цих перерізів для даного переходу в атомі F. Аналіз поздовжніх (по енергії) структур („хребтів", „впадин-жолобів", „вирв" і т.п.) на 3D-поверхнях ДП збудження містить дані не тільки про фізичні процеси, які привели до появи вказаних особливостей поверхні, але й про характер обчислювальних процесів, у результаті яких були розраховані ці ДП. Зокрема, очевидно, що для сильних дипольних переходів, таких як $2p^5\,{}^2P^o - 2p^4({}^3P)3s\,{}^2P$, варто було врахувати в *R*-матричному розкладі значно більше парціальних хвиль (як це і було зроблено в оригінальних розрахунках енергетичних залежностей ІП [2] у наближенні БСР690), щоб отримати гладкі поверхні ДП. На жаль, здійснення таких же обчислень для всього 3D-

масиву енергій і кутів поки що впирається в брак обчислювальних ресурсів.

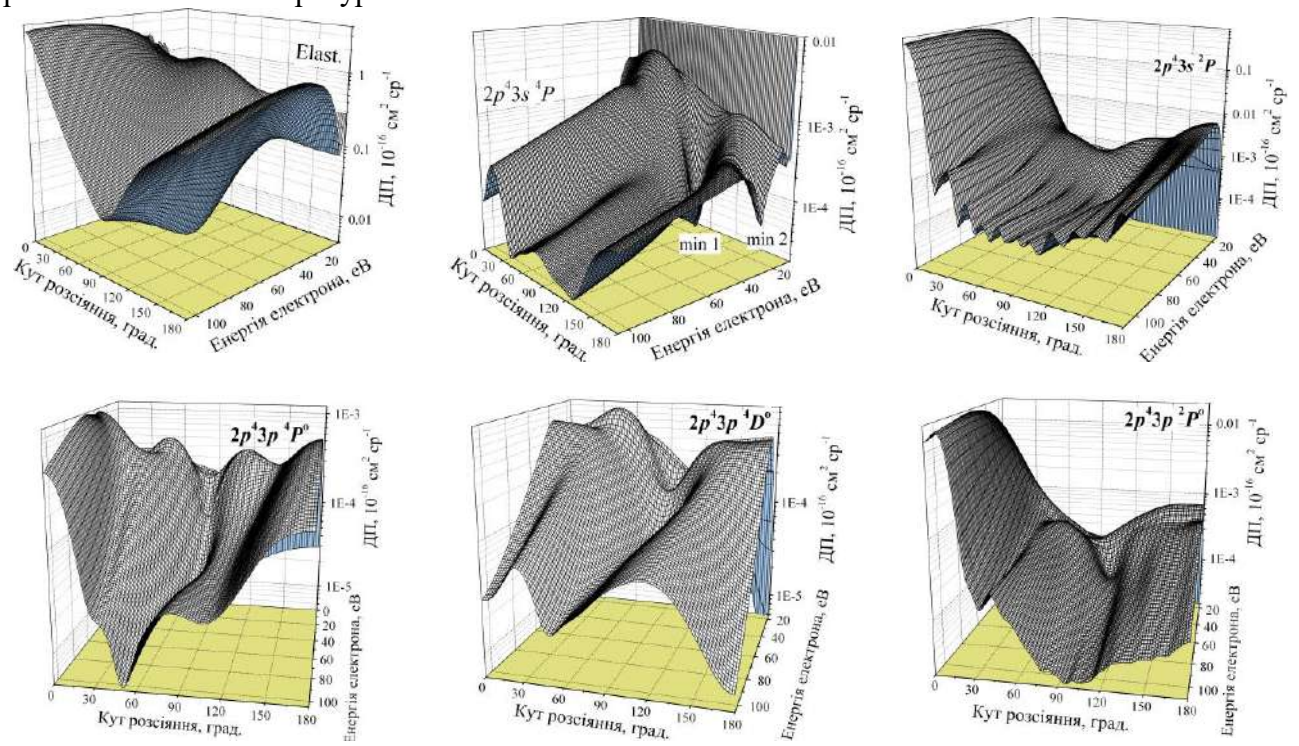


Рис. 2. 3D-поверхні ДП пружного розсіяння e−F та збудження електронним ударом п'яти нижчих станів атома F.

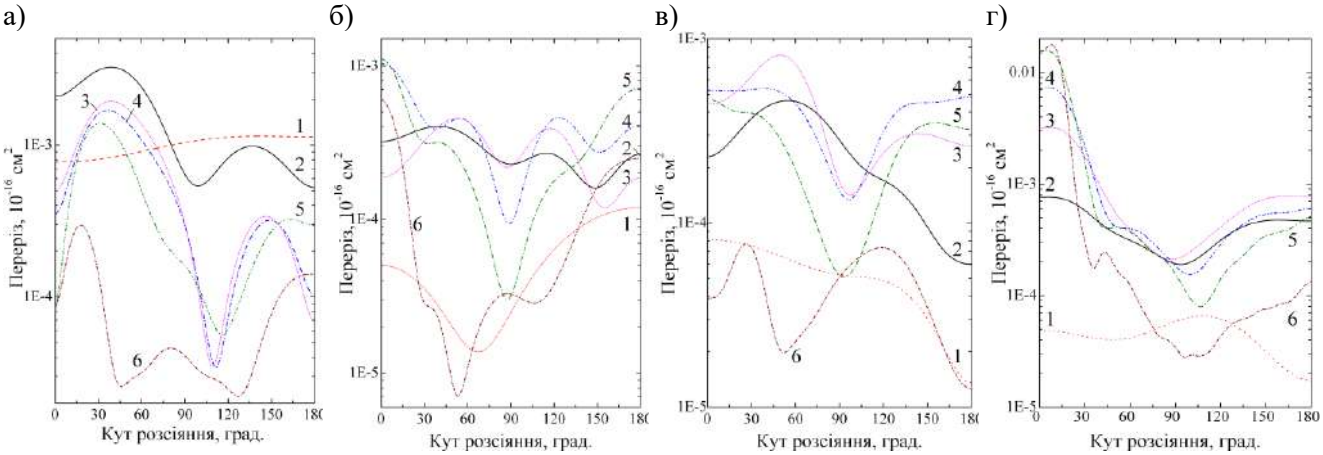


Рис. 3. Кутові залежності ДП збудження станів атома F при різних енергіях налітаючого електрона:
а) ДП стану $2p^43s\ ^4P$ при енергіях: 1 − 13.14 еВ, 2 − 18.10 еВ, 3 − 29.80 еВ, 4 − 31.31 еВ, 5 − 43.54 еВ, 6 − 95.78 еВ;
б) ДП стану $2p^43p\ ^4P^o$ при енергіях: 1 − 14.56 еВ, 2 − 18.10 еВ, 3 − 20.27 еВ, 4 − 29.80 еВ, 5 − 43.54 еВ, 6 − 95.78 еВ;
в) ДП стану $2p^43p\ ^4D^o$ при енергіях: 1 − 14.69 еВ, 2 − 18.10 еВ, 3 − 23.69 еВ, 4 − 29.80 еВ, 5 − 43.54 еВ, 6 − 95.78 еВ;
д) ДП стану $2p^43p\ ^2D^o$ при енергіях: 1 − 14.69 еВ, 2 − 18.10 еВ, 3 − 23.69 еВ, 4 − 29.80 еВ, 5 − 43.54 еВ, 6 − 95.78 еВ.

Висновки

Нами показано, що характер енергетично-кутових залежностей ДП пружного e−F-розсіяння та збудження електронним ударом нижчих станів атома F визначається в основному типом спектроскопічного переходу між початковим і кінцевим станами атома-мішені. Аналіз характеру кутових залежностей ДП при фіксованих енергіях збудження для вибраних переходів підтверджує вказаний висновок. Для процесу $2p^43s\ ^4P$ -збудження нами виявлені точки т. з. критичних мінімумів: min 1 (E = 30.46 еВ, θ = 110.35°) та min 2 (E = 29.60 еВ, θ = 180.00°), які свідчать про складну структуру досліджуваних 3D-поверхонь ДП.

Автори висловлюють подяку своїм співавторам [2] за допомогу у проведенні розрахунків та продуктивні обговорення.

ЛІТЕРАТУРА

1. Hayes T.R., Wetzel R.C., Freund R.S. Absolute electron-impact-ionization cross-section measurements of the halogen atoms // Phys. Rev. A. – 1987. – V. 35. – Iss. 2. – P. 578 – 584.
2. Gedeon V., Gedeon S., Lazur V., Nagy E., Zatsarinny O., Bartschat K. *B*-spline *R*-matrix-with-pseudostates calculations for electron-impact excitation and ionization of fluorine // Phys. Rev. A. – 2014. – V. 89. – Iss. 5. – P. 052713 (9).
3. Zatsarinny O., Bartschat K., Gedeon S., Gedeon V., Lazur V. Low-energy electron scattering from Ca atoms and photodetachment of Ca^- // Phys. Rev. A. − 2006. − V. 74. – Iss. 5. − P. 052708 (10).
4. Zatsarinny O., Bartschat K., Bandurina L., Gedeon S. Electron-impact excitation of calcium // J. Phys. B. − 2007. − V. 40. – No 20. − P. 4023 – 4031.
5. Zatsarinny O., Bartschat K., Gedeon S., Gedeon V., Lazur V., Nagy E. Cross sections for electron scattering from magnesium // Phys. Rev. A. – 2009. – V. 79. – Iss. 5. – P. 052709 (10).
6. Нодь Є.А. Перерізи розсіяння електронів на атомі Sr // Науковий вісник Ужгородського університету, серія “Фізика”. – 2009. – Вип. 25. – С. 148-153.
7. Gedeon V., Gedeon S., Lazur V., Nagy E., Zatsarinny O., Bartschat K. Electron scattering from silicon Phys. Rev. A. – 2012. – V. 85. – Iss. 2. – P. 022711 (7).
8. Gedeon V., Gedeon S., Lazur V., Nagy E., Zatsarinny O., Bartschat K. *B*-spline *R*-matrix-with-pseudostates calculations for electron collisions with aluminum // Phys. Rev. A. − 2015. − V. 92. – Iss. 5. − P. 052701 (7).
9. Gedeon V., Gedeon S., Lazur V., Nagy E., Zatsarinny O., Bartschat K. Low-energy outer-shell photo-detachment of the negative ion of aluminum // J. Phys. B. − 2018. − V. 51. – No 3. − P. in press.
10. Бандурина Л.О., Гедеон С.В. Диференціальні перерізи розсіяння електронів на атомі бору // Науковий вісник Ужгородського університету, серія “Фізика”. – 2015. – Вип. 37. – С. 49 – 56.
11. Zatsarinny O. BSR: *B*-spline atomic *R*-matrix codes // Comput. Phys. Commun. – 2006. – V. 174. – No 4. – P. 273 – 356.
12. Froese Fischer C. The MCHF atomic-structure package // Comput. Phys. Commun. – 1991. – V. 64. – P. 369 – 398.
13. Froese Fischer C., Brage T., Jonsson O. Computational Atomic Structure. An MCHF Approach. – London: Institute of Physics Publishing, Bristol, 1997. – 279 p.
14. Ralchenko Yu., Kramida A.E., Reader J., and NIST ASD Team. NIST Atomic Spectra Database, version 3.1.5 // National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, 2008.
15. Badnell N.R. A perturbative approach to the coupled outer-region equations for the electron-impact excitation of neutral atoms // J. Phys. B. – 1999. – V. 32. – No 23. – P. 5583 –5591.

Стаття поступила до редакції 10.07.2017.

С.В. Гедеон, В.Ф. Гедеон, В.Ю. Лазур, Е.А. Нодь,
Ужгородский национальный университет, Украина, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54

ДИФЕРЕНЦИАЛЬНЫЕ 3D-СЕЧЕНИЯ РАССЕЯНИЯ ЭЛЕКТРОНОВ НА АТОМЕ ФТОРА

В рамках метода *R*-матрицы с *B*-сплайнами (БСР) рассчитаны дифференциальные сечения (ДС) рассеяния электронов на атоме фтора в области энергий до 110 эВ. Разложение сильной связи включало 39 связанных состояний атома F. Получены энергетические и угловые зависимости ДС и построены соответствующие 3D-поверхности для

сечений упругого рассеяния и возбуждения пяти низших состояний атома F. Обсуждена связь энергетических и угловых 3D-зависимостей ДС от типа спектральных переходов в атоме F.

Ключевые слова: атом F, рассеяние электронов, метод *R*-матрицы с *B*-сплайнами, дифференциальные сечения рассеяния, 3D-поверхности.

PACS 34.80.Dp, 34.80.Gs
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.121-127

S.V. Gedeon, V.F. Gedeon, V.Yu. Lazur, E.A. Nagy,
Uzhgorod National University, Ukraine, 88000, Uzhgorod, Voloshina Str., 54

THE 3D DIFFERENTIAL CROSS SECTIONS OF ELECTRON SCATTERING ON FLUORINE ATOM

Background: Progress in the field of physics of electron-atom collisions is dependent on two main factors: a) the availability of new studies of individual atomic systems; b) the clarify, systematize and generalize of results, obtained in previous studies. In the last decade we, together with co-authors, investigate in detail the elastic and inelastic electron scattering on neutral atomic systems Ca, Mg, Sr, Si, F, Al, and B. The purpose of this paper is to systematize and summarize the results of studies of F atom, and is to continue the investigation of the scattering differential cross sections of electrons on the fluorine atom, begun in our previous work.

Methods: The atomic structure for F, as well as the excitation cross sections for $e-$ F scattering processes were obtained by the *B*-spline *R*-matrix method. The multiconfiguration Hartree-Fock method with nonorthogonal orbital sets was employed for an accurate representation of the targets wave functions. The close coupling expansions include 39 spectroscopic states of neutral fluorine. The scattering calculations was then carried out in the same way as in standard *R*-matrix calculations.

Results: In this paper we summarize our earlier data with electron-atom scattering on F. The subject of the study are energy and angular dependences of differential cross sections (DCS) of $e-$ F elastic scattering and electron impact excitation of the lower levels of this atom. We reviewed the transitions from the ground state $2p^5\ ^2P^o$ in the five lowest excited states $2p^4(^3P)3s\ ^{4,2}P$, $2p^4(^3P)3p\ ^4P^o$, $^{4,2}D^o$ for F atom.

Conclusions: The energy and angular dependences of the DCS were obtained and corresponding 3D surfaces for the elastic scattering cross sections and excitations of the five lowest states of the F atom were constructed. The relationship between the energy and angular 3D dependences of the DCS on the type of spectral transitions in the F atom is discussed.

Key words: F atom, electron scattering, *B*-splines *R*-matrix method, differential scattering cross-sections, 3D surfaces.
PACS NUMBER: 34.80.DP, 34.80.GS

REFERENCES

1. Hayes T.R., Wetzel R.C., Freund R.S. (1987), “Absolute electron-impact-ionization cross-section measurements of the halogen atoms”, Phys. Rev. A., Vol. 35, Iss. 2, pp. 578-584.
2. Gedeon V., Gedeon S., Lazur V., Na- gy E., Zatsarinny O., Bartschat K. (2014), “*B*-spline *R*-matrix-with-pseudostates calculations for electron-impact excitation and ionization of fluorine”, Phys. Rev. A., Vol. 89, Iss. 5, pp. 052713 (9).
3. Zatsarinny O., Bartschat K., Gedeon S., Gedeon V., Lazur V. (2006), “Low-energy electron scattering from Ca atoms and photodetachment of Ca^-”, Phys. Rev. A., Vol. 74, Iss. 5, pp. 052708 (10).
4. Zatsarinny O., Bartschat K., Banduri- na L., Gedeon S. (2007), “Electron-impact excitation of calcium”, J. Phys. B., Vol. 40, No 20, pp. 4023-4031.
5. Zatsarinny O., Bartschat K., Gedeon S., Gedeon V., Lazur V., Nagy E. (2009),

"Cross sections for electron scattering from magnesium", Phys. Rev. A., Vol. 79, Iss. 5, pp. 052709 (10).

6. Nagy E.A. (2009) "The cross sections of electron scattering on Sr atom" ["Pererizy rozsiiannia elektroniv na atomi Sr"], Scientific Herald of Uzhhorod University. Series Physics, No. 25, pp. 148-153.
7. Gedeon V., Gedeon S., Lazur V., Na- gy E., Zatsarinny O., Bartschat K. (2012), "Electron scattering from silicon", Phys. Rev. A., Vol. 85, Iss. 2, pp. 022711 (7).
8. Gedeon V., Gedeon S., Lazur V., Na- gy E., Zatsarinny O., Bartschat K. (2015), "*B*-spline *R*-matrix-with-pseu-dostates calculati-ons for electron collisions with aluminum", Phys. Rev. A., Vol. 92, Iss. 5, pp. 052701 (7).
9. Gedeon V., Gedeon S., Lazur V., Nagy E., Zatsarinny O., Bartschat K. (2018), "Low-energy outer-shell photo-detachment of the negative ion of aluminum", J. Phys. B., Vol. 51, No. 3, pp. in press.
10. Bandurina L.O., Gedeon S.V. (2015) "The differential cross sections of electron scattering on B atom" ["Dyferentsialni pererizy rozsiiannia elektroniv na atomi boru"], Scientific Herald of Uzhhorod University. Series Physics, No. 37, pp. 49-56.
11. Zatsarinny O. (2006), "*B*-spline atomic *R*-matrix codes", Comput. Phys. Commun., Vol. 174, No 4, pp. 273-356.
12. Froese Fischer C. (1991), "The MCHF atomic-structure package", Comput. Phys. Commun., Vol. 64, pp. 369-398.
13. Froese Fischer C., Brage T., Jonsson O. (1997), Computational Atomic Structure. An MCHF Approach, London: Institute of Physics Publishing, Bristol, 279 p.
14. Ralchenko Yu., Kramida A.E., Rea- der J., and NIST ASD Team (2008). NIST Atomic Spectra Database, version 3.1.5, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.
15. Badnell N.R. (1999), "A perturbative approach to the coupled outer-region equations for the electron-impact excitation of neutral atoms", J. Phys. B., Vol. 32, No 23, pp. 5583-5591.

© Ужгородський національний університет

УДК 537.52:621.327
PACS 52.80.−s, 51.50.+v, 52.80.Tn, 52.90.+z, 52.80.Wq, 52.80.Mg, 79.60.Jv
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.128-136

В.В. Данило, О. Й. Миня, О.К. Шуаібов, І.В. Шевера, З.Т. Гомокі, М.В. Дудич
Ужгородський національний університет, вул. Волошина, 54, Ужгород, 88000
e-mail: bandzigel@gmail.com

ХАРАКТЕРИСТИКИ СИЛЬНОСТРУМОВОГО НАНОСЕКУНДНОГО РОЗРЯДУ НА СУМІШАХ ГЕЛІЮ ТА АРГОНУ З МАЛИМИ ДОМІШКАМИ ПАРИ ВОДИ

Наведено електричні і оптичні характеристики сильнострумового наносекундного розряду в сумішах Гелію і Аргону з малими домішками пари води. Тиск інертних газів знаходився в діапазоні (7-220) кПа, парціальний тиск пари води складав (50-133) Па. Віддаль між електродами з Цинку: d = 1 та 5 мм. Показано, що при сильному перенапруженні розрядного проміжку при d = 1 мм, коли величина параметра E/p в розрядному проміжку досягає 200-300 В/(см Торр) плазма розряду є джерелом УФ-випромінювання в спектральному діапазоні 200-215 нм на спектральних переходах атомів та іонів Цинку. Енергетичний внесок в розряд та інтенсивність УФ випромінювання Цинку збільшувались при зростанні тисків He і Ar. Додавання пари води в розряд слабо впливало на інтенсивність УФ випромінювання Цинку і дозволяло одержати в спектрах випромінювання інтенсивні спектральні лінії атома Водню, які можуть використовуватись для оцінок параметрів плазми.

Ключові слова: сильнострумовий наносекундний розряд, Цинк, Гелій, Аргон, пари води, спектр випромінювання, ультрафіолет.

Вступ

Для калібрування спектральних приладів і різних оптичних елементів необхідним є використання точкових (з об'ємом плазми близько 1-3 мм^3) , імпульсно-періодичних джерел ультрафіолетового випромінювання тривалістю 1-100 нс з імпульсною потужністю випромінювання більшою за 1 Вт [1]. Використання для вирішення цієї проблеми УФ- ламп з накачуванням імпульсно-періодичним бар'єрним чи ємнісним розрядами з тривалість імпульсів струму 10-100 нс не дозволяє одержувати розряд в такому малому об'ємі [2,3]. Тому більш прийнятним виявилось одержання УФ випромінювання нано-секундної тривалості з сильно перенапруженого розряду між двома металевими електродами, розміщеними на міліметрових віддалях, який може розвиватись в формі об'ємного розряду з втікаючими електронами [4]. При малих віддалях між електродами відбуваються мікровибухи неоднорідностей на поверхні електродів, що призводить до внесення пари матеріалу електродів в плазму при утворенні ектонів [5]. На сучасному етапі дослідження іскрових наносекундних розрядів спектри УФ випромінювання (200-300 нм) наносекундного розряду в повітрі атмосферного тиску були наведені в статті [6] (розряд між електродами з латуні і нержавіючої сталі). Проте в праці [6] спектри залишились не ідентифікованими, а механізм їх збудження не обговорювався. При використанні для збудження розряду генераторів високої напруги субнаносекундної тривалості між електродами з міді, нержавіючої сталі, ніобію і вольфраму були досліджені деякі характеристики відповідних точкових ламп з спектром випромінювання в діапазоні 200-300 нм, де було зосереджено 40% всієї потужності випромінювання плазми розряду [1]. При застосування

уніполярного наносекундного розряду з тривалістю імпульсів 50-100 нс між мідними електродами в повітрі атмосферного тиску нами були ретельно досліджені спектральні характеристики точкової лампи на іонах міді [7]. Можливості ж застосування в точкових лампах електродів з меншою температурою пароутворення, які б дозволяли збільшити густину пари металу в лампі і дозволяли одержувати УФ випромінювання в вузькому діапазоні спектру (типу цинку, кадмію чи свинцю) залишались не встановленими. Перші результати дослідження точкової лампи на парі цинку в повітрі атмосферного тиску наведені в нашій статті [8].

В даній статті приводяться результати дослідження характеристик сильнострумового наносекундного розряду між електродами з цинку в середовищі He і Ar при широкій зміні їх тисків і додаванню малих домішок пари води в робочу газову суміш.

В роботі [9] приведені спектри люмінесценції поздовжнього імпульсно-періодичного розряду в газовій суміші Xe-RbBr, у якій виявлено ультрафіолетове випромінювання молекул ексиплексу XeBr * у спектральному діапазоні 200-425 нм. Максимальна потужність ультрафіолетового випромінювання у загальному обсязі плазми 4,8 Вт. Формування молекул ексиплексу XeBr * в імпульсно-періодичному розряді в Xe-RbBr.

Техніка експерименту

Система електродів, між якими запалювався сильнострумовий наносекундний розряд високого тиску в сумішах гелію і аргону з малими домішками пари води, була встановлена в герметичну розрядну комірку, виготовлену з діелектричної труби діаметром 120 мм і довжиною 150 мм. З метою зменшення впливу електромагнітних завад на систему реєстрації характеристик розряду, розрядна комірка була поміщено в екран з металевої сітки. Діаметр циліндричних цинкових електродів складав 5 мм, а радіус заокруглення робочої торцевої частини електродів був рівним 3 мм. Для локалізації розряду між кінчиками цинкових електродів вони розміщувались всередині діелектричних трубок з фторопласту. Розрядна комірка відкачувалась до залишкового тиску повітря 5-10 Па. Тиск інертних газів варіювався в межах 5-200 кПа, а домішок пари води був у діапазоні 50-133 Па.

Система живлення розряду та реєстрації його характеристик описана в статті [8].

Електричні і оптичні характеристики

Імпульсна потужність розряду та осцилограми напруги на електродах і розрядного струму наносекундного розряду високого тиску при міжелектродній віддалі 5 мм в гелії та аргоні приведені на рис.1 і рис.2. Додавання пари води до інертних газів на рівні парціальних тисків $p(H_2O)$=50-133 Па практично не впливало на осцилограми напруги і струму розряду.

Імпульсна електрична потужність наносекундного розряду визначалась шляхом перемноження осцилограм імпульсів напруги і струму. Інтегрування за часом імпульсної потужності дозволяло одержати енергію в одному електричному імпульсі, яка вносилась в плазму. Максимальна імпульсна потужність розряду досягала в гелії 2 МВт (на часовому інтервалі 130-170 нс), а в аргоні вона зменшувалась до 1 МВт (часовий інтервал 50-100 нс). При збільшенні тиску інертних газів в діапазоні 7-220 кПа енергетичний внесок в плазму збільшувався за лінійним законом (гелій з 13 до 58 мДж; аргон з 16 до 69 мДж). При зменшенні віддалі між електродами до d=1 мм, залежність енергетичного внеску в плазму залишалась лінійною, а його величина зростала в 1,5-2 рази.

Максимальний енергетичний внесок в розряд був одержаний в повітрі і досягав 108 мДж (p=1 Атм, d=1 мм).

На рис.3 і рис.4 представлені характерні спектри випромінювання наносекундного розряду між електродами з цинку в середовищі інертних газів без пари води і з додаванням невеликої кількості пари води. Всі спектри приведені за

інтенсивностями до одиниці з врахуванням відносної спектральної чутливості спектрофотометра, що особливо важливо для коректної реєстрації спектральних ліній цинку в діапазоні довжин хвиль 200-270 нм, де вона може зменшуватись більш ніж на порядок.

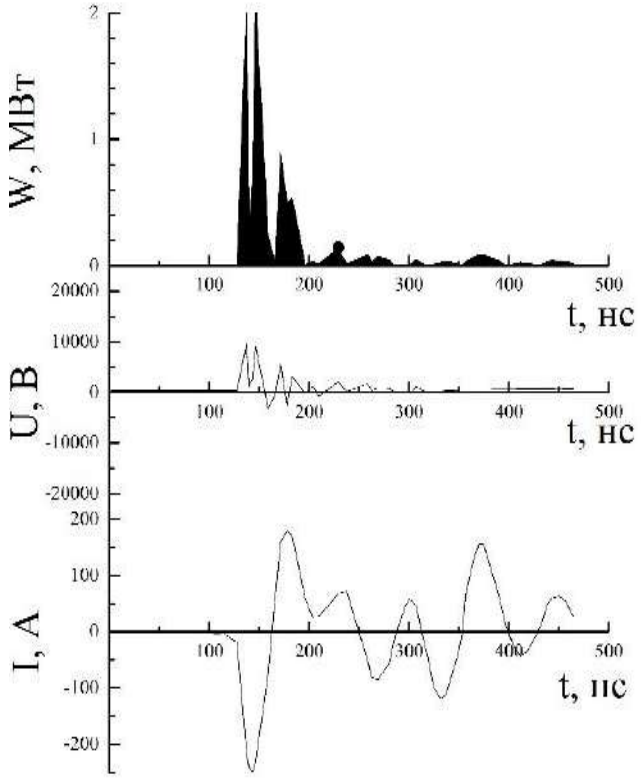


Рис.1. Часові залежності електричної потужності розряду, напруги і сили струму наносекундного розряду при міжелектродній відстані d=5 mm і тиску гелію - 2 Атм.

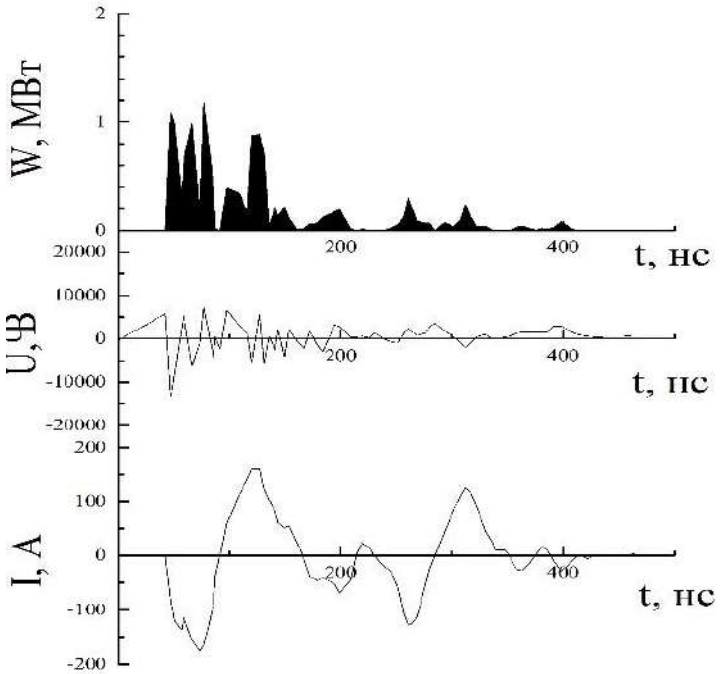


Рис.2. Часові залежності електричної потужності розряду, напруги і сили струму наносекундного розряду: при d=5 mm і тиску гелію -2 Атм.

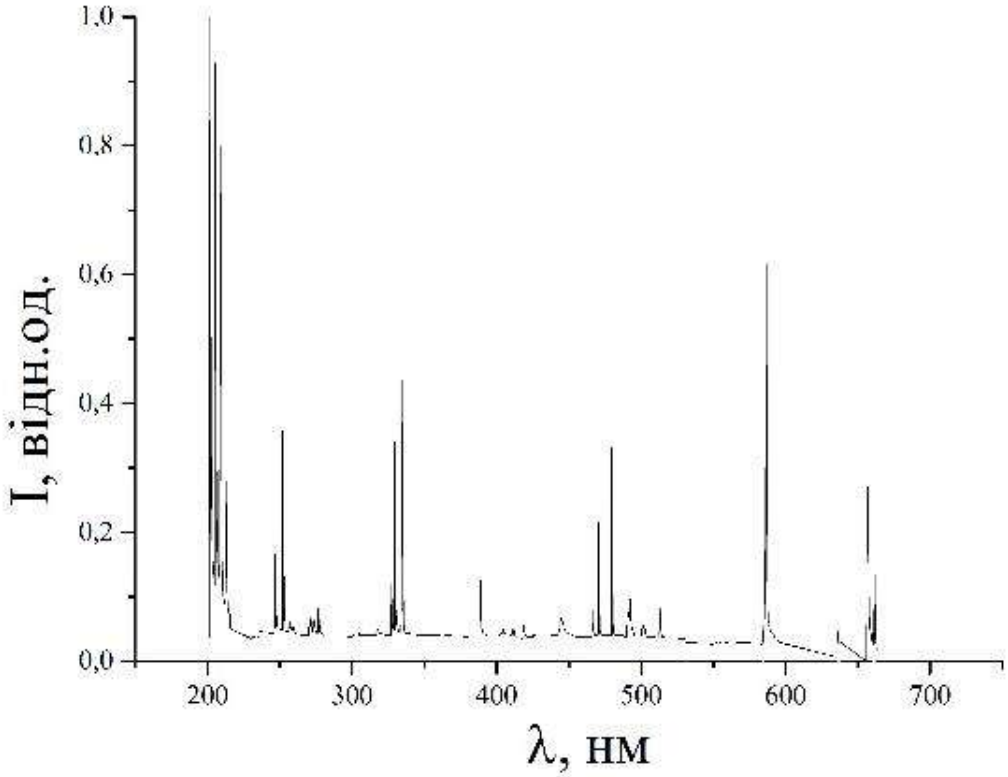


Рис.3. Спектр випромінювання розряду в гелії при p = 2 Атм і міжелектродній відстані d=1 мм.

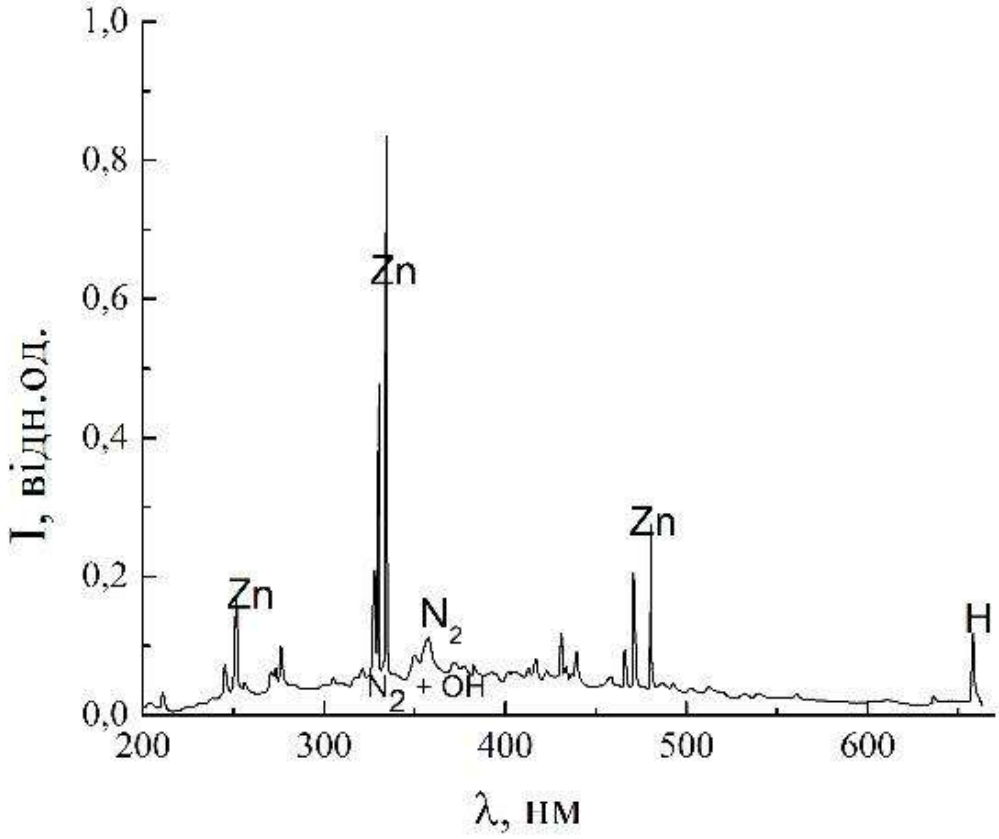
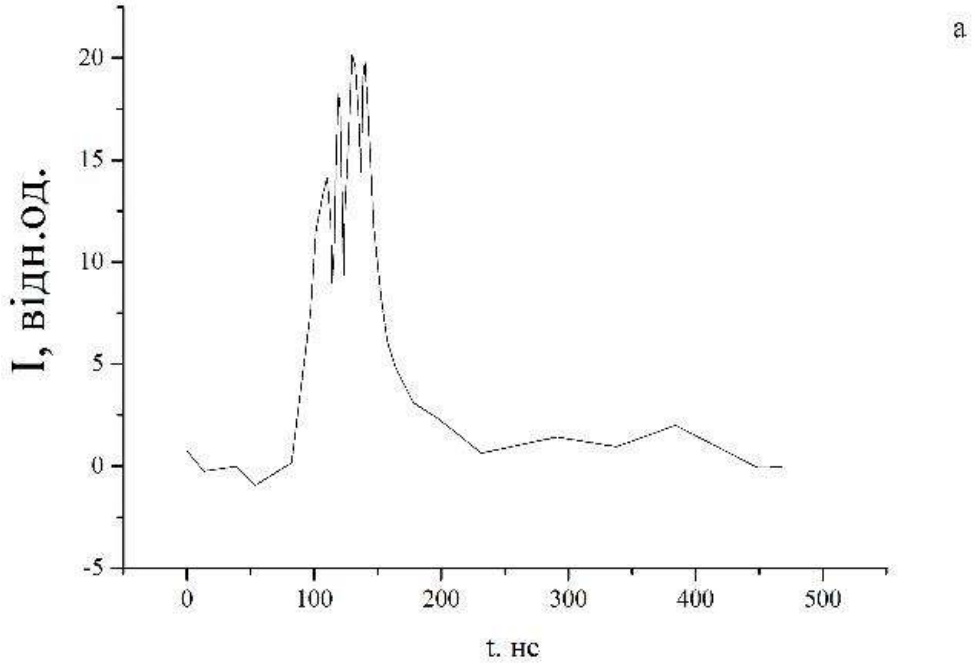


Рис.4. Спектр випромінювання розряду в аргоні при p = 1 Атм і між електродній відстані d=5 мм.

При міжелектродній віддалі 1 мм як гелії, так і в аргоні високого тиску основною в спектрі випромінювання розряду була група інтенсивних спектральних ліній атомів та однозарядних іонів цинку в спектральному інтервалі 200-215 нм. Найбільш інтенсивними спектральними лініями атома цинку були: 207,0 нм; 207,9 нм; 208,7 нм; 209,8 нм; 210,4 нм; 213,9 нм Zn I. Найінтенсивніші іонні спектральні лінії цинку в цій групі були нерозділеними і спостерігались у вигляді груп нерозділених ліній (201,2+202,5+203,9) нм; (206,2+206,4) нм; 207,9 нм; 209,9 нм; 210,2 нм Zn II. При збільшенні міжелектродної віддалі до 5 мм (що приводило до різкого спаду напруженості електричного поля) інтенсивність цієї групи спектральних ліній цинку зменшувалась практично до нуля (рис.4). Друга за інтенсивністю випромінювання група найбільш короткохвильових спектральних лінії цинку спостерігалась на ділянці 240-255 нм при d=1 та 5 мм. Найбільш інтенсивними тут були атомарні спектральні лінії 242,6; 247; 250,2; 255,8 нм Zn I. Менш інтенсивними були дві групи спектральних ліній цинку в спектральних діапазонах 325-340 та 460-520 нм. В сумішах гелію з парою води спостерігались найбільш інтенсивні спектральні лінії атома He (667,8; 587,5; 504,7; 501,5; 492,2; 471,3) та атома водню. В досліджуваному спектральному діапазоні в плазмі на основі аргону і пари води спостерігались (крім ліній цинку) лише найбільш інтенсивні спектральні лінії атома водню – 656.3; 486.1 нм.

Осцилограми на деяких спектральних переходах атомів цинку і водню в гелії атмосферного тиску приведені на рис.5.

Внаслідок нечутливості імпульсного приймача в області довжин хвиль 200-280 нм, осцилограми випромінювання досліджува-лись лише в більш довгохвильовій області. Основний максимум випромінювання плазми корелювався з першим головним максимумом імпульсної потужності розряду. Для спектральної лінії атома цинку спостерігався і другий менш інтенсивний максимум випромінювання при часах 350-400 нс. Для спектральної лінії атома водню основним був другий максимум випромінювання, який спостерігався коли до розрядного проміжку вже напруга не прикладається, а струм іще був великий. Імовірним механізмом появи другого максимуму на цій осцилограмі може бути дисоціативна рекомбінація іонів молекули води з електронами низької енергії.



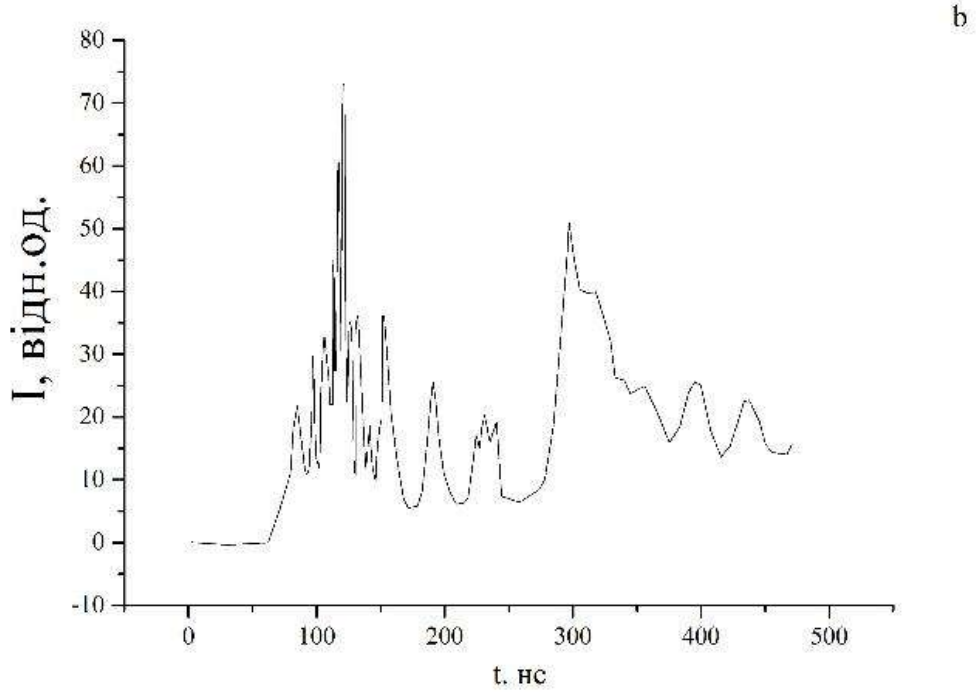


Рис.5. Осцилограми випромінювання плазми розряду в гелії при p=1 Атм та d=5 мм на переходах: a) – 481,1 нм Zn 1, b) -486,3 нм H 1.

Найбільш імовірними механізмами утворення збуджених атомів та іонів цинку в умовах даного експерименту може бути збудження іонів цинку електронами з основного стану і в процесах електрон-іонної рекомбінації [10]. В сумішах на основі гелію іонізація цинку відбувається ефективно в процесах пеннінг-іонізації та ступінчатої іонізації атома цинку електронами.

Імпульсна потужність розряду досягала 1-2 МВт при тисках інертних газів 2 Атм, а енергетичний внесок в плазму складав 60-70 мДж.

На основі даного розряду може бути розроблена селективна ультрафіолетова лампа на спектральних лініях атомів та іонів цинку, а спектральні лінії атома водню, що є продуктом дисоціативного збудження молекул води, можуть використовуватись для діагностики параметрів плазми.

Висновки

Дослідження характеристик сильно-струмового наносекундного розряду в сумішах гелію і аргону з малими домішками пари води, що запалювався між електродами з Цинку, виявило, що при віддалі між електродами 1 мм і значному перенапруженні розрядного проміжку в спектрах випромінювання плазми основною є група інтенсивних спектральних ліній атома та іона Цинку з спектрального інтервалу 200-215 нм.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Point-like pulse-periodic UV radiation Source wich short pulse duration / E. K.Bakst, V. F. Tarasenko, Y. V. Shut'ko, M. V. Erofeev. // Quantum Electronics. – 2012. – №42. – Pp. 153–156.
2. Use of a low pressure helium/water vapor discharge as a mercury-free sourse of ultraviolet emission / D.Levko, A. K. Shuaibov, R. Gritzak, A. Ysembaliuk. // Journal of Applied Physics. – 2014.
3. Shuaibov A. K. Optical characteristics of UV-VUV lamps on the electronic-vibrational transition of the hydroxyl radical pumped by a nanosecond capacitive discharge / A. K. Shuaibov, R. Grizak. // High. Volt. – 2017. – Pp. 78–81.

4. Бабич Л. П. Высоковольтный наносекундный разряд в плотных газах при больших перена-пряжениях, развивающийся в режиме убегания электронов / Л. П. Бабич, Т. В. Лойко, В. А. Цукерман. // Успехи Физических Наук. – 1990. – №7. – С. 49–72.
5. Mesyats G. A. Electron Avalanche from metal / G. A. Mesyats. // Usp. Fizich. Nauk. – 1992. – №6. – Pp. 601–626.
6. Искровой пробой воздуха наносекундными импульсами напряжения / [В. В. Ахмадеев, Л. М. Василяк, С. В. Костюченко та ін.]. // ЖТФ. – 1996. – №4. – С. 58–67.
7. Shuaibov A. K. Emission Characteristics of the Catode Region of nanosekond Discharge in Atmospheric-Pressure Air / A. K. Shuaibov, G. E. Laslov, Y. Y. Kozak. // Optics and Spektroscopy. – 2014. – №4. – Pp. 552–556.
8. Оптичні характеристики наносе-кундного розряду на суміші повітря з парами цинку / О. Й.Миня, О. К. Шуаібов, З. Т. Гомокі, В. В. Данило. // Вісник Ужгородського уніве-рситету. Фізика. – 2016. – №39. – С. 93–99.
9. Heneral A. A. Emission characteristics of Xe–RbBr plasma / A. A. Heneral, S. V. Avtaeva. // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2017. – №50. – С. 7.
10. Гомонай А. Н. Радиационный распад автоионизационных состо-яний в процессе диэлектронний рекомбинации ионов Zn^+ и Cd^+ / А. Н. Гомонай. // ЖПС. – 2015. – №1. – С. 17–22.

Стаття поступила до редакції 10.07.2017.

В.В. Данило, А.И. Миня, А.К. Шуаибов, И.В.Шевера, З.Т. Гомоки, М.В. Дудич

Ужгородский национальный университет, г. Ужгород, ул. Волошина, 54, Украина, 88000
e-mail: bandzigel@gmail.com

ХАРАКТЕРИСТИКИ СИЛЬНОТОЧНОГО НАНОСЕКУНДНОГО РАЗРЯДА НА СМЕСЯХ ГЕЛИЯ И АРГОНА С МАЛЫМИ ПРИМЕСЯМИ ПАРОВ ВОДИ

Приведены электрические и оптические характеристики сильноточного наносекундного разряда в смесях гелия и аргона с малыми примесями паров воды. Давление инертных газов находилось в диапазоне (7-220) кПа, парциальное давление паров воды составляло (50-133) Па. Расстояние между электродами из цинка: d = 1 та 5 мм. Показано, что при сильном перенапряжении разрядного промежутка при d = 1 мм, когда величина параметра E/p в разрядном промежутке достигало 200-300 В/(см Торр), плазма разряда является источником УФ-излучения в спектральном диапазоне 200-215 нм на спектральных переходах атомов и ионов цинка. Энерговклад в разряд и интенсивность УФ излучения цинка увеличивалась при увеличения давления He і Ar. Введение паров воды в разряд слабо влияло на интенсивность УФ излучения цинка і позволяло получать в спектрах излучения интенсивные спектральные линии атома водорода, которые могут использоваться для оценок параметров плазмы.

Ключевые слова: сильноточный наносекундный разряд, цинк, гелий, аргон, пары воды, спектр излучения, ультрафиолет.

PACS 52.80.−s, 51.50.+v, 52.80.Tn, 52.90.+z, 52.80.Wq, 52.80.Mg, 79.60.Jv
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.128-136

V.V. Danylo, O. Y. Minya, O.K. Shuaibov, I.V. Shevera, Z.T. Homoki, M.V. Dudych
Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Voloshin Str., 54
e-mail: bandzigel@gmail.com

CHARACTERISTICS OVERVOLTAGE NANOSECOND DISCHARGES ON MIXTURES OF HELIUM AND ARGON WITH ADMIXTURES OF WATER VAPOR

Introduction. Nanosecond overvoltage discharges in high-pressure gases between metal electrodes are promising for applications in selective "point" UV-VUV lamps. The most investigated working media of such lamps are vapors of copper and iron in atmospheric pressure air. The use of electrodes with a lower melting point and a transition to a gaseous state, for example, zinc in a medium of high-pressure inert gases has been little studied, which hampers the understanding of the physics of processes in these lamps and the optimization of their output characteristics.
Purpose. The aim of this work is to study the characteristics of an overstressed nanosecond discharge between electrodes from zinc in high pressure helium and argon that can be used to develop selective point lamps in the spectral range of 200-215 nm.
Methods. The optical-spectroscopic method of investigation of discharge plasma with high time separation is used in this work.
Results Optical-spectroscopic method with high temporal resolution is used in this work for investigation of the discharge plasma.
As a result of the study of the optical characteristics of an overstressed nanosecond discharge in helium and argon (at pressures p = 7-220 kPa) with a distance between zinc electrodes of 1 mm it was found that it is a source of UV radiation of zinc atoms and ions in the spectral range of 200-215 nm . The peak value of the electric power of the discharge is ~ 1-2 MW, and the energy deposition to the plasma per pulse is ~ 60-80 mJ. At adding small amount of water vapor impurities to inert gases, intense spectral lines of the hydrogen atom were recorded in the plasma emission spectra; the H lines can be used to estimate the plasma parameters.
Conclusion The experiments revealed the suitability of this discharge for use in a selective "point" UV lamp operating on zinc vapors.
Key words: high-voltage nanosecond discharge, zinc, helium, argon, water vapor, emission spectrum, ultraviolet.

REFERENCES

1. Bakst E. K., Tarasenko V. F., Shut'ko Y. V., Erofeev M. V. (2012) "Point-like pulse-periodic UV radiation Source wich short pulse duration", Quantum Electronics. , No. 42. , pp. 153–156.
2. Levko D., Shuaibov A. K., Gritzak R., Ysembaliuk A. (2014) "Use of a low pressure helium/water vapor discharge as a mercury-free sourse of ultraviolet emission", Journal of Applied Physics.
3. Shuaibov A. K. (2017) "Optical characteristics of UV-VUV lamps on the electronic-vibrational transition of the hydroxyl radical pumped by a nanosecond capacitive discharge", High. Volt. , Pp. 78–81.
4. Babich L. P. (1990) " High-voltage nanosecond discharge in dense gases at large overvoltages, developing in the runaway mode of electrons" [Vyisokovoltnyiy nanosekundnyiy razryad v plotnyih gazah pri bolshih perenapryazheniyah, razvivayus-chiysya

v rezhime ubeganiya elektronov] // Physics-Uspekhi , No. 7. , Pp. 49–72.

5. Mesyats G. A.(1992) “Electron Avalanche from metal” Usp. Fizich. Nauk. No. 6. , Pp. 601–626.
6. Ahmadeev V. V., Vasilyak L. M.,. Kostyuchenko S. V. (1996), “The spark breakdown of air by nanosecond voltage pulses” [Iskrovoy proboy vozduha nanosekundnyimi impulsami napryazheniya], Zhurnal Tekhniches-koi Fiziki, No. 4. , Pp. 58–67.
7. Shuaibov A. K. (2014) “Emission Characteristics of the Catode Region of nanosekond Discharge in Atmospheric-Pressure Air” , Optics and Spektroscopy , №4. , Pp. 552–556.
8. Minya O.Y., Shuaibov O.K., Homoki Z.T., Danylo V.V., Chavarga M.M., L.E. Kukri (2016) “Optical characteristics of nanosecond discharge for a mixture of air with zinc pairs”, [Optychni kharakterystyky nanosekundnoho rozriadu na sumishi povitria z paramy tsynku] Scientific Herald of Uzhhorod University. Series Physics , No. 39., Pp. 93–99.
9. Heneral A. A. Emission characteristics of Xe–RbBr plasma / A. A. Heneral, S. V. Avtaeva. // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2017. – №50. – C. 7.
10. Gomonay A. N.(2015) “Radiation decay of autoionization states in the process of dielectronic ion recombination ionov Zn+ i Cd+” [Radiatsionnyiy raspad av-toionizatsionnyih sostoyaniy v protsesse dielektronniy rekombinatsii ionov Zn^+ i Cd^+], JAS. , No. 1. ,Pp. 17–22.

© Ужгородський національний університет

УДК 539.186
PACS: 03.65. −w; 34.50.-s; 34.80.Dp; 34.70.+e; 31.15.−p
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.137-152

В. Ю. Лазур[1], М. І. Карбованець[1], В. В. Алексій[1], С. І. Мигалина[2]
[1]Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54
[2]Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Університетська, 14а
e-mail: volodymyr.lazur@uzhnu.edu.ua

МЕТОД СПОТВОРЕНИХ ХВИЛЬ НЕПЕРЕРВНОГО СПЕКТРУ В ТЕОРІЇ ДВОЕЛЕКТРОННОЇ ПЕРЕЗАРЯДКИ

На основі інтегральних рівнянь Додда-Грайдера розроблено чотиричастинковий формалізм методу спотворених хвиль неперервного спектру, який використовується для описання процесів подвійної перезарядки у високоенергетичних іон-атомних зіткненнях. Для амплітуди реакції в наближенні механізму одночасного захоплення двох електронів знайдено загальний вираз, який враховує кулонівські ефекти в початковому і кінцевому станах. Застосування загальної теорії проілюстровано на прикладі реакції двоелектронної перезарядки при зіткненні атомів гелію з α-частинками. Результати обчислень перерізів добре узгоджуються з експериментальними і теоретичними даними.

Ключові слова: двоелектронна перезарядка, іон-атомні зіткнення, кулонівська взаємодія, рівняння Додда-Грайдера.

Вступ

При зіткненні з багатозарядними іонами атомів, більш складних ніж атом водню, крім одноелектронної перезарядки та іонізації, можуть відбуватися й інші процеси. Це, перш за все, процеси двоелектронного захоплення, захоплення з одночасною іонізацією чи збудженням іона та ін.

У даній роботі ми зупинимося на проблемах теоретичного опису процесів двоелектронного захоплення:

$$A^{Z_\alpha +} + B \to A^{(Z_\alpha -2)+} + B^{2+} \qquad (1)$$

в області проміжних і великих швидкостей зіткнення іонів $A^{Z_\alpha +}$ з атомами B. Перерізи двоелектронних процесів (1) досить великі (порядку 10^{-18} - 10^{-16} см^2), тому внесок таких процесів в обдирання атомів при зіткненнях з іонами, взагалі кажучи, необхідно враховувати поряд з одноелектронною іонізацією і одноелектронною перезарядкою, особливо в області проміжних швидкостей зіткнення, де перерізи перезарядки та іонізації є величинами одного порядку.

Точна постановка задачі про розсіяння в системі декількох частинок була сформульована Фаддєєвим ще в 1960 році [1]. На сьогодні розроблено ряд методів розв'язку рівнянь Фаддєєва, які застосовуються в ядерній задачі трьох тіл. Що ж стосується ядерної задачі більшого числа частинок, то розрахунки, засновані на інтегральних рівняннях Фаддєєва-Якубовського, проводились для чотирьох частинок, проте можливість розв'язку цих рівнянь для 5, 6 і більше частинок залишається проблематичною.

У задачах атомних зіткнень ситуація ускладнюється, і там результатів, отриманих за допомогою рівнянь Фаддєєва, значно менше. При великих енергіях налітаючих частинок, проблем немає. Налітаюча частинка пролітає повз атом настільки швидко, що не встигає значно змінити його стан, і в цій області енергій добре працюють високоенергетичні наближення Борна, Ситенко-Глаубера і т. д. Що ж

стосується області проміжних енергій, найбільш цікавої для практичних застосувань, то тут ситуація досить складна. Методи, які з успіхом використовуються при малих і великих енергіях, тут не застосовні. Цей висновок відноситься і до методу сильного зв'язку каналів, реалізація якого в області проміжних енергій ускладнюється необхідністю проведення трудомістких чисельних розрахунків. Це відноситься і до детально розроблених асимптотичних за великою між'ядерною відстанню методів теорії атомних зіткнень, оскільки при відносних швидкостях руху важких частинок, близьких до орбітальної швидкості зв'язаного електрона, навпаки, робочими є між'ядерні відстані, близькі до розміру атома.

Фізичні особливості процесів розсіювання атомних частинок при проміжних енергіях зумовлені сильним спотворенням електронних хвильових функцій внаслідок наявності далекодіючої кулонівської взаємодії між частинками, в результаті якої реальні переходи електронів з початкового в кінцевий стан супроводжуються масою інших, віртуальних, переходів. Для опису цих специфічних особливостей кулонівської взаємодії використовують різні наближені варіанти шредінгерівського формалізму, найбільш популярним з яких є метод спотворених хвиль неперервного спектру (CDW [2, 3]). Використання вказаного методу в задачах одноелектронної іонізації [4] і одноелектронної перезарядки [5] приводить до хорошого узгодження теорії з експериментальними даними при великих і середніх відносних швидкостях. Успішне застосування CDW-методу багато в чому пов'язано з правильним врахуванням кулонівських асимптотичних умов в обох каналах реакції.

Успіхи, досягнуті у вивченні одноелектронних процесів перезарядки та іонізації на основі CDW-методу [5-7], спонукали нас розробити шредінгерівский формалізм методу спотворених хвиль для опису процесів двоелектронного захоплення (1).

У даній роботі на основі інтегральних рівнянь Додда-Грайдера для системи чотирьох частинок описується простий формалізм, що використовується для аналізу процесу двоелектронної перезарядки при середніх і великих швидкостях відносного руху. Цей формалізм аналогічний формалізму CDW-методу [2, 3] для задачі одноелектронної перезарядки і виявляється лише трохи більш громіздким, ніж останній. Амплітуда реакції (1) розраховується в наближенні механізму одночасного захоплення налітаючою частинкою двох електронів мішені. Застосування загальної теорії проілюстровано на прикладі реакції двоелектронної перезарядки при зіткненні атомів гелію з α -частинками.

Інтегральні рівняння Додда-Грайдера як основа для побудови теорії процесів двоелектронного обміну

В рамках нерелятивістської квантової механіки розглянемо зіткнення в системі чотирьох частинок α, β, γ_1 і γ_2, в якому три частки як в початковому, так і в кінцевому станах зв'язані, тобто утворюють «складну» частинку

$$\alpha + (\beta; \gamma_1, \gamma_2) \to (\alpha; \gamma_1, \gamma_2) + \beta \ , \qquad (2)$$

де символ $(\lambda; \gamma_1, \gamma_2)$ позначає відповідну складову частинку ($\lambda = \alpha, \beta$ – атомні ядра і γ_1, γ_2 – електрони).

Без обмеження загальності спіни частинок можна не враховувати, оскільки кулонівські ефекти, які нас цікавлять, не залежать від спінів. Введемо повний гамільтоніан системи $H_0 + V$, де H_0 – оператор кінетичної енергії чотирьох частинок в системі їх центра мас,

$$V = \sum_{k=1}^{2} (V_{\alpha,\gamma_k} + V_{\beta,\gamma_k}) + V_{\gamma_1,\gamma_2} + V_{\alpha,\beta} \qquad (3)$$

– повна взаємодія, V_{α,γ_1} – оператор парної взаємодії частинок α і γ_1 і т.д.

Позначимо через $V_\alpha(V_\beta)$ ефективну взаємодію, яка формує складну частинку в початковому (кінцевому) каналі реакції (2); $H_\alpha = H_0 + V_\alpha$ ($H_\beta = H_0 + V_\beta$) – гамільтоніан початкового (кінцевого) каналу; $G(W) = [W - H]^{-1}$ – функція Гріна (резольвента) гамільтоніана H. Визначимо також оператор $\upsilon_\lambda = V - V_\lambda$ ($\lambda = \alpha, \beta$).

Амплітуда переходу $T^-_{\alpha\beta}$ з каналу «α» в канал «β» в *prior*-формалізмі визначається стандартним чином

$$T^-_{\alpha\beta} = \lim_{W \to E+io} \left\langle \Phi_\beta \middle| \upsilon_\alpha + \upsilon_\beta G(W) \upsilon_\alpha \middle| \Phi_\alpha \right\rangle = \equiv \left\langle \Phi_\beta \middle| U^-_{\alpha\beta} \middle| \Phi_\alpha \right\rangle . \quad (4)$$

Тут $U^-_{\alpha\beta}$ - оператор переходу з каналу α в канал β; $\langle \Phi_\beta |$, $| \Phi_\alpha \rangle$ - відповідно кінцевий і початковий асимптотичні стани системи, які є власними функціями операторів H_β, H_α з власними значеннями $\tilde{E}_\beta$, $\tilde{E}_\alpha$. На енергетичній поверхні $\tilde{E}_\beta = \tilde{E}_\alpha = E$, E - повна енергія чотиричастинкової системи.

Для оператора переходу в системі з трьох частинок можна записати інтегральне рівняння, вперше отримане Доддом і Грайдером [8]. Діючи за такою ж схемою, як і в тричастинковому випадку [8], можна виписати подібне рівняння і для оператора переходу в системі чотирьох частинок. З цією метою представимо канальну взаємодію υ_λ ($\lambda = \alpha, \beta$) у вигляді суми двох доданків $\upsilon_\lambda = (\upsilon_\lambda - w_\lambda) + w_\lambda$ – явний вигляд яких дамо нижче. Тут w_α і w_β – спотворюючі потенціали у вхідному і вихідному каналах реакції (2). Введемо відповідні цим потенціалам хвильові оператори Меллера

$$\omega^+_\alpha = 1 + (E - H_\alpha - w_\alpha + i\varepsilon)^{-1} w_\alpha = = 1 + g^+_\alpha w_\alpha , \quad (5а)$$

$$\omega^-_\beta = 1 + (E - H_\beta - w_\beta - i\varepsilon)^{-1} w_\beta = = 1 + g^-_\beta w_\beta , \quad (5б)$$

де ε – як завгодно мале додатне число.

За аналогією з тричастинковим випадком, введемо в розгляд допоміжний потенціал υ_χ, що відповідає віртуальному проміжному каналу «χ», а також відповідний йому грінівський оператор $g^+_\chi = (E - H + \upsilon_\chi + i\varepsilon)^{-1}$. Тоді рівняння для чотиричастинкового оператора переходу з урахуванням використаних позначень має вигляд

$$U^-_{\alpha\beta} = \omega^{-*}_\beta \left\{ \left[1 + (\upsilon_\beta - w_\beta) g^+_\chi \right] (\upsilon_\alpha - w_\alpha) \omega^+_\alpha + + (\upsilon_\beta - w_\beta) g^+_\chi \upsilon_\chi G^+_\beta U^-_{\alpha\beta} \right\} . \quad (6)$$

Поки що це точне рівняння. Зробимо тепер наближення для оператора переходу $U^-_{\alpha\beta}$, а саме, в правій частині рівняння (6) утримаємо тільки нульову ітерацію. В результаті для амплітуди переходу $T^-_{\alpha\beta}$ матимемо наступне представлення

$$T^-_{\alpha\beta} = \left\langle \Phi_\beta \middle| \omega^{-*}_\beta \left[1 + g^+_\chi (\upsilon_\beta - w_\beta) \right] (\upsilon_\alpha - w_\alpha) \omega^+_\alpha \middle| \Phi_\alpha \right\rangle = = T^-_{\alpha\beta}(DWB) + \left\langle \Phi_\beta \middle| \omega^{-*}_\beta \left[g^+_\chi (\upsilon_\beta - w_\beta) \right] \times \times (\upsilon_\alpha - w_\alpha) \omega^+_\alpha \middle| \Phi_\alpha \right\rangle , \quad (7)$$

де $T^-_{\alpha\beta}(DWB) = \left\langle \Phi_\beta \middle| \omega^{-*}_\beta (\upsilon_\alpha - w_\alpha) \omega^+_\alpha \middle| \Phi_\alpha \right\rangle$ амплітуда реакції (2) в борнівському наближенні спотворених хвиль (DWB). Перший член в правій частині (7) відповідає прямій передачі електронів від однієї атомної частинки до іншої без додаткових перерозсіянь, в той час як другий член описує двоступінчаті переходи електронів через неперервний спектр з атома мішені в стани, зв'язані відносно швидкої частинки.

Для опису системи чотирьох частинок в координатному представленні виділимо два стандартних набори приведених координат $\vec{r}_\alpha$, $\vec{x}_\kappa{}'$ і $\vec{r}_\beta$, $\vec{s}_\kappa{}'$ ($\kappa = 1,2$). Ці величини виражаються через кординати частинок $\vec{r}_i$ і їх маси m_i ($i = 1,2,3,4$) формулами:

$$\vec{r}_\alpha = \vec{r}_3 - (\vec{r}_1 + \vec{r}_2 + m_\beta \vec{r}_4)/(m_\beta + 2) \ ,$$

$$\vec{x}_\kappa{}' = \vec{r}_\kappa - \left(m_\beta \vec{r}_4 + \sum_{i=1}^{\kappa-1} \vec{r}_i \right) / (m_\beta + \kappa - 1) \ , \quad (8)$$

$$\vec{r}_\beta = \vec{r}_4 - (\vec{r}_1 + \vec{r}_2 + m_\alpha \vec{r}_3)/(m_\alpha + 2) \ ,$$

$$\vec{s}_\kappa{}' = \vec{r}_\kappa - \left(m_\alpha \vec{r}_3 + \sum_{i=1}^{\kappa-1} \vec{r}_i \right) / (m_\alpha + \kappa - 1) \ , \quad (9)$$

де цифри 1, 2, 3, 4 нумерують частинки γ_1, γ_2, α, β відповідно, $m_{\alpha,\beta} = m_{3,4}/m$ причому $m_1 = m_2 = m$. Введемо радіус-вектори $\vec{x}_\kappa$ і $\vec{s}_\kappa$, що визначають положення κ-го електрона (γ_κ) щодо ядер β і α відповідно; їх різниця $\vec{x}_\kappa - \vec{s}_\kappa = \vec{R}$ - відстань між ядрами β і α. В цих позначеннях канальні взаємодії υ_α і υ_β мають вигляд

$$\upsilon_\alpha = -\frac{Z_\alpha}{s_1} + \frac{Z_\alpha Z_\beta}{R} - \frac{Z_\alpha}{s_2} \ ,$$

$$\upsilon_\beta = -\frac{Z_\beta}{x_1} + \frac{Z_\alpha Z_\beta}{R} - \frac{Z_\beta}{x_2} \ , \quad (10)$$

де Z_α і Z_β - заряди ядер α і β відповідно.

Власні стани $|\Phi_\alpha\rangle$ ($|\Phi_\beta\rangle$) гамільтоніана H_α (H_β) мають вигляд добутку хвильової функції $\varphi_\alpha(\vec{x}_1', \vec{x}_2')$ ($\varphi_\beta(\vec{s}_1', \vec{s}_2')$) зв'язаного стану системи $(\beta; \gamma_1, \gamma_2)$ ($(\alpha; \gamma_1, \gamma_2)$) і плоскої хвилі відносного руху частинок в початковому (кінцевому) стані:

$$\Phi_\alpha = \varphi_\alpha(\vec{x}_1', \vec{x}_2') \exp(i\vec{k}_\alpha \vec{r}_\alpha) \ ;$$

$$\Phi_\beta = \varphi_\beta(\vec{s}_1', \vec{s}_2') \exp(-i\vec{k}_\beta \vec{r}_\beta) \ , \quad (11)$$

де $\vec{k}_\alpha$ ($\vec{k}_\beta$) - імпульс налітаючої (розсіяної) частинки в СЦМ до (після) зіткнення.

Обговоримо тепер фізичний зміст операторів, які входять у формулу (7). Формально оператор ω_α^+ (ω_β^-) можна розглядати як оператор, що переводить початковий (кінцевий) асимптотичний стан системи $|\Phi_\alpha\rangle$ ($|\Phi_\beta\rangle$) у спотворену хвилю $|\chi_\alpha^+\rangle$ ($|\chi_\beta^-\rangle$) у вхідному (у вихідному) каналі реакції

$$|\chi_\alpha^+\rangle = \omega_\alpha^+ |\Phi_\alpha\rangle \ , \quad (12)$$

$$|\chi_\beta^-\rangle = \omega_\beta^- |\Phi_\beta\rangle \ . \quad (13)$$

Нарешті, $U_\alpha = \upsilon_\alpha - w_\alpha$ можна розглядати як оператор, що викликає перехід системи із початкового стану (α) в кінцевий (β).

Введемо вектор стану $|\Psi_\beta^-\rangle$, визначивши його співвідношенням

$$|\Psi_\beta^-\rangle = \left[1 + g_\chi^{+*}(\upsilon_\beta - w_\beta)\right] |\chi_\beta^-\rangle \ . \quad (14)$$

У позначеннях (12)-(14) амплітуду переходу (7) можна представити у вигляді

$$T_{\alpha\beta}^- = \langle \Psi_\beta^- | U_\alpha | \chi_\alpha^+ \rangle \ . \quad (15)$$

Отримаємо явний вигляд диференціальних рівнянь для розрахунку спотворень у вхідному і у вихідному каналах реакції. Застосовуючи оператор $(E - H_\alpha - \omega_\alpha)$ до обох частин рівності (12) і спрямовуючи $\varepsilon \to 0^+$ отримаємо наступне рівняння для спотвореної хвилі у вхідному каналі:

$$(E - H_\alpha - w_\alpha) |\chi_\alpha^+\rangle = (E - H_\alpha) |\Phi_\alpha\rangle = 0 \ ;$$

$$E = E_\alpha + k_\alpha^2 / 2\mu_\alpha \ , \quad (16)$$

де символ $\varepsilon \to 0^+$ означає, що параметр ε невід'ємний. Аналогічні рівняння можна отримати на основі (13) і для спотвореної хвилі у вихідному каналі:

$$(E - H_\beta - w_\beta) |\chi_\beta^-\rangle = (E - H_\beta) |\Phi_\beta\rangle = 0 \ ;$$

$$E = E_\beta + k_\beta^2 / 2\mu_\beta \ . \quad (17)$$

Тут E_α і E_β - енергії зв'язаних станів складових частинок $(\beta;\gamma_1,\gamma_2)$ і $(\alpha;\gamma_1,\gamma_2)$; $\mu_\alpha = m_\alpha(m_\beta+2)/M$, $\mu_\beta = m_\beta(m_\alpha+2)/M$ - добутки мас відповідних груп частинок, $M = m_\alpha + m_\beta + 2$.

В основі подальших виведень лежить одна «технічна» вимога, яка допоможе знайти явний розв'язок розглянутої нами задачі. Фактично мова йтиме про спеціальний вибір функції χ_β^-, заснований на простих фізичних міркуваннях. Вимагатимемо, щоб розв'язок рівняння (17) представився у факторизованому вигляді

$$\left|\chi_\beta^-\right\rangle = \left|\varphi_\beta(\vec{s}_1^{\,'},\vec{s}_2^{\,'})\, f(\vec{r}_\beta)\right\rangle\ , \qquad (18)$$

де функція описує асимптотичну рух зв'язаної системи з трьох частинок $(\alpha;\gamma_1,\gamma_2)$ в кулонівському полі, який створюється четвертою частинкою β.

Ця вимога, природна на перший погляд, насправді є додатковим припущенням. Справа в тому, що представлення для багаточасткової хвильової функції χ_β^- у формі (18) застосовується, якщо відносна швидкість руху важких частинок більше орбітальної швидкості зв'язаного електрона. Однак, якщо швидкість зіткнення невелика і ядро β досить довго взаємодіє з частинками α,γ_1,γ_2, то така факторизація навряд чи обґрунтована.

Диференціальне рівняння (17) має бути доповнене граничною умовою, яка в цьому випадку має вигляд

$$\chi_\beta^- \xrightarrow[r_\beta\to\infty]{} \varphi_\beta(\vec{s}_1^{\,'},\vec{s}_2^{\,'})\exp\Big\{-i\vec{k}_\beta\vec{r}_\beta - i\frac{Z_\beta(Z_\alpha-2)}{\upsilon'}\ln(k_\beta r_\beta - \vec{k}_\beta\vec{r}_\beta)\ ,$$
$$\vec{\upsilon}' = \vec{k}_\beta / k_\beta\,. \qquad (19)$$

Виконання вимог, які ми пред'явили до функції χ_β^- легко досягти відповідним вибором спотворюючого потенціалу ω_β в рівнянні (17). В якості ω_β можна вибрати, наприклад, потенціал $\omega_\beta^{(0)} = Z_\beta(Z_\alpha-2)/r_\beta$, тоді функцію $f(\vec{r}_\beta)$ можна явно виразити через вироджену гіпергеометричну функцію. Однак ми не будемо наводити відповідні формули, так як явний вигляд $f(\vec{r}_\beta)$ тут несуттєвий.

Перейдемо тепер від рівняння (14) до його диференціальної форми. Застосовуючи до обох частин рівності (14) оператор $(E-H_\alpha+\upsilon_\chi^*)$ і з врахуванням (17), отримаємо (в границі $\varepsilon\to 0^+$) його диференціальний аналог

$$(E-H_\alpha+\upsilon_\chi^*)\left|\Psi_\beta^-\right\rangle = \upsilon_\chi^*\left|\chi_\beta^-\right\rangle. \qquad (20)$$

Оскільки розв'язок неоднорідного рівняння (20) з реалістичним локальним потенціалом справа дуже складна, то логічно замінити цей потенціал оператором, вибравши його так, щоб

$$\upsilon_\chi^*\left|\chi_\beta^-\right\rangle = 0\,, \qquad (21)$$

і надати розв'язку рівняння (20) форму, аналогічну (18),

$$\left|\Psi_\beta^-\right\rangle = \left|\varphi_\beta(\vec{s}_1^{\,'},\vec{s}_2^{\,'})\,\Im^-\right\rangle\ , \qquad (22)$$

де невідома поки що функція $\Im^-$ описує спотворення хвильової функції $\varphi_\beta(\vec{s}_1{}',\vec{s}_2{}')$ зв'язаного стану системи $(\alpha;\gamma_1,\gamma_2)$ за рахунок її взаємодії з ядром β у вихідному каналі.

Завдяки умові (21) рівняння (20) зводиться до однорідного

$$\left[E-H_0+\sum_{\kappa=1}^{2}\left(\frac{Z_\beta}{x_\kappa}+\frac{Z_\alpha}{s_\kappa}\right)-\frac{Z_\alpha Z_\beta}{R} - \frac{1}{|\vec{s}_1-\vec{s}_2|}+\upsilon_\chi^*\right]\left|\Psi_\beta^-\right\rangle = 0\,. \qquad (23)$$

Використовуючи описані вище два набори приведених відносних координат,

запишемо оператор H_0 в двох еквівалентних формах

$$H_0 = -\frac{1}{2\mu_\alpha}\Delta_{\vec{r}_\alpha} - \sum_{\kappa=1}^{2}\frac{1}{2\mu_{\beta\kappa}}\Delta_{\vec{x}_\kappa'} = -\frac{1}{2\mu_\beta}\Delta_{\vec{r}_\beta} - \sum_{\kappa=1}^{2}\frac{1}{2\mu_{\alpha\kappa}}\Delta_{\vec{s}_\kappa'}\ , \quad (24)$$

де

$$\mu_{\beta\kappa} = (m_\beta + \kappa - 1)/(m_\beta + \kappa),$$
$$\mu_{\alpha\kappa} = (m_\alpha + \kappa - 1)/(m_\alpha + \kappa)\ .$$

На перший погляд може здатися, що проблема розв'язку рівняння (23) взагалі тривіальна. Насправді, це не так. Ускладнення виникають через те, що потенціали взаємодії і оператор H_0, що фігурують в цьому рівнянні, залежать від різних комбінацій відносних змінних, які використовуються у задачі (наприклад, координат Якобі $\vec{r}_\alpha$, $\vec{x}_\kappa'$ або $\vec{r}_\beta$, $\vec{s}_\kappa'$, від яких залежить оператор H_0, і координат $\vec{x}_\kappa'$, $\vec{s}_\kappa'$, $\vec{R}$, від яких залежать потенціали взаємодії). Щоб уникнути цих труднощів, розглянемо наближений спосіб розділення змінних в рівнянні (23), який заснований на явному наближенні, що маси частинок γ_1, γ_2 (електронів) набагато менші мас двох інших часток α і β (атомних ядер), тобто, $m_1 = m_2 << m_{3,4}$. В цьому випадку у виразах (8) і (9) можна знехтувати членами, що містять відношення мас $m_\kappa / m_{3,4}$ (κ =1, 2), в результаті чого координати Якобі $\vec{x}_\kappa'$, $\vec{r}_\alpha$, $\vec{s}_\kappa'$ і $\vec{r}_\beta$ близькі до координат $\vec{x}_\kappa'$, $\vec{R}$, $\vec{s}_\kappa'$ і $-\vec{R}$ відповідно, тобто

$$\vec{x}_\kappa' \cong \vec{x}_\kappa\ ,\ \ \vec{s}_\kappa' \cong \vec{s}_\kappa\ ,$$
$$\vec{r}_\alpha = \vec{R}\ ,\ \ \vec{r}_\beta = -\vec{R}\ . \quad (25)$$

Підставляючи в рівняння (23) хвильову функцію Ψ_β^- у вигляді (22) отримуємо, із врахуванням (17) і (25), рівняння відносно $\Im^-$

$$\varphi_\beta(E - E_\beta - H_0 - \upsilon_\beta)\Im^- + \sum_{\kappa=1,2}\frac{1}{\mu_{\alpha,\beta}}\vec{\nabla}_{\vec{s}_\kappa'}\varphi_\beta\vec{\nabla}_{\vec{s}_\kappa'}\Im^- + \upsilon_\chi^*(\varphi_\beta\Im^-) = 0\ . \quad (26)$$

Це рівняння ми повинні розв'язати, враховуючи згадані вище додаткові умови (21), а також граничну умову, що конкретизує динаміку, буде сформульовано нижче. В якості υ_χ в останньому рівнянні виберемо оператор $\upsilon_\chi^{(0)}$, дія якого на довільну функцію Ψ від $\vec{r}_\beta$ і $\vec{s}_\kappa'$ (κ =1,2) описується відношенням

$$\upsilon_\chi^{(0)}\Psi = -\sum_{\kappa=1,2}(\mu_{\alpha\kappa})^{-1}\vec{\nabla}_{\vec{s}_\kappa'}\varphi_\beta\vec{\nabla}_{\vec{s}_\kappa'}[\Psi/\varphi_\beta]\ . \quad (27)$$

Підставляючи вираз (27) для $\upsilon_\chi^{(0)}$ в (26) і враховуючи (25) отримуємо рівняння для $\Im^-$ такого вигляду:

$$\left[E - E_\beta + \frac{1}{2\mu_\alpha}\Delta_{\vec{r}_\alpha} + \sum_{\kappa=1,2}\left(\frac{1}{2\mu_{\beta\kappa}}\Delta_{\vec{x}_\kappa'} + \frac{Z_\beta}{x_\kappa'}\right) - \frac{Z_\alpha Z_\beta}{r_\alpha}\right]\Im^- = 0\ . \quad (28)$$

Далі будемо шукати розв'язок рівняння (28), яке на нескінченності має вигляд спотвореної плоскої хвилі з одиничною амплітудою

$$\Im^- \xrightarrow[r_\beta\to\infty]{} f(\vec{r}_\beta) \xrightarrow[r_\beta\to\infty]{} \exp\left\{-i\vec{k}_\beta\vec{r}_\beta - i\frac{Z_\beta(Z_\alpha - 2)}{\upsilon'}\ln(k_\beta r_\beta - \vec{k}_\beta\vec{r}_\beta)\right\}. \quad (29)$$

Розв'язуючи рівняння (28) методом розділення змінних, знайдемо, що

$$\Im^- = C^-\Lambda^{(-)}(\vec{r}_\alpha)\prod_{\kappa=1}^{2}\Lambda_\kappa^{(-)}(\vec{x}_\kappa'),$$
$$C^- = const, \quad (30)$$

де двочастинкові кулонівські спотворюючі функції $\Lambda_\kappa^{(-)}(\vec{x}_\kappa')$ і $\Lambda^{(-)}(\vec{r}_\alpha)$ описуються в термінах вироджених гіпергеометричних функцій співвідношеннями

$$\Lambda_\kappa^{(-)}(\vec{x}_\kappa^{'}) = N^{(+)}(\nu_{\beta\kappa}^{'})\exp(i\vec{q}_\kappa\vec{x}_\kappa^{'})\times \times F(-i\nu_{\beta\kappa}^{'},1,-i\vec{q}_\kappa\xi_\kappa), \quad (31)$$

$$\Lambda^{(-)}(\vec{r}_\alpha) = N^{(-)}(\nu_\alpha^{'})\exp(i\vec{q}_\alpha\vec{r}_\alpha)\times \times F(i\nu_\alpha^{'},1,-iq_\alpha\xi_\alpha). \quad (32)$$

Тут $N^{(\pm)}(\nu) = \Gamma(1\pm i\nu)\exp(\pm\pi\nu/2)$ - коефіцієнти нормування; $\xi_\kappa = x_\kappa^{'} + \hat{\vec{q}}_\kappa\,\vec{x}_\kappa^{'}$, $\xi_\alpha = x_\kappa^{'} + \hat{\vec{q}}_\alpha\,\vec{r}_\alpha$ - двочастинкові параболічні змінні; $\hat{\vec{q}}_\kappa$ і $\hat{\vec{q}}_\alpha$ - одиничні вектори, напрямлені вздовж векторів $\vec{q}_\kappa$ і $\vec{q}_\alpha$; $\nu_{\beta\kappa}^{'} = Z_\beta\mu_{\beta\kappa}/q_\kappa$, $\nu_\alpha^{'} = Z_\alpha Z_\beta\mu_\alpha/q_\alpha$ - характерні кулонівські параметри. Із закону збереження енергії випливає, що імпульсні змінні $\vec{q}_\kappa$ і $\vec{q}_\alpha$ повинні задовольняти рівнянню

$$E - E_\beta = \frac{k_\beta^2}{2\mu_\beta} = \frac{q_\alpha^2}{2\mu_\alpha} + \sum_{\kappa=1,2}\frac{q_\kappa^2}{2\mu_\beta\kappa}\ . \quad (33)$$

Далі враховуючи асимптотичний вигляд функції $F(a,b,x)$ при $x\to\infty$, знайдемо із умов зшивання асимптотики функції (30) з ейкональною асимптотикою (29), що

$$\sum_{\kappa=1,2}\vec{q}_\kappa\,\vec{x}_\kappa^{'} + \vec{q}_\alpha\,\vec{r}_\alpha = -\vec{k}_\beta\,\vec{r}_\beta\ , \quad (34)$$

$$C^-\exp\left\{i\sum_{\kappa=1,2}\nu_{\beta\kappa}^{'}\ln(q_\kappa\xi_\kappa) - i\nu_\alpha^{'}\ln(q_\alpha\xi_\alpha)\right\}\to \xrightarrow[r_\beta\to\infty]{}\exp\left\{i\frac{Z_\beta(Z_\alpha-2)}{\upsilon}\times \ln(k_\beta r_\beta - \vec{k}_\beta\vec{r}_\beta)\right\}. \quad (35)$$

Виразимо $\vec{r}_\beta$ через координати $\vec{r}_\alpha$, $\vec{x}_1^{'}$ і $\vec{x}_2^{'}$ за допомогою формули

$$\vec{r}_\beta = -a_2\,\vec{r}_\alpha - \sum_{\kappa=1,2}\frac{b_\kappa}{\mu_\beta}\vec{x}_\kappa^{'};$$

$$a_\kappa = m_\alpha/(m_\alpha+\kappa);$$
$$b_\kappa = m_\beta/(m_\beta+\kappa). \quad (36)$$

Підставимо тепер (36) в праву частину рівності (34) і прирівняємо в обох її частинах члени при $\vec{r}_\alpha$, $\vec{x}_1^{'}$ і $\vec{x}_2^{'}$. Отримаємо

$$\vec{q}_\kappa = \vec{k}_\beta b_\kappa/\mu_\beta \equiv b_\kappa\vec{\upsilon}' \xrightarrow[m_\beta\to\infty]{} \vec{\upsilon}'\ ,\ (\kappa=1,2),$$
$$\vec{q}_\alpha = a_2\,\vec{k}_\beta \xrightarrow[m_\alpha\to\infty]{} \vec{k}_\beta\,. \quad (37)$$

З врахуванням асимптотичної оцінки

$$-i\frac{Z_\beta}{\upsilon'}\ln\left(\frac{k_\beta r_\beta - \vec{k}_\beta\vec{r}_\beta}{\upsilon' x'_\kappa + \vec{\upsilon}'\vec{x}'_\kappa}\right) \xrightarrow[r_\beta\to\infty]{} \ln\left(\mu_\beta^{-iZ_\beta/\upsilon'}\right)$$
$$(\kappa=1,2)\ , \quad (38)$$

знайдемо з умови зшивання (35), що $C^- = \mu_\beta^{2iZ_\beta/\upsilon'}$. Із формул (30)-(32) і (37) випливає, що спотворюючу функцію $\Im^-$ у вихідному каналі можна представити у вигляді

$$\Im^- = \mu_\beta^{2i\nu_\beta'}N^{(-)}(\nu')\left[N^{(+)}(\nu_\beta')\right]^2\exp(-i\vec{k}_\beta\vec{r}_\beta)\times \times F(i\nu',1,-ik_\beta r_\alpha - i\vec{k}_\beta\vec{r}_\alpha)\times \times\prod_{\kappa=1}^{2}F(-i\nu_\beta',1,-i\upsilon' x_k' - i\vec{\upsilon}' x_k'), \quad (39)$$

де $\nu_\beta' = Z_\beta/\upsilon'$, $\nu' = Z_\alpha Z_\beta/\upsilon'$.

Отже, побудована хвильова функція кінцевого стану Ψ_β^- (визначається формулами (22), (39)), яка в розглянутій задачі описує розсіювання зарядженої частинки β на зв'язаному комплексі трьох частинок α, γ_1, γ_2. Важливим є те, що ефекти парних кулонівських взаємодій в ній проявляються мультиплікативним чином. Далі опишемо хвильову функцію початкового стану. Цю функцію можна отримати, розв'язавши диференціальне рівняння (16). Доповнимо вказане рівняння граничною умовою на нескінченності

$$\chi_\alpha^+ \xrightarrow[r_\alpha\to\infty]{} \varphi_\alpha(\vec{x}_1^{'},\vec{x}_2^{'})\times$$
$$\times\exp\left\{i\vec{k}_\alpha\vec{r}_\alpha + i\frac{Z_\alpha(Z_\beta-2)}{\upsilon}\ln(k_\alpha r_\alpha - \vec{k}_\alpha\vec{r}_\alpha)\right\},$$
$$\vec{\upsilon}=\vec{k}_\alpha/\mu_\alpha. \qquad (40)$$

Підставимо функцію у вигляді добутку

$$\chi_\alpha^+ = \varphi_\alpha(\vec{x}_1^{'},\vec{x}_2^{'})\,\Im^+ \qquad (41)$$

в рівняння (16) і здійснюючи прості перетворення, отримаємо рівняння для $\Im^+$:

$$\varphi_\alpha(E-E_\alpha-H_0-\upsilon_\alpha)\,\Im^+ + \sum_{\kappa=1,2}(\mu_{\beta\kappa})^{-1}\vec{\nabla}_{\vec{x}_\kappa^{/}}\varphi_\alpha\vec{\nabla}_{\vec{x}_\kappa^{/}}\Im + U_\alpha(\varphi_\alpha\Im^+)=0. \qquad (42)$$

Для обчислень в подальшому нам буде потрібно конкретний вигляд оператора $U_\alpha=\varphi_\alpha-\omega_\alpha$. При виборі U_α можна навести лиш найзагальніші міркування. По-перше, зрозуміло, що цей оператор повинен бути таким, щоб рівняння (42) мало розв'язок у класі спеціальних або елементарних функцій. При цьому необхідно стежити за тим, щоб хвильова функція початкового стану χ_α^+ володіла правильною асимптотичною поведінкою (40) на великих відстанях. По-друге, оператор U_α потрібно підібрати так, щоб спотворення у вхідному ($\Im^+$) і в вихідному ($\Im^-$) каналах реакції (2) трактувалися однаково. Річ у тому, що несиметричний вибір υ_χ і U_α в рівняннях (26) і (42) призводить до несиметричного визначення спотворень в початковому і кінцевому станах, що суперечить основній ідеї CDW-методу [2]. Крім того, якщо відома якась апріорна інформація про хвильові функції розсіяння Ψ_β^- і χ_α^+, то вона також може бути врахована при виборі υ_χ і U_α в рівняннях (26) і (42) відповідно.

Ґрунтуючись на цих міркуваннях, виберемо в якості U_α оператор $U_\alpha^{(0)}$, дія якого на довільну функцію Ψ від $\vec{r}_\alpha$, Ψ_β^-, $\vec{x}_1^{'}$ і $\vec{x}_2^{'}$ описується співвідношенням

$$U_\alpha^{(0)}\Psi = -\sum_{\kappa=1,2}(\mu_{\beta\kappa})^{-1}\vec{\nabla}_{\vec{x}_\kappa^{/}}\varphi_\alpha\vec{\nabla}_{\vec{x}_\kappa^{/}}(\Psi/\varphi_\alpha). \qquad (43)$$

Після підстановки (43) в (42) отримаємо рівняння для $\Im^+$, яке для подальшого зручно записати у вигляді

$$\left[E-E_\alpha+\frac{1}{2\mu_\beta}\Delta_{\vec{r}_\beta} + \sum_{\kappa=1,2}\left(\frac{1}{2\mu_{\alpha\kappa}}\Delta_{\vec{s}_\kappa^{\backslash}}+\frac{Z_\alpha}{s_\kappa^{'}}\right)-\frac{Z_\alpha Z_\beta}{r_\beta}\right]\Im^+=0. \qquad (44)$$

Розв'язок цього рівняння однозначно визначається шляхом порівняння його асимптотики з відповідним ейкональним наближенням. Однак ми не будемо проводити подальшу формалізацію цих міркувань. Необхідна для цього техніка була досить докладно описана вище при побудові розв'язку $\Im^-$ аналогічного рівняння (28). Опускаючи досить громіздкі проміжні викладки, запишемо відразу кінцевий результат (в границі $m_{3,4}>>m_1=$ $=m_2$):

$$\Im^+=\mu_\alpha^{-2i\nu_\alpha}N^{(-)*}(\nu)\left[N^{(+)*}(\nu_\alpha)\right]^2\times$$
$$\times\exp(i\vec{k}_\alpha\vec{r}_\alpha)F(-i\nu,1,ik_\alpha r_\alpha+i\vec{k}_\alpha\vec{r}_\alpha)\times$$
$$\times\prod_{\kappa=1}^{2}F(i\nu_\alpha,1,i\upsilon s_\kappa^{'}+i\vec{\upsilon}\vec{s}_\kappa^{'}), \qquad (45)$$

де $\nu_{\alpha,\beta}=Z_{\alpha,\beta}/\upsilon$, $\nu=Z_\alpha Z_\beta/\upsilon$.

Далі необхідно підставити вирази (22), (39), (41), (43) і (45) в (15), після чого амплітуду реакції $T_{\alpha\beta}^-$ можна записати у вигляді суми двох доданків, що описують одночасне захоплення двох електронів швидкими іонами при зіткненні їх з атомами:

$$T_{\alpha\beta}^{-}=-\left[N^{(+)*}(\nu_\alpha)N^{(+)*}(\nu_\beta^{'})\right]^2\iiint d\vec{x}_1^{'}d\vec{x}_2^{'}d\vec{r}_\alpha\exp(i\vec{k}_\alpha\vec{r}_\alpha+i\vec{k}_\beta\vec{r}_\beta)\Re(\vec{r}_\alpha,\vec{r}_\beta)\varphi_\beta^*(\vec{s}_1^{'},\vec{s}_2^{'})\times$$
$$\times\prod_{j=1}^{2}F(i\nu_\beta^{'},1,i\upsilon'x_j^{'}+i\vec{\upsilon}'\vec{x}_j^{'})\sum_{\kappa=1,2}\vec{\nabla}_{\vec{x}_\kappa^{'}}\varphi_\alpha(\vec{x}_1^{'},\vec{x}_2^{'})\vec{\nabla}_{\vec{s}_\kappa^{'}}\left[F(i\nu_\alpha,1,i\upsilon s_1^{'}+i\vec{\upsilon}\vec{s}_1^{'})F(i\nu_\alpha,1,i\upsilon s_2^{'}+i\vec{\upsilon}\vec{s}_2^{'})\right]. \quad (46)$$

В формулі (46) використано позначення

$$\Re(\vec{r}_\alpha,\vec{r}_\beta)=\mu_\alpha^{-2i\nu_\alpha}\mu_\alpha^{-2i\nu_\beta^{'}}N^{(-)*}(\nu)N^{(-)*}(\nu')\times$$
$$\times F(-i\nu,1,ik_\alpha r_\beta+i\vec{k}_\alpha\vec{r}_\beta)\times$$
$$\times F(-i\nu',1,ik_\beta r_\alpha+i\vec{k}_\beta\vec{r}_\alpha). \quad (47)$$

Отриманий складний вираз (46) легко спрощується. Насамперед помічаємо, що в разі швидких зіткнень (при $k_\alpha^2/2\mu_\alpha>>|E_\beta-E_\alpha|$) налітаючі частинки розсіюються в основному вперед, тобто, на досить малі кут $\hat{\vec{k}}_\beta\cong\hat{\vec{k}}_\alpha$. Саме ця область кутів розсіювання внесе домінуючий вклад в повний переріз реакції (2), так як при великих кутах розсіювання (переданих імпульсах) амплітуда переходу стає малою через швидкі осциляції експоненціального фактора $\exp(i\vec{k}_\alpha\vec{r}_\alpha+i\vec{k}_\beta\vec{r}_\beta)$ під інтегралом в (46). Фізично це означає, що при малих кутах розсіювання траєкторії можуть вважатися майже прямолінійними і рух ядер відбувається з постійним вектором швидкості. У цьому випадку вектор $\vec{R}$ може бути представлений у вигляді ортогональної суми $\vec{R}=\vec{\rho}+\vec{z}$, $\vec{\rho}\vec{z}=0$. Врахувавши, що $\vec{\upsilon}'\cong\vec{\upsilon}$ і $m_1=m_2=$ $=m<<m_3\approx m_4$ для показника експоненти в (46) легко встановити наступне співвідношення:

$$\vec{k}_\alpha\vec{r}_\alpha+\vec{k}_\beta\vec{r}_\beta\cong\vec{p}(\vec{x}_1+\vec{x}_2)+\vec{q}(\vec{s}_1+\vec{s}_2)\ , \quad (48)$$

де

$$-2\vec{p}=\vec{\eta}+\left(\upsilon-\frac{E_\beta-E_\alpha}{\upsilon}\right)\hat{\vec{\upsilon}}\,,$$

$$2\vec{q}=\vec{\eta}-\left(\upsilon-\frac{E_\beta-E_\alpha}{\upsilon}\right)\hat{\vec{\upsilon}}\,;\qquad \hat{\vec{\upsilon}}=\frac{\vec{\upsilon}}{\upsilon}\,, \quad (49)$$

$\vec{\eta}$ -ортогональна щодо вектора $\vec{\upsilon}$ компонента вектора переданого імпульсу $(\vec{\eta}\vec{\upsilon}=\vec{\eta}\vec{z}=\vec{\rho}\vec{\upsilon}=\vec{\rho}\vec{z}=0)$.

Для функції $\Re(\vec{r}_\alpha,\vec{r}_\beta)$ в цьому наближенні справедлива асимптотична оцінка

$$\lim_{m_{\alpha,\beta}\to\infty}\Re(\vec{r}_\alpha,\vec{r}_\beta)=\mu^{-2i(\nu_\alpha+\nu_\beta^{'}-\nu)}(\rho\upsilon)^{2i\nu}\,,$$
$$\mu=\frac{m_\alpha m_\beta}{m_\alpha+m_\beta}\,. \quad (50)$$

Тоді з точністю до несуттєвого фазового множника наш вираз для амплітуди розсіювання (тобто перезарядки (2)) на малі кути набуде вигляду

$$T_{\alpha\beta}^{-}=-\left[N^{(+)*}(\nu_\alpha)N^{(+)*}(\nu_\beta^{'})\right]^2\sum_{\kappa=1,2}I_{\alpha\beta}^{(\kappa)}\,, \quad (51)$$

де через $I_{\alpha\beta}^{(\kappa)}$ позначені матричні елементи

$$I_{\alpha\beta}^{(\kappa)} = \iiint d\vec{x}_1\, d\vec{x}_2\, d\vec{s}_1 \exp\{i\vec{p}(\vec{x}_1+\vec{x}_2)+i\vec{q}(\vec{s}_1+\vec{s}_2)\}\, \varphi_\beta^*(\vec{s}_1,\vec{s}_2)\prod_{j=1}^{2} F(i\nu_\beta,1,i\upsilon x_j+i\vec{\upsilon}\,\vec{x}_j)\vec{\nabla}_{\vec{x}_\kappa}\varphi_\alpha(\vec{x}_1,\vec{x}_2)\times$$
$$\times\vec{\nabla}_{\vec{s}_\kappa}\left[F(i\nu_\alpha,1,i\upsilon s_1+i\vec{\upsilon}\,\vec{s}_1)F(i\nu_\beta,1,i\upsilon s_2+i\vec{\upsilon}\,\vec{s}_2)\right]. \qquad (52)$$

Будемо вважати, що активні електрони системи ($\lambda;\gamma_1,\gamma_2$), $\lambda=\alpha,\beta$ рухаються в заданому полі остова і їх рух описується гамільтоніаном з розділеними змінними. Тоді хвильову функцію $\varphi_\alpha(\vec{x}_1,\vec{x}_2)$ ($\varphi_\beta(\vec{s}_1,\vec{s}_2)$) початкового (кінцевого) стану можна представити у вигляді добутку однакових (так як у випадку зіткнення атома гелію з α-частинкою початковим і кінцевим станами є S^2-стани) одно-електронних функцій

$$\varphi_\alpha(\vec{x}_1,\vec{x}_2)=\varphi_\alpha(\vec{x}_1)\varphi_\alpha(\vec{x}_2)\ ,$$
$$\varphi_\beta(\vec{s}_1,\vec{s}_2)=\varphi_\beta(\vec{s}_1)\varphi_\beta(\vec{s}_2)\ , \qquad (53)$$

де $\varphi_\alpha(\vec{x}_\kappa)$ і $\varphi_\beta(\vec{s}_\kappa)$ - водневоподібні хвильові функції в полі ядер з ефективними зарядами $\alpha=Z_\beta-0{,}3125$ і $\beta=Z_\alpha-0{,}3125$:

$$\varphi_\alpha(\vec{x}_\kappa)=(\alpha^3/\pi)^{1/2}\exp(-\alpha x_\kappa)\,,$$
$$\varphi_\beta(\vec{s}_\kappa)=(\beta^3/\pi)^{1/2}\exp(-\beta s_\kappa)\,.$$

Приступимо тепер до обчислення матричного елемента (52). Покажемо, як це можна зробити на прикладі одного з доданків в (51), записавши його в імпульсному представленні

$$I_{\alpha\beta}^{(1)}=(2\pi)^{-3}\int d\vec{\tau}\,\vec{R}_\beta^{(1)}(\vec{q}-\vec{\tau})\vec{R}_\alpha^{(1)}(\vec{p}+\vec{\tau})\times$$
$$\times\vec{R}_\beta^{(2)}(\vec{q}+\vec{\tau})\vec{R}_\alpha^{(2)}(\vec{p}-\vec{\tau})\,. \qquad (54)$$

Тут ми ввели позначення

$$\vec{R}_\beta^{(j)}(\vec{k})=\int d\vec{s}_j\exp(i\vec{k}\vec{s}_j)\varphi_\beta^*(\vec{s}_j)\vec{\nabla}_{\vec{s}_j}\times$$
$$\times F(i\nu_\alpha,1,i\upsilon s_j+i\vec{\upsilon}\,\vec{s}_j)\,, \qquad (55)$$

$$\vec{R}_\alpha^{(j)}(\vec{k})=\int d\,\vec{x}_j\exp(i\vec{k}\vec{x}_j)\varphi_\beta^*(\vec{x}_j)\times$$
$$\times F(i\nu_\beta,1,i\upsilon x_j+i\vec{\upsilon}\,\vec{x}_j)[\vec{\nabla}_{\vec{x}_j}\varphi_\alpha(\vec{x}_j)], \qquad (56)$$

$$R_\beta^{(j)}(\vec{k})=\int d\vec{s}_j\exp(i\vec{k}\vec{s}_j)\varphi_\beta^*(\vec{s}_j)\times$$
$$\times F(i\nu_\alpha,1,i\upsilon s_j+i\vec{\upsilon}\,\vec{s}_j)\,, \qquad (57)$$

$$R_\alpha^{(j)}(\vec{k})=\int d\,\vec{x}_j\exp(i\vec{k}\vec{x}_j)\varphi_\alpha(\vec{x}_j)\times$$
$$\times F(i\nu_\beta,1,i\upsilon x_j+i\vec{\upsilon}\,\vec{x}_j)\ . \qquad (58)$$

Підінтегральний вираз в (54) локалізовано в чотирьох областях простору імпульсів $\vec{\tau}$:

$$|\,\vec{p}-\vec{\tau}\,|\le 1/a\,,\ |\,\vec{q}+\vec{\tau}\,|\le 1/a\,,\ |\,\vec{p}+\vec{\tau}\,|\le 1/a\,,$$
$$|\,\vec{q}-\vec{\tau}\,|\le 1/a\,, \qquad (59)$$

де a- характерний радіус потенціалів парної взаємодії. Так як $\vec{R}_\beta^{(1)}(\vec{\tau})$ і $\vec{R}_\alpha^{(1)}(\vec{\tau})$ зменшуються швидше, ніж $\vec{R}_\beta^{(2)}(\vec{\tau})$ і $\vec{R}_\alpha^{(2)}(\vec{\tau})$, то легко зрозуміти, що вклад в величину інтеграла (54) від третьої і четвертої з областей в (59) несуттєвий і його величина повністю визначається вкладом лише першої і другої областей в (59). При цьому у виразі (54) для $I_{\alpha\beta}^{(1)}$ можна винести за знак інтеграла функцію $\vec{R}_\beta^{(1)}(\vec{q}-\vec{\tau})\vec{R}_\alpha^{(1)}(\vec{p}+\vec{\tau})\equiv R_{\alpha\beta}(\tau)$, що повільно

змінюється в областях різкого зростання решти підінтегрального виразу. Застосовуючи потім теорему про згортку і виконуючи інтегрування за $\vec{x}$ відповідно до техніки методу контурного інтегрування Нордсіка [9], отримуємо

$$I_{\alpha\beta}^{(1)} = -\frac{N_\alpha N_\beta}{2}\left[\vec{R}_\beta^{(1)}(\vec{q}-\vec{p})\,\vec{R}_\alpha^{(1)}(2\vec{p}) + \vec{R}_\beta^{(1)}(2\vec{q})\,\vec{R}_\alpha^{(1)}(\vec{p}-\vec{q})\right]\frac{\partial}{\partial\alpha}\Gamma(\alpha+\beta,\vec{p}+\vec{q},\nu_\alpha,\nu_\beta,\vec{\upsilon}_1,\vec{\upsilon}_2), \quad (60)$$

де

$$\Gamma(\lambda,\vec{k},\nu_1,\nu_2,\vec{\upsilon}_1,\vec{\upsilon}_2) = \int d\vec{x}\,x^{-1}\exp(-\lambda x + i\vec{k}\vec{x})F(i\nu_1,1,i\upsilon_1 x + i\vec{\upsilon}_1\vec{x})\,F(i\nu_2,1,i\upsilon_2 x + i\vec{\upsilon}_2\vec{x}) =$$

$$= 4\pi(k^2+\lambda^2)^{-1}\left[1+2(\vec{k}\vec{\upsilon}_1 - i\lambda\upsilon_1)/(k^2+\lambda^2)\right]^{-i\nu_1}\left[1+2(\vec{k}\vec{\upsilon}_2 - i\lambda\upsilon_2)/(k^2+\lambda^2)\right]^{-i\nu_2}F(i\nu_1,i\nu_2,1,W),$$

$$W = \frac{4(\vec{k}\vec{\upsilon}_1 - i\lambda\upsilon_1)(\vec{k}\vec{\upsilon}_2 - i\lambda\upsilon_2) - 2(\lambda^2+k^2)(\vec{\upsilon}_1\vec{\upsilon}_2 - \upsilon_1\upsilon_2)}{[k^2+\lambda^2+2(\vec{k}\vec{\upsilon}_1 - i\lambda\upsilon_1)][k^2+\lambda^2+2(\vec{k}\vec{\upsilon}_2 - i\lambda\upsilon_2)]}; \quad N_\gamma = \left(\frac{\gamma^3}{\pi}\right)^{1/2}, \quad \gamma = \alpha,\beta. \quad (61)$$

Інтерпретація співвідношень (60), (61) наступна. Матричний елемент $(\vec{R}_\beta^{(1)}\vec{R}_\alpha^{(1)})$ описує двоступеневий (томасівський) механізм захоплення електрона (γ_1) через неперервний спектр з атома мішені (β,γ_1,γ_2) в стани, зв'язані відносно швидкої частинки α. Множник $\partial\Gamma/\partial\alpha$, що відповідає інтегруванню в $I_{\alpha\beta}^{(1)}$ за координатами другого електрона (γ_2), зводиться до інтегралу перекриття.

Аналогічні за структурою співвідношення виходять і для матричного елемента $I_{\alpha\beta}^{(2)}$. При цьому видно, що для резонансної двоелектронної перезарядки обидва матричних елемента в (51) переходять один в одного при перестановці електронів. Отже, їх вклад в амплітуду $T_{\alpha\beta}^{-}$ однаковий.

Результати розрахунків

Розглянемо застосування викладеного вище формалізму до розрахунку перерізів двоелектронної перезарядки при зіткненні атома гелію з α - частинками:

$$He^{2+} + He\,(1S^2) \rightarrow He\,(1S^2) + He^{2+}. \quad (62)$$

Цей процес має важливе значення у зв'язку з проблемами нагріву дейтерій-тритієвої плазми α - частинками [10]. Один із способів діагностики α - компоненти плазми заснований на подвійній перезарядці (62) мегаелектронвольтних пучків атомів гелію He ($1S^2$) на швидких α - частинках.

Процес (62) досліджувався раніше як теоретично [11, 12], так і експериментально [13]. Більшість теоретичних робіт [11, 12] використовують модель незалежних подій, в якій перезарядка інтерпретується як подія, що складається з двох незалежних: одноелектронної – захоплення одного електрона і «не захоплення» іншого, двоелектронної – незалежне захоплення обох електронів. Оскільки ймовірність захоплення якогось електрона, як одноступінчатого процесу, визначається рівністю

$$P(\vec{\rho}) = |A_{\alpha\beta}^{(1)}(\vec{\rho})|^2, \quad (63)$$

де $A_{\alpha\beta}^{(1)}(\vec{\rho})$ – амплітуда переходу в квазікласичному наближенні, то ймовірність одноелектронної перезарядки буде рівна – P^2.

Правомірність використання моделі незалежних подій обговорювалась в ро-боті [12], де для реакції (62) при енергіях

зіткнення 0,2 - 0,4 МеВ/а.о.м. були розраховані перерізи двоелектронного захоплення. Подвійна перезарядка (62) є істотно двоелектронний процес, в якому велику роль відіграють електронні кореляції, тому обмеження моделі незалежних електронів призводить до розбіжностей між розрахованими і експериментально виміряними перерізами. Кореляційні ефекти впливають як на величину перерізів, так і на характер їх залежності від енергії зіткнення [12].

У зв'язку з цим певної уваги заслуговує корельована версія наближення спотворених хвиль неперервного спектру (Pluvinage correlated continuum distorted wave (PCCDW) approximation), розвинута Крозерсом і Мак-Керроллом [11]. У цьому наближенні захоплення електрона – як і раніше незалежна подія, але самі електрони вважаються сильно взаємодіючими в початковому каналі. Амплітуда одноелектронного захоплення $A^{(1)}_{\alpha\beta}(\vec{\rho})$ у формулі (63) визначається в стандартному CDW-наближенні [2], а в якості незбуреної хвильової функції початкового стану береться однопараметрична корельована двоелектронна функція Плювінажа [14]. У своїй моделі Крозерс і Мак-Керролл вважають [11], що під час зіткнення відбувається захоплення електрона з тієї частини оболонки мішені, яка повернена до снаряду. Другий електрон інертний і знаходиться по іншу сторону мішені в силу кореляцій Плювінажа. Таким чином, збурення до зіткнення потенціалом снаряда і збурення після зіткнення потенціалом мішені відчуває лише захоплюваний електрон. Незбурена хвильова функція кінцевого стану представляється у вигляді добутку двох водневих орбіталей.

Результати наших розрахунків перерізів резонансної перезарядки (62), виконаних в формалізмі спотворених хвиль з амплітудою (51), представлені в Таблиці 1 разом з результатами розрахунків авторів [11, 12]. В цій же таблиці приведені оригінальні результати з роботи [13], що містять експериментальні дані по перерізах подвійного захоплення (62) при високих енергіях.

Таблиця 1. Переріз двоелектронного захоплення іонами He^{2+} в гелії (в $см^2$)

E, кеВ	Експеримент [13]	Наші розрахунки	Теорія [12]	Теорія [11]	
				I	II
500	$5{,}1*10^{-18}$	$5{,}0*10^{-18}$	$1{,}6*10^{-17}$	$5{,}5*10^{-18}$	$5{,}8*10^{-18}$
750	$9{,}5*10^{-19}$	$6{,}8*10^{-19}$	$1{,}8*10^{-18}$	$7{,}8*10^{-19}$	$7{,}4*10^{-19}$
1000	$2{,}6*10^{-19}$	$2{,}4*10^{-19}$	$3{,}1*10^{-19}$	$1{,}5*10^{-19}$	$1{,}5*10^{-19}$
1400	$3{,}6*10^{-20}$	$3{,}5*10^{-20}$	$3{,}4*10^{-20}$	$2{,}0*10^{-20}$	$2{,}1*10^{-20}$

З таблиці добре видно типові риси розрахунку, заснованого на використанні при обчисленні амплітуди чотиричастинкових інтегральних рівнянь Додда-Грайдера – незначне заниження розрахованих перерізів в області середніх енергій і порівняно добре узгодження з експериментальними даними при високих енергіях. При цьому, як бачимо, результати обчислень в наближенні незалежних електронів [12] завищені не тільки відносно наших розрахунків і розрахунків [11], але також і щодо експерименту [13]. Ця обставина може бути зв'язана з тим, що при зменшенні швидкості зіткнення наближення незалежних електронів стає некоректним. У двох останніх стовпчиках таблиці представлені також результати двох найбільш точних варіантів розрахунку, виконаних Крозерсом і Мак-Керроллом в наближенні PCCDW [11]. При цьому дані (II) отримані з урахуванням кулонівських спотворень електронних хвильових функцій в обох каналах реакції (62), а дані (I) -

результати розрахунку з урахуванням кулонівських ефектів тільки у вхідному каналі. Бачимо, що при $E = 500$ кеВ розрахунки [11] добре узгоджуються з експериментальними даними в обох згаданих випадках. Проте в області високих енергій ($E \geq 1000$ кеВ) проведені в [11] розрахунки призводять до заниження перерізів, а запропонований в даній роботі метод врахування кулонівських ефектів в моделі чотирьох тіл краще узгоджується з експериментальними даними.

Висновок

В даній роботі на основі інтегральних рівнянь Додда-Грайдера розроблений шредінгерівський формалізм CDW-методу, який використовується для опису процесів подвійної перезарядки при великих та середніх швидкостях відносного руху. Привабливою стороною запропонованого формалізму є послідовний розгляд асимптотики хвильових функцій в обох каналах реакції, що враховує далекодіючу природу кулонівських взаємодій. Знайдено загальний вираз для амплітуди реакції в наближенні механізму одночасного захоплення двох електронів з урахуванням кулонівських ефектів в початковому і кінцевому станах. Адекватність розвинутого підходу підтверджується збігом теоретичних результатів з результатами точних вимірювань повних перерізів двоелектронного захоплення реакції (62). Розрахунки проводились нами в припущенні, що основний внесок в амплітуду реакції (62) в розглядуваній області енергій дає механізм одночасного захоплення двох електронів. З іншого боку, процеси перезарядки в двоелектронних системах можна розглядати як двоступеневі процеси послідовного захоплення двох електронів. Безумовно, одночасне врахування механізмів, зазначених вище, є досить складною задачею і потребує подальших експериментальних і теоретичних зусиль. Наступним кроком у розвитку теорії буде оцінка вкладів від знехтуваних нами кореляційних ефектів. Можна сподіватись, що дані про кореляції не тільки суттєво доповнять теоретичний матеріал, але і виявляться тестом, чутливим до правильності тої або іншої моделі.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Faddeev L.D. Scattering theory for a three-particle system // Sov. Phys. JETP. – 1961. – V. 12. – №5 – PP. 1014-1019.
2. Belkic Dz., Gayet R., Salin A. Electron capture in high-energy ion-atom collisions // Phys. Rep. – 1979. – V.56. – №6. – PP.279-369.
3. Lazur V.Yu., Khoma M.V. Distorted wave theories for one- and two- electron capture in fast atomic collisions // Advances in Quantum Chemistry. – 2013. – Vol. 65. – PP. 363-405.
4. Belkic Dz., Quantum theory of high-energy ion-atom collisions. – London: Taylor & Francis, 2009. – 416p.
5. Lazur V.Yu., Aleksiy V.V., Myhalyna S.I., Pop V.V. The Dodd-Greider integral equation for one-electron charge exchange between hydrogen-like atoms and bare nuclei: The 18-th Small Triangle Meeting on theoretical physics (October 16-19, 2016, Ptičie, Slovakia), Košice: IEP SAS, 2017 – 225 p.
6. Лазур В.Ю., Алексій В.В., Хома М.В. Шредінгерівський формалізм методу спотворених хвиль у задачі одноелектронного захоплення з одночасною іонізацією // Науковий вісник Ужгородського університету. Серія Фізика. – 2014. – Вип. 36. – С. 151-160.

7. Lazur V.Yu., Aleksiy V.V. Consideration of the relativistic effects in reactions with redistribution: Book of abstracts of the International Conference of Students and Young Scientists in Theoretical and Experimental Physics HEUREKA-2015 (May 13-15, 2015, Lviv, Ukraine), Lviv: I.Franko National University of Lviv, 2015. – 136 p.
8. Dodd L.R., Greider K.R. Rigorous Solution of Three-Body Scattering Processes in the Distorted-Wave Formalism // Phys. Rev. A. – 1966. – Vol. 146. – PP. 675-686.
9. Nordsieck A. Reduction of an integral in the theory of Bremsstranhlung // Phys. Rev. – 1954. – Vol. 93. – No. 3. – PP. 785-787.
10. Barnett C.F., Harrison M.F.A. Plasmas: Applied Atomic Collision Physics. – London: Academic Press, 1984. – 516 p.
11. Crothers D.S.F., McCarroll R. Correlated continuum distorted-wave resonant double electron capture in He^{2+}-He collision // J. Phys. B. – 1987. – V. 20. – No. 12. – PP. 2835-2842.
12. Gayet R., Rivarola R.D., Salin A. Double electron capture by fast nuclei // J. Phys. B. – 1981. – Vol. 14. – No. 9. – PP. 2421-2427.
13. De Castro Faria N.V., Freire F.L.Jr., de Pinho A.G. Electron loss and capture by fast helium ions in noble gases // Phys. Rev. A. – 1988. – Vol. 37. – No. 1. – PP. 280-283.
14. Pluvinage P. Fonction d'onde approchee a un parametre pour l'etal fondamental des atomes a deux electrons // Ann. Phys. (Paris). – 1950. – Vol. 5. – PP.145-152.

Стаття надійшла до редакції 22.12.2017.

В. Ю. Лазур[1], М. И. Карбованец[1], В. В. Алексий[1], С. И. Мигалина[2]
[1]Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54
[2]Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, вул. Университетская, 14а
e-mail: volodymyr.lazur@uzhnu.edu.ua

МЕТОД ИСКАЖЕННЫХ ВОЛН НЕПРЕРЫВНОГО СПЕКТРА В ТЕОРИИ ДВУХЭЛЕКТРОННОЙ ПЕРЕЗАРЯДКИ

На основе интегральных уравнений Додда-Грайдера разработан четырех-частичный формализм метода искаженных волн непрерывного спектра, который используется для описания процессов двойной перезарядки в высоко-энергетических ион-атомных столкновениях. Для амплитуды реакции в приближении механизма одновременного захвата двух электронов найдено общее выражение, учитывающее кулоновские эффекты в начальном и конечном состояниях. Применение общей теории проиллюстрировано на примере реакции двухэлектронной перезарядки при столкновениях атомов гелия с α-частицами. Результаты вычислений сечений хорошо согласуются с экспериментальными и теоретическими данными.

Ключевые слова: двухэлектронная перезарядка, ион-атомные столкновения, кулоновское взаимодействие, уравнение Додда-Грайдера.

PACS: 03.65. −w; 34.50. −s; 34.80.Dp; 34.70.+e; 31.15.−p
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.137-152

V.Yu. Lazur[1], M.I. Karbovanets[1], V.V. Aleksiy[1], S.I. Myhalyna[2]
[1]Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Voloshin Str., 54,
[2]Uzhhorod National University, 88000 Uzhhorod, 14A Universytetska Str.
e-mail: volodymyr.lazur@uzhnu.edu.ua

CONTINUUM DISTORTED-WAVE METHOD IN THE TWO-ELECTRON CHARGE EXCHANGE THEORY

Introduction. In the case of collisions with multi-charged ions of atoms, more complex than the hydrogen atom, other than single-electron charge exchange and ionization, other processes may occur. These are, first of all, the processes of two-electron capture, capture with simultaneous ionization or ion excitation and others. We shall stop on the problems of the theoretical description of the processes of two-electron capture in the region of intermediate and high collision velocities of ions with atoms.

Purpose. Research the interactions of multi-charged ions with atoms in the region of intermediate and high collision velocities using theoretical methods.

Methods. To describe the double charge exchange processes in high-energy ion-atom collisions a four-part formalism of continuum distorted-wave method (CDW-method), based on the integral Dodd-Graider's equations, were developed.

Results. We obtained a matrix element that describes the two-step (Thomas) mechanism of electron capture through a continuous spectrum from a target atom into bound states relative to the fast α-particle. For the reaction amplitude, in the approximation of the mechanism of simultaneous capture of two electrons, a general expression that takes into account Coulomb effects in the initial and final states is found.

Conclusion. The application of the general theory is illustrated by the example of a two-electron charge exchange reaction in collisions of helium atoms with α-particles. The results of calculations of the cross sections are in good agreement with the experimental and theoretical data. An attractive side of the proposed formalism is the consistent consideration of the asymptotics of wave functions in both channels of the reaction, which takes into account the long-range nature of the Coulomb interactions.

Keywords: two-electron charge exchange, ion-atom collisions, Coulomb interaction, Dodd-Graider equation.

REFERENCES

1. Faddeev, L.D. (1961), “Scattering theory for a three-particle system”, Sov. Phys. JETP, Vol. 12, No. 5, pp. 1014-1019.
2. Belkic, Dz., Gayet, R., Salin, A. (1979), “Electron capture in high-energy ion-atom collisions”, Phys. Rep., Vol. 56, No. 6, pp.279-369.
3. Lazur, V.Yu., Khoma, M.V. (2013), “Distorted wave theories for one- and two-electron capture in fast atomic collisions”, Advances in Quantum Chemistry, Vol. 65, pp. 363-405.
4. Belkic, Dz. (2009), “Quantum theory of high-energy ion-atom collisions”, Taylor & Francis, London, 416p.
5. Lazur, V.Yu., Aleksiy, V.V., Myhalyna, S.I., Pop, V.V. (2017), “The Dodd-Greider integral equation for one-electron charge exchange between hydrogen-like atoms and bare nuclei: The 18-th Small Triangle Meeting on theoretical physics”

   (October 16-19, 2016, Ptičie, Slovakia), IEP SAS, Košice, 225 p.

6. Lazur, V.Yu., Aleksiy, V.V., Khoma M.M. (2014), “Schrodinger's formalism of distorted-wave method in the problem of single-electron capture with simultaneous ionization” [“Shredinherivskyi formalizm metodu spotvorenykh khvyl u zadachi odnoelektronnoho zakhoplennia z odnochasnoiu ionizatsiieiu”], Scientific Herald of Uzhhorod University. Series Physics [Nauk. Visn. Uzhhorod. Univ. Ser. Fiz.], No 36, pp. 151-160.
7. Lazur, V.Yu., Aleksiy, V.V. (2015), “Consideration of the relativistic effects in reactions with redistribution: Book of abstracts of the International Conference of Students and Young Scientists in Theoretical and Experimental Physics HEU-REKA-2015” (May 13-15, 2015, Lviv, Ukraine), LNU im. I.Franka, Lviv, 136 p.
8. Dodd, L.R., Greider, K.R. (1966), “Rigorous Solution of Three-Body Scattering Processes in the Distorted-Wave Formalism”, Phys. Rev. A, Vol. 146, pp. 675-686.
9. Nordsieck, A. (1954), “Reduction of an integral in the theory of Bremsstranhlung”, Phys. Rev., Vol. 93, No 3, pp. 785-787.
10. Barnett, C.F., Harrison, M.F.A. (1984), “Plasmas: Applied Atomic Collision Physics”, Academic Press, London, 516 p.
11. Crothers, D.S.F., McCarroll, R. (1987), “Correlated continuum distorted-wave resonant double electron capture in He^{2+}-He collision”, J. Phys. B, Vol. 20, No 12, pp. 2835-2842.
12. Gayet, R., Rivarola, R.D., Salin, A. (1981), “Double electron capture by fast nuclei”, J. Phys. B, Vol. 14, No 9, pp.2421-2427.
13. De Castro Faria, N.V., Freire, F.L.Jr., de Pinho, A.G. (1988), “Electron loss and capture by fast helium ions in noble gases”, Phys. Rev. A, Vol. 37, No 1, pp.280-283.
14. Pluvinage, P. (1950), “Fonction d’onde approchee a un parametre pour l’etal fondamental des atomes a deux electrons”, Ann. Phys. (Paris), Vol. 5, pp.145-152.

© Ужгородський національний університет

УДК 539.172.2
PACS 25.20.DC
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.153-160

В.М.Мазур
Інститут електронної фізики НАН України, 88000, м. Ужгород, вул. Університетська, 21
e-mail: nuclear@iep.org.ua

ВИМІРЮВАННЯ ІЗОМЕРНИХ ВІДНОШЕНЬ ВИХОДІВ ДЛЯ РЕАКЦІЙ (γ,n) НА ВАЖКИХ ІЗОТОПАХ ЦЕРІЮ

На гальмівному пучку мікротрону М-30 в області енергій 11 - 18 МеВ досліджені ізомерні відношення виходів для реакцій $^{138}Ce(\gamma,n)^{137m,g}Ce$ та $^{140}Ce(\gamma,n)^{139m,g}Ce$.

Ключові слова*:* ядерні реакції, ізомерне відношення, переріз, гігантський дипольний резонанс, гальмівний гамма-спектр.

Вступ

Ядерні реакції з емісією різних частинок у вихідному каналі є важливим джерелом інформації про природу і структуру атомних ядер. Ядра з метастабільними (ізомерними) станами і нестабільним основним станом утворені в ядерних реакціях можуть бути використані для виміру відносної заселенності цих двох станів, що ідентифікується як ізомерне відношення і визначається як відношення перерізів $r=\sigma_m/\sigma_g$ або виходів $d=Y_m/Y_g$, де σ_m, Y_m і σ_g, Y_g відповідно переріз та вихід заселен-ня ізомерного m і основного g станів. Ізомерне відношення залежить від різних фізичних параметрів, таких як: спіновий розподіл збуджених станів компаунд ядер, кутовий момент, який забирає випромінена частинка, характер гамма-каскаду і спіни ізомерних станів [1-4].

За попередні роки досліджено значне число ізомерних відношень на різних ядрах і при різних енергіях, одержаних в різних типах ядерних реакцій, індукованих зарядженими частинками [5, 6], нейтронами [7, 8] і гамма-квантами [1-4]. Важкі частинки (протони, нейтрони і т.д.) бомбардуючи ядро привносять в нього великий кутовий момент, тоді як фотоядерні реакції по причині дипольного характеру фотонного поглинання викликають тільки малі зміни кутового моменту, а в нашій області енергій досліджень це фактично фіксований момент $1\hbar$.

В зв′язку з розвитком методів розрахунку перерізів ядерних реакцій, ізомерних відношень [9] повстало актуальне питання про повноту і надійність експериментальних даних по ізомерним відношенням і їх залежності від енергії r=f(E) або $d=f(E_{\gamma max})$.

Метою даної роботи є вивчення збудження ізомерного стану $11/2^-$ важких ізотопів церію ^{137}Ce і ^{139}Ce шляхом вимірювання залежності ізомерного відношення виходів від максимальної енергії гальмівних гамма-квантів $d=f(E_{\gamma max})$ в області гігантського E1-резонансу. Ізомерні стани дочірніх ядер, що збуджуються в реакціях $^{138}Ce(\gamma,n)^{137m,g}Ce$, $^{140}Ce(\gamma,n)^{139m,g}Ce$ форму-ються підоболонкою $1h_{11/2}$, а основні стани – підоболонкою $3s_{1/2}$. І хоча вивчення ізомерних відношень в реакції (γ,n) для ядер оболонки $1h_{11/2}$ проводилося досить широко [1, 3, 4], систематичних досліджень функцій $d=f(E_{\gamma max})$ для ізотопів церію в області гігантського дипольного резонансу не проводилося.

Методика експерименту

Оскільки дана робота проводилася на пучку гальмівних гамма-квантів, то безпосереднім результатом таких експериментів являються виходи фотоядерних реакцій $Y(E_{\gamma max})$, які зв′язані з перерізами цих реакцій $\sigma(E)$ інтегральним рівнянням:

$$Y(E_{\gamma\max}) = k\int_{Etr}^{E\gamma\max}\sigma(E)\Phi(E,E_{\gamma\max})dE\cdot \quad (1)$$

В приведенім співвідношенні k – нормуючий множник, E_{tr} – поріг реакції, $E_{\gamma max}$ – максимальна енергія гальмівного спектру, $\Phi(E,E_{\gamma max})$ – спектр гальмівного випромінювання. Для ядерної ізомерної пари в більшості випадків, в тому числі для важких ізотопів церію, основний стан дочірнього ядра заселяється двома шляхами – безпосередньо зразу після розпаду материнського ядра і через розпад метастабільного стану. Утворення ізомерної пари може бути описано наступними диференціальними рівняннями [10]:

$$\left.\begin{aligned}\frac{dN_m}{dt} &= Y_m - \lambda_m N_m\\ \frac{dN_g}{dt} &= Y_g - \lambda_g N_g + p\lambda_m N_m\end{aligned}\right\}. \quad (2)$$

Тут N_m, N_g – число ядер в ізомерному і основному станах, λ_m, λ_g – відповідно постійні розпаду цих станів і p – коефі-цієнт розгалуження для розпаду ізомер-ного в основний стан.

За допомогою приведених диференціальних рівнянь була одержана формула для розрахунку ізомерних відношень [10]:

$$d = Y_m/Y_g = \frac{\lambda_g - \lambda_m}{\left\{\left[c\cdot\frac{N_g}{N_m}\cdot\frac{\varphi_m}{\varphi_g}(\lambda_g-\lambda_m) - p\lambda_g\right]\frac{\lambda_g}{\lambda_m}\frac{f_m(t)}{f_g(t)}\right\} + p\cdot\lambda_m}. \quad (3)$$

В формулі (3) $\varphi_{m,g}=\xi_{m,g}\cdot k_{m,g}\cdot\alpha_{m,g}$, де $\xi_{m,g}$ – фотоефективність реєстрації гамма-ліній від розпаду відповідно ізомерного m і основного g станів, $k_{m,g}$ – коефіцієнт самопоглинання цих гамма-ліній, $\alpha_{m,g}$ – інтенсивність аналітичних гамма-ліній, N_m, N_g – кількість зареєстрованих імпульсів від розпаду відповідних станів, p – коефіцієнт розгалуження, c – коефіцієнт, що враховує можливі накладання і прорахунки імпульсів, $f_{m,g}$ – часова функція:

$$f_{m,g} = [1-\exp(-\lambda_{m,g}t_{irr})]\cdot \exp(-\lambda_{m,g}t_{cool})\cdot[1+\exp(-\lambda_{m,g}t_{meas})] \quad (4)$$

Тут t_{irr}, t_{cool}, t_{meas} – відповідно тривалість опромінення, охолодження та вимірювання відповідно. Коефіцієнт самопоглинання аналітичних гамма-ліній визначався за формулою $k=\mu x/(1-\mu x)$, де x – товщина зразка, μ – лінійний коефіцієнт поглинання.

Експеримент проводився на гальмівному гамма-пучку мікротрону М-30 ІЕФ НАН України з кроком ΔE=0.5 МеВ в інтервалі енергій 11–18 МеВ. Розкид енергії прискорених електронів становив ±(5–20) кеВ і визначався фазовими коли-ваннями, амплітуда яких при числі орбіт n>3 практично не залежить від їх числа. Відомо, що в вузлах фазових коливань розкид по енергії менший і складає орієнтовано 5–8 кеВ [11].

Зміна енергії прискорених електронів здійснювалась двома методами: у широких межах – зміною числа орбіт, які проходять електрони, тобто зміною хвильоводних вставок і в малих межах – зміною величини провідного магнітного поля. Індукція магнітного поля вимірювалася методом ядерного магнітного резонансу. Похибка приладу при вимірюванні магнітної індукції не перевищувала ± 0.1%.

Прискорений пучок електронів виводився з мікротрону і падав на гальмівну мішень, в якості якої використовувалася танталова пластинка товщиною 0.5 мм і яка була розташована безпосередньо за вікном виводу. Середній струм пучка підримувався на рівні 5μкА.

Досліджувані мішені були приготовлені із високочистого (99.9 %) окису церію запресованого у тонкостінні капролонові касети у вигляді дисків діаметром 20 мм і вагою 2г. При опроміненні зразки розташовувалися на віддалі 20 см від гальмівної мішені.

При вимірюванні використовувалася активаційна методика. Час опромінення мінявся і складав 2 години при енергіях поблизу порогів (γ,n) реакцій і 20 хв при енергіях 15 – 18 МеВ. Час охолодження складав 1 хв, а 3 хв вимірювався розпад ізомерного стану ядра ^{139m}Ce. Після цього зразок знову охолоджувався (загальний час охолодження становив 20 хв) і потім продовжувалося вимірювання розпадів основного стану ядра ^{139g}Ce і ізомерної пари ^{137m,g}Ce, час виміру яких тривав 22 – 24 години. Гамма-активність опромінених зразків вимірювалась в хороших фонових умовах спектрометром на базі HPGe – детектора об′ємом 175 см^3 і багатоканального аналізатора фірми ORTEC, зв′язаного з комп’ютером для накопичення і обробки даних. Роздільна здатність спектрометра становила ~2.0 кеВ для лінії 1332 кеВ кобальту-60.

Спектроскопічні характеристики досліджуваних ізотопів бралися з роботи [12] і приведені в таблиці 1. Тут J^{π} – спін-парність ізомерного і основного станів, B_n – поріг реакції (γ, n) материнських ядер ^{138}Ce і ^{140}Ce, $T_{1/2}$ – період напіврозпаду, E_{iso} – енергія ізомерних рівнів, E_{γ} – енергія аналітичних ліній, α – інтенсивність відповідних гамма-переходів.

Фрагмент експериментального апаратурного спектру від розпаду CeO_2, опроміненого при максимальній енергії гальмівного спектру $E_{\gamma max}$=16.5 МеВ приведено на рис. 1, де N – число імпульсів в каналі аналізатора.

Одержані згідно з формулою 3 експериментальні ізомерні відношення виходів $d=Y_m/Y_g$ для реакції ^{138}Ce(γ,n)^{137m,g}Ce з стандартними похибками приведені точками на рис. 2.

Оскільки для реакції ^{140}Ce(γ,n)^{139m,g}Ce із-за великої різниці в періодах напів-розпаду ^{139m}Ce і ^{139g}Ce виходи Y_m і Y_g вимірювалися не одночасно, то ізомерне відношення для ^{139m,g}Ce безпосередньо з експеримента визначалися у виді:

$$\eta = Y_m / Y_n = Y_m / Y_g + Y_m ,$$

Де Y_n – повний вихід (γ,n) реакції на ядрі ^{140}Ce. З одержаного ізомерного відношення η розраховувалося ізомерне відношення виходів d:

$$d = Y_m / Y_g = 1 / (1/\eta - 1),$$

яке приведене на рис. 3.

Таблиця 1. Спектроскопічні характеристики

Ізотоп	J^{π}	B_n, МеВ	$T_{1/2}$	E_{iso}, кеВ	E_{γ}, кеВ	α (%)
^{137g}Ce	1\2$^+$	9.72	9.0 год	–	447	2.24
^{137m}Ce	11/2$^-$	–	34.4 год	254	254	10.9
^{139g}Ce	1\2$^+$	9.2	137.6 дн		165.8	80.1
^{139m}Ce	11/2$^-$		54,8 с	754.2	754.2	92

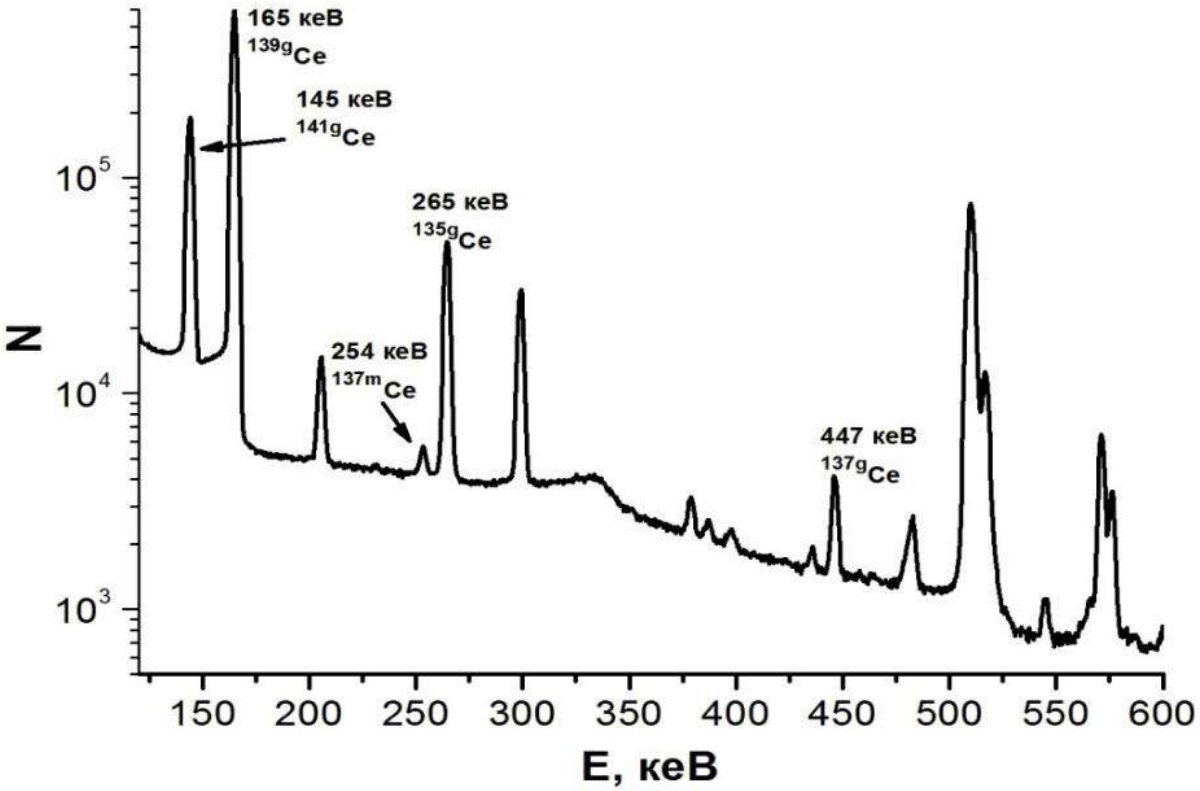


Рис. 1. Ділянка апаратурного спектру від опроміненого зразка CeO_2.

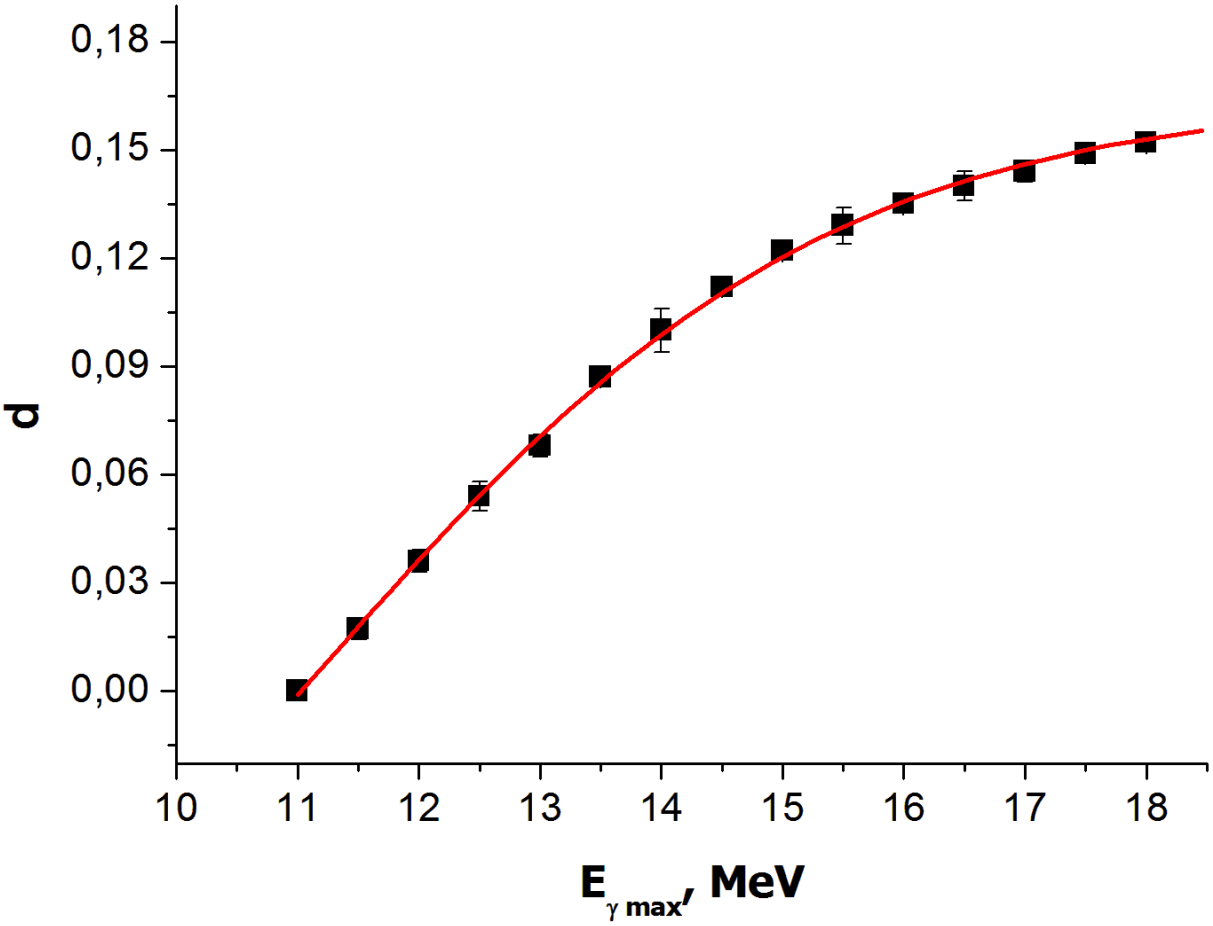


Рис. 2. Експериментальні відношення виходів $d=Y_m/Y_g$ для реакції $^{138}Ce(\gamma,n)^{137m,g}Ce$.

Суцільною кривою на рис. 2, 3 приведено результат апроксимації одержаних експериментальних ізомерних відношень виходів кривою Больцмана:

$$y = A + (B - A) \Big/ \left(1 + e^{\frac{E - E_0}{\Delta E_1}}\right),$$

де A, B, E_0 і ΔE_1 – параметри. Апроксимація здійснювалась в інтервалі 11.0 – 18.0 МеВ методом найменших квадратів. В результаті одержані наступні значення параметрів: для ядра ^{137}Ce

A = 0.1651 ± 0.0014, B = –0.1556 ± 0.0204,
E_0 = 11.15 ± 0.36 (МеВ) і
ΔE_1 = 2.116 ± 0.115 (МеВ);
для ядра ^{139}Ce A = 0.133 ± 0.007,
B =–0.035 ± 0.017, E_0 = 13.56 ± 0.33 (МеВ),
ΔE_1 = 1.81 ± 0.33 (МеВ).

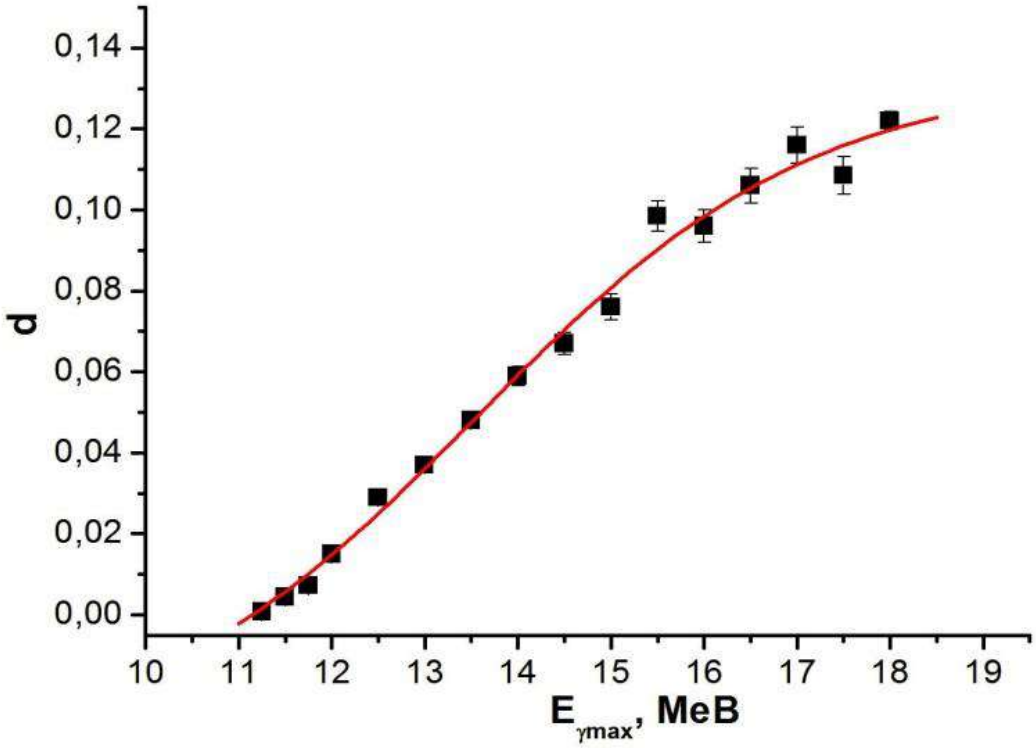


Рис. 3. Експериментальні відношення виходів для реакції ^{140}Ce(γ,n)^{139m,g}Ce.

На рис. 2 і 3 видно, що для обох ядер ^{137}Ce і ^{139}Ce ізомерне відношення від порогу реакції (γ,n)^m зростає і в області вище 18 МеВ виходить на насичення. Встановлений експериментальний ефек-тивний поріг реакції ^{138}Ce(γ,n)^{137m}Ce стано-вить 11.01±0.25 МеВ, що на ~1.4 МеВ перевищує поріг реакції (γ,n). Для реакції ^{140}Ce(γ,n)^{139m,g}Ce ефективний поріг складає 11.2 ± 0.2 (МеВ), що на ~ 2.0 МеВ перевищує поріг реакції (γ,n). Така помітна різниця між порогами реакцій (γ,n) і (γ,n)^m може вказувати на наявність в цій області активаційних рівнів.

Висновок

Якщо розглянути спектр низькоенергетичних рівнів ядра ^{139}Ce [13] і взяти до уваги, що в реакції (γ,n) помітна кількість нейтронів (2 – 5 %) з моментом l = 2 може появитися при енергії вилітаючих нейтронів 300 – 400 кеВ [14], то активаційним рівнем ядра ^{139}Ce може бути стан з $J^\pi = 7/2^-$

і енергією 1.578 МеВ, який E2 переходом розпадається на метастабільний рівень [13].

Що стосується ядра ^{137}Ce, то поки що відсутня можливість зробити висновок про ідентифікацію того чи іншого активаційного рівня, оскільки в базі даних по спектру низькоенергетичних збуджень ядра ^{137}Ce [15] взагалі не приведені низькоспінові рівні негативної парності $7/2^-$, $5/2^-$ і т. д., хоча в спектрах всіх сусідніх парно-непарних ядер такі рівні є.

Ядро ^{140}Ce – магічне з числом нейтронів N=82. Співставлення одержаних результатів для ядер ^{137}Ce, ^{139}Ce показує, що величини ізомерних відношень $d=f(E_{\gamma max})$ при загальній схожості залежності від енергії $E_{\gamma max}$ все-таки для церія-139 на 20 % менші ніж для церія-137. Цей ефект може бути зв′язаний з впливом замкнутості оболонки $1h_{11/2}$ на формування ізомерного відношення ядра ^{139}Ce і відповідно на його зменшення порівняно з d для ядра ^{137}Ce.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Belov A.G., Gangrsky et al. Excitation of isomeric 1h1/2 states in the reactions (γ,n) //Phys. of Atomic Nuclei. – 1996. – V. 59, p. 558-559.
2. Gangrsky Yu. P., Mazur V. M. The scattering of γ-quanta by Nuclei and excitation isomer states // Phys. Part. Nucl. – 2002. - V. 33. - p. 158 - 200. (Rus)
3. Mazur V. M. Excitation of the nuclear isomeric states in photonuclear reactions in the giant dipole resonance range // Phys. Part. Nucl. – 2000. - V. 31. - p. 386 - 430. (Rus)
4. Mazur V. M., Zheltonozsky V. A.,Bigan Z. M. Investigation of isomer states excitation in (γ,n) reactions on nuclei shell near N=82 // Phys. At. Nucl. – 1995. - V. 58. - p. 970 - 974. (Rus)
5. Sudar S. et al. Isomeric cross-section ratio for the formation of ^{58m,g}Co in neutron, proton, deuteron and alpha – particle induced reactions in the energy region up to 25 Mev. // Phys. Rev. C.- 1996. – V. 53. - p. 2885 - 2892.
6. Uddin M.S. et al. Formation of the isomeric pair ^{194m,g}Ir in interactions of α particles with ^{92}Os // Phys. Rev. C.- 2011. – 84: 024605.
7. Qaim S.M. Isomer cross-section ratios in (n,t) reactions on some medium- and heavy-mass nuclei at 14.6 Mev // Nucl. Phys. A. – 1985. - V. 438. - p. 384 - 394.
8. Nesaraia C.D., Sudar S. et al. Cross sections for theformation of 69m,gZr and 71m,gZn in neutron indeced reactions near their their thresholds: effect of reaction channel on the isomeric cross-section ratio // Phys. Rev. C.- 2003. – 68: 024603.
9. Koning A. J., Hilarie S., Duijvestijn M. C. // Proceadingsof of the Conference on Nucl. Data for Science and Technology ND 2007, France, 22 - 27 May - 2007.
10. Vanska R., Rieppo R. The experimental isomeric cross-section ratio in the nuclear activation technique // Nucl. Instr. And Meth. - 1981. - Vol. 179. - p.525 - 532.
11. Kapica S. P. and Melechin V. N. The Microtron // Harwood Academie, London. - 1978.
12. Firestone R.B. // Table of Isotopes, 8th. Edition, J. Wiley and Sons, New York. - 1996.
13. Burrows W. Adopted levels, gammas for ^{139}Ce // Nucl. Data Sheets. - 2001. - Vol. 92. - p. 623 - 624.
14. Марчук Г.Н., Колесов . . Применение численных методов для расчета нейтронных сечений // М., Атомиздат. - 1970.
15. Browne E., Tuli J. K. Adopted levels, gammas for 137Ce // Nucl. Data Sheets. - 2007. - Vol. 108. - p. 2173 – 2174.

Стаття надійшла до редакції 29.11.2017.

В. М. Мазур
Институт электронной физики НАН Украины,
88000, г. Ужгород, ул. Университетская, 21

ИЗМЕРЕНИЕ ИЗОМЕРНЫХ ОТНОШЕНИЙ ВЫХОДОВ ДЛЯ РЕАКЦИЙ (γ,n) НА ТЯЖЁЛЫХ ИЗОТОПАХ ЦЕРИЯ

На тормозном пучке микротрона М-30 в области энергий 11 - 18 МэВ исследованы изомерные отношения выходов для реакций ^{138}Ce(γ,n)^{137m,g}Ce и ^{140}Ce(γ,n)^{139m,g}Ce.

Ключевые слова*:* ядерные реакции, изомерное отношение, сечение, гигантский дипольный резонанс, тормозной гамма-спектр.

PACS 25.20.DC
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.157-160

V.M. Mazur
Institute of electron physics of the NAS of Ukraine, Uzhhorod, st. Universitetska, 21
e-mail: nuclear@iep.org.ua

MEASUREMENT OF ISOMERIC YIELD RATIOS FOR THE HEAVY CERIUM ISOTOPES IN THE (γ,N) REACTIONS

Purpose: To determine the isomeric yield ratios for the heavy cerium isotopes and their dependences on the gamma-quanta energy in the (γ,n) reactions.

Methods: An activation method is used to measure the isomeric ratios.

Results: Present paper presents the method and the results of measuring the isomeric yield ratios *d* obtained in the (γ,n)^{m} reaction for the ^{137}Ce and ^{139}Ce isotopes in the region of the maximal energies of the Bremsstrahlung gamma spectrum $E_{\gamma max}$=11–18 MeV. The Boltzmann curve parameters approximating the $d=f(E_{\gamma max})$ curves as well as the thresholds for the ^{137}Ce(γ,n)^{137m}Ce and ^{140}Ce(γ,n)^{139m}Ce reactions have been obtained.

Conclusion: The analysis of the isomeric ratios *d* obtained for the ^{137}Ce and ^{139}Ce nuclei shows that, given the general similarity of their dependences $d=f(E_{\gamma max})$, the isomeric ratios for the cerium-139 are ~20% less than those for the cerium-137. This effect should be related to the influence of the closeness of the $1h_{11/2}$ shell of the ^{140}Ce nucleus on the isomeric ratio formation for the ^{139}Ce nucleus.

Keywords: nuclear reaction, isomeric yield ratio, giant dipole resonance, Bremsstrahlung gamma-spectrum.

REFERENCES

1. Belov A.G., Gangrsky et al. Excitation of isomeric 1h1/2 states in the reactions (γ,n) //Phys. of Atomic Nuclei. – 1996. – V. 59, p. 558-559.

2. Gangrsky Yu. P., Mazur V. M. The scattering of γ-quanta by Nuclei and excitation isomer states // Phys. Part. Nucl. – 2002. - V. 33. - p. 158 - 200. (Rus)
3. Mazur V. M. Excitation of the nuclear isomeric states in photonuclear reactions in the giant dipole resonance range // Phys. Part. Nucl. – 2000. - V. 31. - p. 386 - 430. (Rus)
4. Mazur V. M., Zheltonozsky V. A.,Bigan Z. M. Investigation of isomer states excitation in (γ,n) reactions on nuclei shell near N=82 // Phys. At. Nucl. – 1995. - V. 58. - p. 970 - 974. (Rus)
5. Sudar S. et al. Isomeric cross-section ratio for the formation of ^{58m,g}Co in neutron, proton, deuteron and alpha – particle induced reactions in the energy region up to 25 Mev. // Phys. Rev. C.- 1996. – V. 53. - p. 2885 - 2892.
6. Uddin M.S. et al. Formation of the isomeric pair ^{194m,g}Ir in interactions of α particles with ^{92}Os // Phys. Rev. C.- 2011. – 84: 024605.
7. Qaim S.M. Isomer cross-section ratios in (n,t) reactions on some medium- and heavy-mass nuclei at 14.6 Mev // Nucl. Phys. A. – 1985. - V. 438. - p. 384 - 394.
8. Nesaraia C.D., Sudar S. et al. Cross sections for theformation of 69m,gZr and 71m,gZn in neutron indeced reactions near their their thresholds: effect of reaction channel on the isomeric cross-section ratio // Phys. Rev. C.- 2003. – 68: 024603.
9. Koning A. J., Hilarie S., Duijvestijn M. C. // Proceadingsof of the Conference on Nucl. Data for Science and Technology ND 2007, France, 22 - 27 May - 2007.
10. Vanska R., Rieppo R. The experimental isomeric cross-section ratio in the nuclear activation technique // Nucl. Instr. And Meth. - 1981. - Vol. 179. - p.525 - 532.
11. Kapica S. P. and Melechin V. N. The Microtron // Harwood Academie, London. - 1978.
12. Firestone R.B. // Table of Isotopes, 8th. Edition, J. Wiley and Sons, New York. - 1996.
13. Burrows W. Adopted levels, gammas for ^{139}Ce // Nucl. Data Sheets. - 2001. - Vol. 92. - p. 623 - 624.
14. Marchuk G. N., Kolesov V. B. Appli-cation of numerical methods calculations neutrons cross sections // Moscow., Atomizdat. - 1970.
15. Browne E., Tuli J. K. Adopted levels, gammas for 137Ce // Nucl. Data Sheets. - 2007. - Vol. 108. - p. 2173 – 2174.

© Ужгородський національний університет

УДК 535.33;537.5, 533.9
PACS 52.77.-j, 52.70.-m, 52.30.-q
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.161-168

А.А. Генерал, В.А. Кельман, Ю.В. Жменяк, В.В. Звенигородський, Ч.Д. Надь
Інститут електронної фізики НАН України, 88017, Ужгород, вул. Університетська, 21
e-mail: vkel171@gmail.com

ОПТИЧНЕ ВИПРОМІНЮВАННЯ ПЛАЗМОВОГО СТРУМЕНЯ, ЩО ЗБУДЖУЄТЬСЯ БАР'ЄРНИМ РОЗРЯДОМ В СУМІШАХ АРГОН-ПОВІТРЯ І ГЕЛІЙ-ПОВІТРЯ

У спектральній області 300–900 нм експериментально досліджено люмінесценцію плазмових струменів, сформованих бар’єрним розрядом атмосферного тиску у сумішах аргон-повітря та гелій-повітря. Показано, що спектри випромінювання які генеруються з допомогою плазмових струменів, представлені переважно електронно-коливальними переходами другої позитивної системи нейтральних молекул азоту $N_2\left(C\ ^3\Pi_u \rightarrow B\ ^3\Pi_g\right)$.

Ключові слова: плазмовий струмінь, бар’єрний розряд, молекула азоту.

Вступ

Протягом останнього десятиліття все більший практичний інтерес викликають плазмові струмені атмосферного тиску [1–5], збуджені газовими розрядами: тліючим, бар'єрним і т.д. Широке застосування плазмові струмені знаходять в медицині [3], для обробки і очищення поверхні матеріалів [4] та для напилення покриттів [5].

Атмосферна плазма є одним з ефективних стерилізаторів, а основними робочими газами, які використовуються, при отриманні плазмових струменів атмосферного тиску є аргон або гелій. На сьогоднішній день створені і вивчені джерела плазмових струменів атмосферного тиску на основі бар'єрного розряду, в яких робочими газами є аргон, гелій, азот і їх суміші. Проте, до теперішнього часу практично не вивчалися характеристики плазмових струменів бар'єрного розряду в сумішах аргон-повітря і гелій-повітря.

У зв'язку з цим дана робота присвячена вивченню спектральних характеристик випромінювання плазмових струменів бар'єрного розряду атмосферного тиску в сумішах аргон-повітря і гелій-повітря.

Техніка та умови експерименту

Основні вузли експериментальної апаратури, використаної нами для експериментів, описані в роботі [6] і представлені на рис. 1. Джерело плазмового струменя було створене на основі капілярної газорозрядної трубки (ГРТ) з плавленого кварцу довжиною 50 мм, внутрішнім діаметром 3 мм, зовнішнім – 6 мм. Капілярна трубка на виході звужується і має вигляд сопла з вихідним отвором діаметром 1 мм. Всередині капіляра розміщувався виготовлений зі сталі голчастий електрод діаметром 1 мм і довжиною 45 мм. Другий електрод, виготовлений з фольги шириною 25 мм, був розміщений поверх капілярної трубки, стінки якої відігравали роль міжелектродного діелектричного бар'єра. Відстань від електродів до вихідного отвору сопла становила 5 мм. Величина міжелектродної ємності 2,4 нФ створювана діелектричним бар'єром, визначає величину електричної енергії, що вводиться в розряд за один імпульс.

Реєстрація спектрів люмінесценції плазмового струменя здійснювалася з використанням монохроматора MS 7504i. Інтегровані в часі спектри люмінесценції плазми реєструвалися за допомогою CCD-камери HS 101H і виводилися на монітор комп'ютера. Для збудження бар'єрного розряду в джерелі випромінювання був використаний генератор з резонансною перезарядкою накопичувальної ємності 110 пФ і тиратроном ТГИ1-2000/35 в якості комутатора. Генератор забезпечував частоту повторення імпульсів до 10 кГц при зарядній напрузі близько 5 кВ.

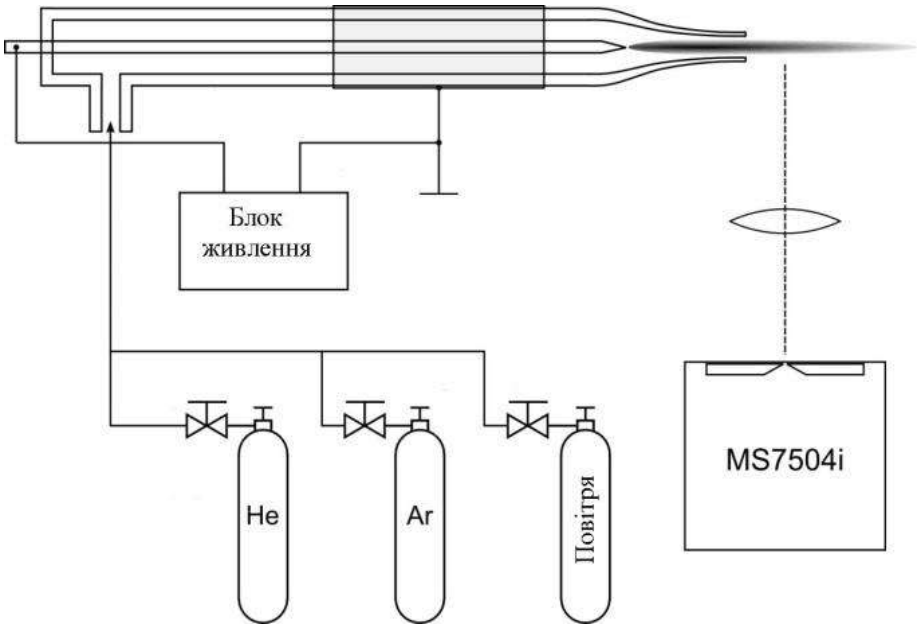


Рис. 1. Блок-схема експерименту.

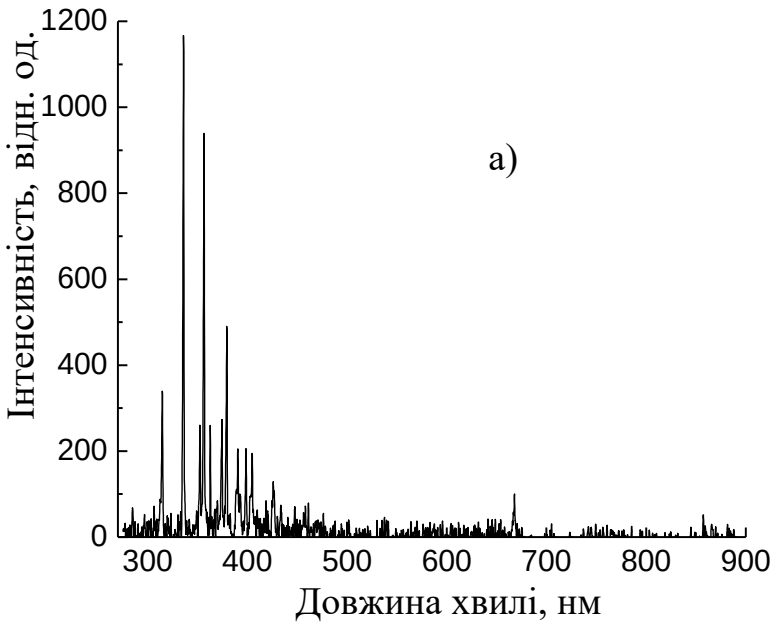
Емісійні характеристики плазми

Плазмовий струмінь, який формувався на виході з сопла капіляра при подачі на електроди високовольтної імпульсно-періодичної напруги і продуванні крізь капіляр сумішей гелію з повітрям і аргону з повітрям в співвідношенні 6: 0,5 (витрата газових сумішей до 2 л/хв), мав вигляд голкоподібного факела. Протяжність плазмового струменя за межами вихідного сопла не перевищувала 1,5 см. В роботі було досліджено спектральний склад випромінювання плазмових струменів на основі сумішей гелію з повітрям та аргону з повітрям. На рис. 2а приведено зареєстрований спектр випромінювання плазмового струменя, який витікає з сопла для суміші гелію з повітрям в інтервалі довжин хвиль 300-900 нм.

В довгохвильовій ділянці спектра випромінювання плазмового струменя суміші гелію з повітрям зареєстрована лінія атома гелію 667 нм $1s3d\ ^1D_2 \rightarrow 1s2p\ ^1P_1^0$ - перехід. Також було зафіксовано випромінювання атома водню H_α. Слід зауважити, що інших емісій в довгохвильовій ділянці спектру нами зафіксовано не було.

В області 300-500 нм спектр випромінювання плазмового струменя суміші гелій-повітря представлений емісіями молекули азоту, які є результатом електронно-коливальних переходів другої позитивної системи нейтральних молекул азоту $N_2\left(C\ ^3\Pi_u \rightarrow B\ ^3\Pi_g\right)$, а також першої негативної системи іонів молекул азоту $N_2^+\left(B\ ^2\Sigma_u^+ \rightarrow X\ ^2\Sigma_g^+\right)$.

Найбільш інтенсивні зареєстровані молекулярні емісії утвореної плазмового струменя в суміші гелію і повітря приведені в таблиці, де дана їх ідентифікація. Ототожнення атомарних ліній в емісійному спектрі проводилося з використанням даних [7], а визначення коливальних переходів молекулярних компонент плазми здійснювалася на основі даних [8, 9].



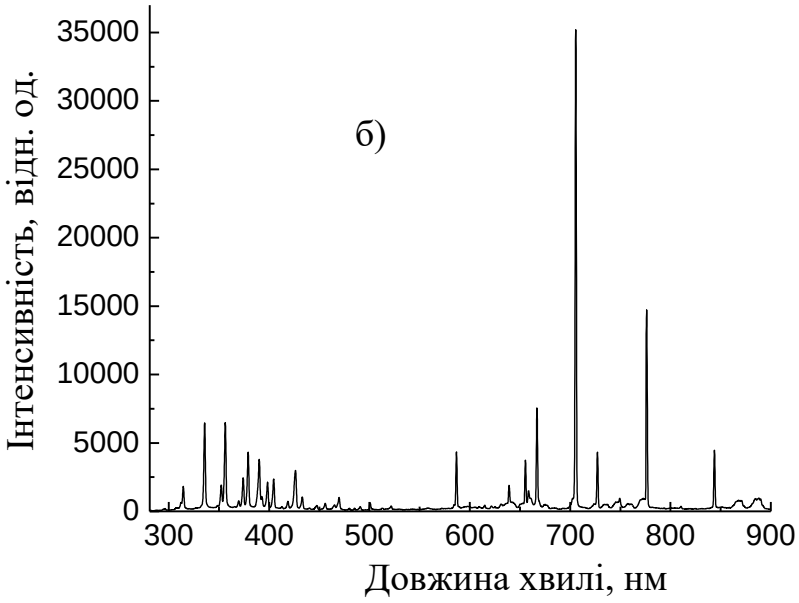


Рис. 2. Спектр випромінювання плазмового струменя в суміші гелій-повітря (а) і гелію (б) при напрузі 4 кВ, частоті 4 кГц і розрядному струмові 0,01 А.

Таблиця. Молекулярні емісії, зареєстровані в спектрі люмінесценції плазмового струменя, сформованого бар'єрним розрядом в суміші гелій-повітря.

λ, нм	Плазмові компоненти	Електронно-коливальнй перехід	Енергія збудження, еВ.
315,9	N_2	$C\ ^3\Pi_u(\upsilon=1)\rightarrow B\ ^3\Pi_g(\upsilon=0)$	11,3
337,1	N_2	$C\ ^3\Pi_u(\upsilon=0)\rightarrow B\ ^3\Pi_g(\upsilon=0)$	11
353,6	N_2	$C\ ^3\Pi_u(\upsilon=1)\rightarrow B\ ^3\Pi_g(\upsilon=2)$	11,3
357,7	N_2	$C\ ^3\Pi_u(\upsilon=0)\rightarrow B\ ^3\Pi_g(\upsilon=1)$	11

370,9	N_2	$C\ ^3\Pi_u(\upsilon=2)\to B\ ^3\Pi_g(\upsilon=4)$	11,5
375,4	N_2	$C\ ^3\Pi_u(\upsilon=1)\to B\ ^3\Pi_g(\upsilon=3)$	11,3
380,4	N_2	$C\ ^3\Pi_u(\upsilon=0)\to B\ ^3\Pi_g(\upsilon=2)$	11
391,4	N_2^+	$B\ ^2\Sigma_u^+(\upsilon=0)\to X\ ^2\Sigma_g^+(\upsilon=0)$	18,7
399,7	N_2	$C\ ^3\Pi_u(\upsilon=1)\to B\ ^3\Pi_g(\upsilon=4)$	11,3
405,8	N_2	$C\ ^3\Pi_u(\upsilon=0)\to B\ ^3\Pi_g(\upsilon=3)$	11
427,8	N_2^+	$B\ ^2\Sigma_u^+(\upsilon=0)\to X\ ^2\Sigma_g^+(\upsilon=1)$	18,7

Як випливає з даних представлених в таблиці випромінювання молекулярних компонентів плазми відбувається, в основному, при спектральних переходах з найнижчих коливальних рівнів збуджених електронних станів, що є наслідком коливальної релаксації збуджених молекул при їх зіткненнях. Верхні рівні всіх випромінюючих збуджених нейтральних молекул азоту енергетично розташовані досить високо, і їх енергія збудження перевищує 10 еВ. Енергії збуджених рівнів іонізованих молекул азоту ще більші і мають значення не менше 18,7 еВ. Наявність в спектрі випромінювання плазмового струменя емісії першої негативної системи іонів молекулярного азоту $N_2^+\left(B\ ^2\Sigma_u^+\to X\ ^2\Sigma_g^+\right)$ поряд з емісіями другої позитивної системи нейтральних молекул азоту $N_2\left(C\ ^3\Pi_u\to B\ ^3\Pi_g\right)$, вказує на те, що, як було продемонстровано в праці [10], утворення іонізованих молекул азоту в збудженому стані $N_2^+\left(B\ ^2\Sigma_g^+\right)$ зумовлене високою ефективністю процесу іонізації Пенінга при зіткненнях молекул азоту з метастабільними атомами гелію

$$N_2\left(X\ ^1\Sigma_g^+\right)+He^*\to N_2^+\left(B\ ^2\Sigma_u^+\right)+He+e \quad (1)$$

На рис. 2б наведено зареєстрований нами спектр випромінювання плазмового струменя чистого гелію в атмосфері для порівняння зі спектром плазмового струменя, одержуваного в суміші гелій-повітря.

Детальна інтерпретація спектру випромінювання плазмового струменя гелію дана нами в роботі [10]. При порівнянні представлених на рис. 2 спектрів випромінювання видно, що при введенні повітря в потік гелію, що продувається крізь капіляр, в довгохвильовій області спектра плазмового струменя більшість інтенсивних спектральних ліній стали мізерно слабкими, інтенсивність атомарних спектральних ліній гелію сильно зменшилася. У короткохвильовій області спектру інтенсивність випромінювання першої негативної системи смуг іону молекули азоту $N_2^+\left(B\ ^2\Sigma_u^+\to X\ ^2\Sigma_g^+\right)$ також значно зменшилася в порівнянні з інтенсивністю випромінювання другої позитивної системи нейтральних молекул азоту. Причиною зменшення інтенсивності емісій плазмового струменя при додаванні в розряд повітря є той факт, що повітря є сильно електронегативним газом і в розряді призводить до зменшення електронної концентрації, а також «гасіння» самого розряду.

На рис. 3а представлений інтегрований в часі спектр люмінесценції плазмового струменя, отриманий в суміші аргон-повітря. Нижче на рис. 3б наведено також для порівняння зареєстровану ділянку спектру випромінювання плазмового струменя аргону. В інтервалі довжин хвиль 300-405 нм, емісійний спектр плазмового струменя, отриманий в суміші аргону і повітря, представлений переважно спектральними смугами азоту, відповідних електронно-коливальних переходів другої позитивної системи молекул азоту $N_2\left(C\ ^3\Pi_u\to B\ ^3\Pi_g\right)$. У довгохвильовій спектральній області вище 500 нм будь-яке випромінювання відсутнє, тому дану ділянку спектру й не приводимо на рисунку.

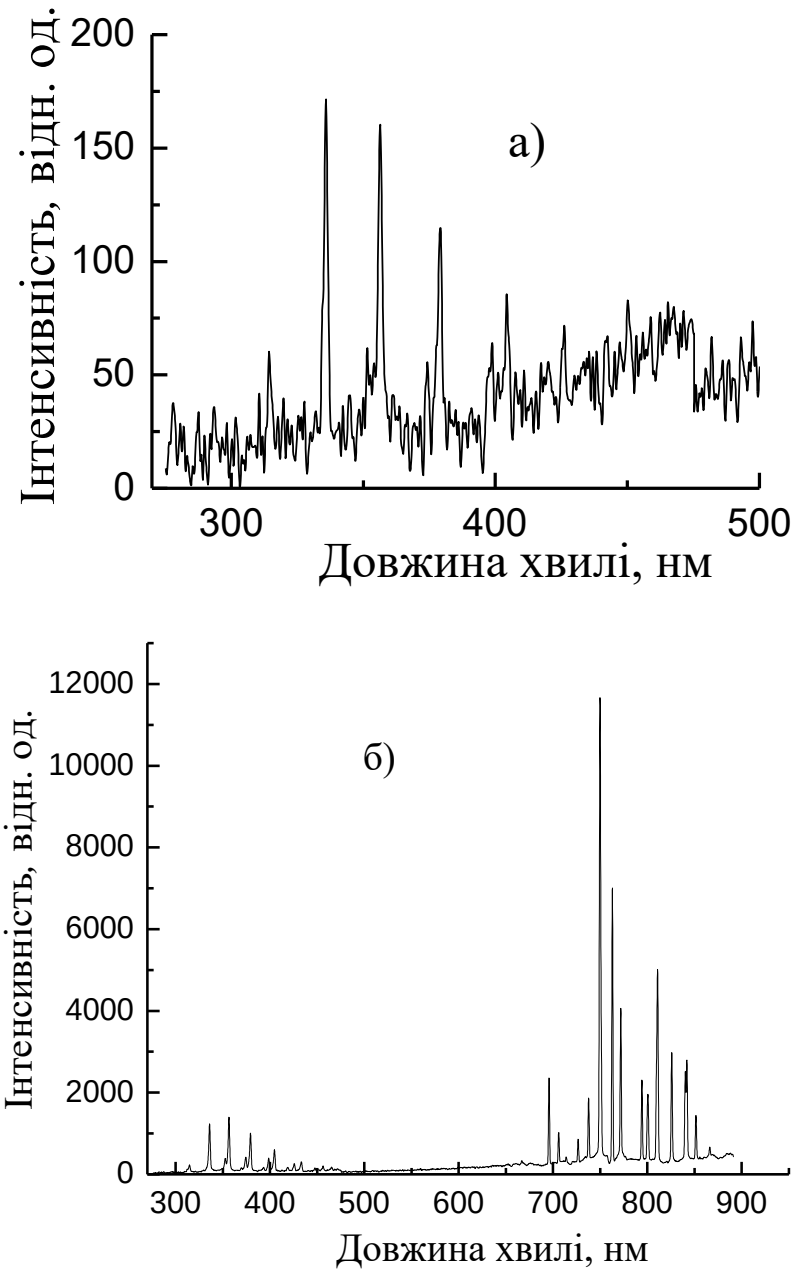


Рис. 3. Спектр випромінювання плазмового струменя в суміші аргон-повітря (а) і аргоні (б) при напрузі 4 кВ, частоті 4 кГц і розрядному струмові 0,01 А.

Детальний аналіз спектру випромінювання плазмового струменя аргону в атмосфері наведено нами в роботі [11]. У короткохвильовому діапазоні довжин хвиль (300-405 нм) емісійний спектр аргонового плазмового струменя, представлений також переважно спектральними смугами молекулярного азоту другої позитивної системи молекули азоту. Окремо варто відзначити, що в спектрах рис. 3 відсутнє випромінювання іону молекули азоту, оскільки енергії метастабільних атомів аргону недостатньо для процесу іонізації Пенінга. Адже енергія збудження основного електронного стану іону молекули азоту становить 15,6 еВ, а енергія збудження електронного стану позитивного іону азоту дорівнює 18,7 еВ [12].

У довгохвильовій області спектру випромінювання аргонового плазмового струменя (690 – 900 нм) присутні зареєстровані інтенсивні лінії переважно спектральних переходів між збудженими станами атомів аргону. Порівняння представлених на рис. 3 спектрів випромінювання показує, що потік повітря, який продувається крізь капіляр призводить до повного гасіння

випромінювання атомів аргону в довгохвильовій області спектру і зниження інтенсивності випромінювання молекул азоту в короткохвильовій області внаслідок сильної електронегативності повітря.

Шляхом порівняння спектральних характеристик випромінювання плазми при переході від суміші аргон-повітря до суміші гелій-повітря було встановлено, що потужність випромінювання зросла в 3 рази.

Висновки

Експериментально досліджені і проаналізовані спектри люмінесценції плазмових струменів, сформованих бар'єрним розрядом в сумішах гелій-повітря і аргон-повітря. Встановлено, що в результаті формування плазмового струменя в газорозрядній капілярній трубці при продуванні крізь неї сумішей гелію з повітрям та аргону з повітрям виникають основні компоненти плазми – молекули і іони азоту для суміші гелій-повітря і молекули азоту для суміші аргон-повітря. Потужність випромінювання плазмового струменя при переході від суміші аргон-повітря до суміші гелій-повітря зросла в 3 рази.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Fang Z., Ruan C., Shao T., and Zhang C. Two discharge modes in an atmospheric pressure plasma jet array in argon // Plasma Sources Sci. Technol. – 2016. – V.25. – 01LT01. doi:10.1088/0963-0252/25/1/01LT01.
2. West A., van der Schans M., Xu C. etc. Fast, downstream removal of photoresist using reactive oxygen species from the effluent of an atmospheric pressure plasma Jet // Plasma Sources Sci. Technol. – 2016. – V.25. – 02LT01.
3. Benedict J., Forcke K., Yanguas-Gil A., Von Keudell A. Atmospheric pressure micro plasma jet as a depositing tool // J. Appl. Phys. – 2006. – V.99. – P.112 – 303.
4. Aboubakr H.A., Gangal U., Youssef M.M. etc. Inactivation of virus in solution by cold atmospheric pressure plasma: Identification of chemical inactivation pathways // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2016. – V.49. – 204001.
5. Joh H.M., Kim S.J., Chung T.H., Leem S.H. Reactive oxygen species-related plasma effects on the apoptosis of human bladder cancer cells in atmospheric pressure pulsed plasma jets // Appl. Phys. Lett. – 2012. – V.101. – 053703.
6. General A.A., Kelman V.A., Zhmenyak Yu.V., Shpenik Yu.O. A UV source on hydroxyl molecules operating in a pulsed-periodic mode // Instruments and Experimental Techniques. – 2010. – V.53. – №4. – C. 558 – 560.
7. URL:htpp://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm.
8. Pearse R.W.B. & Gaydon A.G.. The Identification of Molecular Spectra, 3rd edn. – London: Chapman & Hall, 1963. – 347 p.
9. Huber K.P. and Herzberg G. Molecular Spectra and Molecular Structure. IV. Constants of Diatomic Molecules. New York: Van Nostrand Reinhold Company, 1979. – 716 p.
10. Korbut A.N., Kelman V.A., Zhmenyak Yu.V. and Klenovskii M.S. Emission properties of an atmospheric-pressure helium plasma jet generated by a barrier discharge // Optics and Spectroscopy. – 2014. – V.116. – №6. – C. 919 – 925.
11. Korbut O.M., Kelman V.A., Zhmenyak Yu.V., Klenivskyi M.S. Emission Properties of an Atmospheric Pressure Argon Plasma Jet Excited by Barrier Discharge // Ukr. J. Phys. – 2015. – V.60. – N12. – P. 1189 – 1195.
12. Russ R. Laher.and Forrest R. Gilmore Improved Fits for the Vibrational and Rotational Constants of Many States of Ni
13. trogen and Oxygen // J. Phys. Chem. Ref. Data. – 1991. – V.20. – No.4. – P. 685 – 701.

Стаття поступила до редакції 10.07.2017.

А.А. Генерал, В.А. Кельман, Ю.В. Жменяк, В.В. Звенигородский, Ч.Д. Надь
Институт электронной физики НАН Украины, 88017, Ужгород, ул. Университетская, 21
e-mail: vkel171@gmail.com

ОПТИЧЕСКОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ ПЛАЗМЕННОЙ СТРУИ, ВОЗБУЖДАЕМОЕ БАРЬЕРНЫМ РАЗРЯДОМ В СМЕСЯХ АРГОН-ВОЗДУХ И ГЕЛИЙ-ВОЗДУХ

В спектральной области 300–900 нм экспериментально исследована люминесценция плазменных струй, сформованных барьерным разрядом атмосферного давления в смесях аргон-воздух и гелий-воздух. Продемонстрировано, что спектры излучения генерируемые плазменными струями представлены преимущественно электронно-колебательными переходами второй положительной системы нейтральных молекул азота $N_2\left(C\ ^3\Pi_u \rightarrow B\ ^3\Pi_g\right)$.

Ключевые слова: плазменная струя, барьерный разряд, молекула азота.

PACS 52.77.-j, 52.70.-m, 52.30.-q
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.161-168

A.A. General, V.A. Kelman, Yu.V. Zhmenyak, V.V. Zvenyhorodsky, Ch.D. Nady
Institute of Electron Physics NAS Ukraine, 88017, Uzhhorod, Universitetska str. 21
e-mail: vkel171@gmail.com

AN OPTICAL EMISSION OF PLASMA JET EXCITED BY BARRIER DISCHARGE IN ARGON-AIR AND HE-AIR MIXTURES

Background: Atmospheric pressure plasma jets are intensively studying during last years due to its unique parameters and applications. The best carrier of such type of plasma is the capillary barrier discharge. The purpose of this work is to study the emission spectra of this plasma jets generated in helium and argon inert gases also as in helium-air and argon-air mixtures.

Materials and methods: We explored the optical method to study the molecular emission spectra of all studied plasma jets. Emitted spectra were registered using grating grid monochromator and HS 101H CCD-camera.

Results: In spectral range 300–900 nm it was experimentally investigated the luminescence of atmospheric pressure plasma jets excited by barrier discharge in Argon-air and Helium-air mixtures. It was shown that emitted spectra are represented mainly by electron-vibrational transitions of the second positive system of neutral nitrogen molecules $N_2\left(C\ ^3\Pi_u \rightarrow B\ ^3\Pi_g\right)$.

Conclusion: Experimentally were investigated and analyzed luminescence spectra of plasma jets formed by barrier discharge in helium, argon and their mixtures with air. It was established that the emission intensity of helium-air jet is thirdly much more than argon-air jet, predominantly due to Penning ionization.

Keywords: plasma jet, barrier discharge, nitrogen molecule.
PACS 52.77.-j, 52.70.-m, 52.30.-q

REFERENCES

1. Fang Z., Ruan C., Shao T., and Zhang C. Two discharge modes in an atmospheric pressure plasma jet array in argon // Plasma Sources Sci. Technol. – 2016. – V.25. – 01LT01.
2. West A., van der Schans M., Xu C. etc. Fast, downstream removal of photoresist using reactive oxygen species from the effluent of an atmospheric pressure plasma Jet // Plasma Sources Sci. Technol. – 2016. – V.25. – 02LT01.
3. Benedict J., Forcke K., Yanguas-Gil A., Von Keudell A. Atmospheric pressure micro plasma jet as a depositing tool // J. Appl. Phys. – 2006. – V.99. – P.112 – 303.
4. Aboubakr H.A., Gangal U., Youssef M.M. etc. Inactivation of virus in solution by cold atmospheric pressure plasma: Identification of chemical inactivation pathways // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2016. – V.49. – 204001.
5. Joh H.M., Kim S.J., Chung T.H., Leem S.H. Reactive oxygen species-related plasma effects on the apoptosis of human bladder cancer cells in atmospheric pressure pulsed plasma jets // Appl. Phys. Lett. – 2012. – V.101. – 053703.
6. General A.A., Kelman V.A., Zhmenjak Yu.V., Shpenik Yu.O. A UV source on hydroxyl molecules operat ing in a pulsed-periodic mode // Instruments and Experimental Techniques. – 2010. – V.53. – №4. – C. 558 – 560.
7. URL:http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm
8. Pearse R.W.B. & Gaydon A.G.. The Identification of Molecular Spectra, 3rd edn. – London: Chapman & Hall, 1963. – 347 p.
9. Huber K.P. and Herzberg G. Molecular Spectra and Molecular Structure. IV. Constants of Diatomic Molecules. New York: Van Nostrand Reinhold Company, 1979. – 716 p.
10. Korbut A.N., Kelman V.A., Zhmenyak Yu.V. and Klenovskii M.S. Emission properties of an atmospheric-pressure helium plasma jet generated by a barrier discharge // Optics and Spectroscopy. – 2014. – V.116. – №6. – C. 919 – 925.
11. Korbut O.M., Kelman V.A., Zhmenyak Yu.V., Klenivskyi M.S. Emission Properties of an Atmospheric Pressure Argon Plasma Jet Excited by Barrier Discharge // Ukr. J. Phys. – 2015. – V.60. – N12. – P. 1189 – 1195.
12. Russ R Laher.and Forrest R. Gilmore Improved Fits for the Vibrational and Rotational Constants of Many States of Nitrogen and Oxygen // J. Phys. Chem. Ref. Data. – 1991. – V.20. – No.4. – P. 685 – 701.

© Ужгородський національний університет

УДК 539.173 + 539.173.8+539.1.6
PACS 24.75.+1, 25.85.-w, 25.85. Ec, 25.85. Ca
DOI 10.24144/2415-8038.2017.42.169-177

І.В. Пилипчинець, О.О. Парлаг, Є.В. Олейников
Інститут електронної фізики НАН України, 88017, м. Ужгород, вул. Університетська, 21
e-mail: igor.profi@gmail.com

МОДЕЛЮВАННЯ ВИХОДІВ ПРОДУКТІВ ФОТОПОДІЛУ ЯДЕР АКТИНІДІВ, ІНДУКОВАНИХ ГАЛЬМІВНИМ ВИПРОМІНЮВАННЯМ ЕЛЕКТРОННИХ ПРИСКОРЮВАЧІВ

Запропоновано підхід, який дозволив адаптувати GEF- код для моделювання виходів продуктів фотоподілу ядер актинідів. Проведена симуляція спектру гальмівного випромінювання мікротрона М-30 при енергіях електронів 8.5 ÷ 20 МеВ; виконані розрахунки енергії збудження для подільних ядер ^{232}Th, ^{235}U, ^{238}U, ^{237}Np, ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{242}Pu, ^{241}Am та моделювання виходів їх продуктів при фотоподілі з застосуванням GEF- коду.

Ключові слова: ядра актиніди, фотоподіл, гальмівне випромінювання, виходи продуктів.

Вступ

Для експериментальних досліджень виходів продуктів фотоядерних реакцій в області енергій гігантського дипольного резонансу, а саме реакцій фотоподілу (γ,f)-ядер актинідів (^{232}Th, ^{235}U, ^{238}U, ^{237}Np, ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{242}Pu, ^{241}Am) широко застосовують пучки гальмівного випромінювання електронних приско-рювачів [1]. Зокрема, інформація про виходи продуктів фотоподілу ядер актинідів необхідна для розробки неруйнівних методів їх ізотопного аналізу [2] та трансмутації відпрацьованого ядерного палива [3], яке у великих кількостях містить продукти (n,f)- і (γ,f)- реакцій [4]. Однак, на теперішній час існуючі експериментальні дані для виходів продуктів фотоподілу ядер актинідів доволі обмежені, як по колу досліджених продуктів-уламків, так і по області енергій стимуляції (γ,f)- реакцій [5]. Існуючі сучасні розрахункові коди, такі як Empire [6], Talys [7], Geant [8], MCNP [8] були розроблені та використовуються переважно для описання характеристик нейтронного поділу ядер актинідів. Є приклади застосування кодів Empire та Talys для моделювання виходів продуктів фотоядерних реакцій [9-11], але ці коди не дозволяють моделювати з високою точністю виходи продуктів фотоподілу ядер актинідів та мають ряд обмежень при їх застосуванні [12]. Один з найбільш сучасних та вживаних розрахункових кодів є GEF- код [13,14], розроблений з метою надання спеціалізованих ядерних даних для їх застосування в області ядерних технологій і техніки, який дозволяє описувати виходи продуктів (s.f)-, (n,f)- та (n,p)- реакцій для широкого кола важких ядер. Ці обставини стримують розробку нових перспективних ядерних технологій з використанням (γ,f)- реакцій. Тому надзвичайно актуальними є подальші експериментальні дослідження виходів продуктів фотоподілу ядер актинідів та розробка методів для їх симуляції.

В роботах [15,16] продемонстровано підхід для моделювання виходів продуктів фотоподілу ^{234}U на основі існуючих даних поділу ядра ^{233}U нейтронами. Згідно [15,16], енергії збудження при поділі фотонами відповідають енергіям збудження, для «еквівалентних» реакцій,

індукованих нейтронами, для області енергій при яких відбувається беземісійний поділ, тобто коли утворюється тільки перше складове ядро.

В даній роботі запропоновано підхід, який дозволяє адаптувати GEF- код [13] для моделювання виходів продуктів фотоподілу широкого кола ядер актинідів, індукованих гальмівним випромінюванням електронного прискорювача – мікротрона М-30.

Моделювання виходів продуктів фотоядерних реакцій

Згідно [15,16], для того щоб використовувати дані реакції поділу нейтронами *(n,f)* для описання реакції фотоподілу *(γ,f)*, необхідно застосовувати дані *(n,f)* для ізотопу $^{(A-1)}X$, в якому на один нейтрон менше: $^{A}X(\gamma,f)^{A}X^* \leftrightarrow {}^{(A-1)}X(n,f)^{A}X^*$.

Енергія нейтрона E_n, що викликає реакцію поділу буде еквівалентна середній енергії збудження (E^*) подільного ядра, утвореного під дією фотонів мінус енергія сепарації нейтрону *Sn* для даного подільного ядра ^{A}X : $E_n \leftrightarrow E^* - Es$.

При використанні гальмівного випромінювання від електронних прискорювачів для симуляції реакцій фотоподілу необхідно проводити розрахунки середньої енергії збудження (E^*) подільних ядер з врахуванням реального спектру гальмівних фотонів.

Симуляція спектру гальмівного випромінювання електронного прискорювача

Моделювання спектра гальмівного випромінювання електронного прискорювача мікротрона М-30 для прискорених електронів, тобто, розрахунок перерізу утворення гальмівного гамма-кванта з енергією від E_γ до $E_\gamma + dE_\gamma$ електроном з енергією U_0 на 1 ядро мішені з порядковим номером Z проводилося за допомогою формули Шіффа (1) [17]:

$$\sigma(E_\gamma)dE_\gamma = 2\frac{z^2 r_0^2}{137}\frac{dE_\gamma}{E_\gamma}\times$$

$$\times\left\{\left[1+\left(\frac{U_0-E_\gamma}{U_0}\right)^2-\frac{2\times(U_0-E_\gamma)}{3U_0}\right]\times\right. \quad (1),$$

$$\left.\times\left[\ln M(0)+1-\frac{2}{B}\cdot arctgB\right]+\frac{U_0-E_\gamma}{U_0}C(B)\right\}$$

де

$$B=\frac{2U_0(U_0-E_\gamma)Z^{\frac{1}{2}}}{111mc^2E_\gamma} \quad (2),$$

U_0 – повна енергія налітаючого електрону, mc^2 – енергія спокою електрона, r_0 = $2{,}82\cdot10^{-11}$ см – класичний радіус електрона, Z і A – зарядове та масове число ядер гальмівної мішені.

$$C(B)=\frac{2}{B^2}\times\ln\left(1+B^2\right)+\frac{4(2-B^2)}{3B^3}\times \quad (3),$$
$$\times arctgB-\frac{8}{3B^2}+\frac{2}{9}$$

$$\frac{1}{M(0)}=\left(\frac{mc^2E_\gamma}{2U_0(U_0-E_\gamma)}\right)^2+\left(\frac{Z^{\frac{1}{3}}}{111}\right)^2 \quad (4),$$

Число гальмівних гамма-квантів, яких генерує потік електронів зі струмом i = 1 мкА розраховувалося за формулою (5):

$$\Delta N_\gamma = i(мка)\frac{\rho x\cdot 6.02\cdot10^{23}}{1.6\cdot10^{-13}A}\cdot\sigma(E_\gamma)dE_\gamma \quad (5),$$

де ρ і A – густина і масове число ядер гальмівної мішені, x –товщина гальмівної мішені.

Для проведення розрахунків, було розроблено програмний продукт з використанням платформи Java, що являє собою набір засобів для розробки клієнтських додатків і серверного програмного забезпечення.

Результати розрахунків спектрів гальмівного випромінювання, які генеруються електронами (з енергіями 8,5; 10,5; 12,5; 14,5; 17,5 та 20 МеВ) на танталовій мішені товщиною 1 мм представлені на Рис. 1. Тут же приведені розрахунки, виконані з застосуванням розрахункового коду MCNP5 (танталовий конвертор, енергія електронів – 20 МеВ) [18].

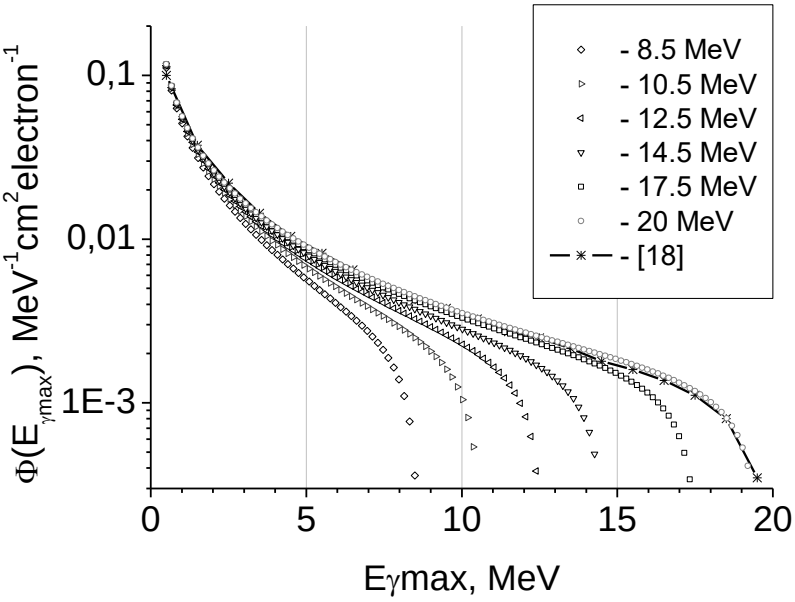


Рис.1. Залежність густини потоку гамма-квантів $\varphi(E,E_m)$ від енергії електронів для гальмівної мішені з танталу товщиною 1 мм.

Розрахунок середньої енергії збудження фотоподілу ядер актинідів

Середня енергія збудження розраховувалася за формулою (6) [19]:

$$E^* = \frac{\sum_{i=1}^{n} E_i \sigma(E_i, E_{\gamma\max}) \Delta E \sigma_f(E_i)}{\sum_{i=1}^{n} \sigma(E_i, E_{\gamma\max}) \Delta E \sigma_f(E_i)} \quad (6),$$

де $\sigma(E_\gamma,E_{\gamma max})dE$ – переріз утворення гальмівного гамма-кванта з енергією в інтервалі від E_γ до $E_\gamma + dE_\gamma$ електроном з енергією $U_0=E_{\gamma max}+0,511$ МеВ в розрахунку на 1 ядро мішені з порядковим номером Z, який розраховувався за формулою Шіффа [17].

Чисельні значення перерізу $\sigma_f(E_i)$ бралися з бібліотеки ENDF [20].

На панельному Рис. 2 представлені залежності енергії збудження подільних ядер ^{232}Th, ^{235}U, ^{238}U, ^{237}Np, ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Am та ^{242}Pu від енергії гальмівного випромінювання утворених по каналу реакції ^{A}X(γ,f).

Результати моделювання виходів продуктів фотоподілу ядер актинідів

Моделювання виходів продуктів фотоподілу ядер актинідів ^{232}Th, ^{235}U, ^{238}U, ^{237}Np, ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Am та ^{242}Pu здійснювалося GEF- кодом (Version 2016/1.2) при максимальних енергіях гальмівного випромінювання 9,5 ÷ 17,5 МеВ.

Чисельні значення вхідних даних (енергії збудження, енергії сепарації та енергії нейтронів), які використовувалися при моделюванні представлені в Таблиці 1.

Результати моделювання виходів продуктів фотоподілу ядер актинідів представлені на панельному Рис. 3. Тут же представлені оцінені експериментальні ядерні дані (бібліотека EXFOR [5]) для ^{232}Th (G4004.002 – 17,5 МеВ; G0051.002 – 16 МеВ), ^{235}U (L0066.002 – 25 МеВ), ^{237}Np (G4003.002 – 17,5 МеВ; M0089.004 – 14 МеВ), ^{238}U (G0051.002 – 17,4 МеВ), ^{239}Pu (M0076.002 – 28 МеВ), ^{240}Pu (G0501.007 – 10 МеВ) та ^{242}Pu (M0202.002 – 20,07 МеВ), досліджених при близьких енергіях збудження. Результати проведених розрахунків узгоджуються з експериментальними даними в межах похибок для подільних ядер ^{235}U, ^{238}U, ^{237}Np, ^{239}Pu, ^{240}Pu та ^{242}Pu.

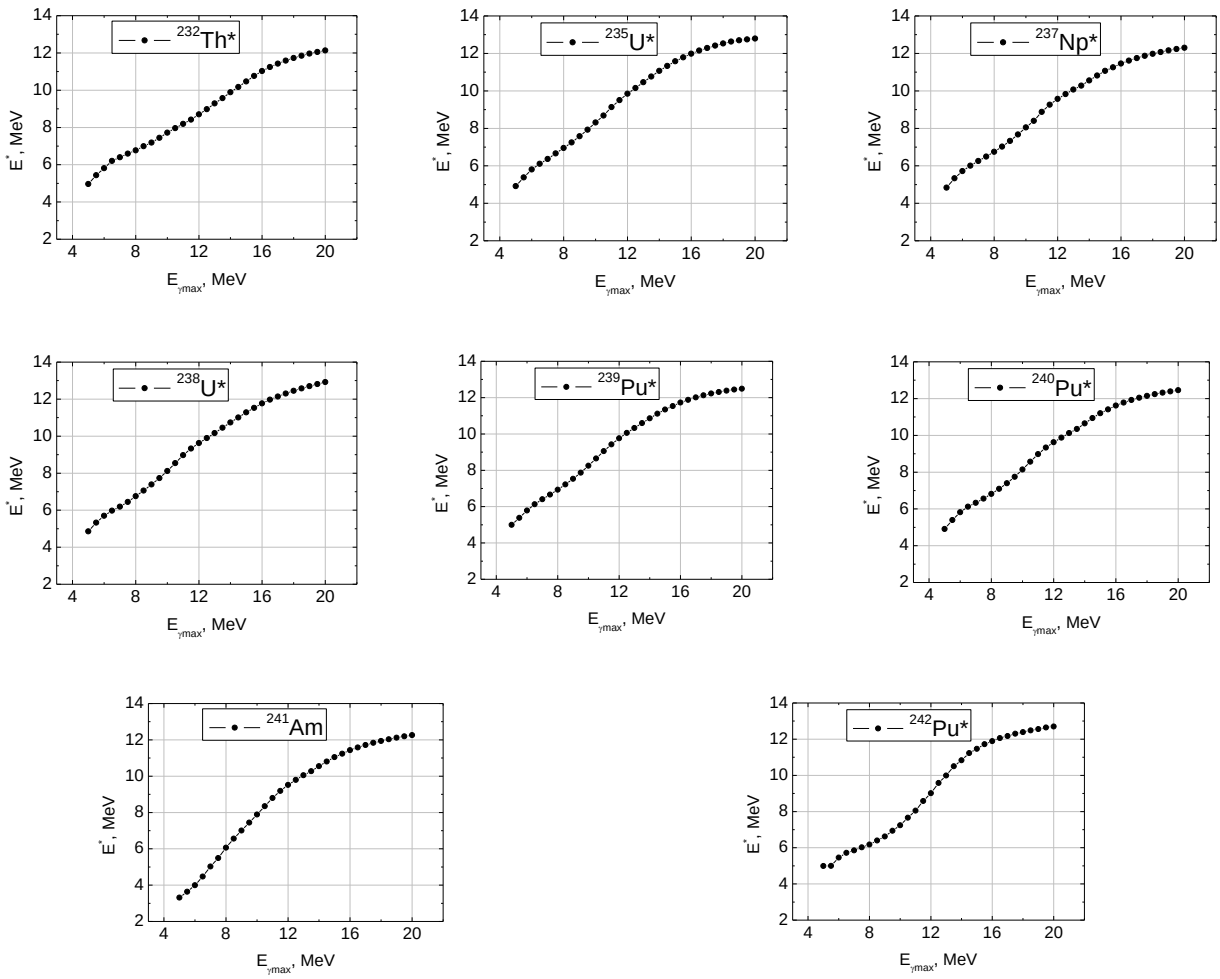


Рис.2. Залежність енергії збудження подільних ядер ^{232}Th, ^{235}U, ^{238}U, ^{237}Np, ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Am та ^{242}Pu від енергії гальмівного випромінювання

Таблиця 1. Чисельні значення вхідних даних (енергії збудження, енергії сепарації та енергії нейтронів) для моделювання виходів продуктів поділу GEF- кодом для подільних ядер ^{232}Th, ^{235}U, ^{238}U, ^{237}Np, ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Am та ^{242}Pu

Подільні ядра	Енергії гальмівного випромінювання, МеВ	Енергії збудження, МеВ	Аналоги нейтронних реакцій	Енергії сепарації, МеВ	Енергії нейтронів, МеВ
^{232}Th	9,5 ÷ 17,5	7,4449	^{231}Th(n,f)^{232}Th*	6,4381	1,0068 ÷5,149
^{235}U	9,5 ÷ 17,5	7,9308	^{234}U(n,f)^{235}U*	5,29784	2,6330 ÷7,12016
^{238}U	9,5 ÷ 17,5	7,7325	^{237}U(n,f)^{238}U*	6,152	1,5805 ÷5,291
^{237}Np	9,5 ÷ 17,5	7,6738	^{236}Np(n,f)^{237}Np*	6,58	1,0938 ÷6,1499
^{239}Pu	9,5 ÷ 17,5	7,8719	^{238}Pu(n,f)^{239}Pu*	5,6465	2,2254 ÷6,482
^{240}Pu	9,5 ÷ 17,5	7,7481	^{239}Pu(n,f)^{240}Pu	6,5335	1,2146 ÷5,51
^{241}Am	9,5 ÷ 17,5	7,4431	^{240}Am(n,f)^{241}Am*	6,647	0,7961 ÷5,193
^{242}Pu	9,5 ÷ 17,5	6,9421	^{241}Pu(n,f)^{242}Pu	6,3094	0,6327 ÷ 5,9903

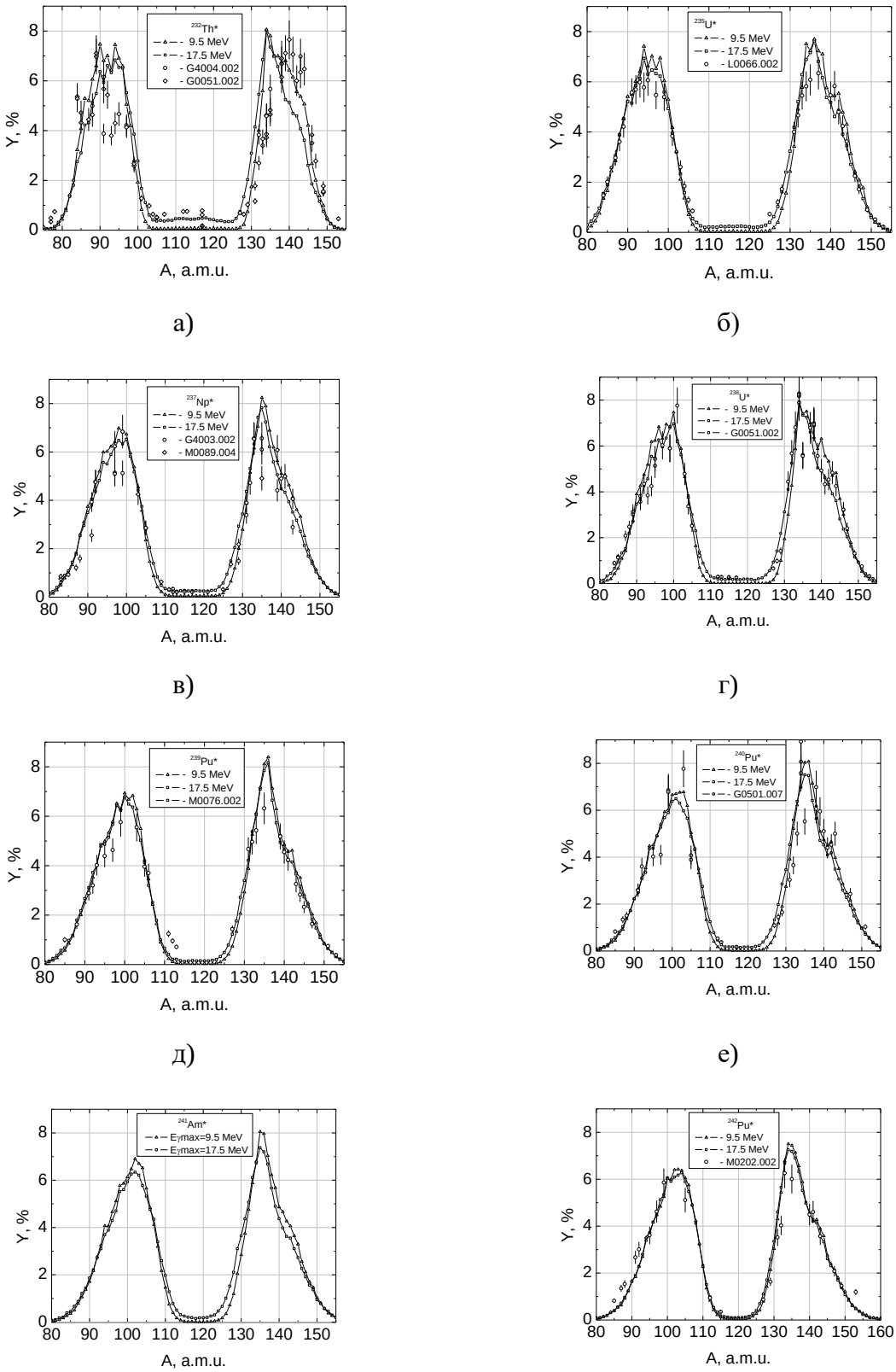


Рис.3 – Виходи продуктів фотоподілу ядер актинідів ^{232}Th – а), ^{235}U – б), ^{237}Np – в), ^{238}U – г), ^{239}Pu – д), ^{240}Pu – е), ^{242}Pu – є), ^{241}Am – ж) при максимальних енергіях гальмівного випромінювання 9,5 (трикутники) та 17,5 МеВ (квадрати). Кружки, ромби – оцінені дані з бібліотеки ядерних даних EXFOR [5]

Висновки

Запропонований підхід, де енергії збудження при поділі гальмівним випромінюванням відповідають енергії збудження, що отримані в «еквівалентних» реакціях, що дозволяє адаптувати GEF-код для моделювання виходів продуктів фотоподілу ядер актинідів.

Розраховані виходи продуктів фотоподілу ядер актинідів співпадають з оціненими експериментальними даними в межах похибок для області енергій беземісійного поділу [23].

Автори висловлюють подяку Ленделу О.І. за плідні дискусії та поради.

Робота виконана у рамках цільової комплексної програми наукових досліджень НАН України «Наукове забезпечення розвитку ядерно-енергетичного комплексу та перспективних ядерних технологій» (Договір № К-5-39/2016).

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Nieto M.M. Resource note on photofission of nuclei for ^{235}U and ^{239}Pu detection // Nucl. Sci. - 2004. – Vol. 148, N 3. – P. 458-461.
2. Hollas C.L., Close D.A., Moss C.E. Analysis of fissionable material using delayed gamma rays from photofission // Nucl. Instrum. Meth. B. – 1987. – Vol. 24/25. – P. 503-505.
3. Dikiy N.P., Dovbnya A.N., Lyashko Yu.V., Uvarov V.L. Research of transmutation of products of nuclear cycle at the electron accelerator // Problems of atomic science and technology. – 2004. № 1. (42). – P. 203-205.
4. Беденко С.В., Золотовский А.В. , Лызко В.А. и др. Оценка действующего значения потока гамма-излучения в ядерных реакторах с графитовым замедлителем // Изв. Томского политехн. ун-та. – 2010. – Т. 316. № 2. – С. 72-75.
5. Experimental nuclear reaction data (EXFOR). Database Version 2017-11-10. // https://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm
6. Herman M., Obložinský P., Capote R. Sin M., Trkov A., Ventura A., Zerkin V. Recent developments of the nuclear reaction model code EMPIRE // AIP Conference Proceedings – 2005. – V. 769. – P. 1184-1187.
7. Koning A.J., Rochman D. Modern nuclear data evaluation with the TALYS code system // Nuclear Data Sheets – 2012. – V. 113, Is. 12. – P. 2841-2934.
8. Hecht A.A., Blakeley R.E., Martin W.J., Leonard E. Comparison of Geant4 and MCNP6 for use in delayed fission radiation simulation // Annals of Nuclear Energy – 2014. – V. 69. – P. 134-138.
9. Bezshyyko O.A., Golinka-Bezshyyko L.O., Kadenko I.M., Lymanets A.O. Analysis of characteristics of the photonuclear reactions with charged particles in output channel using Empire II and Talys codes // Problems of atomic science and technology, Series: Nuclear Physics Investigations. – 2007. – V. 48, N5. – P. 18-21.
10. Vyshnevskyi I.M., Zheltonozhskii V.O., Savrasov A.M., Rovenskykh E.P., Plujko V.A., Davydovska O.I., Gorbachenko O.M. Isomer yield ratios of ^{133}Te, ^{134}I, ^{135}Xe in photofission of ^{235}U with 17 MeV bremsstrahlung // Nuclear Physics and Atomic Energy – 2014. – V. 15, № 2. – P. 111-118.
11. Makwana R., Mukherjee S., Wang Jian-Song, Chen Jian-Song New empirical formula for (γ,n) reaction cross section near GDR peak for elements with Z > 60 // Chinese Physics C – 2017. - V. 41, No. 4. 044105-(1-14).
12. Sabri M., Haddad M. Calculation of fission product yields for some nuclei with TALYS code // EPJ Web of Conferences – 2010. – V. 2. 14003-(1-4).
13. Schmidt K.-H., Jurado B., Schmitt C. General description of fission observables: The GEF code // EPJ Web of Conferences – 2017. – V.146.04001-(1-7).
14. Pomp S., Al-Adili A., Alhassan E., Gustavsson C., Helgesson P., Hellesen C., Koning A.J., Lantz M., Österlund M., Rochman D., Simutkin V., Sjöstrand H., Solders A. Experiments and theoretical data for studying the impact of fission yield uncertainties on the nuclear fuel cycle with

TALYS/GEF and the Total Monte Carlo method // Nuclear Data Sheets. – 2015. – V. 123. – P. 220-224.
15. Schmidt K.-H., Steinhäuser S., Böckstiegel C., Grewe A., Heinz A., Junghans A.R., Benlliure J., Clerc H.-G., de Jong M., Müller J., Pfützner M., Voss B. Relativistic radioactive beams: A new access to nuclear-fission studies // Nuclear Physics A. – 2000. – V. 665, Is. 3-4. – P. 221-267.
16. Tudora A. Prompt fission neutron data calculation using experimental fission fragment charge distributions in the frame of the Point by Point treatment // Annals of Nuclear Energy – 2010. – V. 37. – P. 43-51.
17. Schiff L.I. Energy-angle distribution of thin target bremsstrahlung // Phys. Rev. – 1951. – V. 83, No 2. – P. 252-253.
18. Hai-Bo Xu, Xian-Ke Peng and Chao-Bin Chen Monte Carlo simulation for bremsstrahlung and photoneutron yields in high-energy x-ray radiography // Chin. Phys. B – 2010. – V. 19, No. 6. 062901.
19. Naik H., Carrel F., Kim G.N. et al Mass yield distributions of fission products from photo-fission of ^{238}U induced by 11.5–17.3MeV bremsstrahlung // Eur. Phys. J. A - 2013. – V. 49: 94.
20. Evaluated Nuclear Data File (ENDF). Database Version of 2017-10-27 // https://www-nds.iaea.org/exfor/endf.htm
21. Verbeke J.M., Hagmann C., Wright D. Simulation of Neutron and Gamma Ray Emission from Fission and Photofission. LLNL Fission Library 2.0.2. // UCRL-AR-228518-REV-1. Lawrence Livermore National Laboratory. October 24, 2016.
22. CaspersoncR.J., Burke J.T., Scielzo N.D., Escher J.E., McCleskey E., McCles- key M., Saastamoinen A., Spiridon A., Ratkiewicz A., Blanc A. et al. Measurement of the Am240(n,f) cross section using the surrogate-ratio method // Phys Rev C, - 2014. – V. 90. 034601- (1-9).
23. Verboven M., Jacobs E., De Frenne D. Emission of light charged particles in photon induced fission // Phys Rev C – 1994. – V. 49. – P. 991-1000.

Стаття надійшла до редакції 3.12.2017.

И.В. Пилипчинець, О.А. Парлаг, Е.В. Олейников
Институт электронной физики НАН Украины, г. Ужгород
e-mail: igor.profi@gmail.com

МОДЕЛИРОВАНИЕ ВЫХОДОВ ПРОДУКТОВ ФОТОДЕЛЕНИЯ ЯДЕР АКТИНИДОВ, ИНДУЦИРОВАНЫХ ТОРМОЗНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ ЭЛЕКТРОННЫХ УСКОРИТЕЛЕЙ.

Предложен подход, который позволил адаптировать GEF- код для моделирования выходов продуктов фотоделения ядер актиноидов. Проведена симуляция спектра тормозного излучения микротрона М-30 при энергиях электронов 8.5 ÷ 20 МэВ; выполнены расчеты энергии возбуждения для делящихся ядер ^{232}Th, ^{235}U, ^{238}U, ^{237}Np, ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{242}Pu, ^{241}Am и моделирование выходов их продуктов при фотоделении с помощью GEF- кода.
Ключевые слова: ядра актиниды, фотоделение, тормозное излучение, выходы продуктов.

PACS 24.75.+1, 25.85.-w, 25.85. Ec, 25.85. Ca
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.169-177

Pylypchynets, I.V., Parlag, O.O., Oleynikov, E.V.
Istutute of Elecron Physics, Nat. Acad. Sci. of Ukraine, Uzhgorod
e-mail: igor.profi@gmail.com

SIMULATION THE YIELDS OF ACTINIDE NUCLEI PHOTOFISSION PRODUCTS INDUCED BY BREMSSTRAHLUNG OF ELECTRON ACCELERATORS

Introduction: The bremsstrahlung of electron accelerators is widely used to study properties of the (232Th, 235U, 238U, 237Np, 239Pu, 240Pu, 241Am) actinides nuclei photofission products.
Purpose: An approach that allows to adapt the GEF- code to simulate the yields of the products of the photofission of actinide nuclei is proposed.
Results: A simulation of the bremsstrahlung spectrum of the microtron M-30 at electron energies of 8,5 ÷ 20 MeV was carried out. The calculations of the excitation energy have been made for the fissioning nuclei 232Th, 235U, 238U, 237Np, 239Pu, 240Pu, 242Pu, 241Am. The modeling of photofission product yields of nuclei 232Th, 235U, 238U, 237Np, 239Pu, 240Pu, 242Pu, 241Am with the use of GEF-code was carried out.
Conclusion: Calculated outputs of photo-division of nuclear actinides coincide with estimated experimental data within the bounds of errors for the energy domain semen section

Keywords: actinide nuclei, photofission, bremsstrahlung, product yields.
PACS NUMBER: 24.75.+1, 25.85.-w, 25.85. Ec, 25.85.

REFERENCES

1. Nieto M.M. Resource note on photofission of nuclei for ^{235}U and ^{239}Pu detection // Nucl. Sci. - 2004. – Vol. 148, N 3. – P. 458-461.
2. Hollas C.L. , Close D.A. , Moss C.E. Analysis of fissionable material using delayed gamma rays from photofission // Nucl. Instrum. Meth. B. – 1987. – Vol. 24/25. – P. 503-505.
3. Dikiy N.P. , Dovbnya A.N. , Lyashko Yu.V. , Uvarov V.L. Research of transmutation of products of nuclear cycle at the electron accelerator // Problems of atomic science and technology. – 2004. № 1. (42). – P. 203-205.
4. Bedenko S.V., Zolotovsky A.V., Lyzko V.A. et al. Estimation of the Effective Gamma Radiation Flow in Nuclear Reactors with a Graphite Moderator [Otsenka deystvuyushchego znacheniya potoka gamma izlucheniya v yadernykh reaktorakh s grafitovym zamedlitelem] // Publishing house Tomsk Polytechnic un. - 2010. - T. 316. № 2. - P. 72-75.
5. Experimental nuclear reaction data (EXFOR). Database Version 2017-11-10. // https://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm
6. Herman M., Obložinský P., Capote R. Sin M., Trkov A., Ventura A., Zerkin V. Recent developments of the nuclear reaction model code EMPIRE // AIP Conference Proceedings – 2005. – V. 769. – P. 1184-1187.
7. Koning A.J., Rochman D. Modern nuclear data evaluation with the TALYS code system // Nuclear Data Sheets – 2012. – V. 113, Is. 12. – P. 2841-2934.
8. Hecht A.A., Blakeley R.E., Martin W.J., Leonard E. Comparison of Geant4 and

MCNP6 for use in delayed fission radiation simulation // Annals of Nuclear Energy – 2014. – V. 69. – P. 134-138.

9. Vyshnevskyi I.M., Zheltonozhskii V.O., Savrasov A.M., Rovenskykh E.P., Plujko V.A., Davydovska O.I., Gorbachenko O.M. analysis of characteristics of the photonuclear reactions with charged particles in output channel using Empire II and Talys codes // Problems of atomic science and technology, Series: Nuclear Physics Investigations. – 2007. – V. 48, N5. – P. 18-21.
10. Vyshnevskyi I.M., Zheltonozhskii V.O., Savrasov A.M., Rovenskykh E.P., Plujko V.A., Davydovska O.I., Gorbachenko O.M. isomer yield ratios of ^{133}Te, ^{134}I, ^{135}Xe in photofission of ^{235}U with 17 MeV bremsstrahlung // Nuclear Physics and Atomic Energy – 2014. – V. 15, № 2. – P. 111-118.
11. Makwana R., Mukherjee S., Wang Jian-Song, Chen Jian-Song New empirical formula for (γ, n) reaction cross section near GDR peak for elements with Z > 60 // Chinese Physics C – 2017. - V. 41, No. 4. 044105-(1-14).
12. Sabri M., Haddad M. Calculation of fission product yields for some nuclei with TALYS code // EPJ Web of Conferences – 2010. – V. 2. 14003-(1-4).
13. Schmidt K.-H., Jurado B., Schmitt C. General description of fission observables: The GEF code // EPJ Web of Conferences – 2017. – V..04001-(1-7).
14. Pomp S., Al-Adili A., Alhassan E., Gustavsson C., Helgesson P., Hellesen C., Koning A.J., Lantz M., Österlund M., Rochman D., Simutkin V., Sjöstrand H., Solders A. Experiments and theoretical data for studying the impact of fission yield uncertainties on the nuclear fuel cycle with TALYS/GEF and the Total Monte Carlo method // Nuclear Data Sheets. – 2015. – V. 123. – P. 220-224.
15. Schmidt K.-H., Steinhäuser S., Böckstiegel C., Grewe A., Heinz A., Junghans A.R., Benlliure J., Clerc H.-G., de Jong M., Müller J., Pfützner M., Voss B. Voss Relativistic radioactive beams: A new access to nuclear-fission studies // Nuclear Physics A. – 2000. – V. 665, Is. 3-4. – P. 221-267.
16. Tudora A. Prompt fission neutron data calculation using experimental fission fragment charge distributions in the frame of the Point by Point treatment // Annals of Nuclear Energy – 2010. – V. 37. – P. 43-51.
17. Schiff L.I. Energy-angle distribution of thin target bremsstrahlung // Phys. Rev. – 1951. – V. 83, No 2. – P. 252-253
18. Hai-Bo Xu, Xian-Ke Peng and Chao-Bin Chen Monte Carlo simulation for bremsstrahlung and photoneutron yields in high-energy x-ray radiography // Chin. Phys. B – 2010. – V. 19, No. 6. 062901.
19. Naik H., Carrel F., Kim G.N. et al Mass yield distributions of fission products from photo-fission of ^{238}U induced by 11.5–17.3MeV bremsstrahlung // Eur. Phys. J. A - 2013. – V. 49: 94.
20. Evaluated Nuclear Data File (ENDF). Database Version of 2017-10-27 // https://www-nds.iaea.org/exfor/endf.htm
21. Verbeke J.M., Hagmann C., Wright D.Simulation of Neutron and Gamma Ray Emission from Fission and Photofission. LLNL Fission Library 2.0.2. // UCRL-AR-228518-REV-1. Lawrence Livermore National Laboratory. October 24, 2016.
22. CaspersoncR.J., Burke J.T., Scielzo N.D., Escher J.E., McCleskey E., McCles- key M., Saastamoinen A., Spiri- don A., Ratkiewicz A., Blanc A. et al. Measurement of the Am240(n,f) cross section using the surrogate-ratio method // Phys Rev C, - 2014. – V. 90. 034601- (1-9).
23. Verboven M., Jacobs E., De Frenne D. Emission of light charged particles in photon induced fission // Phys Rev C – 1994. – V. 49. – P. 991-1000.

© Ужгородський національний університет

УДК 539.142: 539.144.3
PACS 21.60.-n, 21.10.-k
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.178-190

Р.М. Плекан, В.Ю. Пойда
Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Капітульна, 9а
кафедра теоретичної фізики, відділення фізики ядра та елементарних частинок
e-mail: dep-nuclphys@uzhnu.edu.ua

РОЗРАХУНОК СПЕКТРІВ ДВОНУКЛОННИХ СТАНІВ ПАРНО-ПАРНИХ ЯДЕР ^{64}Zn ТА ^{74}Se В АДІАБАТИЧНОМУ НАБЛИЖЕННІ

У рамках адіабатичної тричастинкової моделі проведено теоретичний опис стаціонарних станів деформованих парно-парних ядер, середнє самоузгоджене поле яких змодельовано анізотропним потенціалом Вудса-Саксона. Для чисельного знаходження енергетичного спектру аксіально-симетричних деформованих ядер розроблено алгоритм та пакет прикладних комп'ютерних програм. Ефективність адіабатичного підходу проілюстровано на прикладі чисельного розрахунку спектрів парно-парних ядер ^{64}Zn та ^{74}Se, у котрих у зовнішніх незаповнених оболонках містяться два валентні нуклони.
Ключові слова: парно-парне ядро, ядерний остів, адіабатичне наближення, гіперсферичний адіабатичний підхід, кутові і радіальні кореляції нуклонів.

Вступ

Врахування в теорії ядра кутових та радіальних кореляцій нуклонів та відповідно ефектів спарювання нуклонів одного сорту призводить до необхідності мати методи розрахунку хвильових функцій та енергетичного спектру стаціонарних станів атомних ядер, які виходять за рамки однонуклонних наближень типу Хартрі-Фока [1]. З цією метою для опису двонуклонних станів парно-парних ядер у роботах [2, 3] запропоновано гіперсферичний адіабатичний підхід (ГАП), на базі якого у працях [4, 5] розвинуто цілісну адіабатичну тричастинкову модель ядра (АТМ). У рамках цієї моделі проведено теоретичний опис енергетичного спектру збуджених станів сферичного парно-парного ядра, яке моделюється як система парно-парний ядерний остів плюс два валентні нуклони у зовнішній незаповненій оболонці. В основі запропонованої моделі лежить припущення про відокремлення руху валентних нуклонів ядра на швидкий рух по кутових змінних, тобто на сфері $S^5(\Omega)$, і адіабатичний (повільний) рух вздовж гіперрадіусу R та введення зручного для опису поняття потенціального терму нуклонів $U_\mu(R)$. Зауважимо, що АТМ базується на припущенні про існування середнього самоузгодженого поля моделі незалежних частинок, але в ній враховується також короткодіюча залишкова взаємодія валентних нуклонів, яка зумовлює їх парні кореляції.

Ефективність АТМ доведена на прикладі чисельних розрахунків енергетичних спектрів для цілого ряду парно-парних ядер ^{6}He, ^{10}Be, ^{14}C, ^{16}C, ^{18}Ne, ^{18}O, ^{42}Ca, ^{58}Ni у припущенні сферично-симетричного поля ядра. Розраховані енергії збуджених станів спарених нуклонів узгоджуються в цілому з існуючими експериментальними даними [6, 7], однак одночасно вказують і на необхідність врахування ефектів поляризації парно-парного остова, тобто врахування деформації поля ядерного остова валентними нуклонами. Зауважимо, що в рамках АТМ проведено також і теоретичний опис збуджених станів деформованих парно-парних ядер, середнє самоузгоджене поле яких моделюється анізотропним потенціалом Вудса-Саксона.

Опис спектру деформованих парно-парних ядер з аксіальною симетрією

Нагадаймо ж коротко основні моменти опису енергетичного спектру деформованих ядер, змодельованих анізотропним потенціалом Вудса-Саксона. При розрахунках стаціонарних станів деформованих ядер тривалий час в якості ефективного потенціалу середнього ядерного поля використовувався осциляторний потенціал Нільссона [8], за допомогою якого була отримана досить проста схема одержання одночастинкових рівнів і відповідних хвильових функцій станів деформованих ядер. Однак потенціал Нільссона має ряд істотних недоліків. А саме: він має нескінченну глибину, а тому хвильові функції станів мають неправильну поведінку на границі ядра і поза нею; спін-орбітальна взаємодія у схемі Нільссона не залежить від масового числа A і параметрів деформації. Тому останнім часом широкого застосування при розрахунках енергетичного спектру деформованих ядер одержав більш реалістичний скінченний анізотропний потенціал Вудса-Саксона [9, 10]. Уперше задачу знаходження одночастинкових рівнів і хвильових функцій станів у деформованому потенціалі Вудса-Саксона розглянули Немировський і Чепурнов [9]. Пізніше в одночастинковому наближенні були запропоновані [10] інші методи розв'язку стаціонарного рівняння Шредінгера з анізотропним ядерним потенціалом Вудса-Саксона.

У рамках АТМ опис двонуклонних станів парно-парного ядра як системи остів плюс два нуклони проводиться в термінах колективних змінних, роль яких відіграють гіперсферичні координати - гіперрадіус R, гіперкут α

$$R = (r_1^{\,2} + r_2^{\,2})^{1/2}, \ \alpha = \mathrm{arctg}(r_2 / r_1) \quad (1)$$

та звичайні сферичні кути валентних нуклонів $\{\varphi_i, \theta_i\}$; i=1,2.

Стаціонарні стани двох зовнішніх валентних нуклонів у деформованому полі ядра, яке моделюється анізотропним потенціалом Вудса-Саксона, визначаються з рівняння Шредінгера

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_1}\Delta_1 - \frac{\hbar^2}{2m_2}\Delta_2 + \hat{V} - E\right)\Psi = 0, \quad (2)$$

де оператор потенціальної енергії системи має вигляд

$$\hat{V} = U_1(\vec{r}_1,\beta) + V_{so}(\vec{r}_1,\vec{\sigma}_1,\beta) + U_2(\vec{r}_2,\beta) + \\ + V_{so}(\vec{r}_2,\vec{\sigma}_2,\beta) + V_{зал}(\vec{r}_1,\vec{r}_2). \quad (3)$$

Тут $U_i(\vec{r}_i,\beta)$ - чисто ядерна потенціальна енергія i-го нуклона в точці $\vec{r}_i$ в деформованому полі Вудса-Саксона

$$U_i(\vec{r}_i,\beta) = -V_0\left(1 \pm 0.63\cdot\frac{N-Z}{A}\right)\left(1+\exp\left[\frac{(r_i - R(\theta_i,\beta)}{a}\right]\right)^{-1}, \quad (4)$$

де у формулі відповідно: "+" для протона, "–" для нейтрона. Радіус $R(\theta_i,\beta)$ деформованого аксіально-симетричного ядерного поля залежить від параметра деформації β і кута θ_i відносно осі симетрії ядра і вибирається у вигляді

$$R(\theta_i,\beta) = R_0[1+\beta Y_{20}(\theta_i)]. \quad (5)$$

де $R_0 = r_0 A^{1/3}$ - радіус сферичного ядра; r_0 =1.2÷1.4 фм. У цьому випадку деформоване ядро набуває форму еліпсоїда обертання. У випадку ж, коли на зовнішній оболонці містяться два валентні протони, до потенціалу (4) додається потенціал кулонівської взаємодії V_k, який моделюється для простоти у вигляді [11]

$$V_k = \sum_{i=1}^{2} V_k(r_i), \quad (6)$$

де

$$V_k(r_i) = \begin{cases} \left[\frac{3}{2} - \frac{1}{2}\left(\frac{r_i}{R_0}\right)^2\right]\frac{e^2(z-2)}{R_0}, & r_i \le R_0, \\ \frac{e^2(z-2)}{r_i}, & r_i > R_0. \end{cases} \quad (7)$$

Тут $V_k(r_i)$ - потенціальна енергія взаємодії i-ого протона з кулонівським полем рівномірно зарядженої кулі.

Для спрощення розрахунків залишкова взаємодія валентних нуклонів між собою моделюється потенціалом з нульовим радіусом дії із врахуванням відштовхування нуклонів на малих відстанях [12]

$$V_{зал}(\vec{r}_1,\vec{r}_2) = -V_{12}[1 - g\rho(\frac{\vec{r}_1+\vec{r}_2}{2})]\delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_2). \quad (8)$$

У випадку валентних протонів до виразу (8) додається кулонівська взаємодія валентних протонів між собою

$$V_{k12} = \frac{e^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|}. \qquad (9)$$

Оператори спін-орбітальної взаємодії у нашому випадку нецентрального ядерного потенціалу $U_i(\vec{r}_i, \beta)$ мають, як відомо, вигляд [9]

$$V_{so}(\vec{r}_i, \vec{\sigma}_i, \beta) = -\chi[\vec{p}_i \times \vec{\sigma}_i] \cdot \mathrm{grad}\, U_i(\vec{r}_i, \beta). \quad (10)$$

Зауважимо, що використання у випадку парно-парного ядра гамільтоніана з центральною двочастинковою і спін-орбітальною одночастинковою взаємодіями відповідає так званому наближенню проміжного зв'язку.

Виділимо у (2) сферично-симетричну частину взаємодії і добавку, яка задає відхилення взаємодії від сферично-симетричної, і в результаті одержимо рівняння

$$(-\frac{\hbar^2}{2m_1}\Delta_1 - \frac{\hbar^2}{2m_2}\Delta_2 + V(\vec{r}_1, \vec{\sigma}_1, \vec{r}_2, \vec{\sigma}_2, \beta) - \\ - V(\vec{r}_1, \vec{\sigma}_1, \vec{r}_2, \vec{\sigma}_2, \beta = 0) + V(\vec{r}_1, \vec{\sigma}_1, \vec{r}_2, \vec{\sigma}_2, \beta = 0) + \\ + V_{зал}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) - E)\Psi = 0. \qquad (11)$$

Розв'язки рівняння (11) зручно шукати в гіперсферичних координатах (1) у вигляді суперпозиції розв'язків

$$\Psi_K(R, \Omega) = \sum_n \sum_J C_{nJ} \Psi_{nJK}(R, \Omega) \quad (12)$$

стаціонарного рівняння Шредінгера

$$(-\frac{\hbar^2}{2m_1}\Delta_1 - \frac{\hbar^2}{2m_2}\Delta_2 + V(\vec{r}_1, \vec{\sigma}_1, \vec{r}_2, \vec{\sigma}_2, \beta = 0) + \\ + V_{зал}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) - \varepsilon_{nJK})\Psi_{nJK} = 0 \qquad (13)$$

зі сферично-симетричним потенціалом $V(\vec{r}_1, \vec{\sigma}_1, \vec{r}_2, \vec{\sigma}_2, \beta = 0)$. Стаціонарні стани

$$\Psi_{nJK} \equiv \Psi_{nJK}(R, \Omega) = F_{nJK}(R)\Phi_{nJK}(R, \Omega) \quad (14)$$

рівняння (13) знаходяться згідно схеми праць [2, 3] для сферичного ядра.

Підставивши (12) в (11) і помноживши всі члени шуканого рівняння на $\Psi^*_{nJK}(R, \Omega)$ та проінтегрувавши по всій області змінних гіперсферичних координат, одержимо

$$\sum_n \sum_J (\varepsilon_{nJ} - E) C_{nJ} \delta_{nn'} \delta_{JJ'} + \\ + \sum_n \sum_J C_{nJ} \left\langle \Psi_{n'J'K'} \middle| \tilde{V}(\vec{r}_1, \vec{\sigma}_1, \vec{r}_2, \vec{\sigma}_2, \beta) \middle| \Psi^*_{nJK} \right\rangle = 0, \qquad (15)$$

де

$$\tilde{V}(\vec{r}_1, \vec{\sigma}_1, \vec{r}_2, \vec{\sigma}_2, \beta) = V(\vec{r}_1, \vec{\sigma}_1, \vec{r}_2, \vec{\sigma}_2, \beta) - \\ - V(\vec{r}_1, \vec{\sigma}_1, \vec{r}_2, \vec{\sigma}_2, \beta = 0) = \\ = \sum_{i=1}^{2} [\tilde{U}_i(\vec{r}_i, \beta) + \tilde{V}_{iso}(\vec{r}_i, \vec{\sigma}_i, \beta)], \qquad (16)$$

$$\tilde{U}_i(\vec{r}_i, \beta) = U_i(\vec{r}_i, \beta) - U_i(\vec{r}_i, \beta = 0), \qquad (17)$$

$$\tilde{V}_{iso}(\vec{r}_i, \vec{\sigma}_i \beta) = V_{iso}(\vec{r}_i, \vec{\sigma}_i, \beta) - V_{iso}(\vec{r}_i, \vec{\sigma}_i, \beta = 0). \quad (18)$$

Спін-орбітальну добавку в потенціалі (16) можна представити у вигляді

$$\tilde{V}_{so}(\vec{r}_1, \vec{\sigma}_1, \vec{r}_2, \vec{\sigma}_2, \beta) = W_1 + W_2 + W_3, \quad (19)$$

де

$$W_1 = -\chi \sum_{i=1}^{2} \frac{1}{r_i} \frac{\partial \tilde{U}_i(r_i, \beta)}{\partial r_i} (p_{\theta_i} \sigma_{\varphi_i} - \frac{1}{\sin\theta_i} p_{\varphi_i} \sigma_{\theta_i}), \quad (20)$$

$$W_2 = -\chi \sum_{i=1}^{2} \frac{1}{r_i^2 \sin\theta_i} \frac{\partial \tilde{U}_i(r_i, \beta)}{\partial \theta_i} p_{\varphi_i} \sigma_{r_i}, \quad (21)$$

$$W_3 = \chi \sum_{i=1}^{2} \frac{1}{r_i} \frac{\partial \tilde{U}_i(r_i, \beta)}{\partial \theta_i} p_{r_i} \sigma_{\varphi_i}, \quad (22)$$

причому

$$p_{r_i} = -i\hbar \frac{\partial}{\partial r_i}, \; p_{\theta_i} = -i\hbar \frac{\partial}{\partial \theta_i}, \; p_{\varphi_i} = -i\hbar \frac{\partial}{\partial \varphi_i}. \qquad (23)$$

У приведених формулах $\sigma_{r_i}, \sigma_{\theta_i}, \sigma_{\varphi_i}$ - матриці Паулі, явний вигляд яких наведено у [9].

Для того, щоб чисельно розв'язати систему рівнянь (15), необхідно мати матричні елементи від потенціалів як чисто ядерної, так і спін-орбітальної взаємодій. Для спрощення задачі будемо нехтувати спін-орбітальною взаємодією, а до уваги візьмемо лише ядерну потенціальну енергію. Для обчислення матричних елементів, які фігурують у (15), зручно провести розклад $\tilde{V}(\vec{r}_1, \vec{\sigma}_1, \vec{r}_2, \vec{\sigma}_2, \beta)$ в ряд по сферичних функціях. Для ядерних частин $\tilde{U}_i(\vec{r}_i, \beta)$ (17) одержимо

$$\tilde{U}_i(\vec{r}_i, \beta) = \sum_{\ell_i m_i} A_{\ell_i m_i}(r_i, \alpha, \beta) Y_{\ell_i m_i}(\theta_i, \varphi_i), \quad (24)$$

де коефіцієнти розкладу $A_{\ell_i m_i}(r_i, \alpha, \beta)$ знаходяться чисельно. Шукані коефіцієнти $A_{\ell_i m_i}(r_i, \alpha, \beta)$ мають таку властивість

$$A_{\ell_i m_i}(r_i, \alpha, \beta) = A_{\ell_i - m_i}(r_i, \alpha, \beta). \quad (25)$$

У розглядуваному нами випадку аксіально-симетричного ядра $m_1 = m_2 = 0$.

Матричний елемент від чисто ядерної взаємодії, який фігурує в рівнянні (15), у термінах гіперсферичних координат буде мати наступний вигляд:

$$\left\langle \Psi_{\mu'}(R,\Omega)\middle|\tilde{U}(R,\alpha,\beta)\middle|\Psi_{\mu}(R,\Omega)\right\rangle = \\ = \int_0^{\infty} dR \int_0^{\pi/2} d\alpha \cdot \left(F_{\mu}(R)\right)^2 \cdot M_{кут}(R,\Omega), \quad (26)$$

де $M_{кут}(R,\Omega)$ – матричний елемент по кутовій частині, який визначається за формулою:

$$M_{кут}(R,\Omega) = \left\langle \Phi_{\mu'}(R,\Omega)\middle|\tilde{U}(R,\alpha,\beta)\middle|\Phi_{\mu}(R,\Omega)\right\rangle = \\ = \sum_{j_1 l_1 j_2 l_2 L} \left(\Phi^{(\mu)}_{j_1 j_2 l_1 l_2}(R,\Omega)\right)^H \cdot \Phi^{(\mu)}_{j_1 j_2 l_1 l_2}(R,\Omega) \times \\ \times \left[\begin{array}{l} \begin{Bmatrix} l_1 & l_1 & L \\ j_1 & j_1 & 1/2 \end{Bmatrix} \cdot \frac{(2j_1+1)(2l_1+1)}{\sqrt{4\pi(2L+1)}} \cdot C^{L0}_{l_1 0 l_1 0} \times \\ \times \sum_{m_1} (-1)^{j_1+m_1+j_2+L+1/2} \cdot C^{L0}_{j_1 -m_1 j_1 m_1} \cdot \left(C^{JM}_{j_1 m_1 j_2 m_2}\right)^2 \times \\ \times A_L(R,\alpha,\beta) + \begin{Bmatrix} l_2 & l_2 & L \\ j_2 & j_2 & 1/2 \end{Bmatrix} \times \frac{(2j_2+1)(2l_2+1)}{\sqrt{4\pi(2L+1)}} \times \\ \times \cdot C^{L0}_{l_2 0 l_2 0} \cdot \sum_{m_2} (-1)^{j_2+m_2+j_1+L+1/2} \cdot C^{L0}_{j_2 -m_2 j_2 m_2} \times \\ \times \left(C^{JM}_{j_1 m_1 j_2 m_2}\right)^2 \cdot B_L(R,\alpha,\beta) \end{array} \right], \quad (27)$$

де $A_L(R,\alpha,\beta)$, $B_L(R,\alpha,\beta)$ - коефіцієнти розкладу для першого та другого нуклонів відповідно.

Система однорідних рівнянь (15) має відмінні від нуля розв'язки при умові, що детермінант, складений із коефіцієнтів при невідомих C_{nJ}, є рівний нулеві. Розв'язуючи чисельно систему (15) можна знайти спектр енергії E деформованого ядра та коефіцієнти C_{nJ}, а значить і відповідні хвильові функції стаціонарних станів деформованого ядра. Шукану енергію E деформованого ядра можна визначити за методом збурень по параметру деформації $\beta<1$. У випадку малих деформацій $\beta<1$ за оператор збурення можна розглядати оператор $\tilde{V}(\vec{r}_1,\vec{\sigma}_1,\vec{r}_2,\vec{\sigma}_2,\beta)$, що є різницею між слабо здеформованим потенціалом Вудса-Саксона з параметром деформації β і сферичним потенціалом Вудса-Саксона.

Вираз для енергії довільного рівня E_J деформованого ядра в першому наближенні методу збурень матиме вигляд

$$E = E_J^{(1)} = \varepsilon_J + V_{JJ}, \quad (28)$$

де ε_J - енергія J-го рівня сферично-симетричного ядра, V_{JJ} - шуканий діагональний матричний елемент (26) для J-го рівня.

Чисельні розрахунки спектрів парно-парних ядер

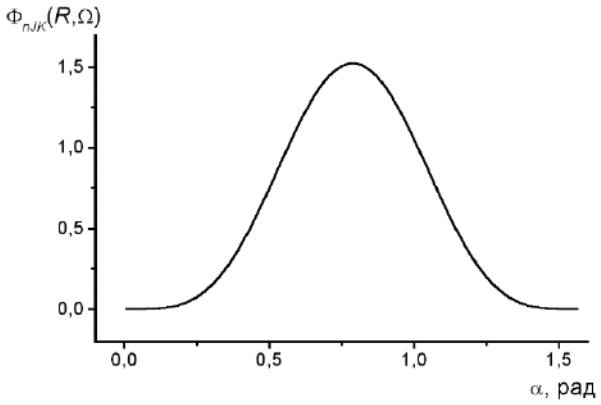
Проілюструємо нижче ефективність АТМ на прикладі розрахунку енергетичного спектру низьколежачих збуджених станів аксіально-симетричних деформованих ядер ^{64}Zn та ^{74}Se, у котрих в незаповнених оболонках містяться два валентні нуклони, а саме: у ^{64}Zn - два протони, а у ^{74}Se - два нейтрони.

У відповідності з асимптотичною поведінкою потенціальних адіабатичних термів $U_{\mu}(R)/R^2$ розрахунки енергетичних спектрів досліджуваних ядер у припущенні сферично-симетричного ядерного поля проводились у такій послідовності. Параметри потенціалу Вудса-Саксона підбирались таким чином, щоб потенціальні терми нуклонів $U_{\mu}(R)/R^2$ для ядер ^{64}Zn та ^{74}Se на асимптотиці при $R\to\infty$ виходили на відповідні рівні ізотопів з масовим числом меншим на одиницю, тобто на рівні ізотопів ^{63}Cu та ^{73}Se відповідно. Визначені у такий спосіб значення параметрів наведені в табл. 1. Далі з визначеними параметрами потенціалів за схемою праць [2, 3] знаходилися спектри рівнів ε_{nJ} і відповідні їм хвильові функції стаціонарних станів у припущенні сферичного ядерного поля.

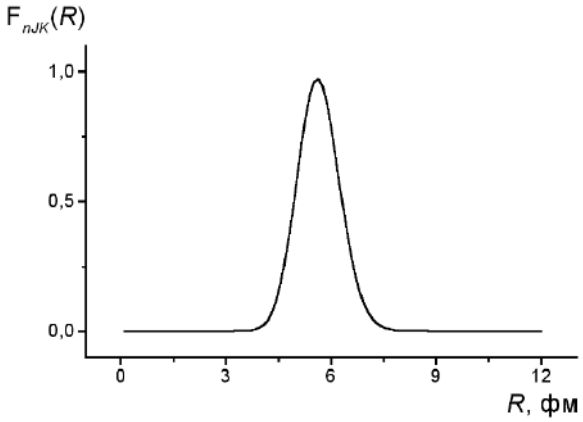
За нуль прийнято енергію, коли обидва валентні нуклони знаходяться в основному стані: для ядра ^{64}Zn - два протони на рівні $1f_{5/2}$, для ядра ^{74}Se - два нейтрони на рівні $2p_{1/2}$. На рис. 1 зображено відповідно кутову $\Phi_{nJK}(R,\Omega)$ (рис. 1.а) та радіальну $F_{nJK}(R)$ (рис. 1.б) хвильові функції основного стану ядра ^{64}Zn. Хвильові ж функції основного стану ядра ^{74}Se зображено на рис. 2 (кутова зображена на рис. 2.а, радіальна - рис. 2.б).

Табл. 1. Набори параметрів потенціалу Вудса-Саксона для ядер ^{64}Zn та ^{74}Se.

Ядро	V_0, МеВ	r_0, фм	a_0, фм	χ, фм^2
^{64}Zn	45.50	1.24	0.63	0.295875
^{74}Se	59.05	1.24	0.63	0.305649

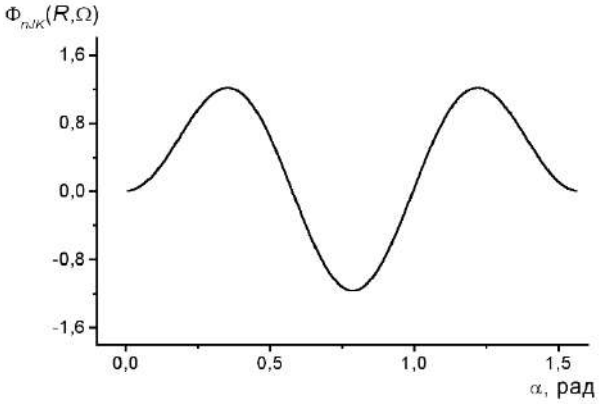


а)

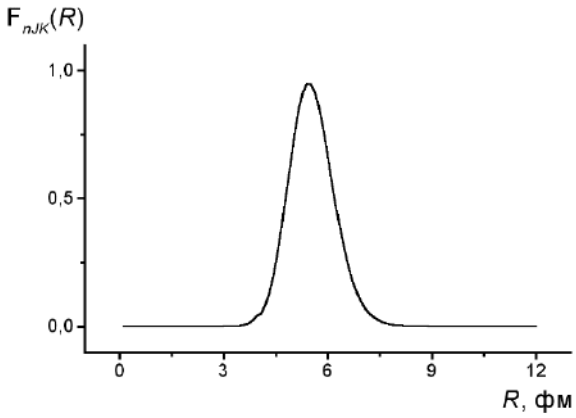


б)

Рис. 1. Функції основного стану ядра ^{64}Zn:
а) кутова функція $\Phi_{nJK}(R,\Omega)$ (R =1,2 фм);
б) радіальна функція $F_{nJK}(R)$.



а)



б)

Рис. 2. Функції основного стану ядра ^{74}Se:
а) кутова функція $\Phi_{nJK}(R,\Omega)$ (R =1,2 фм);
б) радіальна функція $F_{nJK}(R)$.

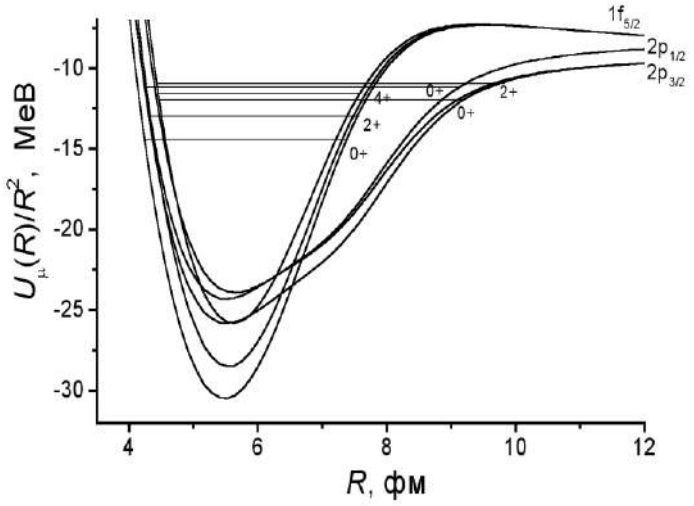
Результати розрахунків енергетичних спектрів ε_{nJ} низьколежачих збуджених станів ядер ^{64}Zn та ^{74}Se наведені в табл. 2, а їхнє розміщення на адіабатичних потенціальних термах $U_\mu(R)/R^2$ зображено відповідно на рис. 3.а і 3.б прямими лініями. У цьому форматі за нуль взято енергії відриву двох нуклонів від відповідних ядер E_{2p}(^{64}Zn)=13.83 МеВ, E_{2n}(^{74}Se)=20.463 МеВ [13].

Як показано вище, задача на знаходження енергетичного спектру стаціонарних станів у припущенні аксіально-симетричного деформованого ядерного поля розбивається на етапи: 1) чисельне знаходження коефіцієнтів розкладу $A_l(r_i,\alpha,\beta)$ (25) в ряд по сферичних функціях $Y_{l0}(\theta_i)$ для чисто ядерного потенціалу $\tilde{U}_i(\vec{r}_i,\beta)$; 2) розрахунок матричного елемента по кутовій частині згідно формули (27); 3) обчислення повного матричного елемента $\left\langle \Psi_{\mu'}(R,\Omega)\middle|\tilde{U}(R,\alpha,\beta)\middle|\Psi_\mu(R,\Omega)\right\rangle$ згідно виразу (26) та енергетичного спектру деформованого ядра за допомогою формули (28).

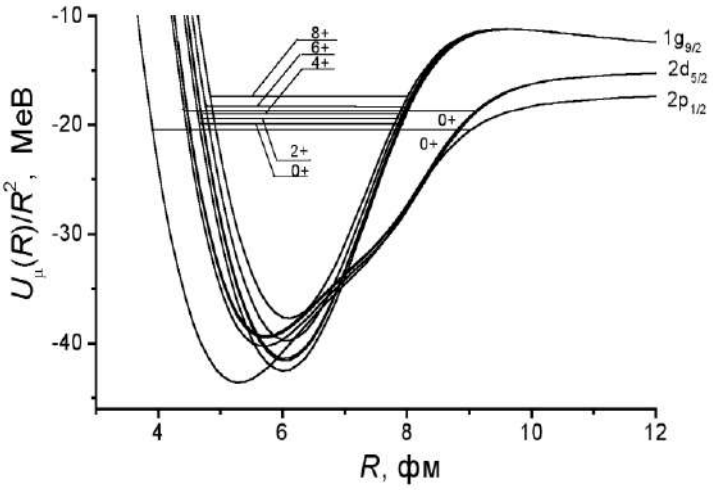
Для чисельного знаходження енергетичних спектрів збуджених станів деформованих парно-парних ядер з аксіальною симетрією розроблено алгоритм та пакет прикладних комп’ютерних програм.

Табл. 2. Результати розрахунків енергії станів ядер ^{64}Zn та ^{74}Se у припущенні сферичного поля.

Ядро ^{A}X	Конфігурація нуклонів	J^{π}	ε_{nJ}, МеВ	$\varepsilon_{\text{експ}}$ [7], МеВ	V_{JJ}, МеВ
^{64}Zn	$1f_{5/2}\,1f_{5/2}$	0+	0	0	0.17481
	$1f_{5/2}\,1f_{5/2}$	2+	0.99153	0.99154	0.71354
	$1f_{5/2}\,1f_{5/2}$	4+	2.30667	2.30668	0.40425
	$2p_{3/2}\,2p_{3/2}$	0+	1.91028	1.91030	0.10216
	$2p_{3/2}\,2p_{3/2}$	2+	2.79372	2.79370	0.13066
	$2p_{1/2}\,2p_{1/2}$	0+	2.60958	2.60945	0.09985
^{74}Se	$2p_{1/2}\,2p_{1/2}$	0+	0	0	0.11298
	$1g_{9/2}\,1g_{9/2}$	0+	0.79871	0.74000	-
	$1g_{9/2}\,1g_{9/2}$	2+	1.26994	1.26903	-
	$1g_{9/2}\,1g_{9/2}$	4+	1.36434	1.36323	-
	$1g_{9/2}\,1g_{9/2}$	6+	2.18611	2.23147	-
	$1g_{9/2}\,1g_{9/2}$	8+	3.19700	3.19844	-
	$2d_{5/2}\,2d_{5/2}$	0+	1.65819	1.65747	0.03328
	$2d_{5/2}\,2d_{5/2}$	2+	2.02930	2.03000	1.04201
	$2d_{5/2}\,2d_{5/2}$	4+	2.10775	2.10801	1.00001



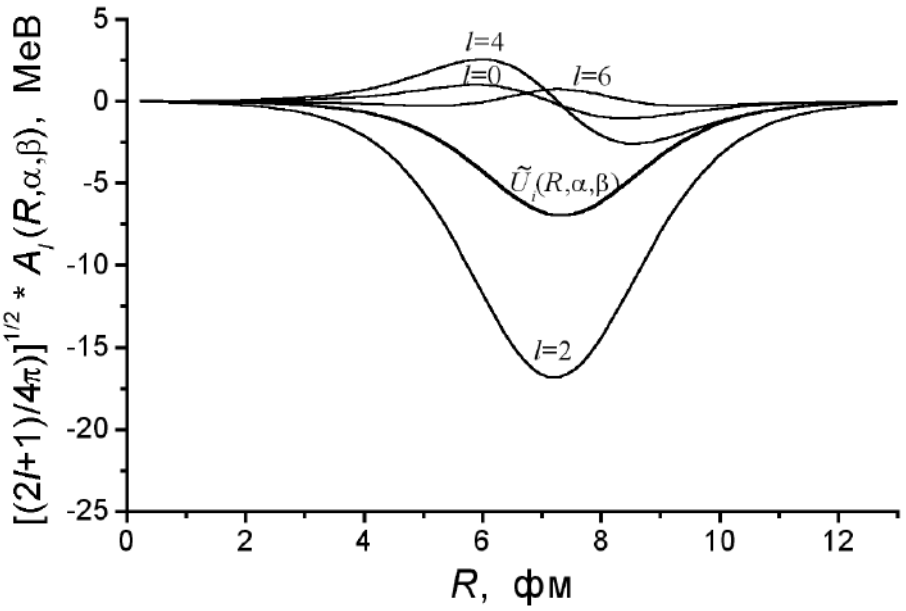
а)



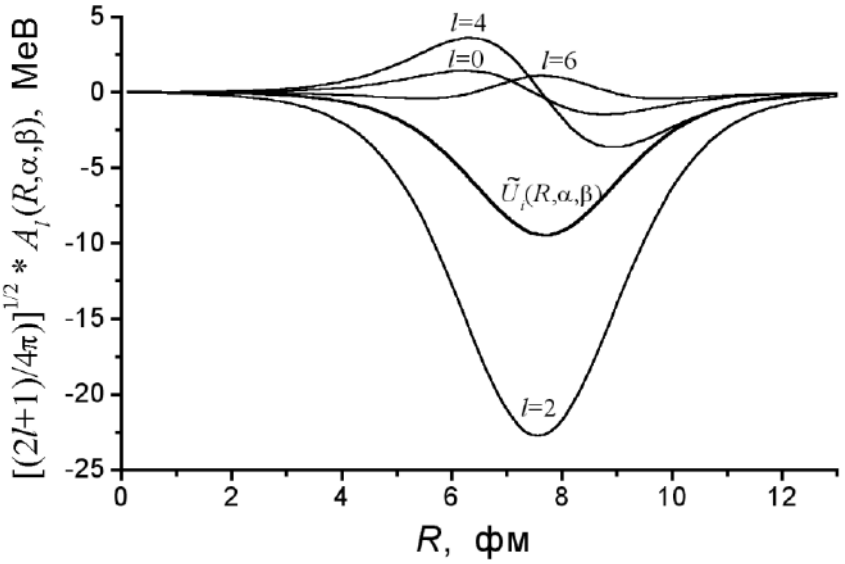
б)

Рис. 3. Хід потенціальних кривих (термів) $U_{\mu}(R)/R^{2}$ та енергетичні рівні ядер у припущенні сферично-симетричного поля: а) для ядра ^{64}Zn; б) для ядра ^{74}Se.

На рис. 4 для i-их валентних нуклонів ядер ^{64}Zn (рис. 4.а) та ^{74}Se (рис. 4.б) зображено хід коефіцієнтів розкладу $A_l(r_i,\alpha,\beta)$ (25) в ряд по сферичних функціях $Y_{l0}(\theta_i)$ для чисто ядерного потенціалу $\tilde{U}_i(\vec{r}_i,\beta)$. Як і слід було очікувати, максимальний вклад у розклад $\tilde{U}_i(\vec{r}_i,\beta)$ дає компонента з $l=2$. Значну величину має і функція з $l=4$. Функції з $l=0$ і $l=6$ значно менші. Таким чином, вклад у розклад потенціалу $\tilde{U}_i(\vec{r}_i,\beta)$ компонент з $l>2$ різко зменшується із збільшенням l.



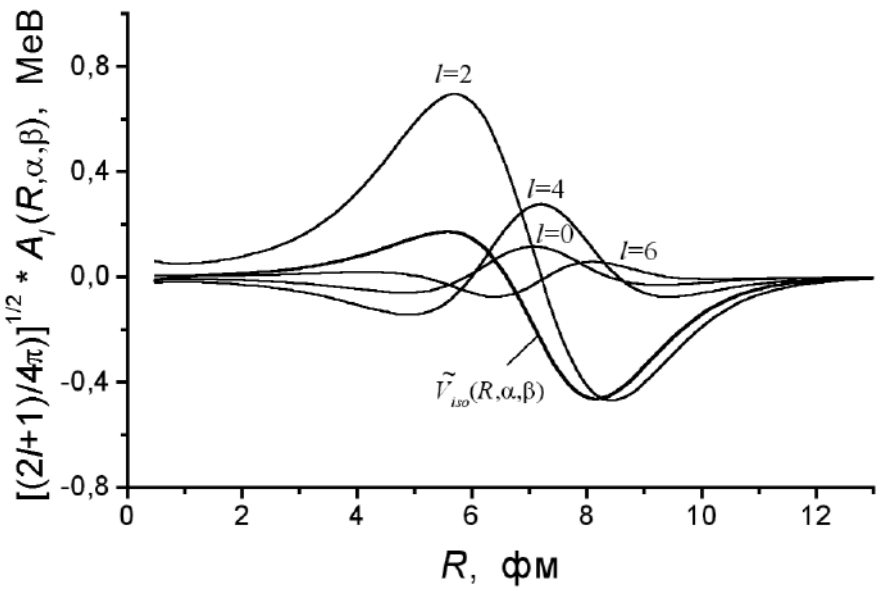
а)



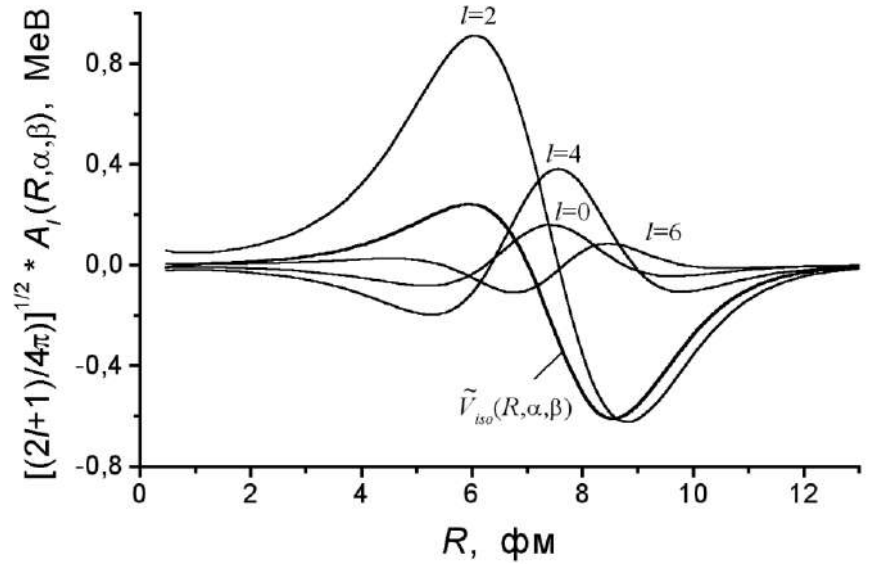
б)

Рис. 4. Функції $[(2l+1)/4\pi]^{1/2}A_l(R,\alpha,\beta)$ як коефіцієнти розкладу для чисто ядерного потенціалу $\tilde{U}_i(R,\alpha,\beta)$ ($\alpha=\pi/4$, β=0.32, $\theta_i=\pi/6$): а) для ядра ^{64}Zn; б) для ядра ^{74}Se.

Така ж поведінка компонент розкладу із різним значенням l характерна і для потенціалу спін-орбітальної взаємодії $\tilde{V}_{iso}(\vec{r}_i,\vec{\sigma}_i,\beta)$ (див. рис. 5.а і 5.б). На рис. 4 і 5 зображено відповідно і шукані потенціальні функції $\tilde{U}_i(\vec{r}_i,\beta)$ та $\tilde{V}_{iso}(\vec{r}_i,\vec{\sigma}_i,\beta)$, які фігурують у виразі (16). Явний ж вигляд самого потенціалу $\tilde{V}(\vec{r}_1,\vec{\sigma}_1,\vec{r}_2,\vec{\sigma}_2,\beta)$ (16), а також його складових частин (як чисто ядерної, так і спін-орбітальної) для досліджуваних парно-парних ядер представлено на рис. 6.а і 6.б відповідно.

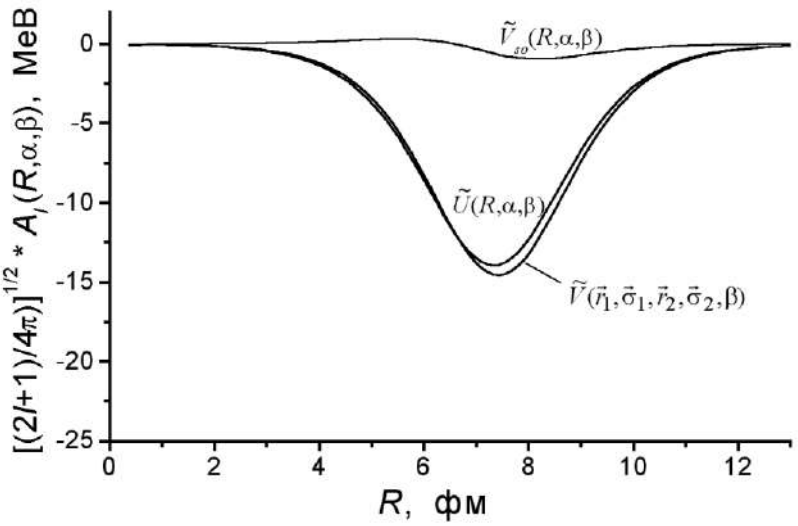


а)

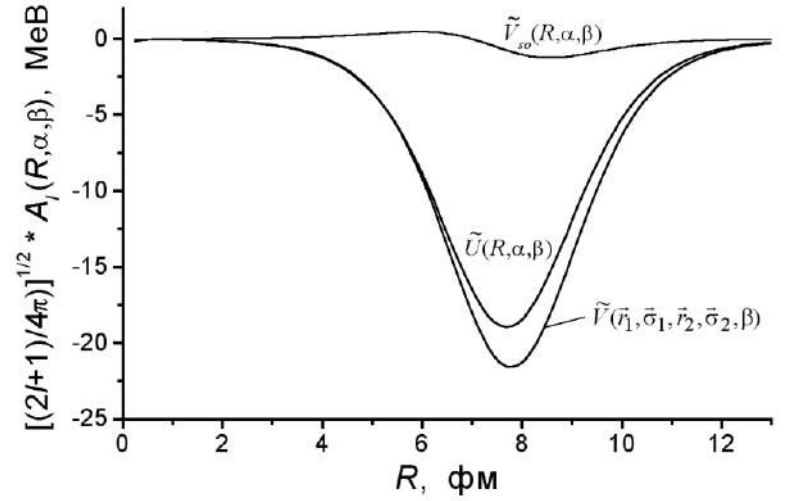


б)

Рис. 5. Функції $[(2l+1)/4\pi]^{1/2} A_l(R,\alpha,\beta)$ як коефіцієнти розкладу для потенціалу спін-орбітальної взаємодії $\tilde{V}_{iso}(R,\alpha,\beta)$ ($\alpha=\pi/4$, β =0.32, $\theta_i=\pi/6$): а) для ядра ^{64}Zn; б) для ядра ^{74}Se.



а)



б)

Рис. 6. Явний вигляд потенціалу $\tilde{V}(\vec{r}_1,\vec{\sigma}_1,\vec{r}_2,\vec{\sigma}_2,\beta)$ (16) та його складових $\tilde{U}(R,\alpha,\beta)$ і $\tilde{V}_{so}(R,\alpha,\beta)$: а) для ядра ^{64}Zn; б) для ядра ^{74}Se.

Вплив залишкової взаємодії на формування енергетичних рівнів

Приведемо ряд міркувань стосовно залишкової взаємодії, роль якої в рамках розглядуваної моделі АТМ відіграє контактна взаємодія у вигляді потенціалу з нульовим радіусом дії (8), та з'ясуємо природу сил спарювання та мультипольних сил. Вибір залишкової взаємодії у вигляді (8) спрощує надалі алгоритм розрахунку енергетичного спектру, бо дозволяє в явному аналітичному вигляді обчислити її матричні елементи і в той же час, мабуть, не спотворює реальної ситуації, хоча в майбутньому можна буде розглянути і більш реалістичні потенціали взаємодії.

Залишкову взаємодію можна розділити на короткодіючу і далекодіючу частини. Для цього розкладемо потенціал (8) у ряд по поліномах Лежандра:

$$V_{зал}(\vec{r}_1,\vec{r}_2) = -V_{12}[1-g\rho(\frac{\vec{r}_1+\vec{r}_2}{2})]\delta(\vec{r}_1-\vec{r}_2) = C\delta(\vec{r}_1-\vec{r}_2) =$$
$$= \sum_{l=0}^{\infty} V_l(\vec{r}_1,\vec{r}_2)P_l(\cos\theta_{12}) = \sum_{l=0}^{\infty} C\delta(\vec{r}_1-\vec{r}_2)\frac{2l+1}{4\pi r_1^2}P_l(\cos\theta_{12}). \quad (29)$$

З останнього виразу легко бачити, що

$$V_l(\vec{r}_1,\vec{r}_2) = C\delta(\vec{r}_1-\vec{r}_2)(2L+1)/4\pi r_1^2 \quad (30)$$

зростає при зростанні l, а отже, враховуючи поведінку $P_l(\cos\theta_{12})$ при зміні кута θ_{12} між векторами $\vec{r}_1$ і $\vec{r}_2$, неважко зрозуміти, що компонента $V_l(\vec{r}_1,\vec{r}_2)$ потенціалу (30) робить внесок у взаємодію валентних нуклонів тільки тоді, коли $|\vec{r}_1-\vec{r}_2|\le R_0/l$. У такому випадку сума доданків з великими $l>2$ визначає короткодіючу частину взаємодії (8), яка зумовлює спарювання нуклонів, а доданок з $l=0$ визначає далекодіючу частину взаємодії і робить додатковий внесок в самоузгоджене поле Вудса-Саксона, яке втримує нуклони. Зрозуміло все ж, що розділення взаємодії (8) на дві частини, які відповідають за короткодіючі сили спарювання та далекодіючі мультипольні сили, є досить умовним.

З'ясовано, що за рахунок залишкової взаємодії валентних нуклонів має місце тонка структура енергетичного спектру $E(J)$ по сумарному кутовому моменту. Сумарний спін J першого збудженого стану валентних нуклонів, що рухаються у полі відповідного парно-парного ядерного остова, рівний 2^+. Енергія зв'язку таких квадрупольних $J^\pi=2^+$ пар нуклонів менша за енергію зв'язку монопольних пар з $J^\pi=0^+$, які відповідальні за формування основного стану ядра, однак вона є достатньою для розгляду таких квадрупольних пар в якості стійких утворень. Квадрупольні $J^\pi=2^+$ пари тотожних нуклонів, обумовлені кореляціями нуклонів за рахунок залишкової взаємодії, можна розглядати як бозони з цілим спіном, рівним 2. Таким чином, збуджені енергетичні рівні у парно-парних ядрах можуть виникати не тільки за рахунок однонуклонних переходів з однієї оболонки в іншу, але також за рахунок кореляційної залишкової взаємодії між нуклонами всередині оболонки, що призводить до тонкої структури конфігураційних рівнів.

Висновки і заключні міркування

У роботі в адіабатичному наближенні проведено теоретичний опис енергетичного спектру деформованих парно-парних ядер з урахуванням квадрупольної деформації. Деформоване поле змодельовано анізотропним потенціалом Вудса-Саксона, а залишкова взаємодія валентних нуклонів – потенціалом нульового радіуса дії із врахуванням відштовхування нуклонів на малих віддалях. Знайдено в явному вигляді матричні елементи взаємодії з урахуванням деформації та отримано вираз для енергій деформованих станів у першому наближенні методу збурень по параметру деформації $\beta<1$.

Ефективність адіабатичного наближення проілюстрована на прикладі чисельного розрахунку енергетичних спектрів двонуклонних збуджених станів парно-парних ядер ^{64}Zn та ^{74}Se. Результати розрахунків узгоджуються в цілому з існуючими експериментальними даними, однак одночасно вказують на необхідність врахування поляризації парно-парного ядерного остова та проведенні змішування конфігурацій у незаповненій оболонці із-за кореляцій тотожних нуклонів.

Також надалі необхідно врахувати у потенціалі (16) спін-орбітальну частину $\tilde{V}_{so}(\vec{r}_1,\vec{\sigma}_1,\vec{r}_2,\vec{\sigma}_2,\beta)$, знайти в явному вигляді її матричний елемент та розробити прикладну комп'ютерну програму для його чисельного знаходження. Слід сподіватись у такому разі на покращення точності отримуваних результатів.

Таким чином, сформульована нами модель АТМ дозволяє в потенціальному підході проводити адекватний теоретичний опис ефектів спарювання нуклонів, їх кутових і радіальних кореляцій, які призводять, зокрема, до утворення надплинних ядерних станів за рахунок залишкової взаємодії і які передбачені в теорії ядра Н.Н. Боголюбовим [14]. Аналізу і опису динаміки утворення надплинних ядерних станів в адіабатичному підході буде присвячена наша подальша робота.

Насамкінець зауважимо, що до сих пір не отримало належного теоретичного обґрунтування питання про детальну структуру нейтронного гало, наявність якого експериментально встановлено для ряду легких ядер ^{6}He, ^{11}Li, ^{14}Be. Характерною рисою гало-ядер є аномально великі середньоквадратичні радіуси розподілу валентних нуклонів, а розподіл нуклонів усього ядра не підлягає закону $A^{1/3}$. Представляє значний науковий інтерес у рамках адіаба-

тичного наближення проведення у майбутньому теоретичних досліджень для з'ясування структури нейтронного гало у реакції передачі двох нейтронів і впливу кореляцій валентних нейтронів на його формування.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Барц Б.И., Болотин Ю.Л., Инопин Е.В., Гончар В.Ю. Метод Хартри-Фока в теории ядра. – Киев: Наукова думка, 1982. – 208 с.
2. Капустей М.М., Плекан Р.М., Пойда В.Ю., Хіміч І.В. Адіабатична тричастинкова оболонкова модель ядра // УФЖ. – 2001. – Т. 46. – № 5-6. – С. 524-528.
3. Khimich I.V., Plekan R.M., Pojda V.Yu. The description of the energy spectrum of nuclei in the adiabatic approach // Radiat. Phys. and Chem. – 2003. – Vol. 68. – Iss. 1-2. – P. 159-163.
4. Plekan R.M., Pojda V.Yu., Khimich I.V. Investigation of correlations of nucleons of even-even nuclei in the framework of the adiabatic three-particle model of nuclei // Ukr. Phys. Journ. – 2004. – Vol. 49. – No 8. – P. 743-753.
5. Plekan R.M., Pojda V.Yu., Khimich I.V. Theoretical description of nucleons paired correlations of even-even nuclei in the adiabatic three-particle model // Nucl. Phys. and Atom. Energy. – 2007. – Vol. 2. – Iss. 20. – P. 47-55.
6. Lederer C.M., Shirley V.S. Table of isotopes.– New York: Wiley, 1978. – 1523 p.
7. Evaluated nuclear structure data file (National Nuclear Data Centre, Braukhaven National Laboratory, New York) [Електронний ресурс]. – Режим доступу: http://www.nndc.bnl.gov/ensdf/
8. Nilsson S.G. Binding states of individual nucleons in strongly deformed nuclei // Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. – 1955. – Vol. 29. – No 16. – P. 1-69.
9. Немировский П.Э., Чепурнов В.А. Нейтроннные состояния в сдеформированном оптическом потенциале // ЯФ. – 1966. – Т. 3. – Вып. 6. – С. 998-1010.
10. Гареев Ф.А., Иванова С.П., Соловьев В.Г. и др. Одночастичные энергии и волновые функции потенциала Саксона-Вудса и неротационные состояния нечетных ядер в области 150<A<190 // ФЭЧАЯ. – 1973. – Т. 4. – Вып. 2. – С. 357-455.
11. Соловьев В.Г. Теория атомного ядра: ядерные модели. – Москва: Энергоиздат, 1981. – 296 с.
12. Михайлов В.М., Крафт О.Е. Ядерная физика. – Ленинград: из-во ЛГУ, 1988. – 328 с.
13. Немец О.Ф., Гофман Ю.В. Справочник по ядерной физике. – Киев: Наукова думка, 1975. – 416 с.
14. Боголюбов Н.Н. К вопросу об условии сверхпроводимости в теории ядерной материи // Доклады АН СССР. – 1958. – Т. 119. – № 1. – С. 52-55.

Стаття надійшла до редакції 3.12.2017.

Р.М. Плекан, В.Ю. Пойда
Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, ул. Капитульная, 9а

РАСЧЕТ СПЕКТРОВ ДВОНУКЛОННЫХ СОСТОЯНИЙ ЧЕТНО-ЧЕТНЫХ ЯДЕР ^{64}Zn И ^{74}Se В АДИАБАТИЧЕСКОМ ПРИБЛИЖЕНИИ

В рамках адиабатической трехчастичной модели проведено теоретическое описание стационарных состояний деформированных четно-четных ядер, среднее самосогласованное поле которых смоделировано анизотропным потенциалом Вудса-Саксона. Для численного нахождения энергетического спектра аксиально-симметрических деформированных ядер разработаны алгоритм

и пакет прикладных компьютерных программ. Эффективность адиабатического подхода проиллюстрирована на примере численного расчета спектров четно-четных ядер ^{64}Zn и ^{74}Se, у которых во внешних незаполненных оболочках находятся два валентных нуклона.

Ключевые слова: четно-четное ядро, ядерный остов, адиабатическое приближение, гиперсферический адиабатический подход, угловые и радиальные корреляции нуклонов.

PACS 21.60.-n, 21.10.-k
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.178-190

R.M. Plekan, V.Yu. Pojda
Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Kapitulna Str., 9a

CALCULATION OF SPECTRA OF TWO-NUCLEON STATES OF EVEN-EVEN NUCLEI ^{64}Zn AND ^{74}Se IN THE ADIABATIC APPROXIMATION

The present article deals with detailed theoretical studies of pairing correlations between nucleons in the potential approach in the context of the adiabatic three-particle model of nucleus. In the mentioned model the even-even spherical (or deformed) nucleus has been considered as a system of the corresponding core and two valence nucleons which are moving in the static field of the core. The model is based on the assumption that the valence nucleons motion consists of two components in the R^6 space: rapid angular nucleons motion within the $S^5(\Omega)$ sphere and adiabatic (slow) motion of nucleons along hyperradius R. Stationary states of deformed even-even nuclei whose mean self-consistent field being simulated by anisotropic Woods-Saxon potential, are described in the framework of the adiabatic three-particle model.

An algorithm and relevant software applications are elaborated in order to obtain numerically the energy spectrum of axially symmetrical deformed nuclei. The efficiency of the adiabatic approach is illustrated for the example of the numerical calculation of spectra of the axially symmetrical deformed even-even nuclei ^{64}Zn and ^{74}Se which have two valence nucleons in the outer unfilled shells. The calculated energies of excited states are in agreement with the experimental data for the region of lightweight nuclei while for the region of middle and heavy nuclei the effect of polarization of the even-even core must be taken into account. The thin structure of the energy spectrum by total angular momentum of the nucleus was found and was explained due to the residual interaction of valence nucleons. The results of this work will be first of all of a fundamental character and will give new information on the mechanisms of formation of low-lying even-even nuclei states.

Keywords: even-even nucleus, nuclear core, Schrödinger's equation, adiabatic approximation, hyperspherical adiabatic approach, correlations of nucleons.

REFERENCES

1. Barts, B.I., Bolotin, Yu.L., Inopin, Ye.V., Gonchar, V.Yu. (1982), The Hartree-Fock method in theory of nucleus [Metod Khartri-Foka v teorii yadra], Naukova dumka, Kiev, 208 p.
2. Kapustey, M.M., Plekan, R.M., Pojda, V.Yu., Khimich, I.V. (2001), "Adiabatic three-particle shell model of nucleus" ["Adiabatychna trychastynkova obolonkova model' yadra"], Ukr. Phys. Journ. [Ukr. Fiz. Zhurn.], vol. 46, No 5-6, pp. 524-528.
3. Khimich, I.V., Plekan, R.M., Pojda, V.Yu. (2003), The description of the energy spectrum of nuclei in the adiabatic approach, Radiat. Phys. and Chem., vol. 68, iss. 1-2, pp. 159-163.
4. Plekan, R.M., Pojda, V.Yu., Khimich, I.V. (2004), Investigation of correlations of nucleons of even-even nuclei in the framework of the adiabatic three-particle model of nuclei, Ukr. Phys. Journ., vol. 49, No 8, pp. 743-753.

5. Plekan, R.M., Pojda, V.Yu., Khimich, I.V. (2007), Theoretical description of nucleons paired correlations of even-even nuclei in the adiabatic three-particle model, Nucl. Phys. and Atom. Energy, vol. 2, iss. 20, pp. 47-55.
6. Lederer, C.M., Shirley, V.S. (1978), Table of isotopes: 7-th edition, Wiley, New York, 1523 p.
7. Evaluated nuclear structure data file, National Nuclear Data Centre, Braukhaven National Laboratory, New York, available at: www.nndc.bnl.gov/ensdf/
8. Nilsson, S.G. (1955), Binding states of individual nucleons in strongly deformed nuclei, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk., vol. 29, No 16, pp. 1-69.
9. Nemirovskiy, P.E., Chepurnov, V.A. (1966), "Neutron states in a deformed optical potential" ["Neytronnnyye sostoyaniya v sdeformirovannom opticeskom potentsiale"], Physics of Atomic Nuclei [Yadernaya fizika], vol. 3, iss. 6, pp. 998-1010.
10. Gareyev, F.A., Ivanova, S.P., Solov'yev, V.G. et all. (1973), "Single-particle energies and wave functions of the Saxon-Woods potential and nonrotational states of odd nuclei in the region 150<A<190" ["Odnochastichnyye energii i volnovyye funktsii potentsiala Saksona-Vudsa i nerotatsionnyye sostoyaniya nechetnykh yader v oblasti 150<A<190"], Physics of Elementary Particles and Atomic Nuclei [Fizika Elementarnykh Chastits i Atomnykh Yyader], vol. 4, iss. 2, pp. 357-455.
11. Solov'yev, V.G. (1981), Theory of the atomic nucleus: nuclear models [Teoriya atomnogo yadra: yadernyye modeli], Energoizdat, Moscow, 296 p.
12. Mikhaylov, V.M., Kraft, O.Ye. (1975), Nuclear physics [Yadernaya fizika], publ. by Leningrad State University, Leningrad, 328 p.
13. Nemets, O.F., Gofman, Yu.V. (1975), Reference book of nuclear physics [Spravochnik po yadernoy fizike], Naukova dumka, Kiev, 416 p.
14. Bogolyubov, N.N. (1958), "To the question of the condition of superconductivity in the theory of nuclear matter" ["K voprosu ob uslovii sverkhprovodimosti v teorii yadernoy materii"], Reports of the Academy of Sciences of the USSR [Doklady Akademii nauk SSSR], vol. 119, No 1, p. 52-55.

© Ужгородський національний університет

УДК 539.12.01
PACS 03.65.Nk, 13.88.+e, 21.45.Bc
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.191-195

В.І. Жаба
Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54
e-mail: viktorzh@meta.ua

ДЕЙТРОН: АНАЛІТИЧНІ ФОРМИ ХВИЛЬОВОЇ ФУНКЦІЇ ТА РОЗПОДІЛ ГУСТИНИ

По отриманим раніше коефіцієнтам чотирьох аналітичних форм хвильової функції дейтрона в координатному представленні для нуклон-нуклонного потенціалу Reid93 розраховано розподіл густини в дейтроні та густину переходу. Такі розрахунки допомагають оцінити коректність вибору аналітичної форми для апроксимації хвильової функції, а також одержати інформацію про такі характеристики дейтрона як зарядовий формфактор, тензорна поляризацію та розподіл імпульсів.

Ключові слова: дейтрон, хвильова функція, аналітична форма, апроксимація, розподіл густини, густина переходу.

Вступ

Дейтрон є найпростішим ядром. Він складається з двох елементарних частинок - протона і нейтрона. Простота і наочність будови дейтрона робить його зручною лабораторією для вивчення і моделювання нуклон-нуклонних сил. На сьогодні дейтрон добре вивчений експериментально і теоретично. Експериментально визначені значення статичних характеристик дейтрона добре узгоджуються з експериментальними даними. Однак незважаючи на це, існують певні теоретичні неузгодженості і проблеми. Наприклад, в деяких роботах хвильова функція дейтрона (ХФД) в координатному представленні має вузли поблизу початку координат [1]. Існування таких вузлів основного і єдиного стану дейтрона свідчить про неузгодженості і неточності в реалізації чисельних алгоритмів в розв'язанні подібних задач або про особливості потенціальних моделей дейтрона.

Також слід відмітити, що такі потенціали NN взаємодії, як Боннський, Паризький, Московський, потенціали Неймегенської групи [2], Argonne v18, NLO, NNLO та N^3LO, Idaho N^3LO чи Oxford мають досить непросту структуру і доволі громіздкий запис. Оригінальний потенціал Reid68 був параметризований Неймегенською групою на основі фазового аналізу і отримав назву Reid93.

Крім того, ХФД може бути представлена таблично: через відповідні масиви значень радіальних хвильових функцій. Іноді при чисельних розрахунках оперувати такими масивами чисел доволі складно і взагалі незручно. І текст програм для чисельних розрахунків є громіздкий, перевантажений і нечитабельним. Тому є доцільним отримання більш простих аналітичних форм представлення ХФД. У подальшому по них можна розрахувати формфактори і тензорну поляризацію, що характеризують структуру дейтрона.

ХФД у зручній формі необхідні для використання у розрахунках як поляризаційних характеристик дейтрона, так і для оцінки теоретичних значень спінових спостережуваних в *dp*- розсіянні.

У даній роботі розглядається вплив вибору аналітичних форм при апроксимації на величини розподілу густини та густину переходу в дейтроні.

Аналітичні форми ХФД

В 2000-х рр. були запропоновані нові аналітичні ХФД в координатному представленні. Серед них слід відмітити

параметризації Дубовиченко і Бережного-Корда-Гах [3], а також параметризацію у виді [4]

$$\begin{cases} u(r) = r\sum_{i=1}^{N} A_i e^{-a_i r^2}, \\ w(r) = r\sum_{i=1}^{N} B_i e^{-b_i r^2}; \end{cases} \quad (1)$$

У роботі [5] наявна ще така апроксимація із застосуванням функцій Лагерра ψ_{3n}

$$\begin{cases} u(r) = \sum_{n=0}^{N} A_n \psi_{3n}(r), \\ w(r) = \sum_{n=0}^{N} B_n \psi_{3n}(r), \end{cases} \quad (2)$$

Крім форм (1) і (2), у роботах [6] та [7] використано такі аналітичні форми відповідно

$$\begin{cases} u(r) = r^{3/2}\sum_{i=1}^{N} A_i e^{-a_i r^3}, \\ w(r) = r\sum_{i=1}^{N} B_i e^{-b_i r^3}. \end{cases} \quad (3)$$

$$\begin{cases} u(r) = r\sum_{i=1}^{N} A_i e^{-a_i r}, \\ w(r) = r^3\sum_{i=1}^{N} B_i e^{-b_i r}. \end{cases} \quad (4)$$

Причому вибір останньої зумовлений асимптотиками ХФД: $\chi_l(r) \square r^{l+1}$ на малих відстанях та $\chi_l(r) \square e^{-\alpha r}$ при $r \to \infty$.

Незважаючи на громіздкі і довготривалі розрахунки і мінімізації χ^2 (до величини менших за 10^{-4}), за допомогою формул (1)-(4) проводилась апроксимація чисельних значень ХФД для потенціалів Неймегенської групи (в тому числлі і для Reid93). Масиви чисел становили 839x2 значень для радіальних ХФД в інтервалі r=0-25 fm.

Коефіцієнти аналітичних форм (1)-(4) для потенціалу Reid93 приведені в [4, 6-8] відповідно. Розраховані ХФД не містять надлишкових вузлів поблизу початку координат. Отримані по ХФД статичні параметри і поляризаційні характеристики добре узгоджуються з літературними теоретичними й експериментальними даними.

Розподіл густини в дейтроні

ХФД є двокомпонентною [9]:

$$\Psi_d^{M_d}(r) = R_0(r) Y_{011}^{M_d} + R_2(r) Y_{211}^{M_d}, \quad (5)$$

де $R_0=u/r$; $R_2=w/r$ – радіальні функції S- та D- станів; $Y_{LSJ}^{M_d}$ - спін-кутові функції.

У короткому діапазоні структура дейтрона наочно описується розподілом густини [9] (або нуклонним розподілом густини речовини в дейтроні [3]) $\rho_d^{M_d}(r',\theta)$, який залежить від проекції M_d повного кутового моменту, відстані r' від центра мас і полярного кута θ до r'. Стандартне нормування залежить від міжчастинкової відстані $r = 2r'$

$$\int_0^\infty r^2 \left[R_0^2(r) + R_2^2(r) \right] dr = 1;$$

$$\int \rho_d^{M_d}(r') d^3 r' = 2.$$

Використовуючи (5), для проекцій M_d=0;±1 отримують розподіл густини $\rho_d^{M_d}$ у виді [9]

$$\begin{cases} \rho_d^0 = \frac{4}{\pi}\left[C_0(2r') - 2C_2(2r') P_2(\cos\theta) \right]; \\ \rho_d^{\pm 1} = \frac{4}{\pi}\left[C_0(2r') + C_2(2r') P_2(\cos\theta) \right]; \end{cases} \quad (6)$$

де $C_0 = R_0^2 + R_2^2$; $C_2 = \sqrt{2} R_0 R_2 - \frac{1}{2} R_2^2$ – компоненти розподілу густини; P_2 – поліном Лежандра. При кутах $\theta_1 = 0$ і $\theta_2 = \pi/2$ очевидно, що справедлива тотожність $\rho_d^0(r', \theta_2 = \pi/2) = \rho_d^{\pm 1}(r', \theta_1 = 0)$. Крім розподілу густини $\rho_d^{M_d}$, внутрішня структура дейтрона описується також і густиною переходу $\rho_{tr}^{\pm 1}$ [9]

$$\rho_{tr}^{\pm1}(r') = \frac{2}{\pi}\left\{R_0^2(2r') - \frac{1}{2}R_2^2(2r') - \right.$$
$$\left. -\frac{1}{2}\left[\sqrt{2}R_0(2r')R_2(2r') + R_2^2(2r')\right]P_2(\cos\theta)\right\}. \quad (7)$$

На Рис. 1-4 приведено величини розподілу густини (з компонентами C_0, C_2) та густини переходу, отримані по ХФД (1)-(4) для потенціалу Reid93. У залежності від вибору апроксимації ХФД розраховані величини $\rho_d^{M_d}$ і $\rho_{tr}^{\pm1}$ відрізняються тільки в області 0-0.25 fm. Фактично це говорить про те, яка із застосованих апроксимацій є «кращою» біля початку координат, незважаючи на відсутність надлишкового вузла ХФД. Для порівняння на Рис. 5 приведені величини $\rho_d^{M_d}$ і $\rho_{tr}^{\pm1}$, розраховані по ХФД для Московського потенціалу [10], яка містить надлишковий вузол для S- хвилі (при r=0.65 fm). Тому спостерігається зсув вправо вузлів та максимумів величин ρ_i.

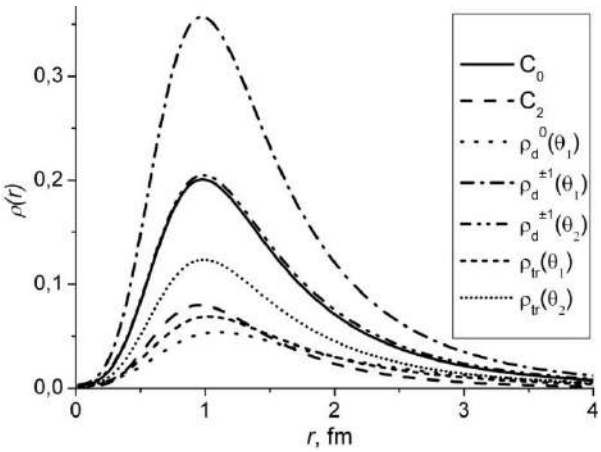


Рис. 1. ρ_i для потенціалу Reid93. ХФД (1)

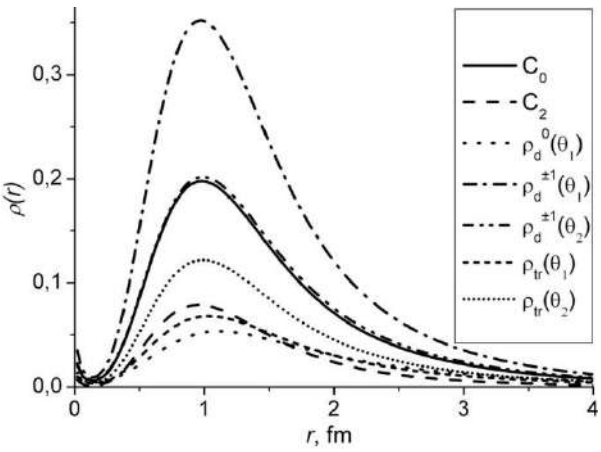


Рис. 2. ρ_i для потенціалу Reid93. ХФД (2)

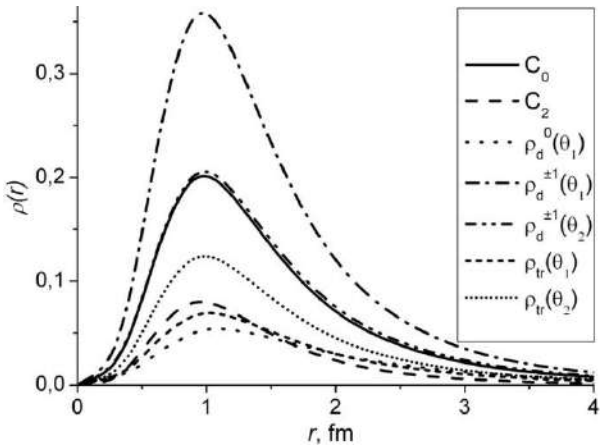


Рис. 3. ρ_i для потенціалу Reid93. ХФД (3)

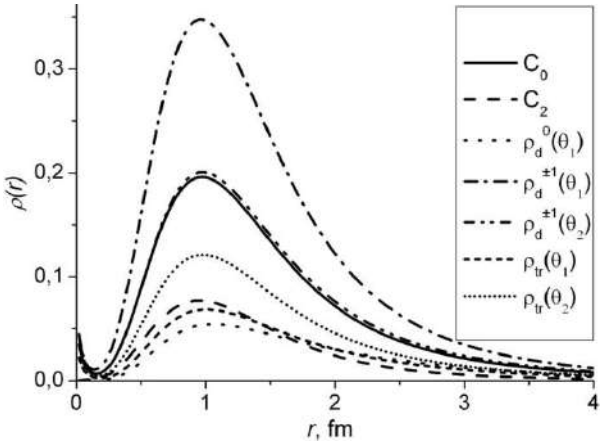


Рис. 4. ρ_i для потенціалу Reid93. ХФД (4)

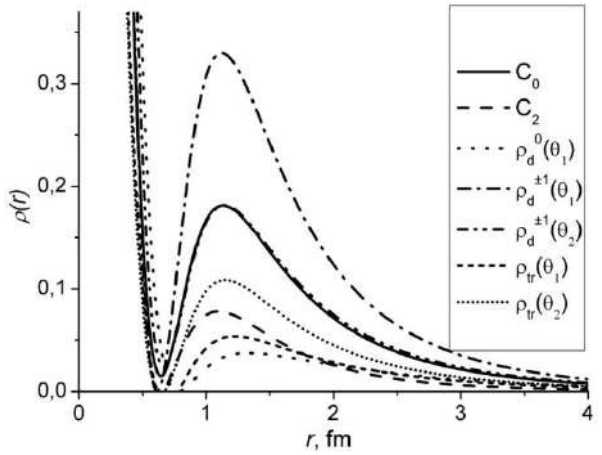


Рис. 5. ρ_i для потенціалу для Московського потенціалу

Висновки

По отриманим раніше коефіцієнтам чотирьох аналітичних форм ХФД (1)-(4) в координатному представленні для нуклон-нуклонного потенціалу Reid93 розраховано

величини розподілу густини $\rho_d^{M_d}$ та густина переходу $\rho_{tr}^{\pm 1}$.

Розрахунок величин розподілу густини в дейтроні та густина переходу може слугувати для оцінки коректності вибору аналітичної форми при апроксимації ХФД. Зрештою знання розподілу густини в дейтроні дозволяє отримати інформацію [9] про його зарядовий формфактор і тензорну поляризацію. Спін-фліп частина магнітного формфактору та розподіл імпульсів можуть бути одержані з густини переходу. Це також забезпечить незалежну оцінку просторових розмірів тороїдальної структури в дейтроні та перерізу d(e,e'p)n- реакції в одно фотонному обмінному наближенні.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Zhaba V.I. Deuteron: properties and analytical forms of wave function in coordinate space // arXiv:nucl-th/1706.08306
2. Stoks V.G.J. et al. Construction of high quality NN potential models // Phys. Rev. C – 1994. – Vol. 49, Iss. 6. – P. 2950–2962.
3. Berezhnoy Yu.A. et al. Deuteron Form Matter-Density Distribution in Deuteron and Diffraction Deuteron-Nucleus Interaction // Intern. Jour. Mod. Phys. E – 2005. – Vol. 14, Iss. 7. – P. 1073–1085.
4. Zhaba V.I. Parameterization of the deuteron wave functions and form factors // World Scientific News – 2017. – Vol. 87. – P. 222–232.
5. Cap F. et al. New method for the solution of the deuteron problem, and its application to a regular potential // Nuovo Cimento – 1955. – Vol. 1, No. 6. – P. 1211–1222.
6. Zhaba V.I. New analytical forms of wave function in coordinate space and tensor polarization of deuteron // Mod. Phys. Lett. A – 2016. – Vol. 31, No. 25. – P. 1650139.
7. Zhaba V.I. New parametrization of the deuteron wave function and calculations of the tensor polarization // arXiv:nucl-th/1603.05174
8. Zhaba V.I. New analytical forms through Laguerre functions for wave function in coordinate space and tensor polarization of deuteron // Electr. Journ. Theor. Phys. – 2016. – Vol. 13, No. 36. – P. 161–170.
9. Forest J.L. et al. Femtometer toroidal structures in nuclei // Phys. Rev. C – 1996. – Vol. 54, Iss. 2. – P. 646–667.
10. Kukulin V.I. et al. Symmetry in the Nucleon-Nucleon Interaction and the Model of Moscow Potential // Prog. Theor. Phys. – 1992. – Vol. 88, No. 2. – P. 159–209.

Стаття надійшла до редакції 13.11.2017.

В.И. Жаба
Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54

ДЕЙТРОН: АНАЛИТИЧЕСКИЕ ФОРМЫ ВОЛНОВОЙ ФУНКЦИИ И РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ПЛОТНОСТИ

По полученным ранее коэффициентам четырех аналитических форм волновой функции дейтрона в координатном представлении для нуклон-нуклонного потенциала Reid93 рассчитано распределение плотности в дейтроне и плотность перехода. Такие расчеты помогают оценить корректность выбора аналитической формы для аппроксимации волновой функции, а также получить информацию о таких характеристиках дейтрона как зарядовый форм-фактор, тензорная поляризацию и распределение импульсов.

Ключевые слова: дейтрон, волновая функция, аналитическая форма, аппроксимация, распределение плотности, плотность перехода.

PACS 03.65.Nk, 13.88.+e, 21.45.Bc
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.191-195

V.I. Zhaba
Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Voloshin Str., 54

DEUTERON: ANALYTICAL FORMS OF WAVE FUNCTION AND DENSITY DISTRIBUTION

Introduction: The deuteron wave function can be presented as the table through the respective massifs of numerically values of radial wave functions. In calculations such arrays of numbers in the texts of programs to operate quite difficult. Therefore a used simpler analytical forms is expedient.
Purpose*:* In the received analytical forms of deuteron wave function in coordinate representation it is necessary to calculate density distribution in the deuteron and transition density and compare them among themselves.
Results*:* On the received coefficients of the four analytical forms for deuteron wave function for the nucleon-nucleon potential Reid93 are calculated density distribution and transition density. For comparison, similar results are given for Moscow potential.
Conclusion*:* Such calculations help to evaluate the correctness of the choice of the analytical form for approximation of the wave function, and also to obtain information about such characteristics of the deuteron as charge form factor, tensor polarization and momentum distribution.
Keywords: deuteron, wave function, analytical form, approximation, density distribution, transition density.

REFERENCES

1. Zhaba, V.I. (2017), "Deuteron: properties and analytical forms of wave function in coordinate space", arXiv:nucl-th/1706.08306
2. Stoks, V.G.J. et al. (1994), "Construction of high quality NN potential models", Phys. Rev. C, No. 49, pp. 2950-2962.
3. Berezhnoy, Yu.A. et al. (2005), "Deuteron Form Matter-Density Distribution in Deuteron and Diffraction Deuteron-Nucleus Interaction", Intern. Jour. Mod. Phys. E, No. 14, pp. 1073-1085.
4. Zhaba, V.I. (2017), "Parameterization of the deuteron wave functions and form factors", World Scientific News, No. 87, pp. 222-232.
5. Cap, F. et al. (1955), "New method for the solution of the deuteron problem, and its application to a regular potential", Nuovo Cimento, No. 1, pp. 1211-1222.
6. Zhaba, V.I. (2016), "New analytical forms of wave function in coordinate space and tensor polarization of deuteron", Mod. Phys. Lett. A, No. 31, pp. 1650139.
7. Zhaba, V.I. (2016), "New parametrization of the deuteron wave function and calculations of the tensor polarization", arXiv:nucl-th/1603.05174
8. Zhaba, V.I. (2016), "New analytical forms through Laguerre functions for wave function in coordinate space and tensor polarization of deuteron", Electr. Journ. Theor. Phys., No. 13, pp. 161-170.
9. Forest, J.L. et al. (1996), Femtometer toroidal structures in nuclei // Phys. Rev. C, No. 54, pp. 646-667.
10. Kukulin, V.I. et al. (1992), "Symmetry in the Nucleon-Nucleon Interaction and the Model of Moscow Potential", Prog. Theor. Phys., No. 88, pp. 159-209.

© Ужгородський національний університет

УДК 658.562: 621
PACS 29.17.+w
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.196-201

І.І. Гайсак, В.О. Мартишичкін, Р.М. Плекан, О.Г. Окунєв, М.Т. Саболчій
Ужгородський національний університет, 88000, Ужгород, вул. Волошина, 54
e-mail: haysak@meta.ua, vasul.martushychkin@uzhnu.edu.ua

ВИМІРЮВАННЯ АБСОЛЮТНОЇ ВЕЛИЧИНИ ЕКСПОЗИЦІЙНОЇ ДОЗИ НА БЕТАТРОНІ Б-25

Радіобіологічні дослідження, лікування злоякісних пухлин, вивчення радіаційних дефектів – це основні задачі, які потребують використання пучків гальмівного випромінювання прискорювачів заряджених частинок. У зв'язку з цим першочерговою задачею стає визначення дози опромінення на прискорювачах, зокрема, електронних. У роботі пропонується один з методів вимірювання експозиційної дози на електронному прискорювачі – бетатроні Б-25. Складена калібрувальна таблиця для прохідної та абсолютної камер прискорювача та отримано значення експозиційної дози за час експерименту.

Ключові слова: бетатрон, прохідна та абсолютна камери, гальмівне випромінювання, калібрування, інтенсивність, доза опромінення.

Вступ

Серед багатьох типів прискорювачів заряджених частинок у наукових та практичних цілях індукційний прискорювач електронів займає особливе місце. У бетатроні для прискорення електронів по круговій орбіті використовують електричне поле, напруженість якого змінюється магнітним потоком. В Ужгородському національному університеті функціонують два прискорювачі електронів – мікротрон М-10 на енергію електронів до 10 МеВ та бетатрон Б-25, в якому внутрішній пучок електронів прискорюється до енергії 25 МеВ. Індукційний електронний прискорювач бетатрон у порівнянні з мікротроном має суттєву перевагу у можливості плавної зміни величини енергії прискореного пучка електронів. Але недоліком у цьому порівнянні є значно менша (до трьох порядків) інтенсивність прискореного пучка. Однак цей факт не відіграє суттєвої ролі при дослідженнях впливу радіації для потреб біології та медицини [1].

Дослідження живих об'єктів потребують відносно невисоких доз опромінення. У таких дослідженнях важливе значення має прицезійне визначення абсолютних величин доз опромінення, отримуваних на гальмівних пучках прискорювачів заряджених частинок.

Методика експерименту

Особливість бетатрона Б-25 полягає в тому, що з прискорювальної камери виводиться не електронний пучок (як в лінійних прискорювачах та мікротроні), а пучок гальмівних гамма-квантів, утворених на внутрішній конвертуючій мішені прискорювальної камери бетатрона [2].

Умовна схема будови бетатрона наведена на рис. 1. Електрони з інжектора 4 захоплюються на рівноважну орбіту та прискорюються вихровим електричним полем, що викликається змінним магнітним полем електромагніту 1. У кінці циклу прискорення електрони попадають на гальмівну мішень 5, після чого формується пучок гальмівного електромагнітного випромінювання, який покидає прискорювальну камеру (рис. 2).

Випромінювання бетатрона Б-25 має імпульсний характер з частотою повторення, рівній частоті електромагнітного поля (50 Гц). Енергетичний спектр гамма-квантів має неперервну форму в діапазоні від нуля до енергії прискорених електронів [3].

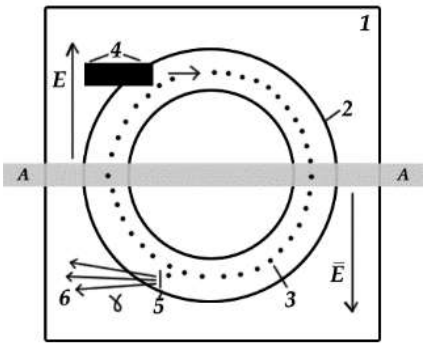


Рис. 1. Схема будови бетатрона:
1 – електромагніт, 2 - прискорювальна камера бетатрону, 3 – орбіта електронів, 4 – інжектор, 5 – гальмівна мішень, 6 – гальмівне гамма-випромінювання. Вектори Е та Н – напруженості вихрового електричного та магнітного полів.

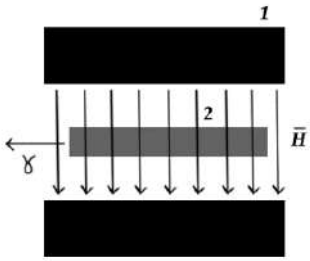


Рис. 2. Вигляд збоку (переріз А-А).

Інтенсивність і геометричні розміри виведеного пучка гамма-квантів залежать від енергії прискорених електронів. Діючий бетатрон Б-25 оптимізований на прискорення електронів до 25 МеВ. При зниженні енергії електронів зменшується інтенсивність пучка гамма-квантів і зростає його розходження [4-6] (рис. 3). Найбільш ефективне використання бетатрону Б-25 досягається при енергіях прискорених електронів в межах 15-20 МеВ.

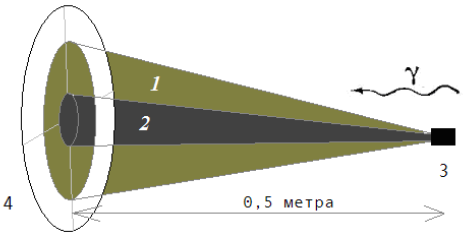


Рис. 3. Розсіяння пучка при зміні енергії прискорення:
1 – пучок з енергією 10 МеВ, 2 – пучок з енергією 20 МеВ, 3 – гальмівна мішень, 4 – опромінюваний зразок.

При проведенні експериментів на прискорювачах важливим параметром є експозиційна доза, яка є мірою іонізації повітря і дорівнює відношенню сумарного електричного заряду іонів одного знаку, утвореного іонізуючим випромінюванням, до маси 1 кг повітря. У даній роботі використовується позасистемна одиниця експозиційної дози — рентген (P) – одиниця вимірювання, що визначає іонізуючу здатність рентгенівського і гамма-випромінювання у 1 см^3 повітря [7]

$$1\,P = 2{,}58 \cdot 10^{-4}\,Кл/кг\,. \qquad (1)$$

Експозиційна доза вказує на величину заряду, який утворюється в повітрі на тому місці, де розташовується опромінюваний зразок. Умовна схема опромінення зразка для визначення абсолютного значення експозиційної дози наведена на рис. 4.

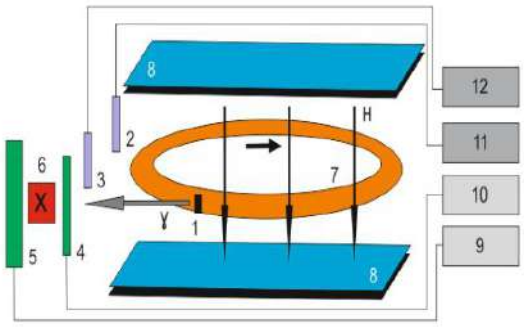


Рис. 4. Схема експерименту для вимірювання експозиційної дози:
1 - вольфрамова мішень, 2-3 - кульові камери, 4 - прохідна камера, 5 – абсолютна камера, 6 – мішень, 7 - тороїдальна камера, 8 – електромагніти, 9 - перерахунковий пристрій, 10 – вольтметр, 11-12 - клінічні дозиметри RTF27012.

Для контролю пучка гальмівного випромінювання в експерименті задіяні прохідна іонізаційна камера, абсолютна іонізаційна камера, дві кульові камери клінічного дозиметра RTF27012. Тонка прохідна іонізаційна камера розташована перед опромінюваним зразком (мішенню) під час проведення опромінення. Покази прохідної камери пропорційні величині експозиційної дози [8, 9]. Для визначення абсолютного значення експозиційної дози використовується саме абсолютна іонізаційна камера, в якій повністю поглинаються усі гамма-кванти пучка.

Крім прохідної та абсолютних камер знімаються покази з двох кульових камер, які розташовані дещо збоку від пучка гамма-квантів. Покази кульових камер пропорційні інтенсивності електронного пучка. Кульові камери незалежно проходять калібрування стандартними еталонними джерелами бета-частинок та гамма-квантів (комплект клінічного дозиметра).

Експериментальні дані, їх обговорення

На початку експерименту було проведено калібрування клінічних дозиметрів RTF27012, до яких були під'єднанні кульові камери, що входили в комплект до дозиметрів. З цього комплекту також було використано еталонне джерело бета-час-тинок ^{90}Sr–^{90}Y ($T_{1/2}$ = 29,12 р.). Активність джерела на час його випуску (березень 1979 р.) сягала 5 мКі. За допомогою перерахунку активності джерела за формулою

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t} \qquad (2)$$

було встановлено, що на час проведення калібрування пристроїв активність джерела β^--частинок становить 2,08 мКі або 3,8 *Р*/хв. У свою чергу виміри дози клінічним дозиметром RTF27012 для різних часових інтервалів показали, що дозиметр працює з похибкою 9%, що суттєво не змінює дані, отримані у ході калібрування [10, 11].

Далі у таблицях 1-4 приведено результати для прохідної та абсолютної камер за час опромінювання. Час набору дози дорівнював 15 хв. Енергія змінювалась від 10 до 24 МеВ. У таблицях дані отримані при поступовому збільшенні енергії пучка. Тому представляло інтерес перевірити як будуть вести себе прилади при зменшенні енергії пучка (див. табл. 5). Останній вимір показав, що бетатрон працює однаково стабільно як при збільшенні, так і при зменшенні енергії пучка. Дані при *E* = 25 МеВ відповідають паспортним даним прискорювача. Далі з урахуванням похибок була побудована калібрувальна таблиця співвідношення показів прохідної камери до показів клінічного дозиметра (див. табл. 6).

Табл. 1. Експериментальні дані (контрольний вимір 1).

Енергія, МеВ	Час, хв	Абсолютна камера, В	Прохідна камера, імп.
10	15	0,617	4304
15	15	1,301	4947
20	15	1,810	2750
24	15	1,700	2346

Табл. 2. Експериментальні дані (контрольний вимір 2).

Енергія, МеВ	Час, хв	Абсолютна камера, В	Прохідна камера, імп.
10	15	0,618	4817
15	15	1,600	4758
20	15	1,927	2314
24	15	2,108	3604

Табл. 3. Експериментальні дані (контрольний вимір 3).

Енергія, МеВ	Час, хв	Абсолютна камера, В	Прохідна камера, імп.
10	15	0,690	3438
15	15	1,652	4203
20	15	2,397	2894
24	15	2,398	2875

Табл. 4. Експериментальні дані (контрольний вимір 4).

Енергія, МеВ	Час, хв	Абсолютна камера, В	Прохідна камера, імп.
10	15	0,722	6364
15	15	1,719	6483
20	15	2,431	3271
24	15	2,426	3507

Табл. 5. Експериментальні дані (контрольний вимір 5).

Енергія, МеВ	Час, хв	Абсолютна камера, В	Прохідна камера, імп.
24	15	1,973	2631
20	15	1,988	2953
15	15	1,528	4213
10	15	0,668	3603

Табл. 6. Калібрувальна таблиця прохідної камери.

Експозиційна доза, Р	Кількість імпульсів в прохідній камері, імп.	Абсолютна похибка, ± імп.
1	38	0,874
10	380	8,74
20	760	17,48
30	1140	26,22
40	1520	34,96

Висновки

Одними з основних задач, які потребують використання пучків гальмівного випромінювання, є радіобіологічні дослідження, лікування злоякісних пухлин, прискорення хімічних процесів, вивчення радіаційних дефектів, дефектоскопія металів. У зв'язку з цим першочерговою задачею на прискорювачах заряджених частинок є визначення дози опромінення.

У даній роботі описаний один з методів вимірювання експозиційної дози від прискорювача заряджених частинок бетатрону Б-25. Для визначення експозиційної дози використовувались абсолютна іонізаційна камера, прохідна камера та дві кульові камери клінічного дозиметра RTF27012. Кульові камери незалежно проходили калібрування стандартними еталонними джерелами бета-частинок та гамма-квантів (комплект клінічного дозиметра). Одержана калібрувальна таблиця дає можливість прогнозувати опромінення різного типу мішеней при дослідженнях впливу радіації для потреб радіофізики, біології та медицини.

На закінчення автори висловлюють щиру подяку О.М. Парлагу за цінні консультації та всебічну допомогу при проведенні експериментальних вимірів.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Гурин А.Г., Ложкин Р.С. Требования к параметрам линейных индукционных ускорителей, применяемых для очистки воды // Вестник НТУ ХПИ. – 2003. – №4. – С. 83-86.
2. Москалев В.А., Чахлов В.Л. Бетатроны. - Томск: из-во Томского политехнического университета, 2009. – 267 с.
3. Комар А.П., Круглов С.П., Лопатин И.В. Измерение полной энергии пучков тормозного излучения от электронных ускорителей. – Ленинград: Наука, 1971. – 172 с.
4. Хвастунов М.С. Циклический индукционный ускоритель // Приборы и техника эксперимента. – 1981. – №3. – С. 20-23.
5. Вахрушин Ю.П. Линейные индукционные ускорители – Москва: Атомиздат, 1978. – 248 с.
6. Абрамян В.А. Промышленные ускорители электронов. - Москва: Энерго-атомиздат, 1986. – 248 с.
7. Ремез Г.А. Радиоизмерения. – Москва: Связьиздат, 1960. – 316 с.
8. Ракобольская И.В. Ядерная физика. – Москва: из-во МГУ, 1981. – 296 с.
9. Булавін Л.А., Тартаковський В.К. Ядерна фізика. – Київ: Знання, 2005. – 439 с.
10. Гопыч П.М., Залюбовский И.И. Ядерная спектроскопия. – Харьков: Вища школа, 1980. – 384 с.
11. Гусев Н.Г. Защита от ионизирующих излучений – Москва: Энергоатомиздат, 1989. – 512 с.

Стаття надійшла до редакції 3.12.2017.

И.И. Гайсак, В.А. Мартышичкин, Р.М. Плекан, А.Г. Окунев, М.Т. Саболчий
Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54

ИЗМЕРЕНИЕ АБСОЛЮТНОЙ ВЕЛИЧИНЫ ЭКСПОЗИЦИОННОЙ ДОЗЫ НА БЕТАТРОНЕ Б-25

Радиобиологические исследования, лечение злокачественных опухолей, изучение радиационных дефектов - это основные задачи, которые требуют использования пучков тормозного излучения ускорителей заряженных частиц. В связи с этим первоочередной задачей становится определение дозы облучения на ускорителях, в частности, электронных. В работе предлагается один из методов измерения экспозиционной дозы на электронном ускорителе - бетатроне Б-25. Составлена калибровочная таблица для проходной и абсолютной камер ускорителя и получено значение экспозиционной дозы за время эксперимента.
Ключевые слова: бетатрон, проходная и абсолютная камеры, тормозное излучение, калибровка, интенсивность, доза облучения.

PACS 29.17.+w
DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.196-201
I.I. Haysak, V.O. Martyshychkin, R.M. Plekan, O.G. Okunev, M.T. Sabolchiy
Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, Voloshin Str., 54

MEASUREMENT OF THE ABSOLUTE VALUE OF EXPOSURE DOSE ON THE BETATRON B-25

Radiobiological research, treatment of malignant tumors, acceleration of chemical processes, study of radiation defects, metal defectoscopy are some main problems requiring radiation exposure. In this regard, the primary task for accelerators of charged particles is to determine the dose of radiation. Among the many types of charged particle accelerators for scientific and practical purposes, an induction electronic accelerator plays a special role. In betatron, an electric field is used to accelerate electrons in a circular orbit, the intensity of which is replaced by a magnetic flux.
This article proposes one of the methods for measuring the exposure dose during operation of betatron B-25. In order to control the beam of bremsstrahlung, a passage ionization chamber, an absolute ionization chamber, two ball cameras of the clinical dosimeter RTF27012 are used in the experiment. The passage camera's values are proportional to the exposure dose, and the ball camera's values are proportional to the intensity of the electron beam. The ball cameras are independently calibrated with standard reference sources of beta particles and gamma quanta (complete of clinical dosimeter). A table of calibration of particles passing through the passage chamber and an absolute accelerator chamber is created. The value of the exposure dose in the experiment is obtained.
Keywords: betatron, passage chamber, absolute chamber, target, calibration, intensity, x-ray, dose.

REFERENCES

1. Gurin, A.G., Lozhkin, R.S. (2003), “Requirements for the parameters of linear induction accelerators used for water purification” [“Trebovaniya k parametram lineynykh induktsionnykh uskoriteley primenyayemykh dlya ochistki vody], Herald of Kharkov Polytechnic Institute [Vestnik Khar'kovskogo politekhnicheskogo instituta], No 4, pp. 83–86.
2. Moskalev, V.A., Chakhlov, V.L. (2009), Betatrons [Betatrony], Publ. by Tomsk Polytechnic University, Tomsk, 267 p.
3. Komar, A.P., Kruglov, S.P., Lopatin I.V. (1971), Measurement of the total energy of bremsstrahlung beams from electron accelerators [Izmereniye polnoy energii puchkov tormoznogo izlucheniya ot elektronnykh uskoriteley], Nauka, Leningrad, p.172.
4. Khvastunov, M.S. (1981), “Cyclic induction accelerator” [Tsiklicheskiy induktsionnyy uskoritel'”], Devices and experimental technique [Pribory i tekhnika eksperimenta], No 3, pp. 20–23.
5. Vakhrushin, Yu.P. (1978), Linear induction accelerators [Lineynyye induktsionnyye uskoriteli], Atomizdat, Moscow, 248 p.
6. Abramyan, V.A. (1986), Industrial electron accelerators [Promyshlennyye uskoriteli yelektronov], Energoatomizdat, Moscow 248 p.
7. Remez, G.A. (1960), Radio measurements [Radioizmereniya], Svyaz'izdat, Moscow, 316 p.
8. Rakobol'skaya, I.V. (1981), Nuclear physics [Yadernaya fizika], publ. by Moscow State University, Moscow, 296 p.
9. Bulavin, L.A., Tartakovs'kyy, V.K. (2005), Nuclear physics [Yaderna fizyka], Znannya, Kyiv, 439 p.
10. Gopych, P.M., Zalyubovskiy I.I. (1980), Nuclear Spectroscopy [Yadernaya spektroskopyya], Vyshcha shkola, Kharkiv, 384 p.
11. Gusev, N.G. (1989), Protection against ionizing radiation [Zashchyta ot yonyzyruyushchykh yzluchenyy], Energoatomizdat, Moscow, 512 p.

© Ужгородський національний університет