

УДК (539.216.2:669.292.7–026.746):544.016.5

## ОПТИЧЕСКИЕ И ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ТОНКИХ ПЛЕНОК НА ОСНОВЕ ГЕЛЯ $V_2O_5$

© 2021 г. Е. В. Томина<sup>1, 2, \*</sup>, С. С. Копытин<sup>3</sup>, Б. В. Сладкопевцев<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Воронежский государственный лесотехнический университет им. Г.Ф. Морозова,  
ул. Тимирязева, 8, Воронеж, 394087 Россия

<sup>2</sup>Воронежский государственный университет, Университетская пл., 1, Воронеж, 394018 Россия

<sup>3</sup>АО “ВЗПП-Микрон”, Ленинский пр., 119А, Воронеж, 394007 Россия

\*e-mail: tomina-e-v@yandex.ru

Поступила в редакцию 07.03.2021 г.

После доработки 25.05.2021 г.

Принята к публикации 28.05.2021 г.

Центрифугированием геля  $V_2O_5$  на кремниевые подложки с последующим отжигом в вакууме синтезированы пленки различной толщины. Оптические характеристики пленок удовлетворительно аппроксимируются моделями Коши и Бругемана. Наличие температурной петли гистерезиса при фазовом переходе диэлектрик–металл и амплитуда изменения сопротивления определяются фазовым составом и степенью кристалличности пленок.

**Ключевые слова:** гель  $V_2O_5$ , фазовый переход диэлектрик–металл, диоксид ванадия

**DOI:** 10.31857/S0002337X2110016X

### ВВЕДЕНИЕ

Диоксид ванадия благодаря своим уникальным электрофизическим и оптическим свойствам является перспективным материалом для целого спектра практических приложений [1–5]. Фазовый переход первого рода при температуре  $68^\circ\text{C}$  с изменением структуры из моноклинной со свойствами диэлектрика в тетрагональную с металлическим типом проводимости сопровождается резким изменением плотности носителей заряда [6, 7]. Скачку сопротивления в  $VO_2$  сопутствует изменение оптической прозрачности более чем в 10 раз в ИК- и ТГц-диапазонах. Это делает возможным использование диоксида ванадия в качестве оптического модулятора (ИК-, ТГц-диапазон) или высокочастотного переключателя в радиоэлектронике, в качестве активного элемента в микроболометрических матрицах. Диоксид ванадия представляет большой интерес в виде тонких пленок, поскольку в тонкопленочном состоянии материал обладает лучшими механическими свойствами и выдерживает циклирование перехода диэлектрик–металл (Д–М).

Целью данной работы является синтез тонких пленок на основе геля  $V_2O_5$  и установление возможности реализации в них перехода диэлектрик–металл.

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для синтеза геля оксида ванадия применяли метод закалки расплава в воду [8]. Навеску  $V_2O_5$  (“ч. д. а.”, ТУ 6-09-4093-88) в 2.5 г плавляли и выдерживали в муфельной печи SNOL 8.2/1100 при температурах 700 или  $900^\circ\text{C}$  в течение 2 ч, поскольку  $V_2O_5$  выше  $700^\circ\text{C}$  разлагается с образованием  $VO_2$ , а увеличение температуры расплава вплоть до  $1300^\circ\text{C}$  способствует накоплению  $V^{4+}$  в геле [9]. Затем расплав выливали в холодную дистиллированную воду (50 мл), перемешивали и отстаивали 24 ч. Осадок отделяли от геля путем декантации. Гель наносили на кремниевые подложки Si(111) p-типа (ЭКДБ 0.005 ТУ 25-07 1442-79) методом центрифугирования. Подложки предварительно обезжиривались и подвергались травлению в растворе  $NH_4OH : H_2O_2 : H_2O = 1 : 1 : 5$  при температуре  $70^\circ\text{C}$  [10] в течение 24 мин. Центрифугирование осуществляли в двух скоростных режимах. При формировании наноразмерных пленок (для этого исходный гель разбавляли дистиллированной водой в соотношении 1 : 2) начальная скорость вращения подложки составляла 60–120 об./мин, затем плавно увеличивалась до 5000 об./мин и поддерживалась 10 мин. Для создания пленок толщиной 1–1.5 мкм начальная скорость вращения подложки была 300–400 об./мин, затем плавно увеличивалась в течение 10 мин до 5000 об./мин. Нанесенные пленки отжигали в му-

**Таблица 1.** Толщина пленок, сформированных центрифугированием геля  $V_2O_5$ , до и после отжига

Образец	$t_{\text{геля}}, ^\circ\text{C}$	$d$ , мкм (центрифугирование)	$d$ , мкм (отжиг $300^\circ\text{C}$ 2 ч)	$d_{\text{вак}}$ , мкм	$t_{\text{вак}}, ^\circ\text{C}$	$\tau_{\text{вак}}$ , мин	$p_{\text{вак}}$ , Па
1	700	1.46	—	—	—	—	—
2	700	1.18	1.17	1.12	400	60	1.62
3	700	1.66	1.65	1.61	425	30	1.71
4	700	1.45	1.44	1.41	450	18	1.62
5	700	1.5	1.49	1.37	480	20	1.79
6	900	26 нм	20 нм	—	—	—	—
7	900	0.9	0.89	—	—	—	—

фельной печи (SNOL 8.2/1100) при  $300^\circ\text{C}$  2 ч. Затем часть образцов подвергали термическому отжигу в вакууме в различных температурно-временных режимах. Образцы охлаждали в атмосфере азота 20 мин до  $25^\circ\text{C}$  ( $p = 3$  Па).

Толщину сформированных пленок до и после отжига, их оптические характеристики контролировали методами лазерной (ЛЭФ-754, He–Ne-лазер,  $\lambda = 632.8$  нм) и спектральной эллипсометрии (“Эллипс-1891”).

Фазовый состав синтезированных пленок определяли методом рентгеновской дифракции (дифрактометр EMPYREAN B.V.,  $\text{CuK}\alpha_1$ -излучение с  $\lambda = 1.54$  Å). Морфологию пленок исследовали на сканирующем туннельном микроскопе (СТМ) НТК “Умка”.

Электрофизические параметры измеряли по методике [11], для чего на поверхность пленок наносили металлические (Al, Ag, Au) контактные площадки  $6.4 \times 10^{-2}$  мм<sup>2</sup>.

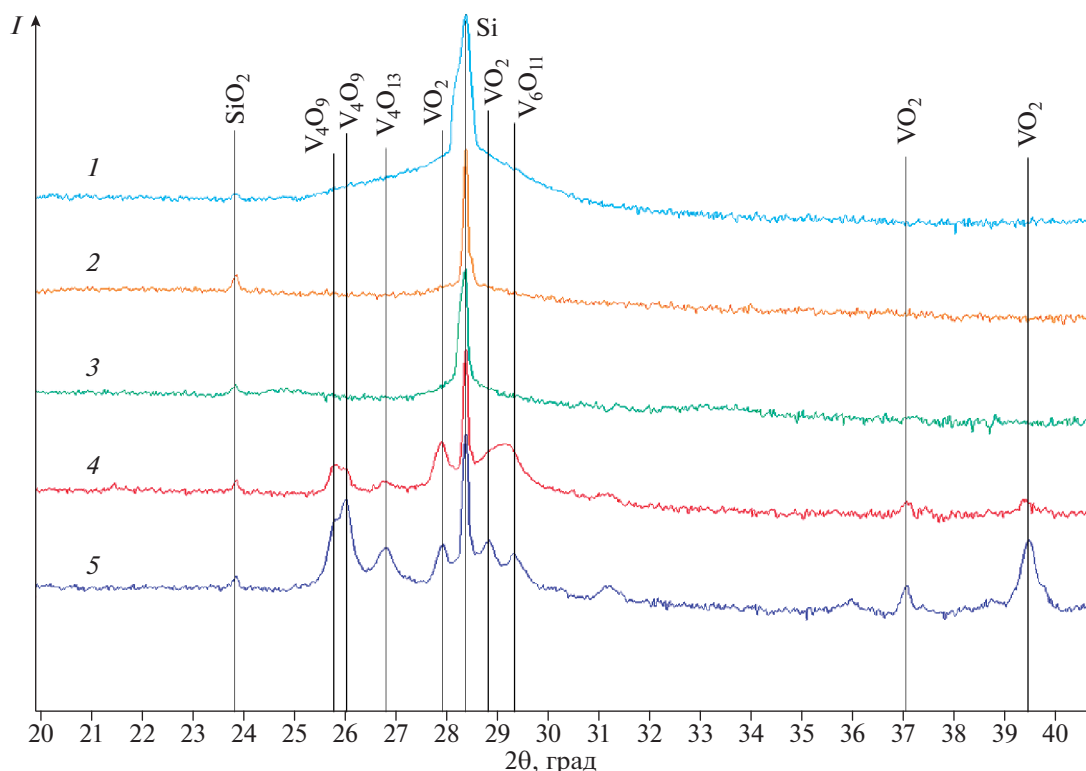
## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Термический отжиг на воздухе сформированных из геля  $V_2O_5$  микронных пленок сопровождается некоторым уменьшением толщины за счет испарения воды (табл. 1). Толщина пленок нанометрового диапазона после отжига на воздухе изменяется незначительно.

Из данных РФА (рис. 1, дифрактограмма 1) видно, что пленки без отжига (образец 1, табл. 1) являются рентгеноаморфными вследствие роста на активных центрах, случайным образом распределенных по поверхности, с последующим слиянием зародышей и образованием пленки. Термический отжиг на воздухе при  $300^\circ\text{C}$  в течение 2 ч с последующим отжигом в вакууме при температурах 400 и  $425^\circ\text{C}$  (образцы 2 и 3, табл. 1) не приводит к увеличению кристалличности пленок (рис. 1, дифрактограммы 2 и 3). Повышение температуры отжига в вакууме до  $450^\circ\text{C}$  способствует кристаллизации пленок (рис. 1, дифракто-

грамма 4) за счет окончательного спекания, уплотнения, роста зерна и протекания процесса восстановления  $V^{5+}$  (наличие на дифрактограмме рефлексов  $V_4O_9$ ,  $V_6O_{13}$ ). Дальнейшее увеличение температуры ( $480^\circ\text{C}$ ) отжига в вакууме (рис. 1, дифрактограмма 5) приводит к возрастанию содержания диоксида ванадия в пленках за счет интенсификации реакции перехода  $V_2O_5$  в  $VO_2$  по следующей схеме:  $V_2O_5 \rightarrow V_3O_7 \rightarrow V_4O_9 \rightarrow V_6O_{13} \rightarrow VO_2$  [12, 13]. Это подтверждается значительным увеличением интенсивности рефлексов  $VO_2$  при уменьшении интенсивности рефлексов  $V_4O_9$ . Промежуточные оксиды ванадия, присутствующие на дифрактограммах, фактически содержат ванадий в степени окисления 4+. В оксиде  $V_3O_7$  из 36 атомов ванадия в элементарной ячейке 12 имеют октаэдрическую координацию, 16 – окружение в виде тригональной бипирамиды, 8 – в виде квадратной пирамиды, так что формулу этого оксида можно выразить как  $V^{4+}V^{5+}O_7$ . Для  $V_4O_9$  характерна одна короткая связь V–O в интервале 0.16–0.165 нм, четыре связи в интервале 0.187–0.202 нм и одна длинная связь, которая для четырех неэквивалентных атомов ванадия равна 0.223, 0.240, 0.250 и 0.300 нм, т.е. фактически только 1/4 часть атомов ванадия имеет координационное число 5, характерное для пентаоксида ванадия [14].

При интерпретации данных спектральной эллипсометрии модель Коши и модель Бругемана дают удовлетворительный результат как для пленок нанометровой толщины, так и для пленок толщиной в районе 1 мкм, что наглядно демонстрирует хорошая сходимость (особенно в области длин волн более 500 нм) спектров эллипсометрических параметров  $\Psi$  и  $\Delta$  (рис. 2 и 3 соответственно), которая собственно и является объективным критерием, позволяющим установить степень соответствия между исследуемой и модельной структурами. Методологические подходы к определению толщин нанометровых пленок на полупроводниковых подложках и возможность аппроксимации оптических характеристик подобных пленок с ис-



**Рис. 1.** Дифрактограммы пленок  $V_xO_y$ : 1 – без отжига; 2 – отжиг на воздухе в режиме  $300^\circ\text{C}$ , 2 ч, отжиг в вакууме в режиме  $400^\circ\text{C}$ , 60 мин; 3 – отжиг на воздухе в режиме  $300^\circ\text{C}$ , 2 ч, отжиг в вакууме в режиме  $425^\circ\text{C}$ , 30 мин; 4 – отжиг на воздухе в режиме  $300^\circ\text{C}$ , 2 ч, отжиг в вакууме в режиме  $450^\circ\text{C}$ , 18 мин; 5 – отжиг на воздухе в режиме  $300^\circ\text{C}$ , 2 ч, отжиг в вакууме в режиме  $480^\circ\text{C}$ , 20 мин (номера дифрактограмм соответствуют образцам 1–5 в табл. 1).

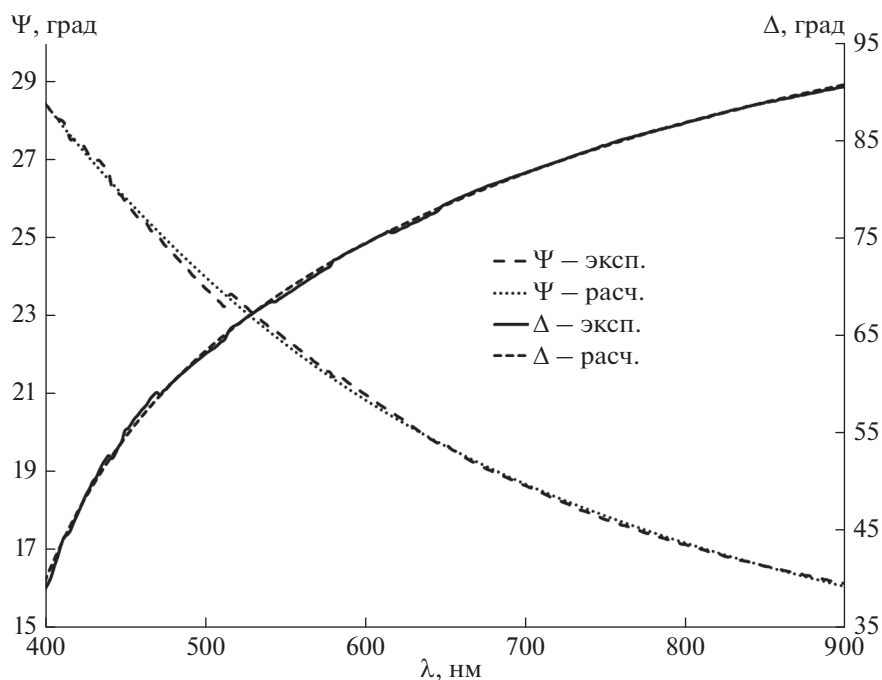
пользованием моделей Коши, Бругемана и модели пленки с неизвестными оптическими константами представлены авторами в целом ряде публикаций [15–17].

По данным спектральной эллипсометрии (рис. 4) неотожженная пленка геля пентаоксида ванадия, синтезированного при  $700^\circ\text{C}$  (образец 1), имеет слабое поглощение в длинноволновой области спектра и сравнительно небольшой показатель преломления, тогда как в коротковолновой области (менее  $450\text{ нм}$ ) наблюдается значительный рост оптических постоянных. Это представляется вполне закономерным, поскольку согласно [18], пленка без отжига является ксерогелем с формулой  $V_2O_5 \cdot nH_2O$ , где  $n = 1.6\text{--}1.8$ .

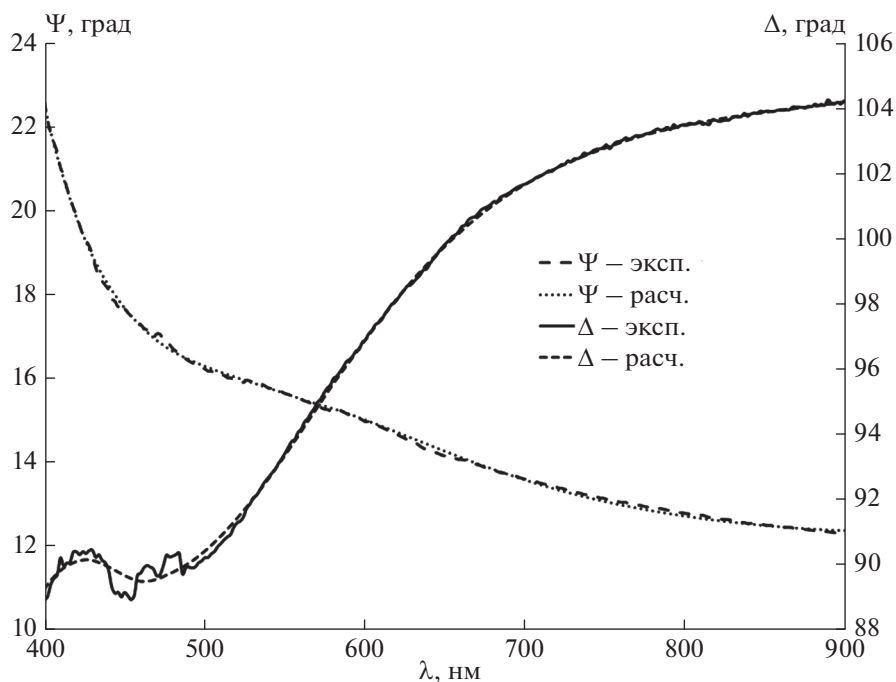
Термообработка на воздухе при  $250\text{--}280^\circ\text{C}$  приводит к полной дегидратации пленок ксерогеля  $V_2O_5 \cdot nH_2O$ , что сказывается на их оптических свойствах. После отжига в муфельной печи (образец 6, табл. 1) показатель преломления в длинноволновой области (выше  $500\text{ нм}$ ) имеет характерную для диэлектриков дисперсию (рис. 5) при некотором возрастании показателя поглощения по сравнению с неотожженной пленкой ксерогеля. Это, вероятно, связано с увеличением содержания в пленке  $V^{4+}$ , чему способствуют повышение

температуры расплава пентаоксида ванадия до  $900^\circ\text{C}$  [9] и последующий отжиг при  $300^\circ\text{C}$  в течение 2 ч. Известно [19], что термообработка  $V_2O_5 \cdot nH_2O$  приводит к сдвигу края собственного поглощения в сторону меньших длин волн и уменьшению пропускания в длинноволновой области. Такое поведение объясняется частичным восстановлением  $V_2O_5$ , которое приводит к росту ширины запрещенной зоны из-за увеличения симметрии кислородных октаэдров. Образование кислородных вакансий (увеличение концентрации  $V^{4+}$ ) ведет к возникновению донорных уровней в запрещенной зоне и увеличению поглощения в длинноволновой области спектра.

Однако в коротковолновом диапазоне наблюдаются область аномальной дисперсии  $n$  и достаточно большие значения  $k$ . Образующийся при термическом отжиге  $V^{4+}$  может присутствовать в аморфной пленке в виде как  $VO_2$ , так и ближайшего к нему со стороны пентаоксида ванадия  $V_6O_{13}$ , обладающего металлической проводимостью, что и сказывается на оптических характеристиках пленок. В целом же спектры оптических параметров образца 6 в рассматриваемом диапазоне соответствуют приведенным в работе [20].



**Рис. 2.** Экспериментальные и рассчитанные по модели Бругемана спектры эллипсометрических параметров  $\Psi$  и  $\Delta$  для образца 6 (толщина пленки 20 нм).



**Рис. 3.** Экспериментальные и рассчитанные по модели Коши спектры эллипсометрических параметров  $\Psi$  и  $\Delta$  для образца 2 (толщина пленки 1.17 мкм).

Дополнительный отжиг в вакууме при  $t > 425^\circ\text{C}$  приводит к некоторому изменению спектральных зависимостей показателей преломления и погло-

щения исследуемых образцов (рис. 6), что вполне ожидаемо, поскольку значительно увеличивается степень восстановления  $\text{V}^{5+}$  (рис. 1). Присутствие в

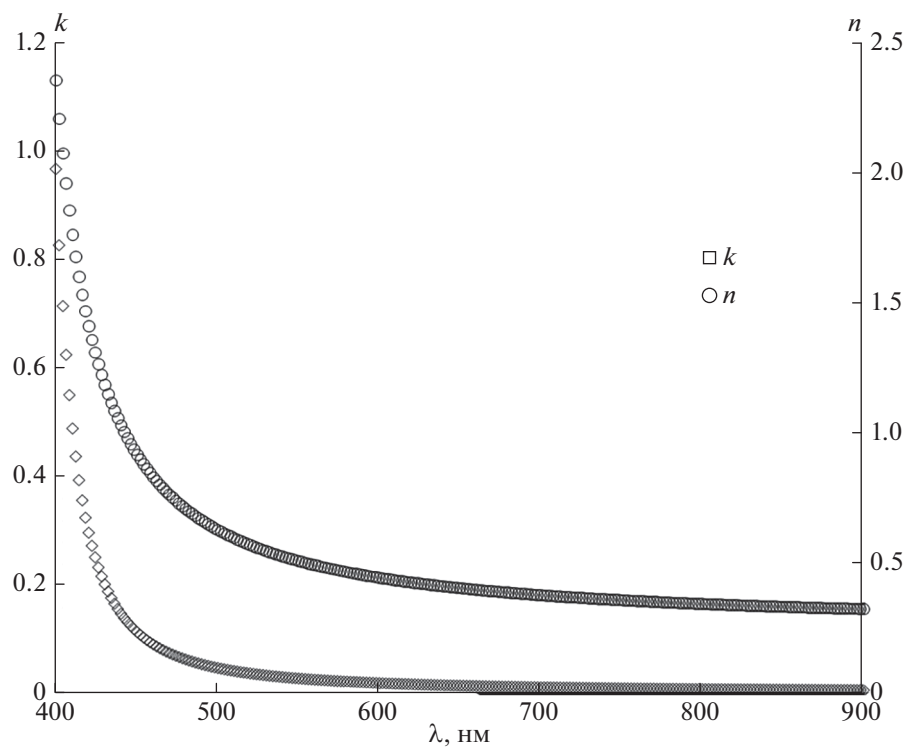


Рис. 4. Спектральные зависимости показателя преломления и показателя поглощения образца 1 (модель Коши).

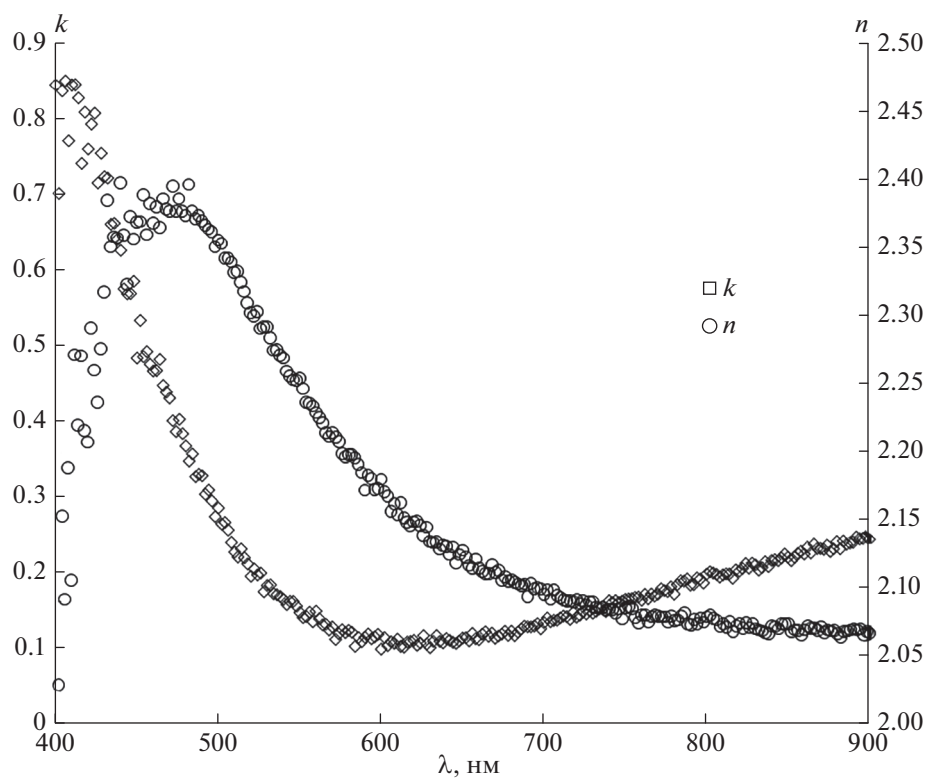


Рис. 5. Спектральные зависимости показателя преломления и показателя поглощения образца 6 (модель Коши).

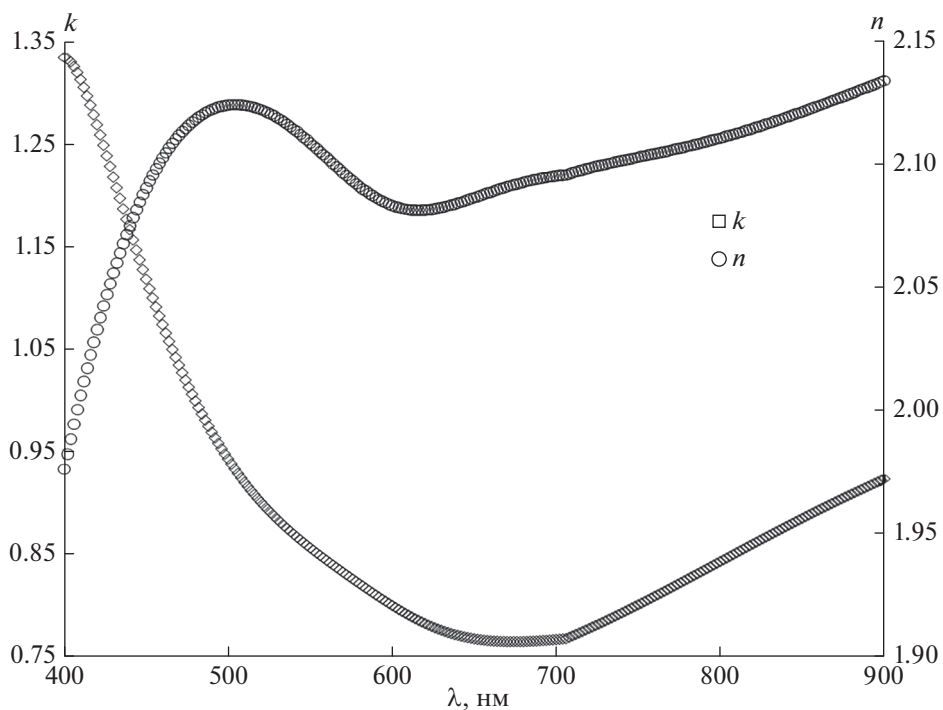


Рис. 6. Спектральные зависимости показателя преломления и показателя поглощения образца 5 (модель Коши).

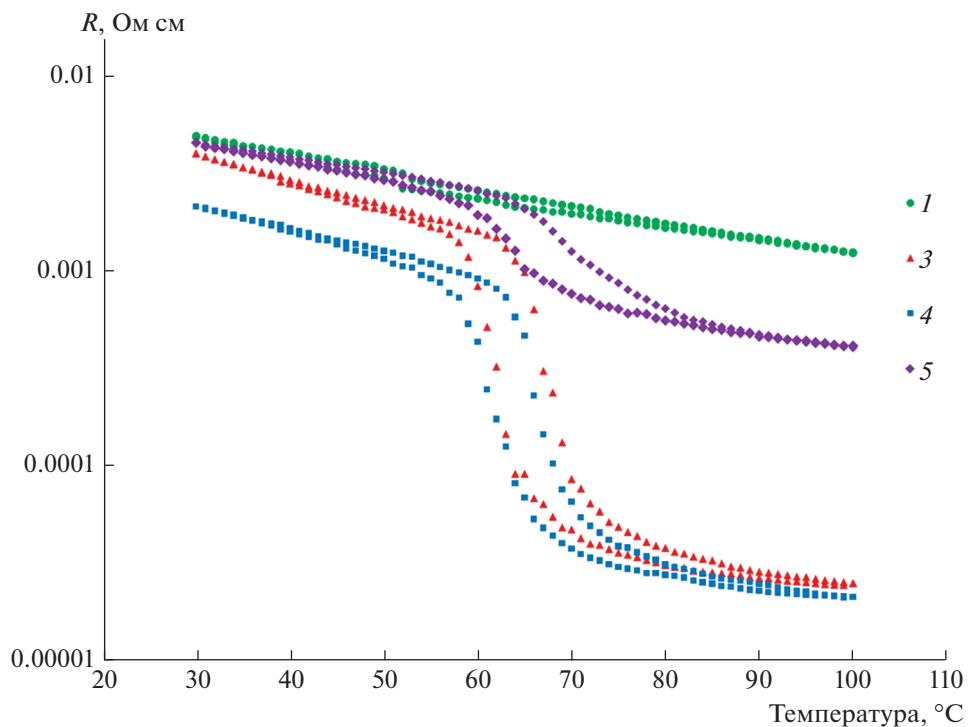


Рис. 7. Зависимости удельного сопротивления пленок (1, 3–5) (табл. 1) от температуры.

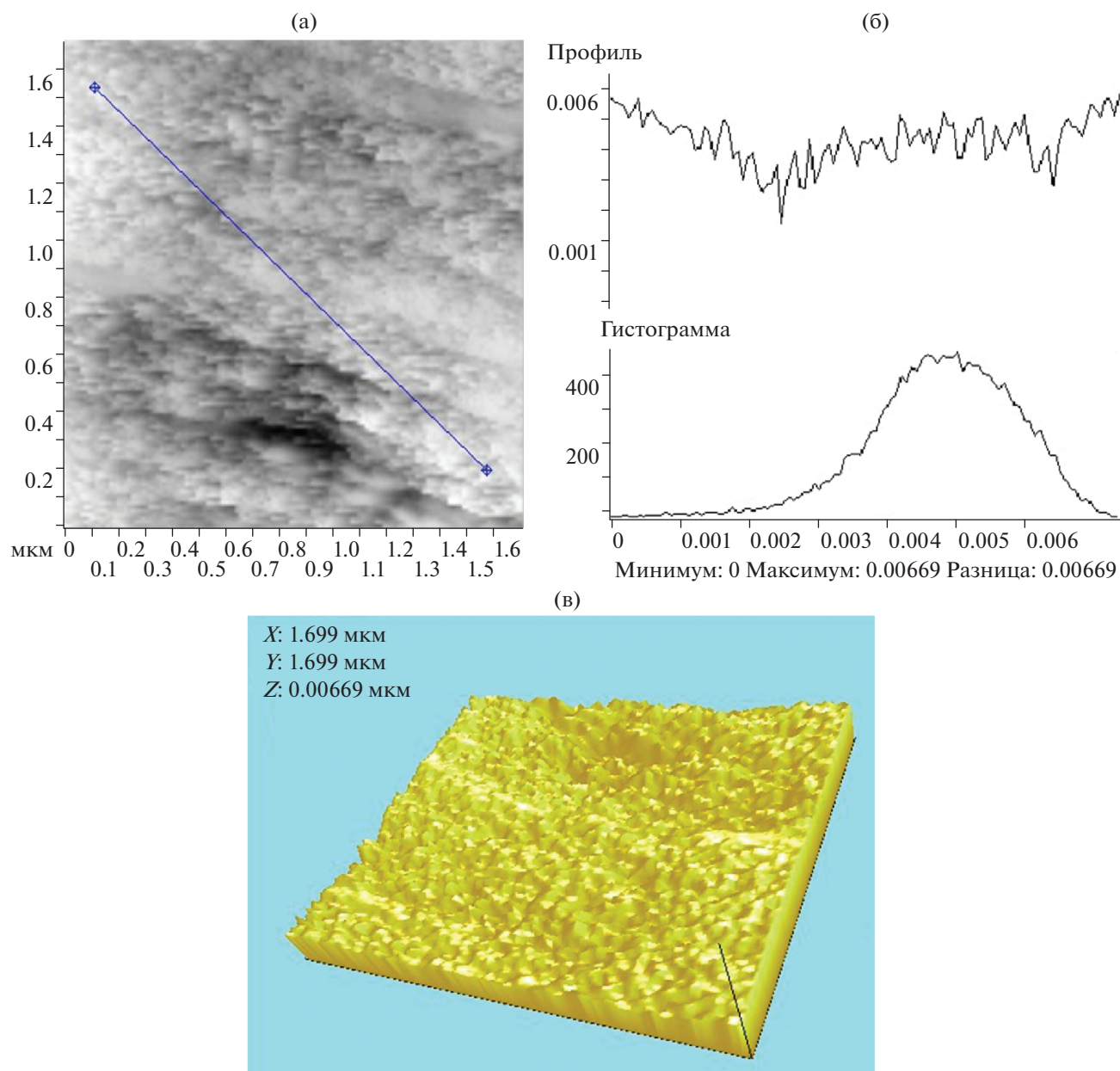


Рис. 8. СТМ-изображение ( $1.7 \times 1.7 \text{ мкм}^2$ ) (а), профиль и гистограмма (б), 3D-модель поверхности (в) образца 6 (табл. 1).

пленках промежуточных оксидов ванадия, в том числе и  $V_6O_{13}$  с металлическим типом проводимости (рис. 1), ожидаемо увеличивает поглощение, особенно в коротковолновой области.

Температурные зависимости удельного электрического сопротивления синтезированных пленок представлены на рис. 7.

Для образцов 3–5 (табл. 1) характерно проявление Д–М-перехода (рис. 7), при этом сопротивление изменяется на 2–2.5 порядка. Ширина температурного гистерезиса для образцов 4, 5 составляет порядка  $5^\circ\text{C}$ , для образца 3 –  $6^\circ\text{C}$ . Кроме того, температурный гистерезис для этого образца

выражен менее явно. Максимальная амплитуда изменения сопротивления характерна для пленки после отжига в вакууме при температуре  $480^\circ\text{C}$  (образец 5), когда содержание диоксида ванадия значительно увеличивается (рис. 1). Температура Д–М-перехода для образцов, отожженных в вакууме в более жестких условиях ( $450$  и  $480^\circ\text{C}$ ) ниже на 5 и  $6^\circ\text{C}$  соответственно по сравнению с  $t_c$  для объемного материала ( $68^\circ\text{C}$ ).

В монокристаллах  $VO_2$  при Д–М-переходе изменение удельного сопротивления достигает  $10^5$  раз в диапазоне температур 0.1 К. Величина этого перехода и узость петли гистерезиса являются хоро-



шими показателями близости состава образца к  $\text{VO}_2$ . Стехиометрические отклонения, поликристалличность пленки, неоднородность протекания процесса восстановления пентаоксида ванадия на поверхности и в объеме зерна размывают Д–М-переход по температуре и увеличивают ширину петли гистерезиса. Присутствующая в исследуемых пленках фаза  $\text{V}_6\text{O}_{13}$  с металлическим типом проводимости уменьшает сопротивление образцов в изолирующей области, однако выше температуры Д–М-перехода фаза  $\text{V}_6\text{O}_{13}$ , имеющая более высокое сопротивление, чем  $\text{VO}_2$ , повышает сопротивление пленки. В результате амплитуда Д–М-перехода пленки значительно уменьшается.

Таким образом, фазовый переход в синтезированных пленках может варьироваться от резкого до постепенного, при этом оба варианта могут быть востребованными в зависимости от применения: например, резкие переходы – для коммутации [4], постепенные – для настройки оптических резонансов [21].

Синтезированные методом центрифугирования геля  $\text{V}_2\text{O}_5$  наноразмерные пленки являются достаточно гладкими, перепад высот не превышает 6 нм (рис. 8).

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, выбор условий синтеза прекурсора и режимов термообработки позволяют задавать толщину формируемых центрифугированием геля  $\text{V}_2\text{O}_5$  пленок, содержание  $\text{VO}_2$  в синтезируемых образцах, управлять оптическими и электрофизическими свойствами пленок. Пленки, прошедшие вакуумный отжиг при температурах 425, 450 и 480 °С, имеют ярко выраженные s-образные петли гистерезиса на температурных зависимостях сопротивления, которые вырождаются в прямые для образцов, прошедших отжиг в мягких условиях или без отжига. Фазовый состав синтезированных пленок и степень кристалличности определяют амплитуду изменения сопротивления при Д–М-переходе.

## БЛАГОДАРНОСТЬ

Результаты исследований частично получены на оборудовании Центра коллективного пользования Воронежского государственного университета.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Wang W., Luo Y., Zhang D., Luo F. Dynamic Optical Limiting Experiments on Vanadium Dioxide and Vanadium Pentoxide Thin Films Irradiated by a Laser Beam // *Appl. Opt.* 2006. V. 45. № 14. P. 3378–3381. <https://doi.org/10.1364/AO.45.003378>
2. Wan C., Horak E.H., King J., Salman J., Zhang Z., Zhou Y., Roney P., Gundlach B., Ramanathan S., Gold-

smith R.H., Kats M.A. Limiting Optical Diodes Enabled by the Phase Transition of Vanadium Dioxide // *ACS Photonics*. 2018. V. 5. № 7. P. 2688–2692. <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.8b00313>

3. Soltani M., Chaker M., Haddad E., Kruzelecky R.V., Nikanpour D. Optical Switching of Vanadium Dioxide Thin Films Deposited by Reactive Pulsed Laser Deposition // *J. Vac. Sci. Technol., A*. 2004. V. 22. P. 859–864. <https://doi.org/10.1116/1.1722506>
4. Ligmajer F., Kejik L., Šikola T., Konečný M., Lei D. Y., Tiwari U., Appavoo K., Qiu M., Jin W., Nag J., Haglund R.F. Epitaxial  $\text{VO}_2$  Nanostructures: a Route to Large-Scale, Switchable Dielectric Metasurfaces // *ACS Photonics*. 2018. V. 5. № 7. P. 2561–2567. <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.7b01384>
5. Kats M.A., Blanchard R., Zhang S., Genevet P., Ko C., Ramanathan S., Capasso F. Vanadium Dioxide as a Natural Disordered Metamaterial: Perfect Thermal Emission and Large Broadband Negative Differential Thermal Emittance // *Phys. Rev. X*. 2013. V. 3. № 4. P. 041004-1–041004-7. <https://doi.org/10.1103/PhysRevX.3.041004>
6. Yang Z., Ko C., Ramanathan S. Oxide Electronics Utilizing Ultrafast Metal-Insulator Transitions // *Annu. Rev. Mater. Res.* 2011. V. 41. P. 337–367. <https://doi.org/10.1146/annurev-matsci-062910-100347>
7. Kakiuchida H., Jin P., Nakao S., Tazawa M. Optical Properties of Vanadium Dioxide Film during Semiconductor–Metallic Phase Transition // *Jpn. J. Appl. Phys.* 2007. V. 46. № 2L. L113.
8. Сладкопеев Б.В., Миттова И.Я., Томина Е.В., Буричева Н.А. Формирование пленок оксидов ванадия на поверхности  $\text{InP}$  в мягких условиях и термоокисидирование полученных структур // *Неорган. материалы*. 2012. Т. 48. № 2. С. 205–212.
9. Березина О.Я., Величко А.А., Луговская Л.А., Пергамент А.Л., Стефанович Г.Б. Фазовый переход металл–полупроводник в пленках нестехиометрического диоксида ванадия // *Неорган. материалы*. 2007. Т. 43. № 5. С. 577–583.
10. Тимошенко С.П., Калугин В.В., Прокопьев Е.П. Исследование технологии пластин кремния в процессе изготовления структур КНИ и микроэлектронных изделий // *Нано- и микросистемная техника*. 2003. № 1. С. 13–22.
11. Кудасов Ю.Б. Электрофизические измерения. М.: Физматлит, 2010. 184 с.
12. Ningyi Y., Jinhua L., Chenglu L. Valence Reduction Process from Sol-Gel  $\text{V}_2\text{O}_5$  to  $\text{VO}_2$  Thin Films // *Appl. Surf. Sci.* 2002. V. 191. № 1–4. P. 176–180. [https://doi.org/10.1016/S0169-4332\(02\)00180-0](https://doi.org/10.1016/S0169-4332(02)00180-0)
13. Hanlon T.J., Walker R.E., Coath J.A., Richardson M.A. Comparison between Vanadium Dioxide Coatings on Glass Produced by Sputtering, Alkoxide and Aqueous Sol–Gel Methods // *Thin Solid Films*. 2002. V. 405. № 1. P. 234–237. [https://doi.org/10.1016/S0040-6090\(01\)01753-9](https://doi.org/10.1016/S0040-6090(01)01753-9)
14. Структурная неорганическая химия: в 3 т. / Пер. с англ. Уэллс А.Ф.; Под ред. Порай-Кошица М.А. М.: Мир, 1987. Т. 3. 563 с.
15. Миттова И.Я., Швец В.А., Томина Е.В., Самсонов А.А., Сладкопеев Б.В., Третьяков Н.Н. Определение



- толщины и оптических постоянных наноразмерных пленок, выращенных термоокисидированием InP с магнетронно нанесенными слоями хемостимуляторов  $V_2O_5$ ,  $V_2O_5 + PbO$ ,  $NiO + PbO$  // Неорганич. материалы. 2013. Т. 49. № 10. С. 1037–1044.
16. Швец В.А., Рыхлицкий С.В., Миттова И.Я., Томина Е.В. Исследование оптических и структурных свойств оксидных пленок на InP методом спектральной эллипсометрии // Журн. техн. физики. 2013. Т. 83. № 11. С. 92–99.
  17. Миттова И.Я., Швец В.А., Томина Е.В., Сладкопечев Б.В., Третьяков Н.Н., Лапенко А.А. Экспресс-контроль толщины и спектрально-эллипсометрическое исследование пленок, полученных термоокисидированием InP и структур  $V_xO_y/InP$  // Неорганич. материалы. 2013. Т. 49. № 2. С. 173–178. <https://doi.org/10.7868/S0002337X13020140>
  18. Kristoffersen H.H., Metiu H. Structure of  $V_2O_5 \cdot nH_2O$  Xerogels // J. Phys. Chem. C. 2016. V. 120. № 7. P. 3986–3992. <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.5b12418>
  19. Гаврилюк А.И., Рейнов Н.М., Чудновский Ф.А. Фото- и термохромизм в аморфных пленках  $V_2O_5$  // Письма в ЖТФ. 1979. Т. 5. № 20. С. 1227–1230.
  20. Lamsal C., Ravindra N.M. Optical Properties of Vanadium Oxides-an Analysis // J. Mater. Sci. 2013. V. 48. № 18. P. 6341–6351. <https://doi.org/10.1007/s10853-013-7433-3>
  21. Rensberg J., Zhou Y., Richter S., Wan C., Zhang S., Schöppe P., Schmidt-Grund R., Ramanathan S., Capasso F., Kats M.A., Ronning C. Epsilon-Near-Zero Substrate Engineering for Ultrathin-Film Perfect Absorbers // Phys. Rev. Appl. 2017. V. 8. № 1. P. 014009. <https://doi.org/10.1103/PhysRevApplied.8.014009>