

ФИЗИКА · ՖԻԶԻԿԱ · PHYSICS



ИЗВЕСТИЯ
НАЦИОНАЛЬНОЙ АКАДЕМИИ НАУК АРМЕНИИ

ՏԵՂԵԿԱԳԻՐ
ՀԱՅԱՍՏԱՆԻ ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ԱԶԳԱՅԻՆ ԱԿԱԴԵՄԻԱՅԻ

PROCEEDINGS
OF NATIONAL ACADEMY OF SCIENCES OF ARMENIA

Журнал издается с 1966 г.
Выходит 6 раз в год
на русском и английском языках.

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

Вл. М. Арутюнян, главный редактор
Э. Г. Шароян, зам. главного редактора
Вил. М. Арутюнян
А. А. Ахумян
Г. А. Вартапетян
Э. М. Казарян
А. О. Меликян
А. Р. Мкртчян
В. О. Папанян
А. А. Мирзаханян, ответственный секретарь

ԽՍՀՄԳՐԱԿԱՆ ԿՈՒԵԳԻԱ

Վլ. Մ. Հարությունյան, գլխավոր խմբագիր
Է. Գ. Շառոյան, գլխավոր խմբագրի տեղակալ
Վիլ. Մ. Հարությունյան
Ա. Ա. Հախումյան
Հ. Հ. Վարդապետյան
Է. Մ. Ղազարյան
Ա. Հ. Մելիքյան
Ա. Ռ. Մկրտչյան
Վ. Օ. Պապանյան
Ա. Ա. Միրզախանյան, պատասխանատու քարտուղար

EDITORIAL BOARD

Vl. M. Aroutiounian, editor-in-chief
E. G. Sharoyan, associate editor
Vil. M. Harutyunyan
A. A. Hakhumyan
H. H. Vartapetian
E. M. Kazarian
A. O. Melikyan
A. R. Mkrtchyan
V. O. Papanyan
A. A. Mirzakhanyan, executive secretary

Адрес редакции: Республика Армения, 375019,
Ереван, пр. Маршала Баграмяна, 24-г.

Խմբագրության հասցեն՝ Հայաստանի Հանրապետություն,
375019, Երևան, Մարշալ Բաղրամյան պող., 24-գ:

Editorial address: 24-g, Marshal Bagramyan Av.,
Yerevan, 375019, Republic of Armenia.

УДК 535.14

СОГЛАСОВАНИЕ ФАЗ ПРИ ГЕНЕРАЦИИ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ

С. Т. ГЕВОРКЯН, В. А. МАЛОЯН

Институт физических исследований НАН Армении

(Поступила в редакцию 8 апреля 1997 г.)

Для внутрирезонаторной генерации второй гармоники исследовано согласование фаз взаимодействующих мод. В положительном Р-представлении с помощью численного решения стохастических уравнений Ланжевена для этой системы вычислена функция совместного распределения фаз фундаментальной моды и второй гармоники. Показано, что для больших времен и начальных вакуумных состояний обеих мод функция распределения правее точки бифуркации системы имеет провал. Размеры провала увеличиваются при удалении системы от точки бифуркации вправо.

1. Введение

Генерация второй гармоники (ГВГ) внутри двухмодового резонатора является наиболее простым процессом при исследовании оптической неустойчивости. В частности, полуклассическая теория ГВГ предсказала автоколебания интенсивностей фундаментальной моды и второй гармоники [1], которые в дальнейшем были наблюдаемы в ряде экспериментов [2-4]. Впервые квантовая динамика числа фотонов и дисперсии квадратурных амплитуд была исследована в работе [5]. В работе [6] исследована динамика функции распределения фаз фундаментальной моды и второй гармоники. В ней показано, что и фундаментальная мода, и вторая гармоника в неустойчивой области и для больших времен имеют две наиболее вероятные значения фаз.

Настоящая работа, хотя и представляет отдельную физическую задачу, является органическим продолжением [6]. В ней с помощью численного решения уравнений Ланжевена для оптической системы в области неустойчивости исследуются совместные флуктуации фаз взаимодействующих мод.

2. Основные уравнения

Мы рассматриваем модель генерации второй гармоники внутри двухмодового резонатора. Нелинейная среда помещена в кольцевой резонатор, который настроен на частотах фундаментальной моды ω_1 и второй гармоники $\omega_2 = 2\omega_1$. Полагаем, что фундаментальная мода резо-

нансно возбуждается внешним классическим полем. Учитывается затухание мод через одно из зеркал резонатора. Гамильтониан, описывающий такое взаимодействие может быть представлен в следующем виде:

$$H = \hbar \omega_1 a_1^\dagger a_1 + \hbar \omega_2 a_2^\dagger a_2 + H_{\text{int}} + H_{\text{loss}},$$

$$H_{\text{int}} = i\hbar \chi (a_1^2 a_2^\dagger - a_1^{\dagger 2} a_2) + i\hbar (E e^{-i\omega_1 t} a_1^\dagger - E^* e^{i\omega_1 t} a_1), \quad (1)$$

$$H_{\text{loss}} = a_1 \Gamma_1^\dagger + a_1^\dagger \Gamma_1 + a_2 \Gamma_2^\dagger + a_2^\dagger \Gamma_2.$$

Здесь $a_i^\dagger, a_i$ ($i=1,2$) — операторы рождения и уничтожения фотонов фундаментальной моды и второй гармоники, χ — коэффициент связи между модами, пропорциональный нелинейной восприимчивости среды $\chi^{(2)}$, E — классическая амплитуда поля возмущения с частотой ω_1 , Γ_i , $\Gamma_i^\dagger$ — операторы термостатов соответствующих мод, которые определяют коэффициенты затухания мод резонатора γ_1, γ_2 на частотах ω_1, ω_2 соответственно.

Из гамильтониана (1) после адиабатического исключения операторов резервуаров мод в положительном P -представлении [7] получаем следующие уравнения Ланжевена:

$$\frac{\partial \alpha_1}{\partial t} = E - \gamma_1 \alpha_1 - 2\chi \beta_1 \alpha_2 + \sqrt{-2\chi \alpha_2} \xi_1(t),$$

$$\frac{\partial \beta_1}{\partial t} = E^* - \gamma_1 \beta_1 - 2\chi \alpha_1 \beta_2 + \sqrt{-2\chi \beta_2} \xi_2(t), \quad (2)$$

$$\frac{\partial \alpha_2}{\partial t} = -\gamma_2 \alpha_2 + \chi \alpha_1^2,$$

$$\frac{\partial \beta_2}{\partial t} = -\gamma_2 \beta_2 + \chi \beta_1^2.$$

Здесь β_i, α_i — независимые c -числовые переменные, соответствующие медленно меняющимся во времени операторам амплитуд $a_i^\dagger, a_i$ ($i=1,2$). Шумовые члены уравнений $\xi_1(t), \xi_2(t)$ имеют нулевые средние значения: $\langle \xi_1(t) \rangle = \langle \xi_2(t) \rangle = 0$. Отличными от нуля корреляционными функциями для них являются

$$\langle \xi_1(t) \xi_1(t') \rangle = \langle \xi_2(t) \xi_2(t') \rangle = \delta(t-t'). \quad (3)$$

Система уравнений (2) для больших времен ($\gamma_1 t \gg 1, \gamma_2 t \gg 1$) имеет устойчивые стационарные решения для числа фотонов и фаз

$$n_k = \alpha_k \beta_k, \quad \phi_k = \frac{1}{2i} \ln \left(\frac{\alpha_k}{\beta_k} \right) \quad (k=1,2) \quad (4)$$

взаимодействующих мод лишь в случае слабых полей возмущения $E < E_{cr}$. Здесь E_{cr} — точка бифуркаций Хопфа, которая определяется следующей формулой [1]:

$$E_{cr} = (2\gamma_1 + \gamma_2) \sqrt{\frac{\gamma_2(\gamma_1 + \gamma_2)}{2\chi^2}}. \quad (5)$$

В этой точке малые флуктуации фаз взаимодействующих мод не затухают. Последнее является физической причиной неустойчивого поведения всей оптической системы правее от критической точки.

3. Совместные флуктуации фаз взаимодействующих мод

Дальнейшее наше вычисление основано на моделировании Ланжевеновских шумовых источников и получении ансамбля численных реализаций системы уравнений (4). Для вычисления динамики среднего числа фотонов и дисперсии квадратурной амплитуды вышеуказанный метод впервые был предложен в работе [5].

Обратимся к вычислению плотности совместного распределения фаз взаимодействующих мод. Эту величину мы вычисляем с помощью следующей очевидной формулы [8]:

$$P(\phi_1, \phi_2, t) = \lim_{\substack{N \rightarrow \infty \\ \Delta\phi_1 \rightarrow 0, \Delta\phi_2 \rightarrow 0}} \left(\frac{S_N(t)}{N} \right). \quad (6)$$

Здесь $P(\phi_1, \phi_2, t)$ — функция распределения в момент времени t , $S_N(t)$ — число тех реализаций, которые в момент времени t находятся в элементе фазового пространства $\Delta\phi_1 \Delta\phi_2$ (с точкой ϕ_1, ϕ_2 внутри), N — число реализаций в ансамбле.

Для случая достаточно малых фазовых элементов ($|\Delta\phi_2| \ll 1$, $|\Delta\phi_1| \ll 1$) точность численного вычисления функции распределения определяется статистической ошибкой $\sqrt{S_N}/S_N$, которая для наших вычислений составила 5-7 процентов для пиковых значений этих функций.

Следует отметить, что в положительном Р-представлении числа фотонов и фазы являются комплексными величинами. Система уравнений (2) характеризует траектории оптической системы в восьмимерном фазовом пространстве. Область фазового пространства, где выполняется условие комплексной сопряженности $\alpha_k = \beta_k^*$ ($k=1,2$) стохастических амплитуд, является классическим подпространством, где систему можно характеризовать с помощью представления Глаубера-Сударшана [9,10] в четырехмерном фазовом пространстве. В случае малых нелинейностей ($\chi/\gamma_1 \ll 1$, $\chi/\gamma_2 \ll 1$) величина, которая характеризует неклассичность фазового пространства,

$$\sqrt{\frac{\langle (\text{Im}(n_k))^2 \rangle}{\langle (\text{Re}(n_k))^2 \rangle}} \quad (7)$$

мала. Для значений параметров $\gamma_2 = \gamma_1 = \gamma$, $E/\gamma = 50$, $\chi/\gamma = 0.1$ эта величина равна ≈ 0.1 .

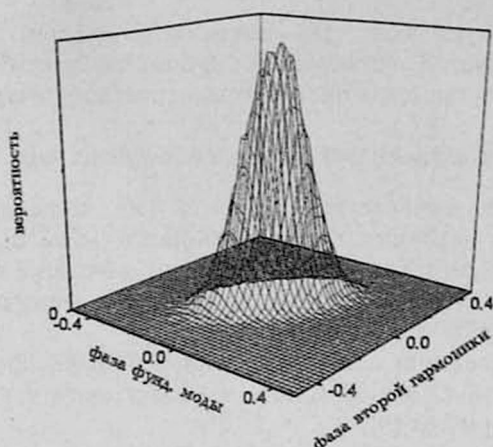


Рис. 1. Плотность совместного распределения фаз фундаментальной моды и второй гармоники в момент времени $\gamma t = 10$. Функция вычислена с помощью 100000 траекторий уравнений (2) в случае начальных вакуумных состояний обеих мод и для значений параметров $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma$, $\chi/\gamma = 0.1$, $E/\gamma = 10$.

На рис.1 для начальных вакуумных состояний обеих мод (естественные начальные условия) $\alpha_k(0) = \beta_k(0) = 0$ ($k=1,2$) приведена плотность вероятности совместного распределения фаз фундаментальной моды и второй гармоники в момент времени $\gamma t = 10$ и для следующих значений параметров: $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma$, $\chi/\gamma = 0.1$, $E/\gamma = 10$. При этих параметрах критическое возмущение равно $E_{cr}/\gamma = 30$. Рисунок представляет фазовое согласие между взаимодействующими модами левее от критической точки, где система имеет устойчивые стационарные полуклассические решения для числа фотонов n_1^0, n_2^0 и фаз $\phi_1^0 = \phi_2^0 = 0$. В этой области фазовые флуктуации значительно меньше единицы и наиболее вероятные значения пары фаз совпадают с полуклассическими значениями этих величин.

Правее от критической точки (см. рис. 2) фазовые флуктуации становятся порядка единицы, и события в некоторой области, окружающей точку $(\phi_1 = 0, \phi_2 = 0)$, имеют нулевую вероятность реализации. При приближении системы к точке бифуркации справа ($E \rightarrow E_{cr}$) вышеуказанная область уменьшается и в критической точке вместо провала вокруг значений $(\phi_1 = 0, \phi_2 = 0)$ получаем острый пик в этой точке.

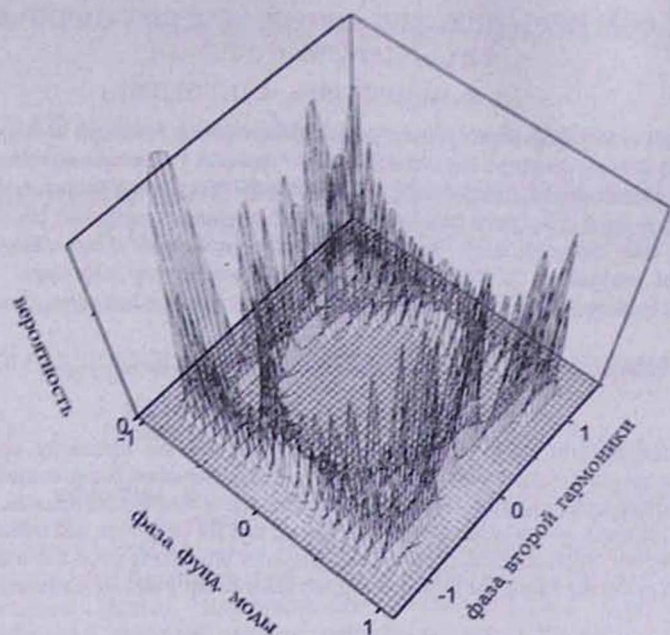


Рис. 2. Плотность совместного распределения фаз фундаментальной моды и второй гармоники в момент времени $\gamma t = 10$. Функция вычислена с помощью 100000 траекторий уравнений (2) в случае начальных вакуумных состояний обеих мод и для значений параметров $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma$, $\chi/\gamma = 0.1$, $E/\gamma = 50$.

Для больших времен $\gamma t \gg 1$ в случае начальных вакуумных состояний обеих мод плотность совместного распределения фаз становится независимой от времени. Следует отметить, что в общем случае функции распределения числа фотонов и фаз в этом пределе не имеют стационарных решений. В работе [6] показано, что в случае начальных когерентных состояний обеих мод функции распределения фаз второй гармоники и фундаментальной моды в области неустойчивости, в пределе больших времен находятся в режиме автоколебания.

С.Т. Геворкян выражает благодарность проф. Р. Грахаму за полезные обсуждения и ценные замечания. Работа выполнена в рамках темы 96-775, финансируемой Министерством образования и науки Армении.

ЛИТЕРАТУРА

1. P.D. Drummond, K.J. McNeil, D. F. Walls. *Optica Acta*, 28, 211 (1981).
2. L.A. Lugiato. *Progr. in Optics*, XXI, 68 (1984).
3. K. Ikeda, H. Daido, O. Akimoto. *Phys. Rev. Lett.*, 45, 709 (1980).
4. P.D. Drummond, C.W. Gardiner. *J. Phys.*, A13, 2353 (1980).
5. M. Dorfle, A. Schenzle. *Z. Phys.*, B65, 113 (1986).
6. S.T. Gevorkyan, W.A. Maloyan. *Journ. of Modern Optics*, 44, 1443 (1997).
7. К.В. Гардинер. *Стохастические методы в естественных науках*. М., Мир, 1986.
8. Ф.М. Куни. *Статистическая физика и термодинамика*. М., Наука, 1981.
9. Дж. Сударшан, Э.С. Клаудер. *Основы квантовой оптики*. М., Мир, 1970.
10. П. Глаубер. *Оптическая когерентность и статистика фотонов*. В кн. "Квантовая оптика и квантовая радиофизика". М., Мир, 1966.

ՓՈՒԱՅԻՆ ՀԱՄԱՁԱՅՆԵՑՈՒՄԸ ԵՐԿՐՈՐԴ ՀԱՐՄՈՆԻԿԻ
ԳԵՆԵՐԱՑԻԱՅԻ ԺԱՄԱՆԱԿ

Ս. Թ. ԳԵՎՈՐԳՅԱՆ, Վ. Ա. ՄԱԼՈՅԱՆ

Երկրորդ հարմոնիկի մերոնեզմատության գեներացիայի երեսույթի համար հետազոտվել է փոխազդող մոդերի փուլային համաձայնեցումը: Դրական P-պատկերացումում համակարգը քննության ենթարկվում է Լանժեմանի ստոխաստիկ հավասարումների լուծման ճանապարհով հաշված է ֆունկցիոնալ մոդի եւ երկրորդ հարմոնիկի փուլերի համատեղ բաշխման ֆունկցիան: Ցույց է տրված, որ մեծ ժամանակների եւ երկու մոդերի սկզբնական վաղուտային վիճակների պարագայում բաշխման ֆունկցիան քիֆուրկացիոն կետից աջ ունի փոս: Փոսի չափերը մեծանում են համակարգի քիֆուրկացիոն կետից դեպի աջ հեռացմանը զուգընթաց:

PHASE MATCHING IN SECOND HARMONIC GENERATION

S. T. GEVORKYAN, W. A. MALOYAN

Phase-matching of coupled modes is investigated for the intracavity second harmonic generation in the instability region. In the positive P-representation using numerical solution of Langevin stochastic equations for this system the joint phase distribution function of fundamental and second harmonic modes is calculated. It is shown that for large time and initial vacuum states of both modes the distribution function in the right from bifurcation point has a dip. A removing of the system to the right from the bifurcation point leads to dip's size enhancement.

УДК 621.373.826

САМОВОЗДЕЙСТВИЕ ФЕМТОСЕКУНДНОГО ЛАЗЕРНОГО ИМПУЛЬСА В НЕЛИНЕЙНОЙ БЕЗДИСПЕРСНОЙ СРЕДЕ

А. А. АКОПЯН

Государственный инженерный университет Армении

(Поступила в редакцию 6 декабря 1996 г.)

С помощью метода многих масштабов получено аналитическое выражение, описывающее амплитуду фемтосекундного лазерного импульса с произвольным временным профилем, распространяющегося в нелинейной бездисперсной среде в приближении малой нелинейности с учетом вклада нелинейности 5-ого порядка. Получена также зависимость несущей частоты импульса с временным профилем в виде гиперболического секанса на входе от бегущих координат.

Известно, что при прохождении пико- и фемтосекундных лазерных импульсов через оптически нелинейную бездисперсную среду возникает асимметрия антистоксовой и стоксовой компонент спектра, причем это явление имеет место даже без участия процессов самофокусировки, оптического пробоя и конечного времени отклика [1]. В работах [2-6] были предложены различные асимптотические решения, объясняющие эту асимметрию.

В данной статье приводится решение нелинейного уравнения Максвелла, описывающее бездисперсное распространение фемтосекундного лазерного импульса в нелинейной среде, полученное методом многих масштабов [7]. При этом, в отличие от решений, приведенных в [4-6], в данной работе получено решение с учетом нелинейности 5-ого порядка.

Волновое уравнение для скалярной плоской волны в оптически однородном изотропном диэлектрике с нелинейностью до 5-ого порядка без учета хроматической дисперсии, записанное в безразмерных величинах, имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} (\partial^2 / \partial Z^2 - \partial^2 / \partial T^2) \Phi = 2\varepsilon \cdot \partial^2 / \partial T^2 (< \Phi \cdot \Phi >_T \cdot \Phi) + \\ + 4\mu \cdot \partial^2 / \partial T^2 (< \Phi \cdot \Phi >_T^2 \cdot \Phi). \end{aligned} \quad (1)$$

Величины, входящие в это уравнение, определяются следующим образом: $Z = z/(u\tau_0)$; $T = t/\tau_0$; $n^2 = n_0^2 + 2n_0n_2<E \cdot E>_t + 2n_0n_4<E \cdot E>_t^2$; $u = c/n_0$; $\varepsilon = n_2E_0^2/n_0$; $\mu = n_4E_0^2/2n_0$; $E = E_0\Phi$, где $2\tau_0$ — длительность импульса, n_0 — линейная часть показателя преломления, n_2 — добавка к показателю преломления от кубичной нелинейности, n_4 — добавка к показателю преломления от нелинейности 5-ого порядка, ε — безразмерный

параметр, определяющий величину кубичной нелинейности, μ — безразмерный параметр, определяющий величину нелинейности 5-ого порядка, E_0 — максимальное значение действительной амплитуды вектора напряженности электрического поля, Φ — нормированное действительное значение вектора напряженности электрического поля в среде, $\langle \rangle_T$ — усреднение по времени.

В случае, когда огибающая импульса меняется достаточно медленно на масштабах среднего периода колебаний, $\langle \Phi \cdot \Phi \rangle_T = |\Phi|^2/2$ и уравнение (1) принимает следующий вид:

$$(\partial^2 / \partial Z^2 - \partial^2 / \partial T^2) \Phi = \varepsilon \cdot \partial^2 / \partial T^2 (|\Phi|^2 \cdot \Phi) + \mu \cdot \partial^2 / \partial T^2 (|\Phi|^4 \cdot \Phi). \quad (2)$$

В координатах $\xi = Z$ и $\eta = Z - T$ уравнение (2) запишется следующим образом:

$$(\partial^2 / \partial \xi^2 + 2\partial^2 / \partial \eta \partial \xi) \Phi = \varepsilon \cdot \partial^2 / \partial \eta^2 (|\Phi|^2 \cdot \Phi) + \mu \cdot \partial^2 / \partial \eta^2 (|\Phi|^4 \cdot \Phi). \quad (3)$$

При малых значениях ε и μ исходное уравнение можно решить методом многих масштабов теории возмущений. В разложении по степеням ε будут учитываться члены до второго порядка малости, а по степеням μ — до первого порядка.

Поскольку искомая функция Φ зависит не только в отдельности от аргументов η , ξ и от параметров малости ε и μ , описывающих возмущение, но и от их комбинаций вида $\varepsilon\eta$, $\varepsilon\xi$, $\varepsilon^2\eta$, $\varepsilon^2\xi$, $\mu\eta$, $\mu\xi$, ..., то можно записать

$$\Phi(\eta, \xi, \varepsilon, \mu) = \Phi(\eta_n, \xi_n; \varepsilon, \mu), \quad n = 0, 1, 2, 3, \quad (4)$$

где аргументы η_n , ξ_n определяются следующим образом: $\eta_n = \varepsilon^n \eta$, $\xi_n = \varepsilon^n \xi$, $n = 0, 1, 2$; $\eta_3 = \mu\eta$, $\xi_3 = \mu\xi$.

Таким образом, вместо того, чтобы рассматривать Φ как функцию аргументов η и ξ , мы будем определять ее как функцию переменных η_n , ξ_n . С этой целью перейдем в исходном уравнении от независимых переменных η , ξ к независимым переменным η_n , ξ_n . Используя правило дифференцирования сложной функции, перейдем от производных по η , ξ к производным по η_n , ξ_n . Будем искать приближенное решение исходного уравнения в виде разложения искомой функции до второго порядка по степеням ε и до первого порядка по степеням μ :

$$\begin{aligned} \Phi(\eta, \xi) = & \Phi_0(\eta_n, \xi_n) + \varepsilon \cdot \Phi_1(\eta_n, \xi_n) + \varepsilon^2 \cdot \Phi_2(\eta_n, \xi_n) + \\ & + \mu \cdot \Phi_3(\eta_n, \xi_n), \quad n = 0, 1, 2, 3. \end{aligned} \quad (5)$$

Подставляя это разложение в исходное уравнение и полагая $\Phi_1 = \Phi_2 = \Phi_3 = 0$, получаем, что исходное уравнение распадается на систему из четырех уравнений.

Будем искать Φ_0 в виде

$$\Phi_0 = a(\eta_n, \xi_n) \cdot \exp[i\alpha(\eta_n, \xi_n) + iW\eta_0], \quad n = 1, 2, 3, \quad (6)$$

где $W = \omega_0 \tau_0$, ω_0 — несущая частота импульса.

Подставляя эту функцию последовательно во все уравнения и переходя к исходным переменным η , ξ , запишем окончательные два уравнения первого порядка, первое из которых описывает поведение амплитуды импульса, а второе — фазы:

$$\partial a / \partial \xi - (3/2) \cdot \varepsilon a^2 \cdot \partial a / \partial \eta = 0, \quad (7)$$

$$\partial a / \partial \xi - (\varepsilon a^2 / 2) \cdot \partial a / \partial \eta = \varepsilon W a^2 / 2 - \varepsilon^2 W a^4 / 8 + \mu W a^4 / 2. \quad (8)$$

Уравнение (7) соответствует аналогичному уравнению из [5], а в уравнении (8) добавляется последнее слагаемое в правой части по сравнению с аналогичным выражением из [5].

Решение уравнения (7) имеет следующий вид:

$$a(\eta, \xi) = a[\eta + (3/2) \cdot \varepsilon a^2 \xi]. \quad (9)$$

В частности, для импульса с временным профилем в виде гиперболического секанса на входе

$$a^2(\eta, 0) = \operatorname{sech}(\eta) \quad (10)$$

решение имеет вид

$$a(\eta, \xi) = \operatorname{sech}[\eta + (3/2) \cdot \varepsilon a^2 \xi]. \quad (11)$$

Из решения уравнения (8) можно получить следующее выражение для нормированной несущей частоты $\Omega(\eta, \xi)$:

$$\begin{aligned} \Omega(\eta, \xi) = (1/W) \cdot \partial a / \partial \eta = -1 - (\varepsilon' / 2) \cdot a^2(\eta, \xi) + a(\eta, \xi) / \cos[f(\eta, \xi)] + \\ + (\varepsilon' / 2) \cdot a(\eta, \xi) \cdot \cos[f(\eta, \xi)], \end{aligned} \quad (12)$$

где $\varepsilon' = (\varepsilon^2 - 4\mu) / \varepsilon$, а

$$f(\eta, \xi) = \arcsin(\operatorname{th} \eta) + (\varepsilon / 2) \int_0^\xi a^3(\eta, q) dq. \quad (13)$$

При выводе (12) было учтено граничное условие $a(\eta, 0) = 0$.

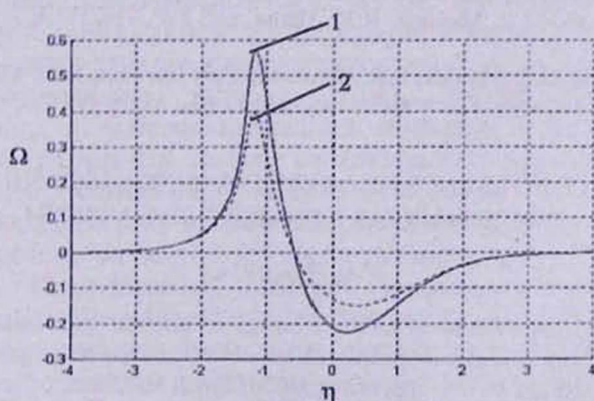


Рис.1. Нормированная несущая частота импульса с временным профилем в виде гиперболического секанса на входе при следующих значениях параметров: $2\tau_0 = 80$ фс, $\lambda_0 = 1,3$ мкм, $I = 5 \cdot 10^{12}$ Вт/см², $n_0 = 1,5$, $n_2 = 6 \cdot 10^{-14}$ см²/Вт ($\varepsilon = 0,2$), $n_4 = 8,4 \cdot 10^{-27}$ см⁴/Вт² ($\mu = 0,07$), $\xi = 3$ ($z = 24$ мкм), 1) график, полученный по результатам данной работы, 2) график, полученный по результатам [5].

На рис. 1 приведены результаты численных расчетов для нормированной несущей частоты с учетом и без учета нелинейности 5-ого порядка импульса с огибающей в виде гиперболического секанса на входе длительностью 80 фс на длине волны $\lambda_0 = 2\pi c/\omega_0 = 1,3$ мкм с интенсивностью $I = 5 \cdot 10^{12}$ Вт/см², распространяющегося в среде с $n_0 = 1,5$, $n_2 = 6 \cdot 10^{-14}$ см²/Вт ($\varepsilon = 0,2$) и $n_4 = 8,4 \cdot 10^{-27}$ см⁴/Вт² ($\mu = 0,07$) на расстоянии $\xi = 3$ ($z = 24$ мкм).

Как видно из численных расчетов, имеет место асимметрия антистоксовой (ω_{as}) и стоксовой (ω_s) частот. При $\xi = 3$ ($z = 24$ мкм) с учетом нелинейности 5-ого порядка: $(\omega_{as} - \omega_0)/(\omega_0 - \omega_s) \approx 2,55$ и $\omega_{as} - \omega_s \approx 0,80 \cdot \omega_0$; для сравнения при $\xi = 3$ ($z = 24$ мкм) без учета нелинейности 5-ого порядка (в соответствии с [5]): $(\omega_{as} - \omega_0)/(\omega_0 - \omega_s) \approx 2,67$ и $\omega_{as} - \omega_s \approx 0,55 \cdot \omega_0$.

Таким образом, с помощью метода многих масштабов получено аналитическое выражение (9), описывающее амплитуду фемтосекундного лазерного импульса с произвольным временным профилем, распространяющегося в нелинейной бездисперсной среде в приближении малой ($\varepsilon \ll 1$) нелинейности с учетом нелинейности до 5-ого порядка.

Получена зависимость несущей частоты импульса с временным профилем в виде гиперболического секанса на входе от бегущих координат. Показано, что учет нелинейности 5-ого порядка не оказывает значительного влияния на соотношение уширений в антистоксову и стоксову области, но существенно меняет абсолютную величину этих уширений.

Автор выражает признательность А.О.Меликяну и Д.Л.Оганесяну за полезные обсуждения и сотрудничество в процессе проведения работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. R.L. Fork, C.V. Shank, C.Hirlimann, and R.Yen. Opt. Lett., 8, 1 (1983).
2. D. Anderson, M. Lisak. Phys. Rev. A., 27, 1393 (1983).
3. G. Yang and Y.R. Shen. Opt. Lett., 9, 510 (1984).
4. J.T. Manassah, R.R. Alfano, and M.Mustafa. Phys. Lett., 107A, 7, 305 (1985).
5. J.T. Manassah, M.A. Mustafa, R.R. Alfano, and P.P. Ho. IEEE J. QE - 22, 1, 197 (1986).
6. J.T. Manassah, M.A. Mustafa, R.R. Alfano, and P.P. Ho. Phys. Lett., 113A, 242 (1985).
7. А. Найфэ. Введение в методы возмущений. М., Мир, 1984.

SELF-INFLUENCE OF A FEMTOSECOND LASER PULSE IN A NONLINEAR NONDISPERSIVE MEDIUM

A. H. HAKOBIAN

With use of the method of multiple scales an analytic expression describing the amplitude of a femtosecond laser pulse with an arbitrary shape propagating in a nonlinear nondispersive medium in the approximation of small nonlinearity has been obtained taking into account the contribution of the nonlinearity of 5-th order. The running coordinates dependence of the carrier frequency of the pulse with the hyperbolic secant at the input has also been obtained.

УДК 537.26

ПЕРЕХОДНЫЕ ТОКИ В ФОТОХРОМНЫХ КРИСТАЛЛАХ НИОБАТА ЛИТИЯ

А. С. БАГДАСАРЯН, Э. С. ВАРТАНЯН,
Р. К. ОВСЕПЯН, А. Р. ПОГОСЯН

Институт физических исследований НАН Армении

(Поступила в редакцию 11 декабря 1996 г.)

При исследовании фотовольтаического эффекта в фотохромных кристаллах ниобата лития обнаружены переходные токи, сопровождающие процессы наведения и релаксации фотохромного эффекта. Предложен механизм возникновения этих токов на основе модели диссипации оптической энергии примесными центрами кристалла с учетом кинетической теории необратимых процессов.

В работе [1] исследовано влияние легирования различными примесями и их сочетаниями на фоторефрактивные свойства кристаллов ниобата лития. Обнаружено, что некоторые сочетания примесей приводят к появлению в кристалле фотохромного эффекта (ФХЭ) — фотоиндуцированного обратимого изменения коэффициента поглощения. В [1,2] предложена модель фотохромного эффекта, основанная на перезарядке между примесными центрами и балансе электронов. В настоящей работе исследованы фотоэлектрические характеристики фотохромных кристаллов, в частности, переходные токи, которые наблюдаются при наведении и релаксации фотохромного эффекта, а также влияние фотовольтаического эффекта на фотохромные свойства кристаллов ниобата лития. Обсуждаются механизмы фотохромного и фотовольтаического эффектов и их взаимовлияние. Предложена возможная модель возникновения переходных токов при перезарядке примесных центров различных типов.

В экспериментах исследовались зависимости фотовольтаического и фотохромного эффектов от интенсивности света на длине волны $\lambda=488$ нм. Исследовалась кинетика вышеуказанных эффектов при постоянном уровне возбуждающего излучения, а также релаксационные токи, которые наблюдаются после прекращения воздействия светового излучения. В качестве образцов использовались кристаллы ниобата лития ($\text{LiNbO}_3\text{:Fe:Cu}$ и $\text{LiNbO}_3\text{:Fe:Mn}$), выращенные методом Чохральского. Исследуемые кристаллы содержали 0.05 мас.% примеси железа и 0.03 мас.% примеси меди. В предположении случайно распределенной примеси вышеприведенные концентрации достаточно малы для того, чтобы происходило прямое взаимодействие между ионами примеси в кристалле или энергетические уровни железа и меди

находились в одной потенциальной яме. Образцы для измерений имели форму параллелепипедов, электроды для измерений наносились на грани, перпендикулярные оси спонтанной поляризации. Полученные экспериментальные зависимости приведены на рис. 1, 2.

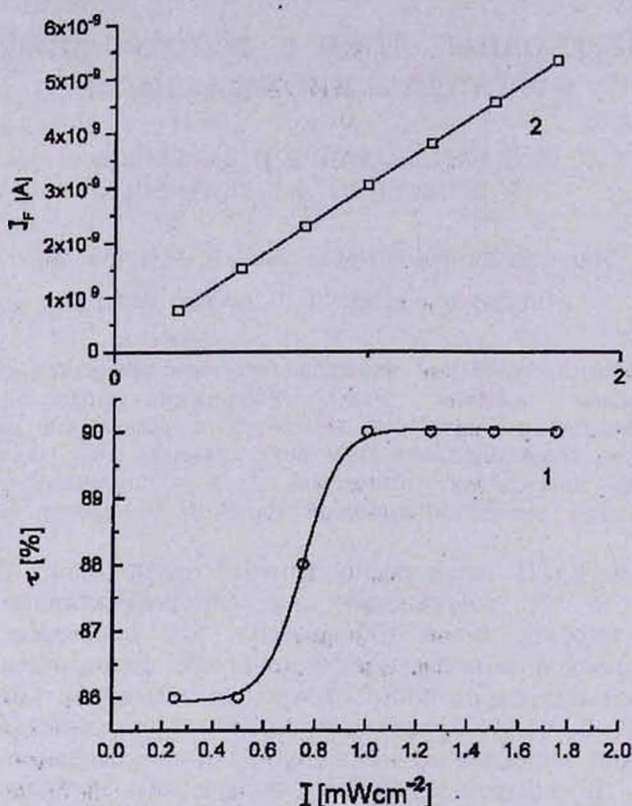


Рис.1. Экспериментальные зависимости поглощения (1) и фотовольтаического тока (2) от интенсивности возбуждающего излучения в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{:Fe:Mn}$.

Как видно из кривой 1 на рис.1, с ростом интенсивности возбуждающего светового излучения растет и коэффициент поглощения α кристалла [3]. В то же время линейная зависимость стационарного фотовольтаического тока от интенсивности света сохраняется (кривая 2). Так как регистрируемая во внешней цепи величина фотовольтаического тока $j = k\alpha I$ (k — константа Гласса [4], α — коэффициент поглощения света, I — интенсивность света), то очевидно, что в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{:Fe:Cu}$ константа Гласса нелинейным образом зависит от интенсивности света, а именно, уменьшается с ростом интенсивности. Это уменьшение связано с изменением коэффициента поглощения.

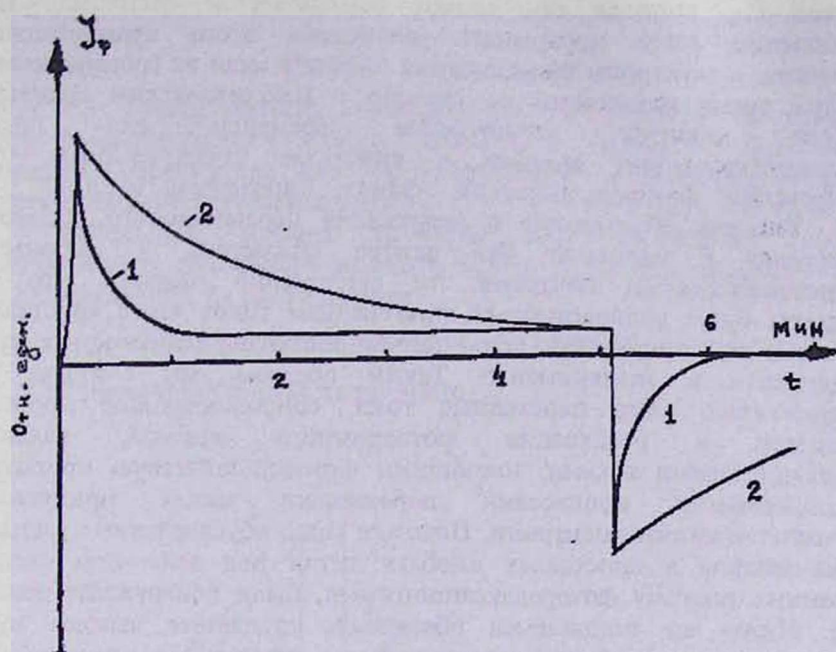


Рис. 2. Кинетика фототока в кристалле $\text{LiNbO}_3\text{:Fe:Cu}$: 1 — интенсивность света не вызывает фотохромного эффекта; 2 — интенсивность света выше порога и достаточна для изменения коэффициента поглощения.

Рассмотрим теперь экспериментальные результаты, приведенные на рис. 2. Кривые 1 и 2 показывают зависимости токов короткого замыкания в кристалле ниобата лития от времени при включении и выключении света. Измерения проведены при двух интенсивностях света, а именно: кривая 1 соответствует интенсивности, при которой не происходит изменения коэффициента поглощения, кривая 2 — интенсивности, при которой наблюдается фотохромный эффект. При этом величины токов нормированы на интенсивность падающего света. Стационарные значения нормированных фотовольтаических токов имеют одно и то же значение, однако переходные компоненты различаются. Переходная составляющая тока короткого замыкания, приведенного на кривой 1, соответствует типичной переходной компоненте при измерениях фотовольтаических токов и обусловлена пирозэффектом. Но на кривой 2, помимо обычной переходной пироккомпоненты, наблюдается и более медленная переходная компонента тока короткого замыкания (как при включении, так и при выключении света). Естественно связать эти переходные токи с происходящим в кристалле одновременно процессом наведения и релаксации оптически индуцированного изменения коэффициента поглощения, т.е. с фотохромным эффектом. Действительно, как было показано в [1,2], при наведении фотохромного эффекта происходит перераспределение электронов между примесными центрами Fe и Cu, т.е. часть электронов переходит под действием света с уровня Fe на

уровень Cu , создавая тем самым неравновесное состояние. При выключении света происходит релаксация этого неравновесного состояния, и электроны возвращаются с уровня меди на уровень железа. Причем время релаксации не связано с максвелловским временем, которое является характерным временем для других фотоиндуцированных явлений в кристалле ниобата лития (фоторефракция, фотовольтаический эффект, пирозэффект и т.д.).

Так как образование и релаксация неравновесного состояния происходят в кристалле без центра симметрии и связаны с фотовольтаическими центрами, то естественно ожидать, что эти процессы будут сопровождаться протеканием токов через кристалл и внешнюю регистрирующую цепь, причем обязательно переходных, что и наблюдается в эксперименте. Таким образом, мы считаем, что обнаруженные нами переходные токи, сопровождающие процессы наведения и релаксации фотохромного эффекта, являются релаксационными токами, имеющими фотовольтаическую природу и обусловленными процессами перезарядки между примесными фотовольтаическими центрами. Похожие токи, обусловленные распадом гамма-центров в кристаллах ниобата лития под действием света и названные поэтому фоторелаксационными, были обнаружены ранее в [5,6]. Ниже мы попытаемся обосновать сделанные выводы путем модельного расчета фотовольтаического эффекта в фотохромных кристаллах.

Как показано в [7,8], при возбуждении примесного центра происходит изменение дипольного момента центра, т.к. дипольный момент в общем случае отличен в основном и возбужденном состояниях. В [9] предложен механизм изменения дипольного момента примеси Eg в кристалле ниобата лития. В сегнетоэлектрических кристаллах это изменение имеет одно и то же направление [10]. Поэтому для них суммарное изменение поляризации можно представить в виде $\Delta P = n\mu$, где n — количество примесей в возбужденном состоянии, а μ — изменение дипольного момента примесного центра. В этом случае ток через внешнюю измерительную цепь будет равен $I = dP/dt$. В вышеперечисленных работах рассматривались внутриатомные оптические переходы, а так как фотохромный эффект обусловлен процессами перезарядки между центрами железа и меди через зону проводимости [1], то мы рассмотрим механизм возникновения переходных токов при возбуждении электронов в зону проводимости.

Происхождение изменения локального дипольного момента при перезарядке центров $\text{Fe} \leftrightarrow \text{Cu}$ можно проиллюстрировать на основе одномерного асимметричного потенциала [11]. Используя приближение Борна-Оппенгеймера, можно разделить уравнение Шредингера [12] для отдельного фотоактивного центра на два независимых уравнения для фотоэлектрона и ядра. Обозначим через l_i и m_i i -ые колебательные моды невозбужденного l и возбужденного m состояний. Полная волновая функция Ψ фотоактивного центра в невозбужденном l и возбужденном m состояниях может быть представлена в виде произведения электронной волновой функции $F(q,r)$ и колебательной волновой функции решетки $R(r)$:

$$\Psi_{II}(q, r) = F_{II}(q, r) \cdot F_{II}(r), \quad (1)$$

$$\Psi_{mI}(q, r) = F_m(q, r) \cdot F_{mI}(r),$$

где q, r — соответственно “электронная” и “ядерная” координаты. Далее рассматриваются только электронные волновые функции и уравнение Шредингера для фотоэлектронов, а волновые функции решетки считаются неизменными.

Дипольный момент перехода или матричный элемент электрического дипольного момента между двумя состояниями Ψ_{II} и Ψ_{mI} вычисляются из соотношения

$$M(mj \rightarrow II) = \langle \Psi_{II} | Z | \Psi_{mI} \rangle = \langle F_{II} | Z | F_I \rangle \langle F_{mI} / F_{II} \rangle, \quad (2)$$

где Z — пространственная координата.

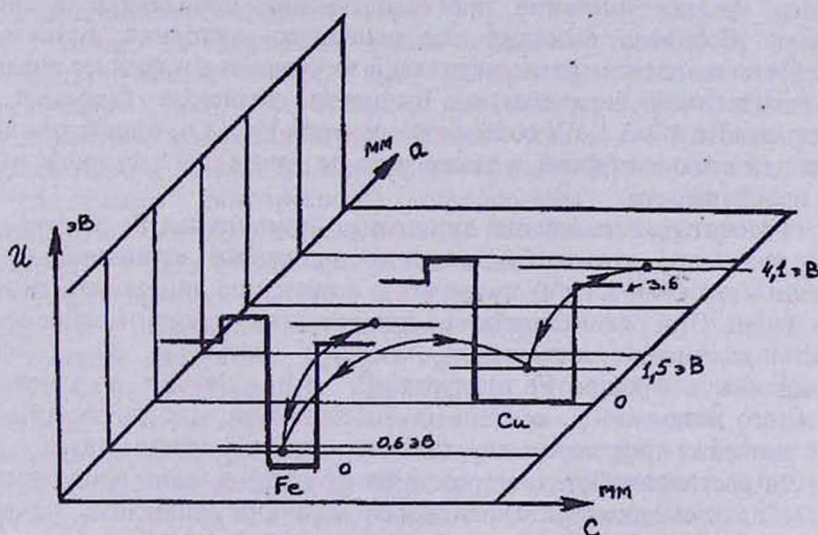


Рис.3. Модельная потенциальная яма для примесей Fe и Cu.

На рис.3 представлены модельные потенциальные функции $V_{Cu}(z)$, $V_{Fe}(z)$ для электрона при энергии возбуждения E . Наличие асимметрии обусловлено изначально отсутствием центра инверсии в кристалле. В наших расчетах модельная потенциальная яма представлена кусочно-гладкой функцией с разрывами производной. Предполагается, что, наряду с релаксацией через зону проводимости, возможны электронные переходы с уровня Cu на уровень Fe, минуя зону проводимости, путем туннелирования через барьер, разделяющий эти состояния. Значения энергетических уровней, приведенных на рис.3, аппроксимированы из спектральных данных (спектров поглощения и фотопроводимости кристаллов, легированных только ионами Fe или Cu). Величина асимметричного барьера вычислена из спектральной зависимости фотовольтаического тока.



Уравнение Шредингера для электрона в потенциальной яме имеет вид:

$$\frac{d^2\Phi(z)}{dz^2} + \frac{2m}{\hbar^2} [E - V(z)] = 0, \quad (3)$$

где $V(z)$ — потенциал примесного центра, m — масса частицы. Решение уравнения для потенциала на рис.3 может быть представлено в виде кусочно-гладкой аналитической функции [13]. Хотя значения волновой функции во всем пространстве могут быть получены аналитически, однако из-за громоздкости выражений мы воспользуемся численным методом. Предположим, что ширина потенциальной ямы примеси железа равна 10^{-7} см, а меди — $2 \cdot 10^{-7}$ см. Необходимо отметить, что значение ширины потенциальной ямы слабо влияет на величину изменения дипольного момента. Численно интегрируя волновую функцию методом Симпсона во всем пространственном диапазоне, получим среднее значение пространственной координаты волновой функции. Волновая функция для основного состояния вычисляется аналитически, тем самым аналитически вычисляется и среднее значение пространственной координаты. Вычисляя волновую функцию для возбужденного ($E=3,1$ eV) состояния центров Fe и Cu, определим центр заряда для этих состояний, а также центры заряда для электрона на дне зоны проводимости.

Рассчитывая изменение дипольного момента для Fe по формулам (2-3), получено, что возбуждение из основного состояния в зону проводимости ($h\nu = 3.1$ eV) приводит к изменению дипольного момента на 40 Дебай. При рекомбинации со дна зоны проводимости на основной уровень изменение дипольного момента составляет 37 Дебай, а возбуждение с уровня Fe на уровень Cu приводит к изменению локального дипольного момента на 4 Дебая. При этих вычислениях не имеет значения траектория перехода, т.к. система потенциальна, кроме процесса рассеяния фотоэлектронов на фононах в зоне проводимости. Вследствие временной инвариантности величины дипольных моментов при переходах без рассеяния на фононах, приведенные выше, одинаковы по абсолютной величине для возбуждения и релаксации.

Рассмотрим конкретную модель рассеяния фотовольтаических электронов. Как известно, одним из простейших видов рассеяния является упругое рассеяние на случайном статическом потенциале. Вероятность $W(k, k')$ перехода электрона с импульсом k в электрон с импульсом k' подчиняется уравнению Фоккера-Планка [14]. Как мы уже подчеркивали, величина дипольного момента при переходах без рассеяния инвариантна относительно обращения времени. Это находит свое отражение в равенстве вероятностей перехода $W(k, k') = W(k', k)$. Релаксация фотоэлектронов ко дну зоны проводимости, обусловленная рассеянием на фононах, подчиняется кинетической теории необратимых процессов. А необратимость процессов в кинетике возникает при усреднении коэффициентов разложения волновой функции по времени. Это усреднение основывается на гипотезе случайных фаз, которая лежит в основе кинетической теории рассеяния. При этом для процессов

упругого рассеяния электрон после первого же взаимодействия полностью теряет преимущественное направление движения [14].

Таким образом, мы предполагаем, что электроны, перешедшие в зону проводимости, изотропизируются (хаотизируются) по импульсу вследствие сильного электрон-фоонного взаимодействия, присущего сегнетоэлектрикам. Затем, вследствие неупругого электрон-фоонного взаимодействия, происходит медленная релаксация по энергии на дно зоны проводимости без изменения среднего значения пространственной координаты волновой функции.

Предполагая, что в зоне проводимости вследствие рассеяния на фононах происходит потеря фотовольтаического импульса без изменения пространственных координат, мы получаем разницу среднего значения электронных волновых функций при возбуждении и релаксации. Именно этой разницей координат локализации заряда и обусловлен фотовольтаический ток. В полученный результат не входит среднее расстояние между примесями, что очевидно и обусловлено трансляционной инвариантностью.

Исходя из сказанного можно показать, что, наряду с обычным фотовольтаическим током, при освещении должны наблюдаться переходные токи, имеющие фотовольтаическую природу и обусловленные изменением заселенности уровня меди. Действительно, как показано в модели фотохромного эффекта [1], процессы наведения и релаксации фотохромизма обусловлены перезарядкой между примесными центрами железа и меди. Это означает перераспределение электронов между этими примесными центрами, а значит, изменение дипольного момента системы, что и приводит к переходным токам при наведении и релаксации фотохромного эффекта.

Далее рассмотрим процесс релаксации электронной подсистемы без светового возбуждения. Предполагая, что освобождение ловушек происходит в результате взаимодействия тепловых фононов, обусловленных термодинамической температурой кристалла, и подчиняется условиям Гаусса-Маркова, можно рассчитать вероятность R перехода с уровня Cu на уровень Fe путем решения уравнения Фоккера-Планка:

$$\frac{\partial R(z, t)}{\partial t} = \frac{\partial [V(z)R(z, t)]}{\partial z} + D \frac{\partial^2 R(z, t)}{\partial z^2}. \quad (4)$$

В основу дальнейших рассуждений будет положено следующее допущение: вероятность попадания в состояние ξ за время Δt полностью определяется значением состояния ξ и не зависит от того, каким образом система попала в состояние ξ , т.е. не зависит от предыстории процесса. Найдем решение уравнения (4) в случае асимптотического предела, не зависящего от времени $\left(\frac{\partial R}{\partial t} = 0\right)$ [14].

Решение уравнения этого типа сводится в равновесном случае к максвелловскому распределению. Стационарное решение с учетом граничных условий имеет следующий вид:

$$R = (\sigma / D) \exp(-V_0 / kT) [1 - \exp(-\Delta V / kT)], \quad (5)$$

где V_0 — высота барьера перехода, удовлетворяющая неравенству $kT \ll V_0$; ΔV — разность энергетических уровней Fe—Cu; D — коэффициент диффузии, равный $D = kT\mu^*/e$ [15], где μ^* — подвижность носителей заряда; σ — сечение взаимодействия.

Зная вероятность перехода и используя балансные уравнения для концентрации фотоэлектронов на уровне Cu [1], получим зависимость переходного (релаксационного) тока от времени при фиксированной температуре:

$$j(t) = RN_{Cu}(\Delta P, \quad (6)$$

где N_{Cu} — плотность захваченных фотоэлектронов на уровне Cu, ΔP — изменение дипольного момента примесного центра. Полученное уравнение точно описывает динамику релаксации токов, обусловленных перезарядкой примесных центров Fe $\leftrightarrow$ Cu, а также позволяет прогнозировать динамику распада для других примесей, введенных в кристалл, по величине энергетических уровней в запрещенной зоне и динамику распада в области низких и комнатных температур. Из решения (5) уравнения Фоккера-Планка можно определить время релаксации; вообще говоря, видно, что одни моды имеют малое время релаксации, другие — большое. Следовательно, можно говорить о системах с двумя временными масштабами.

Таким образом, на основе кинетической теории необратимых процессов с применением аналитически-численной модели показана возможность появления переходных токов при наведении и релаксации фотохромного эффекта в сегнетоэлектрических кристаллах.

Работа выполнена при поддержке грантов РА (96-764) и CRDF (AP1-101).

ЛИТЕРАТУРА

1. Э.С. Вартамян, Р.К. Овсепян, А.Р. Погосян. Кристаллография, 35, 900 (1990).
2. G.T. Avanesyan, E.S. Vartanyan, R.S. Mikaelyan, R.K. Novsepyan, and A.R. Pogosyan. Phys. Stat. Sol. (a) 126, 245 (1991).
3. Г.Т. Аванесян, Э.С. Вартамян, Р.С. Микаелян, Р.К. Овсепян, А.Р. Погосян. Изв. НАН Армении, Физика, 28, 17 (1993).
4. М. Лайнс, А.М. Гласс. Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. М., Мир, 1981.
5. Э.С. Вартамян, Р.К. Овсепян, А.Р. Погосян, А.Л. Тимофеев. ФТТ, 26, 2418 (1984).
6. Э.С. Вартамян, Р.К. Овсепян, А.Р. Погосян, ФТТ, 28, 613 (1986).
7. A.M. Glass, D.H. Auston. Opt. Comm., 5, 45 (1972).
8. D.H. Auston, A.M. Glass. Phys. Rev. Lett., 28, 897 (1972).
9. V.G. Babadjanyan, G.G. Demirchian, R.B. Kostanyan. Opt. Comm., 95, 269 (1993).
10. В.И. Белничер, Б.И. Стурман. УФН, 130, 416 (1980).
11. М. Борн, У. Кунь. Динамическая теория кристаллической решетки. М., Мир, 1958.
12. З. Флюгге. Задачи по квантовой механике. М., Мир, 1974.
13. К.В. Гардинер. Стохастические методы в естественных науках. М., Мир, 1984.
14. А. Исихара. Статистическая физика. М., Мир, 1973.

ԱՆՅՈՒՄԱՅԻՆ ՀՈՍԱՆՔՆԵՐԸ ԼԻԹԻՈՒՄ ՆԻՈԲԱՏԻ
ՖՈՏՈԲՐՈՄ ԲՅՈՒՐԵՂՆԵՐՈՒՄ

Ա. Ս. ԲԱԳԴԱՍՅԱՆ, Է. Ս. ՎԱՐԴԱՆՅԱՆ, Ռ. Կ. ՀՈՎՍԵՓՅԱՆ, Ա. Ռ. ՊՈԳՈՍՅԱՆ

Լիթիումի նիոբատի ֆոտոդրոմ բյուրեղներում ֆոտովոլտային երևույթի հետազոտման ժամանակ հայտնաբերվել են անցումային հանանքներ, որոնք ուղեկցում են ֆոտոդրոմ էֆեկտի մակածման և ռելաքսացիայի պրոցեսները: Բյուրեղի խառնուրդային կենտրոնների կողմից էներգիայի դիսիպացիայի մոդելի հիման վրա առաջարկված է այդ հոսանքների առաջացման մեխանիզմը:

TRANSIENT CURRENTS IN PHOTOCHROMIC
LITHIUM NIOBATE CRYSTALS

A. S. BAGDASARYAN, E. S. VARTANYAN, R. K. HOVSEPYAN, A. R. POGOSYAN

At research of photovoltaic effect in photochromic lithium niobate crystals the transient currents, accompanying processes of inducing and relaxation of photochromic effect, are found out. The mechanism of appearance of these currents on the basis of the model of optical energy dissipation by impurity centers with the account of the kinetic theory of irreversible processes is proposed.

УДК 621.382

ВЛИЯНИЕ ПРОФИЛЯ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПРИМЕСЕЙ В ПРОЛЕТНОЙ ОБЛАСТИ НА ВЧ ХАРАКТЕРИСТИКИ ИНЖЕКЦИОННО-ПРОЛЕТНЫХ ДИОДОВ

В. М. АРУТЮНЯН, В. В. БУНИАТЯН

Ереванский государственный университет

(Поступила в редакцию 17 июня 1997 г.)

Теоретически проанализированы малосигнальные характеристики полупроводниковых инжекционно-пролетных диодов при наличии экспоненциального распределения легирующих примесей в пролетном участке. Показано, что при определенных условиях градиент распределения примесей приводит к увеличению динамического отрицательного сопротивления (ДОС) по абсолютной величине.

1. Введение

Несмотря на то, что активные свойства инжекционно-пролетных диодов (ИПД) в основном определяются пролетными эффектами, они в значительной степени зависят от состояния инжектирующего контакта, от распределений в пролетной области атомов примеси, дислокаций, центров захвата и т.п. Отклонение этих параметров от требуемых для нормального функционирования ИПД значений неизбежно приводит к тому, что такие параметры, как эффективность инжекции, скорость дрейфа в пролетной области, плотность среднего тока, время пролета также меняются. Эти изменения в большей или меньшей степени влияют на статические и динамические характеристики прибора. Например, влияние уровней прилипания на ВЧ характеристики ИПД рассмотрено нами в работах [1-3].

В настоящей работе проанализирован случай влияния неравномерного (экспоненциального) распределения легирующих примесей по длине пролетного промежутка на статические и динамические характеристики ИПД.

2. Статическое воздействие

Рассмотрим p^+-n-p^+ кремниевую структуру (рис.1а), где предполагается, что в пролетной области n -типа имеется градиент концентрации легирующих примесей. Предположим, что концентрация примесей в n -базе изменяется по закону (рис. 1б)

$$N_s(x) = N_s e^{\alpha x}, \quad 0 \leq x \leq L, \quad (1)$$

где N_s – поверхностная концентрация доноров в плоскости $x = 0$, α (см^{-1}) – коэффициент, определяющий градиент концентрации примесей, x – текущая координата.

Неоднородность легирования примесей создает дрейфовое (встроенное) внутреннее поле, которое имеет обратное направление к приложенному извне полю смещения диода и, следовательно, может повлиять на величины скорости инжектированных дырок и, тем самым, на ВЧ характеристики ИПД.

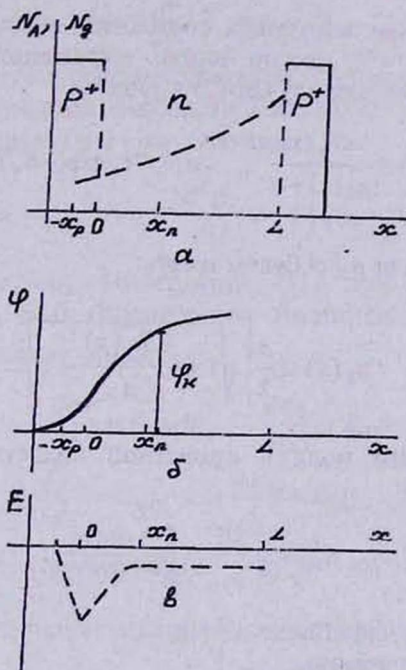


Рис.1. Распределение примесей (а), потенциала (б) и напряженности поля (в) в $p^+ - n - p^+$ структуре при $U = 0$.

Рассмотрим два частных случая:

- 1) легирующие донорные примеси мелкие и полностью ионизированы;
- 2) примеси являются сравнительно "глубокими" и часть из них неионизирована и находится в нейтральном состоянии.

Тогда для концентрации свободных электронов в равновесном состоянии ($U = 0$) можно записать для случаев (1) и (2), соответственно:

$$n_1(x) \cong N_s(x); \quad n_2(x) \cong N_s(x) - N_0(x), \quad (2)$$

где $N_0(x)$ – концентрация неионизированных (нейтральных) доноров, т.е. концентрация "связанных" электронов.

Величина $N_0(x)$ может быть найдена по известному выражению для $N_s(x)$ с учетом функции заполнения "глубокого" донора электронами:

$$N_0(x) \equiv \frac{N(x)}{1 + \gamma \exp\left(-\frac{E_d - F}{kT_0}\right)} \quad (3)$$

Здесь γ – фактор вырождения глубокого уровня, E_d – глубина залегания доноров, считая от дна зоны проводимости, F – энергия уровня Ферми, k – постоянная Больцмана, T_0 – абсолютная температура.

Учитывая, что

$$n_2(x) \equiv N_c \exp(-F/kT_0),$$

где N_c – эффективная плотность состояний в зоне проводимости, из соотношений (2) и (3) можно найти выражения для концентрации свободных электронов для случая (2) в виде

$$n_2(x) \equiv \frac{aN_g(x)}{n_2(x) + a}, \quad a = \gamma N_c \exp(-E_d/kT_0). \quad (4)$$

При $\frac{4N_g(x)}{a} > 0$ для $n_2(x)$ будем иметь:

$$n_2(x) \equiv \frac{a}{2} \left[\sqrt{1 + \frac{4N_g(x)}{a}} - 1 \right]. \quad (5)$$

Величина дрейфового поля в пролетной области ($E_{вн}$) определяется выражением

$$E_{вн} = -\frac{D_n}{\mu_n} \cdot \frac{1}{n(x)} \cdot \frac{dn(x)}{dx}, \quad (6)$$

где D_n , μ_n , $n(x)$ – коэффициент диффузии, подвижность и концентрация электронов, соответственно.

Дифференцируя $n_1(x)$, $n_2(x)$ и подставляя найденное значение в соотношение (6), получим

$$E_{1вн} = -\frac{kT_0}{q} \alpha, \quad E_{2вн} = -\frac{kT_0}{q} \cdot \frac{2\alpha N_s e^{\alpha x}}{\left\{ (a + 4N_s e^{\alpha x}) - \sqrt{a(a + 4N_s e^{\alpha x})} \right\}}. \quad (7)$$

Интегрируя соотношение $E_{2вн}(x)$ по длине пролетного участка L , можно определить величину среднего дрейфового поля $\bar{E}_{2вн}$ как

$$\bar{E}_{2вн} \equiv \frac{1}{L} \frac{kT_0}{q} \cdot \ln \left[\frac{\sqrt{a + 4N_s} - \sqrt{a}}{\sqrt{a + 4N_s e^{\alpha L}} - \sqrt{a}} \right]. \quad (8)$$

Распределение контактного потенциала и поля, а также величину толщины пространственного заряда получим, решив уравнение Пуассона, которое для первого и второго случаев будет иметь вид, соответственно:

$$\frac{d^2\varphi_1}{dx^2} = -\frac{q}{\varepsilon\varepsilon_0} N_g(x), \quad \frac{d^2\varphi_2}{dx^2} = -\frac{q}{\varepsilon\varepsilon_0} [N_g(x) - N_0(x)], \quad (9)$$

где φ — потенциал, ε , ε_0 — диэлектрические постоянные среды и вакуума, соответственно. С учетом (2) и (5) уравнение Пуассона можно записать в виде

$$\frac{d^2\varphi_1}{dx^2} = -b_1 e^{\alpha x}, \quad \frac{d^2\varphi_2}{dx^2} = -a_1 \left[\sqrt{1 + a_2 e^{\alpha x}} - 1 \right], \quad (10)$$

где $b_1 = \frac{qN_s}{\varepsilon_1}$, $\varepsilon_1 = \varepsilon\varepsilon_0$, $a_1 = \frac{qa}{2\varepsilon_1}$, $a_2 = \frac{4N_s}{a}$.

Аппроксимируя экспоненциальное распределение примесей на начальном (левом) участке n -области (где $\alpha x \ll 1$) линейным членом, т.е. учитывая, что $\exp(\alpha x) \approx 1 + \alpha x$, получим

$$\frac{d^2\varphi_1}{dx^2} \approx -b_1(1 + \alpha x), \quad \frac{d^2\varphi_2}{dx^2} \approx -a_1 \left(\sqrt{a_3 + A_0 x} - 1 \right), \quad (11)$$

где $a_3 = 1 + a_2$, $A_0 \approx \alpha a_2$. Интегрируя (11) при граничных условиях $x = -x_p$, $\varphi_1 \approx 0$, $\varphi_2 \approx 0$ (пренебрегая падением потенциала в сильнолегированном p^+ -слое), имеем

$$\begin{aligned} x = -x_p, \quad -\frac{d\varphi_1}{dx} = E_1 = 0, \quad -\frac{d\varphi_2}{dx} = E_2 = 0, \\ x = x_{n1}, \quad -\frac{d\varphi_1}{dx} = E_{вн1}, \quad -\frac{d\varphi_2}{dx} = E_{вн2}, \quad \varphi|_{x=x_n} = \varphi_k. \end{aligned}$$

Для толщины пространственного заряда x_{n1} и x_{n2} получаем, соответственно, уравнения:

$$\frac{b_1 \alpha x_{n1}^3}{3} + \frac{b_1}{2} x_{n1}^2 + E_{вн1} x_{n1} - \varphi_k \approx 0, \quad (12)$$

$$\frac{a_1 A_0}{4a_3^{1/2}} x_{n2}^3 + \frac{a_1}{2} x_{n2}^2 (1 - \sqrt{a_3}) - E_{вн2} x_{n2} - \varphi_k \approx 0. \quad (13)$$

При равномерном распределении примесей $\alpha = 0$, $A_0 = 0$, $E_{вн1,2} = 0$ и из (12) и (13) получим общеизвестное выражение для толщины резкого p^+ - n перехода в виде

$$x_{n1,2} \approx \sqrt{\frac{2\varphi_k}{a_1}}.$$

Из (12) и (13) следует, что величины x_{n1} , x_{n2} зависят от градиента концентрации, коэффициентов a и α , т.е. от энергии ионизации уровня и температуры. Количественные оценки при $N_s \approx 10^{14} \text{ см}^{-3}$, $L \approx 5 \cdot 10^{-4} \text{ см}$, $N_g(L) \approx 5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$, $\alpha \approx 1,34 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}$, $N_c \approx 2,8 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$, $N_A \approx 10^{18} \text{ см}^{-3}$, $a \approx 5,6 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ (что соответствует уровню $E_d \approx 0,18 \text{ эВ}$, создаваемом серой в кремнии), $E_{вн1} \approx 355 \text{ В/см}$, $E_{вн2} \approx 300 \text{ В/см}$, дают для x_{n1} и x_{n2} соответственно: $x_{n1} \approx 1,85 \text{ мкм}$, $x_{n2} \approx 1,7 \text{ мкм}$.

3. Малосигнальные характеристики

Когда к диоду приложены постоянное смещение U_0 (необходимое для смыкания переходов) и малый переменный сигнал с амплитудой U_1 и частотой ω , то дырки, инжектируя через потенциальный барьер, в окрестности нулевого (или низкого) значения напряженности поля будут испытывать "тормозящее" воздействие внутреннего статического поля до того, пока внешнее поле не станет быстро расти. Тогда для уравнений полного тока и Пуассона будем иметь для первого и второго случаев, соответственно:

$$J_0 = q p_0 V_0, \quad \varepsilon_1 \frac{dE_0}{dx} = q(p_0 + N_s(x)),$$

$$J_0 = q p_0 V_0, \quad \varepsilon_1 \frac{dE_1}{dx} = q(p_0 + n(x)) \quad (14)$$

для постоянных составляющих и

$$J_1 = q p_0 V_1 + q p_1 V_0 + j \omega \varepsilon_1 E_1, \quad \varepsilon_1 \frac{dE_1}{dx} = q p_1 \quad (15)$$

для переменных составляющих. В (14) и (15) J_0, J_1 — плотности постоянного и переменного тока, соответственно, E_0, E_1 — напряженности постоянных и переменных полей, V_0 — средняя скорость дырок в n -области, V_1 — переменная составляющая скорости, p_1 и p_0 — переменная и постоянная составляющие концентрации инжектированных дырок.

Используя методику расчета ВЧ характеристики ИПД, развитую в [2], для уравнения движения дырок в пролетном пространстве получим выражения, справедливые для обоих случаев при условии $a_2 \exp(\alpha x) \ll 1$, что всегда выполняется, в виде

$$\frac{d^2 x}{dt^2} - \omega_1 e^{\alpha x} \frac{dx}{dt} = \frac{\mu_p J_0}{\varepsilon_1} \quad (16)$$

В (16) μ_p — подвижность дырок при слабых полях, $\omega_1 = q \mu_p N_s / \varepsilon_1$. Нелинейное уравнение (16) при замене $x = \ln y / \alpha$ сводится к уравнению Бернулли. Учитывая, что $\left. \frac{dx}{dt} \right|_{x=0, t=0} = V_{0s}$, где V_{0s} — скорость дырок в инжектирующей плоскости, получим

$$y' - \omega_1 y^2 - \alpha y \left(at + V_{0s} - \frac{\omega_1}{\alpha} \right) = 0. \quad (17)$$

Решения уравнения (17) с использованием разложения экспоненты $\exp \left\{ \alpha \left[\frac{at^2}{2} + \left(V_{0s} - \frac{\omega_1}{\alpha} \right) t \right] \right\}$ в ряд и ограничения двумя членами, имеет вид:

$$x \cong \frac{at^2}{2} + \left(V_{0s} - \frac{\omega_1}{\alpha} \right) t - \frac{1}{\alpha} \ln \left[1 - \omega_1 t - \frac{\omega_1 \alpha t^2}{2} \left(\frac{at}{3} + V_{0s} - \frac{\omega_1}{\alpha} \right) \right]. \quad (18)$$

В уравнениях (16) - (18) начало времени t соответствует мгновению, когда носители заряда покидают плоскость инжекции ($x = 0$), а при $x = L$ соответствует времени пролета T , определяемом, как обычно, как

$$T \cong \int_0^x \frac{dx}{V_0}. \quad (19)$$

Так как в ИПД структурах $T \leq 10^{-10}$ с, то пренебрегая в (18) членами, содержащими t^2 и t^3 и используя разложение $\ln(1 - \omega_1 t) \cong -\omega_1 t - \omega_1^2 t^2/2$, для скорости дырок V_0 в пролетном пространстве будем иметь:

$$V_0 \cong \frac{\mu_p J_0}{\varepsilon_1} t + \frac{\omega_1^2 t}{\alpha} + V_{0s}. \quad (20)$$

Напомним, что если доноры в пролетном пространстве распределены равномерно, то выражение для V_0 имеет вид [2,4]

$$V_0 \cong \frac{\mu_p J_0}{\varepsilon_1 \omega_1} [e^{\omega_1 t} - 1] + V_{0s} e^{\omega_1 t}. \quad (21)$$

Из (20) и (21) следует, что при прочих равных условиях скорость, вычисленная из выражения (20), в несколько раз меньше, чем таковая из (21), т.е. при неравномерном легировании примесей в пролетном участке происходит уменьшение скорости инжестированных дырок по сравнению с равномерным легированием.

Используя (19) и соотношения

$$E_1 = -\frac{1}{V_0} \frac{dU_1}{dt}, \quad V_0 \frac{dE_1}{dx} = -\frac{1}{V_0} \left[\frac{d^2 U_1}{dt^2} - \frac{1}{V_0} \frac{dV_0}{dt} \frac{dU_1}{dt} \right],$$

$$\frac{1}{V_0} \frac{dV_0}{dt} = \mu_p \frac{dE_0}{dx} = \frac{\mu_p}{\varepsilon_1} (q p_0 + q N_g(x)),$$

из уравнения (15) получим:

$$\frac{d^2 U_1}{dt^2} + (j\omega - \omega_1) \frac{dU_1}{dt} = -\frac{V_0 J_1}{\varepsilon_1}. \quad (22)$$

Первое интегрирование (22) дает:

$$\frac{dU_1}{dt} + (j\omega - \omega_1) U_1 = -\frac{J_1}{\varepsilon_1} x(t) + C_1. \quad (23)$$

Постоянная интегрирования C_1 определяется из следующих начальных условий: при $x = 0$ $U_1 = 0$ и $C_1 = dU_1/dt|_{x=0, t=0} = -V_{0s} E_{1s}$, где E_{1s} - напряженность переменного поля в плоскости инжекции.

Учитывая, что переменное малосигнальное поле в плоскости инжекции модулирует только скорость носителей заряда и ток частиц J_{1ps} в этой плоскости находится в фазе с локальным полем E_{1s} ,

$$J_{1ps} = \sigma A_{1s},$$

а полный переменный ток в плоскости инжекции равен сумме тока частиц и тока смещения, нетрудно получить (см. также [4]) выражение

$$E_{1s} = \frac{J_1}{\sigma + j\omega\epsilon_1},$$

где σ — эффективная малосигнальная проводимость инжектирующего контакта.

Тогда из уравнения (23) имеем:

$$\frac{dU_1}{dt} + (j\omega - \omega_1)U_1 = -\frac{J_1}{\epsilon_1} \left[x(t) \frac{\epsilon_1 V_{0s}}{\sigma + j\omega\epsilon_1} \right]. \quad (24)$$

В рамках принятых допущений (20) для $x(t)$ воспользуемся выражением

$$x(t) \equiv \frac{\mu_p J_0}{2\epsilon_1} t^2 + \frac{\omega_1^2 t^2}{2\alpha} + V_{0s} t. \quad (25)$$

Интегрируя уравнение (24) при граничных условиях $x=0$, $t=0$, $U_1=0$, получим выражения для U_1 . Представим малосигнальный импеданс Z в виде

$$Z = -U_1/(J_1 S) = R + jX, \quad (26)$$

где S — сечение прибора, R , X — активная и реактивная составляющие импеданса, соответственно. В частности, выражение для активной составляющей R имеет вид:

$$R \equiv \frac{T}{\epsilon_1 S d_0} \left\{ \frac{2T^3 d\theta}{d_2} (d_1 - 2\theta\theta_1) - \frac{\theta_1}{2} \left(\frac{\mu_p J_0 T^2}{\epsilon_1} + \frac{\theta_1^2}{\alpha} \right) - V_{0s} \theta_1 T + \right. \\ \left. + d_3 \left[\frac{2dT^3}{d_0^3} (d_1^2 - 4\theta^2 \theta_1^2) - \frac{V_{0s} d_1 T}{d_0} - \frac{\theta_s V_{0s} T (\theta_1 + \theta\theta_s)}{\theta(1+\theta_s^2)} \right] - \right. \\ \left. - d_4 \left[\frac{8d\theta\theta_1 T^3}{d_0^3} - \frac{2\theta V_{0s} \theta_1 T}{d_0} - \frac{\theta_s V_{0s} T (\theta - \theta_1 \theta_s)}{\theta(1+\theta_s^2)} \right] \right\},$$

где $d = \frac{\mu_p J_0}{2\epsilon_1} + \frac{\omega_1^2}{2\alpha}$, $d_0 = \theta_1^2 + \theta^2$, $d_1 = \theta_1^2 - \theta^2$, $d_2 = (d_1^2 + 4\theta^2 \theta_1^2)$, $d_4 = e^{\theta_1} \sin \theta$,

$d_3 = 1 - e^{\theta_1} \cos \theta$, $\theta = \omega T$ — угол пролета, $\theta_1 = \omega_1 T$, $\theta_s = \frac{\omega\epsilon}{\sigma}$.

Для удобства анализа представим R в виде $R = R_1 + R_2$, где

$$R_1 \equiv \frac{T}{\epsilon_1 S d_0} \left\{ \frac{2dT^3 \theta}{d_2} (d_1 - 2\theta\theta_1) + d_3 \left(d_1^2 - 4\theta^2 \theta_1^2 \right) \frac{2dT^3}{d_0^3} - \frac{8d_4 \theta \theta_1 T^3}{d_0^3} \right\},$$

$$R_2 \approx \frac{T}{\varepsilon_1 S d_0} \left\{ d_4 \left[\frac{2\theta V_{0S} \theta_1 T}{d_0} - \frac{\theta_S V_{0S} T (\theta_1 - \theta \theta_S)}{\theta (1 + \theta_S^2)} \right] - d_3 \left[\frac{V_{0S} d_1 T}{d_0} + \frac{\theta_S V_{0S} T (\theta_1 + \theta \theta_S)}{\theta (1 + \theta_S^2)} \right] - \frac{\theta_1}{2} \left(\frac{\mu_p J_0 T^2}{\varepsilon_1} + \frac{\theta_1^2}{\alpha} \right) - \theta_1 V_{0S} T \right\}.$$

Анализ и численные расчеты показывают, что составляющая R_1 пренебрежимо мала по сравнению с R_2 . Составляющая R_2 принимает отрицательное значение в интервале угла пролета $\pi/2 < \theta < 2\pi$, причем величина R_2 по абсолютному значению в пять раз выше соответствующей составляющей R_B для равномерно легированной n -области [4-7].

Результаты численных расчетов приведены на рис.2 для типичных p^+-n-p^+ кремниевых ИПД с параметрами: $\mu_p \approx 450$ см²/(В·с), $V_{0S} \approx 9 \cdot 10^5$ см/с, $J_0 \approx 10$ А/см², $S \approx 1,25 \cdot 10^{-4}$ см², $L \approx 5 \cdot 10^{-4}$ см, $T \approx 0,3 \cdot 10^{-10}$, $\theta_S \approx 0,186\theta$, $N_S \approx 10^{14}$ см⁻³, $N_g(L) \approx 10^{17}$ см⁻³ (которому соответствует $\alpha \approx 1,34 \cdot 10^4$ см⁻¹).

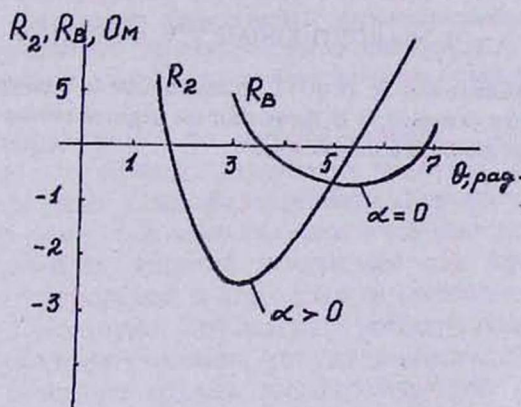


Рис. 2. Зависимость R_2 и R_B от угла пролета θ .

Для сравнения на рис.2 показана зависимость R_B (соответствует кривой $\alpha = 0$) от угла пролета θ . Как следует из рис.2, при наличии градиента легирующих примесей в пролетном участке ДОС по абсолютной величине увеличивается, а частотный диапазон, где имеет место ДОС, смещается в область более низких частот.

Таким образом, с помощью выбора соответствующего профиля легирования примесей в n -области можно в ИПД структурах при определенных условиях увеличить ДОС по абсолютной величине.

ЛИТЕРАТУРА

1. В.М. Арутюнян, В.В. Буниatian. Инжекционно-пролетные диоды. Ереван, изд. ЕГУ, 1986, 226 с.
2. V.M. Harutunian, V.V. Buniatian. Sol. St. Electron., 20, 491 (1977).

3. В.М. Арутюнян, В.В. Бунятян. Изв. АН Арм. ССР, Физика, 13, 189 (1978).
4. G.T. Wright. Sol. St. Electron., 16, 903 (1973).
5. G.T. Wright and N.B. Sultan. *ibid*, 16, 535 (1973).
6. S.P. Kwok and G.J. Haddad. *ibid*, 19, 795 (1976).
7. O. Eknoyan, S.M. Sze, and E.S. Yang. *ibid*, 20, 285 (1977).

**ԹՈՒՉՔԱՅԻՆ ՏԻՐՈՒՅԹՈՒՄ ԽԱՌՆՈՒՐԴՆԵՐԻ ԲԱՇԽՍԱՆ ԲՆՈՒՅԹԻ
ԱԶԴԵՑՈՒԹՅՈՒՆԸ ԻՆԺԵՆԵՐԻԱՆ - ԹՈՒՉՔԱՅԻՆ ԴԻՈԴՆԵՐԻ
ԲԱՐՉՐԱՀԱՃԱՆԱԿԱՆ ԲՆՈՒԹԱԳՐԵՐԻ ՎՐԱ**

Վ. Մ. ՀԱՐՈՒԹՅՈՒՆՅԱՆ, Վ. Վ. ԲՈՒՆԻԱՏՅԱՆ

Հետազոտված է թռիչքային տիրույթում խառնուրդների էքսպոնենցիալ բաշխման ազդեցությունը ինժեկցիոն-թռիչքային դիոդների բարձրահաճախական բնութագրերի վրա: Ցույց է տրված, որ խառնուրդների բաշխման անհամասեռությունը որոշակի պայմաններում նպաստում է բացարձակ արժեքով բացասական դիմադրության մեծացմանը:

**INFLUENCE OF PROFILE OF DOPING DENSITY IN THE TRANSIT-TIME
REGION ON THE MICROWAVE CHARACTERISTICS OF BARITT DIODES**

V. M. AROUTIOUNIAN, V. V. BUNIANIAN

Impedance characteristics of BARITT structures with a exponential doping density in transit-time region are examined. It is shown that the negative resistance effects are increased under the exponential profile of doping density.

УДК 539.17

СЕРИЙНЫЕ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЕ РЕАКТОРЫ В ПОДКРИТИЧЕСКОМ РЕЖИМЕ

В. М. ЖАМКОЧЯН, А. Г. ХУДАВЕРДЯН

Ереванский государственный университет

(Поступила в редакцию 6 февраля 1997 г.)

Рассмотрены физические аспекты подкритических энергетических комплексов на основе ядерных реакторов, управляемых протонными ускорителями. Проведены оценочные теоретические расчеты подкритических режимов реакторов различных типов. Показано, что создание достаточно эффективной взрывобезопасной АЭС возможно при существующем уровне ускорительной техники, с использованием современных реакторных блоков (в том числе серийных).

В настоящее время во многих странах, где развита ядерная энергетика, идет интенсивная разработка проектов, в которых должна быть решена проблема взрывобезопасности ядерных реакторов. Данная проблема на сегодняшний день является наиболее актуальной на пути дальнейшего развития ядерной энергетике [1]. Одно из наиболее перспективных направлений в этой области занимают исследования по подкритическим реакторам, управляемым ускорителями [1-3].

Ранее нами было показано, что уже достигнутый уровень техники и технологии позволяет создать взрывобезопасную атомную электростанцию, в которой в качестве источника энергии используется стандартный реактор водо-водяного типа (ВВЭР) в подкритическом режиме в сочетании с протонным ускорителем [4-7]. О реальной возможности создания подкритической ядерной энергетической установки для практического использования говорится и в выполненной группой С. Rubbia серии работ, завершаемых экспериментом [8].

В настоящей работе в качестве компонентов системы "протонный ускоритель-подкритический реактор" рассмотрены серийные реакторы различных типов, а также перспективный жидкосолевой бридер MSBR-1000. Показано, что создание достаточно экономичной и безопасной атомной станции вполне реально с использованием существующих реакторов и при практически достигнутом уровне ускорительной техники.

Рассмотрим геометрически большой реактор на тепловых нейтронах, в котором длина миграции нейтрона M много меньше размеров активной зоны. Поскольку прецизионные расчеты нейтронных потоков выходят за рамки данной работы, мы ограничимся решением лишь эффективных одноступенчатых диффузионных уравнений.

Подобное приближение [9] представляется здесь вполне оправданным ввиду, в основном, оценочного характера всех дальнейших выводов. По той же причине параметры реальных реакторов в расчетах будут заменены параметрами эквивалентных гомогенных систем [9] без учета влияния отражателей нейтронов.

Итак, стационарное уравнение реакторов имеет вид

$$\Delta\Phi + \frac{k_{\infty} - 1}{M^2} \Phi = 0, \quad (1)$$

где Φ — скалярный поток нейтронов, k_{∞} — коэффициент размножения для данной среды.

Выберем мишень, облучаемую пучком протонов из ускорителя, в виде цилиндра радиусом r_0 и высотой H , равной высоте активной зоны реактора. Подобный выбор обусловлен, в основном, соображениями симметрии. Предположим также, что мишень является "ловушкой" для тепловых нейтронов, будучи в то же время прозрачной для быстрых нейтронов, выбиваемых ускоренными протонами (это может быть, например, стержень из неактивного материала, окруженный тонкостенной кадмиевой оболочкой). В этом случае, в приближении закона Фика, условие источника может быть записано в виде

$$j = \left[\Phi/4 - D/2 \frac{\partial\Phi}{\partial r} \right]_{r=r_0}, \quad (2)$$

где j — плотность потока нейтронов, излучаемых поверхностью мишени, D — коэффициент диффузии для данной среды.

Условие (2) соответствует центральному расположению мишени-источника нейтронов. При эксцентричном расположении это условие должно быть видоизменено таким образом, чтобы выражение в квадратных скобках в (2) по-прежнему вычислялось по периметру мишени.

Если известны геометрические размеры реактора и площадь миграции M^2 , то можно определить значение $k_{\infty}^{(0)}$, соответствующее критическому состоянию в обычном рабочем режиме (без мишени). В частности, для реакторов цилиндрической формы (о которых и будет идти речь ниже)

$$k_{\infty}^{(0)} = 1 + M^2 [(\xi_1/R)^2 + (\pi/H)^2] \quad (3)$$

(см., например, [10]), где $\xi_1 \approx 2,4048$ — первый корень функции Бесселя $J_0(z)$; R — экстраполированный радиус реактора. Для рассматриваемых физически больших реакторов можно с достаточной точностью положить, что экстраполированные границы активной зоны совпадают с ее геометрическими границами.

Радиально-симметричные решения уравнения (1), удовлетворяющие граничным условиям

$$\Phi(r, z)|_{z=\pm H/2} = 0, \quad \Phi(r, z)|_{r=R} = 0, \quad (4)$$

могут быть записаны в виде [9]

$$\Phi(r, z) = C \cos\left(\frac{\pi z}{H}\right) \left[J_0(\alpha r) - \frac{J_0(\alpha R)}{N_0(\alpha R)} N_0(\alpha r) \right], \quad (5)$$

где $J_0(x)$ и $N_0(x)$ — функции Бесселя нулевого порядка,

$$\alpha^2 = \frac{k_\infty - 1}{M^2} - \left(\frac{\pi}{H}\right)^2. \quad (6)$$

Выражение (5) соответствует положительным значениям α^2 . В случае $\alpha^2 < 0$ функции $J_0(\alpha r)$ и $N_0(\alpha r)$ следует заменить модифицированными функциями Бесселя $I_0(r\sqrt{-\alpha^2})$ и $K_0(r\sqrt{-\alpha^2})$.

Предположим далее, что распределение по вертикальной координате для плотности потока нейтронов j , испускаемых мишенью, имеет вид, близкий к $j = j_0 \cos\left(\frac{\pi z}{H}\right)$. (Отказ от такого предположения привел бы лишь к чрезмерному усложнению формул, что вряд ли оправдано в одноклассовом подходе.) В этом случае условие источника (2) приводит к следующему выражению для нормировочного множителя C в (5):

$$C = j_0 \left\{ \frac{1}{4} \left[J_0(\alpha r_0) - \frac{J_0(\alpha R)}{N_0(\alpha R)} N_0(\alpha r_0) \right] + \right. \\ \left. + \frac{D}{2} \alpha \left[J_1(\alpha r_0) - \frac{J_0(\alpha R)}{N_0(\alpha R)} N_1(\alpha r_0) \right] \right\}^{-1}, \quad \alpha^2 > 0 \quad (7)$$

(с очевидными изменениями для случая $\alpha^2 < 0$).

Ясно, что наличие мишени в активной зоне при прочих фиксированных параметрах системы приводит к появлению отрицательной реактивности, и значение (3) для коэффициента размножения уже не будет соответствовать критическому состоянию реактора. В используемом приближении для такого критического состояния (при нулевом токе ускорителя) граничное условие должно определяться равенством нулю левой части (2). (Отсюда, соответствующее значение k_∞^{kp} может быть найдено из условия равенства нулю знаменателя (7)).

Следуя далее стандартной схеме обозначений [9], определим эффективный коэффициент размножения:

$$k_{эф} = k_\infty / k_\infty^{kp}, \quad (8)$$

где k_∞^{kp} — указанное выше значение k_∞ , при котором реактор с введенной пассивной мишенью становится критическим.

Вопрос выбора оптимального значения $k_{эф}$ для рассматриваемой подкритической системы дискутировался в ряде работ [11-14]. Нам представляются обоснованными доводы авторов [13, 14] о том, что условие $k_{эф} = 0,98$ является достаточным для обеспечения безопасного

режима работы реакторов, управляемых ускорителями. Во всяком случае, для систем, включающих серийные (а не специально сконструированные) реакторные блоки, такое условие можно рассматривать как разумный компромисс между стремлением сделать систему максимально подкритичной и реальными требованиями к распределению нейтронного потока в активной зоне.

В проведенных расчетах для параметров реакторов различных типов были использованы данные [15-17]. Как уже указывалось, для каждого из реакторов предполагаемая мишень представляла собой цилиндр из неактивного материала с высотой, равной высоте активной зоны. Диаметр мишени (с учетом длин экстраполяции) принимался равным 17 см.

Заметим, что размеры мишени должны, вообще говоря, удовлетворять условиям полного поглощения ускоренных протонов, разномножения каскадно-испарительных нейтронов при их неупругих взаимодействиях с ядрами мишени, а также отражения нейтронов, летящих назад и вперед по отношению к протонному пучку [11]. Указанный диаметр мишени (17 см) определялся профилем пучка ($d=3$ см) и отклонением протонов в результате их многократного рассеяния [18]. Что касается длины мишени, то она, согласно [12,19], не должна быть меньше 61 см при использовании в качестве материала необогащенного урана. Это условие можно считать выполненным для любого крупного реактора.

На рис.1 приведены расчетные кривые, определяющие нормированные распределения нейтронных потоков $\Phi(r)/\Phi_{\max}$ в активных зонах различных реакторов при их работе в подкритическом режиме ($k_{\text{эф}}=0,98$) с центрально расположенной мишенью описанного типа; $\Phi_{\max}$ — максимальное значение нейтронного потока для данного реактора при фиксированном токе ускорителя. (Напомним, что представленные кривые соответствуют эквивалентным гомогенным реакторам со всеми вытекающими отсюда приближениями).

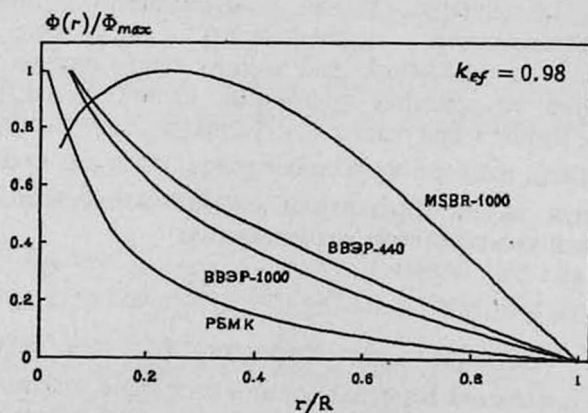


Рис.1. Отношение $\Phi(r)/\Phi_{\max}$ для различных реакторов в зависимости от относительного радиуса r/R при $k_{\text{эф}}=0,98$.

Очевидно, что с точки зрения равномерного энерговыделения по всей активной зоне, наилучшее распределение оказывается у жидкосолевого графитного бридера MSBR-1000. На наш взгляд, распределения для реакторов типа ВВЭР также можно считать приемлемыми, особенно с учетом необходимых поправок на выравнивание поля для реальных реакторов.

Для определения электрических характеристик подкритических систем выражение для потока (5) (с учетом (6)-(8)) для каждого реактора интегрировалось по всему объему активной зоны.

Прежде всего представляет интерес проследить за максимальной возможной выходной мощностью систем в зависимости от эффективного размножения. Предельная мощность при неизменных конструктивных характеристиках элементов активной зоны может быть определена из условия $\Phi(r,z) \leq \Phi_{\max}^{(0)}$, где $\Phi_{\max}^{(0)}$ — максимальный поток нейтронов при работе данного реактора в номинальном критическом режиме.

На рис.2 представлены отношения $W_{\max}(k_{\text{эф}})/W_0$ для ряда реакторов ($W_{\max}$ — предельно допустимая мощность реактора при работе с ускорителем, W_0 — номинальная мощность реактора). При $k_{\text{эф}}=0,98$ значения $W_{\max}/W_0$ для реакторов MSBR-1000, ВВЭР-440 и ВВЭР-1000 составляют соответственно 1,2, 0,57 и 0,46. Превышение $W_{\max}/W_0$ над единицей для MSBR-1000 непосредственно связано с более оптимальной формой распределения нейтронного потока для данного реактора при работе с ускорителем (см. рис.1).

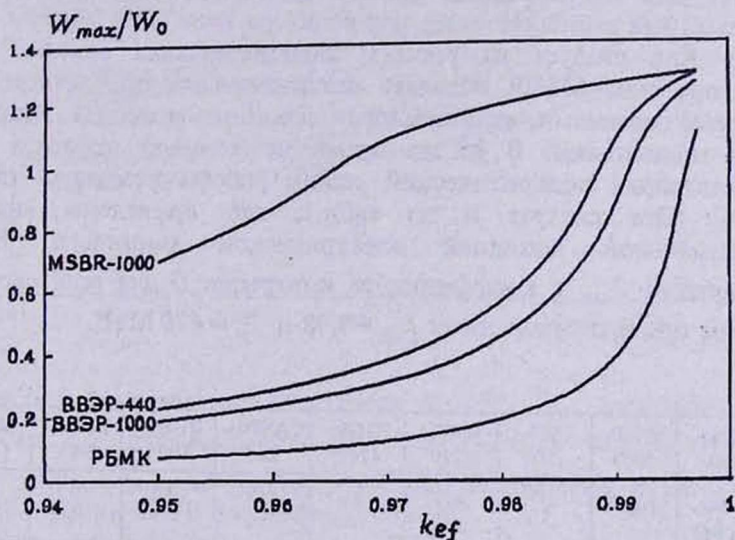


Рис.2. Отношение предельной допустимой мощности $W_{\max}$ к номинальной мощности W_0 в зависимости от $k_{\text{эф}}$ для различных реакторов.

Основной характеристикой, определяющей эффективность работы системы ускоритель-реактор, является коэффициент выигрыша G , равный отношению выходной электрической мощности реактора $W_{эл}$ к мощности $W_{уск}$, потребляемой ускорителем. В рассматриваемой задаче для этой величины можно получить следующее выражение:

$$G = c \frac{\bar{\phi} \sigma_f M_u \kappa}{r_0 H}, \quad (9)$$

где c — коэффициент, зависящий от энергии ускоренных протонов T_p ; $\bar{\phi}$ — усредненное по активной зоне значение величины $\Phi(r)/j$; M_u — масса активного изотопа в реакторе, σ_f — сечение деления его ядер при тепловых энергиях; κ — КПД при преобразовании тепла в электричество. В оценках коэффициента выигрыша (9) весьма важен оптимальный выбор энергии ускоренных протонов. Исходя из результатов работ [4,8,12] можно заключить, что наиболее оптимальной для энергии пучка протонов в данной задаче является область вблизи $T_p = 500$ МэВ.

На рис.3 приведены кривые, описывающие зависимость величины $G = W_{эл} / W_{уск}$ от $k_{эф}$ для реакторов различных типов при энергии ускоренных протонов 470 МэВ. В расчетах были использованы результаты [12], согласно которым при указанной энергии выход нейтронов из урановой мишени составляет 17,3 нейтрон/протон. Предполагалось также, что непроизводительные потери мощности в ускорительной системе составляют 2/3 от потребляемой мощности. Расчет для тяжеловодных систем CANDU, ввиду отсутствия других данных, был выполнен лишь для реактора типа CANDU-220.

Как следует из рис.1-3, подкритическая система на основе реактора типа MSBR обладает значительными преимуществами перед другими системами, включающими серийные реакторы, практически по всем показателям. В то же время необходимо отметить достаточно эффективный подкритический режим работы реакторов типа PWR и ВВЭР. Это следует и из табл.1, где приведены значения для максимальной выходной электрической мощности W_{max} , тока ускорителя I_{max} и коэффициента выигрыша G для всех рассмотренных систем при фиксированных $k_{эф} = 0,98$ и $T_p = 470$ МэВ.

Таблица 1

Реактор	MSBR-1000	PWR-1300	BWR-1270	HTGR-1160	CANDU-220	ВВЭР-1000	ВВЭР-440	АМБ-II (200)	РБМК-1000
W_{max} (МВт)	1196 *)	437	203	494	118	459	252	120	195
I_{max} (мА)	2,7	3,5	2,5	7,4	7,2	3,8	2,0	1,4	7,2
G	315	90	59	48	11	87	87	62	19

*) Мощность может быть уменьшена до номинальной (1000 МВт) пропорциональным уменьшением тока ускорителя.

Пересчет результатов табл.1 для других энергий ускоренных протонов может быть выполнен с помощью данных, приведенных в работе [12].

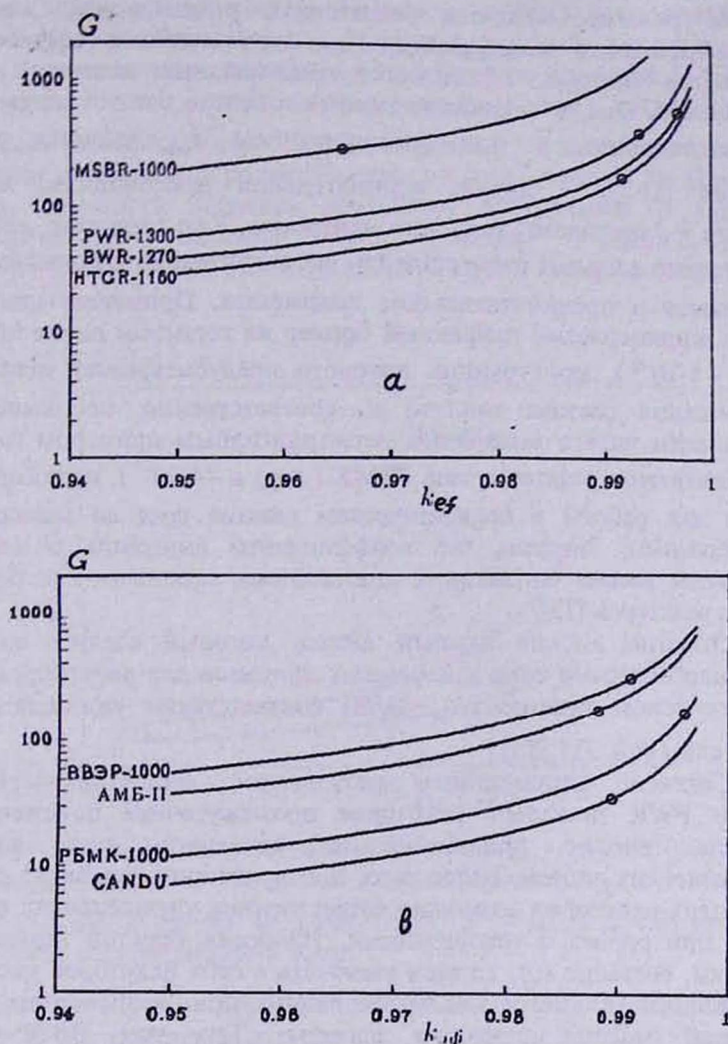


Рис.3(а),(б). Коэффициенты выигрыша $G = W_{\text{эл}}/W_{\text{уск}}$ в зависимости от $k_{\text{эф}}$ для различных реакторов. Кружки на кривых соответствуют режимам работы с формой нейтронного потока, близкой к номинальной для данного реактора.

К наименее приспособленным для работы совместно с ускорителями следует отнести серийные тяжеловодные реакторы, например, типа канадских CANDU. Подобный вывод можно было сделать заранее, из общих соображений. Действительно, работая на необогащенном или даже отвальном уране, при более значительных нейтронных потоках, тяжеловодные реакторы при равной мощности

должны требовать более интенсивных источников нейтронов для компенсации подкритичности, чем прочие системы.

Для графитных и легководных реакторов соизмеримой мощности важным фактором, влияющим на эффективность работы в подкритическом режиме, является избыточная реактивность, изначально предусмотренная в конструкции. При этом наиболее эффективными оказываются системы, обладающие минимальным исходным запасом реактивности. Это, в частности, непосредственно следует из выражения (9), где величина $\bar{\phi}$ при фиксированном $k_{эф}$ является растущей функцией $|\Delta\rho_M|$ — модуля отрицательной реактивности, вносимой мишенью — "ловушкой" тепловых нейтронов. Как следствие, реакторы с относительно малыми размерами (и, соответственно, с большим $|\Delta\rho_M|$) оказываются в предпочтительном положении. Примером здесь может служить жидкосолевой графитный бридер на ториевом цикле MSBR-1000 ($\Delta\rho_M \cong -4 \cdot 10^{-2}$), конструкция которого предусматривает непрерывное регулирование состава топлива и, соответственно, небольшой запас реактивности на его выгорание. Альтернативным примером графитных систем являются реакторы типа РБМК ($\Delta\rho_M \cong -4 \cdot 10^{-3}$), переоборудование которых для работы в подкритическом режиме вряд ли можно считать целесообразным. Заметим, что коэффициенты выигрыша G для РБМК оказываются весьма близкими к аналогичным величинам для бесконечно больших реакторов [13].

Отметим весьма важный вывод, который следует из данных табл.1: необходимые токи ускоренных протонов для работы реакторов в подкритическом режиме ($k_{эф}=0,98$) соответствуют уже действующим ускорителям (см. [11,20]).

Согласно приведенным результатам, серийные легководные ВВЭР и РВР занимают некоторое промежуточное положение и, в принципе, вполне приемлемы на начальном этапе внедрения подкритических систем. Более того, при некоторой доработке систем на основе этих реакторов возможно существенное улучшение их выходных данных при работе с ускорителями. Наиболее простой вариант такой доработки, согласно (9), должен включать в себя некоторое уменьшение эффективного диаметра активной зоны при сохранении прежней суммарной массы активного изотопа. Так, для ВВЭР-440 при уменьшении радиуса активной зоны R со 144 см до 114 см и увеличении среднего обогащения ρ с 2,4% до 3,8% коэффициент выигрыша G при $k_{эф}=0,98$ возрастает до значения 152, а максимальная электрическая мощность W_{max} может быть доведена до номинального значения 440 МВт. При уменьшении R до 91 см и увеличении ρ до 6% значения указанных величин возрастают соответственно до $G \cong 265$ и $W_{max} \cong 520$ МВт.

В заключение представляет интерес проследить, как влияет смещение мишени-источника нейтронов от центра к периферии активной зоны на общую эффективность системы ускоритель-реактор. Решение уравнения вида (1) в случае эксцентричного расположения

источника нейтронов определяется теми же методами, что и в задаче с аналогичным расположенным регулирующим стержнем (см. [9]). Вся разница заключается лишь в использовании условия источника (2) вместо условия равенства нулю потока нейтронов внутри стержня. Мы опускаем здесь детали соответствующего расчета и приводим лишь основные результаты. На рис. 4 представлены в качестве примера кривые, описывающие относительную мощность реактора MSBR-1000 в зависимости от $k_{эф}$ при фиксированном токе ускорителя для центрально расположенной мишени (кривая 1) и мишени, сдвинутой к периферии на половину радиуса активной зоны (кривая 2). При этом за единицу мощности принята мощность MSBR-1000 с центрально расположенной мишенью в режиме "компенсированной подкритичности". Для различных реакторов такой режим помечен кружками на рис.3.

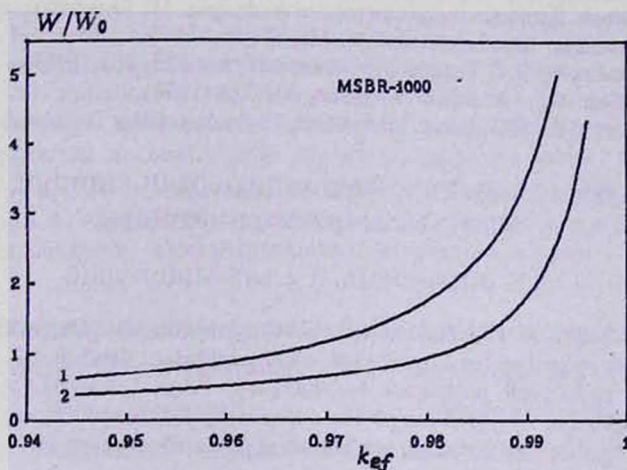


Рис.4. Относительная мощность реактора MSBR-1000 при фиксированном токе ускорителя в зависимости от $k_{эф}$. 1 — мишень расположена в центре активной зоны, 2 — мишень сдвинута на половину радиуса активной зоны.

Очевидно, что при фиксированном токе ускорителя сдвиг мишени к периферии приводит, с одной стороны, к увеличению среднего потока нейтронов в активной зоне (т.е. к увеличению мощности), а с другой стороны — к уменьшению подкритичности реактора. Однако, как показывают расчеты, влияние последнего фактора всегда оказывается более существенным, и, как видно из рис.4, сдвиг мишени приводит лишь к ухудшению характеристик системы. Подобная закономерность оказывается справедливой при любом сдвиге для всех цилиндрических реакторов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Proc. of the Eighth Intern. Conf. on Emerging Nuclear Energy Systems. 24-28 June 1996. Obninsk, Russia.
2. Proc. of the Fourth European Particle Accelerator Conf. 27 June-1 July 1994. London.

3. Proc. of the Second Intern. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications. 3-7 June 1996. Kalmar, Sweden.
4. А.Р. Туманян, А.Г. Худавердян. Изв. НАН Армении, Физика, 29, 58 (1994), Атомная энергия, 79, 748 (1995).
5. А.Р. Туманян, А.Г. Худавердян. Изв. НАН Армении, Физика, 31, 127 (1996).
6. Y.N. Airapetyan et al. Abst. of the Eighth Intern. Conf. on Emerging Nuclear Energy Systems. 24-28 June 1996, Obninsk, Russia, p.73.
7. А.Р. Туманян, А.Г. Худавердян. Атомная техника за рубежом, 8, 3 (1996).
8. S. Andrianopje et al. Phys. Lett., 348B, 697 (1995).
9. С.М. Фейнберг, С.Б. Шихов, В.Б. Троянский. Теория ядерных реакторов, т.1. М., Атомиздат, 1978.
10. Ф. Кап. Физика и техника ядерных реакторов. М., ИЛ, 1960.
11. В.С. Барашенков. Препринт ОИЯИ Р2-94-56, 1994.
12. Ю.М. Адо и др. Препринт ИФВЭ 94-29, 1994.
13. П.Н. Алексеев и др. Препринт ИАЭ-5857/2, 1995.
14. S.S. Abalin et al. AP Conf. Proc. 346. Las-Vegas, July 1994, p.527.
15. В.В. Семенов. Препринт ИАЭ-3104, 1979.
16. Б.А. Дементьев. Ядерные энергетические реакторы. М., Энергоатомиздат, 1990.
17. А.М. Петросяни. Атомная техника. М., Наука, 1976.
18. В.С. Барашенков, В.С.Тонеев. Атомная энергия, 35, 163 (1973).
19. Р.Г. Васильев и др. Атомная энергия, 44, 329 (1978).
20. H. Klein. Proc. of the 1994 Intern. Linac Conf., 21-26 Aug. 1994. Tsukuba, Japan, v.1, p.322.

ՍԵՐԻԱԿԱՆ ԷՆԵՐԳԵՏԻԿԱԿԱՆ ՌԵԱԿՏՈՐՆԵՐԸ ԵՆԹԱԿՐԻՏԻԿԱԿԱՆ ՌԵԺԻՄՈՒՄ

Վ. Մ. ԺԱՄԿՈՉՅԱՆ, Ա. Հ. ԽՈՒՂԱՎԵՐԴՅԱՆ

Ուսումնասիրվել են ենթակրիտիկական ենթագերտիկական կոմպլեքսներ բաղկացած արագացուցիչով ղեկավարվող միջուկային ռեակտորներից: Բերված են տարբեր տիպի ռեակտորների ռեժիմների տեսական հաշվարկներ: Ցույց է տրված, որ հնարավոր է բավականին էֆեկտիվ պայթյունազերծ ԱԷԿ կառուցել օգտագործելով գոյություն ունեցող արագացուցիչների և ժամանակակից սերիական ռեակտորների բլոկները:

SERIAL ENERGETIC REACTORS IN SUBCRITICAL REGIME

A. G. KHUDAVERDYAN, V. M. ZHAMKOCHYAN

Physical aspects of subcritical Nuclear Power Plants driven by proton accelerators are considered. Estimating theoretical calculations are made for subcritical regimes of various type reactors. It is shown that creation of quite effective explosion-safe NPP is real at existing level of accelerator technique by using available reactor blocks.

УДК 541.515:539.8

АНАЛИЗ КОНФОРМАЦИЙ И СПЕКТРОВ ЭПР СВОБОДНЫХ РАДИКАЛОВ В УГЛЕВОДАХ

Г. В. АБАГЯН, А. Г. АБАГЯН, А. С. АПРЕСЯН

Институт физических исследований НАН Армении

(Поступила в редакцию 15 февраля 1996 г.)

Рассмотрены конформации свободных радикалов, образующихся при локализации неспаренного электрона на различных атомах углерода (C1-C6) пиранозного кольца молекулы углевода. На основании анализа ожидаемых конформаций радикалов предсказан возможный вклад β -протонов в сверхтонкую структуру спектров ЭПР. Характеристики спектров ЭПР исследуемых свободных радикалов, полученные методом анализа конформаций, удовлетворительно согласуются с соответствующими данными, зарегистрированными в жидкой фазе.

Для исследования методом ЭПР парамагнитных частиц типа свободных радикалов и установления их структуры необходимо знание пространственного строения, а также конформаций исследуемых соединений. Имеется немало работ, посвященных исследованию конформаций углеводов, среди них особое место занимают кристаллографические исследования, выполненные методами нейтронографии и рентгеноструктурного анализа [1-4]. Основные результаты этих исследований, имеющих отношение к объектам, рассмотренным в настоящей работе, использованы нами при анализе конформаций свободных радикалов. В работе проанализированы наиболее устойчивые (согласно литературным данным [5]) конформации C1 и 1C α - и β -конформеров D-глюкозы в пиранозной форме — молекулы, которая является составной мономерной единицей большинства ди-, олиго- и полисахаридов (см. рис.1).

Анализ спектров ЭПР γ -облученных при 77 К монокристаллов моно- и дисахаридов, проведенный в [6-9], показал, что образующиеся свободные радикалы возникают в результате разрыва C — H связей, при котором неспаренный электрон локализуется на $2p_z$ -орбитали атома углерода. Продуктов разрыва O — H и C — C связей не обнаружено. Это

подтверждается анализом угловой зависимости величины расщепления сверхтонкой структуры (стс) от направления между внешним магнитным полем и главными кристаллографическими осями. Поэтому, для установления структуры радикалов, соответствующих наблюдаемым спектрам ЭПР, нами проведено детальное рассмотрение всех возможных конформаций радикалов глюкопиранозного кольца (рис.1), возникающих в результате разрыва именно С-Н связей. Анализ заключался в сопоставлении конформационных углов, полученных из стереомоделей исследуемых соединений, с соответствующими значениями этих же углов, полученных из анализа сверхтонкой структуры спектров ЭПР.

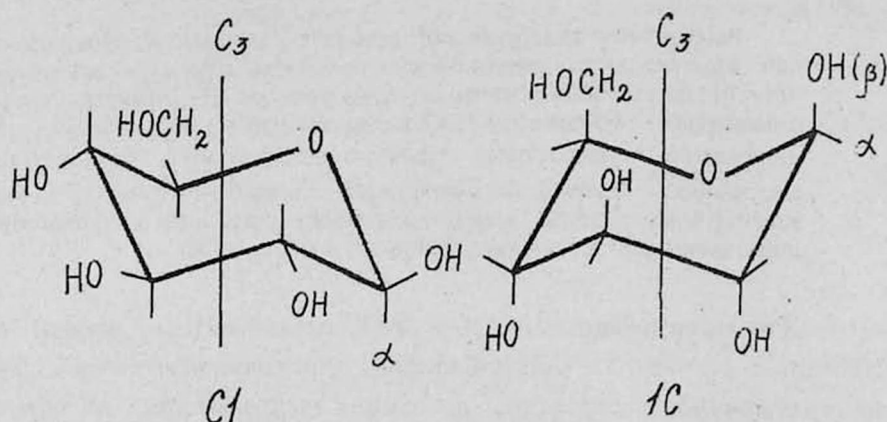


Рис.1. Наиболее устойчивые конформации глюкопиранозного кольца. Связи, параллельные оси, называются аксиальными; связи, которые при проецировании на эту ось образуют с ней тетраэдрические углы, называются экваториальными.

Для вычисления конформационных углов θ (см. рис.2) использовались стереомодели. При построении моделей радикалов учитывалось, что локализация неспаренного электрона на $2p_z$ -орбитали атома углерода приводит к тому, что гибридизация поврежденного фрагмента молекулы становится ближе к sp^2 , чем к sp^3 [9], т.е. сам радикал становится более плоским. В связи с этим основной вклад в сверхтонкие взаимодействия (ств) вносят аксиальные β -протоны, т.к. для них угол θ близок к 0, в то время как вклад экваториальных β -протонов пренебрежимо мал (угол θ близок к 90°). Более наглядно это видно из рис.2, где приведена проекция связей в радикале $R_1 \dot{C}_\alpha(OH)_\alpha - C_\beta H_\beta(OH)_\beta R_2$ (где через R_1 обозначена часть молекулы слева

от C_α -атома углерода, а через R_2 — соответственно справа от C_β -атома углерода) на плоскость, перпендикулярную $C_\alpha-C_\beta$ связи. Значения угла θ между осью $2p_z$ -орбитали неспаренного электрона и проекцией $C_\beta-H$ связи на плоскость, перпендикулярную $C_\alpha-C_\beta$ связи, из стереомоделей можно определять в случае локализации неспаренного электрона последовательно у всех атомов углерода пиранозного кольца. В то же время следует учесть, что при локализации неспаренного электрона на $C(6)$ во всех соединениях, кроме фруктозы, угол θ может принимать всевозможные значения вследствие относительной свободы вращения вокруг $C(5)-C(6)$ связи. По этой же причине угол θ неопределен для протонов метиленовой группы у $C(6)$, при локализации неспаренного электрона на $C(5)$. Однако точность определения конформационных углов θ из стереомоделей не выше, чем $2-3^\circ$.

Для более точного определения значений конформационных углов θ нами были использованы имеющиеся в литературе экспериментальные данные, полученные методами нейтронографии и рентгеноструктурного анализа как для чистой α -[1] и β -глюкозы [2], так и для глюкopiранозного кольца, входящего в состав трегалозы [3], сахарозы [4] и целлобиозы [2], где валентные углы между $C-C$ и $C-O$ связями были определены с точностью $\pm 0,4 \div 0,6^\circ$.

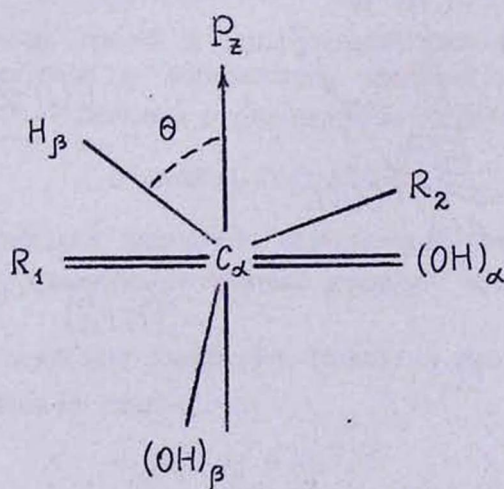


Рис.2. Проекция связей в радикале $R_1\dot{C}_\alpha(OH)_\alpha-R_2C_\beta(OH)_\beta H_\beta$ на плоскость, перпендикулярную $C_\alpha-C_\beta$ связи.

Далее была решена стереометрическая задача по определению угла θ между осью $2p_z$ -орбитали неспаренного электрона и проекцией

$C_\beta-H$ связи на плоскость, перпендикулярную $C_\alpha-C_\beta$ связи. Была рассмотрена только наиболее устойчивая C1 конформация. При этом предполагали, что при образовании радикала (т.е. при разрыве C-H связи) конфигурация глюкопиранозного кольца остается неизменной и лишь конфигурация фрагмента молекулы, на котором локализована свободная валентность, может частично меняться. Поэтому вычисления углов проводили для двух случаев (см. рис.3):

а) ось $2p_z$ -орбитали неспаренного электрона, локализованного у $C(n)$, перпендикулярна плоскости, проходящей через $C(n-1)$, $C(n)$ и $C(n+1)$. Это соответствует случаю, когда при образовании радикала конфигурация глюкопиранозного кольца сохраняется неизменной.

б) ось $2p_z$ -орбитали неспаренного электрона перпендикулярна плоскости, проходящей через $C(n+2)$ и $C(n+1)$. В отличие от стереомоделей, где при образовании радикала постулировали переход sp^3 гибридизации в sp^2 и, соответственно, угол $C(n-1)-C(n)-C(n+1)$ принимали равным 120° , в данном случае этот угол не равен 120° , а соответствует значению угла в частично деформированном фрагменте глюкопиранозного кольца, как это показано на рис.3(б).

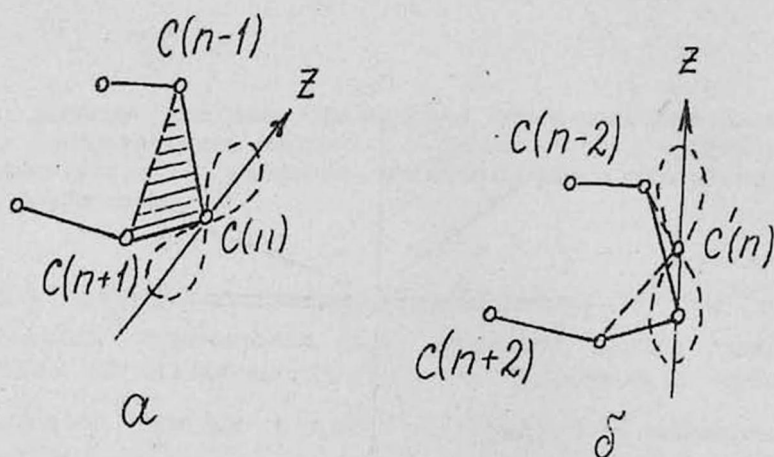


Рис.3. Конфигурации свободного радикала у $C(n)$. z — направление оси орбитали неспаренного электрона: а) предполагается, что при образовании радикала глюкопиранозное кольцо остается неизменным; б) предполагается, что при образовании радикала $C(n)$ смещается в новое положение $C'(n)$.

Вычисленные значения углов θ приведены в таблице 1. Здесь по причине, указанной выше, угол θ при локализации свободной валентности на C(6) не указан. По той же причине не указаны углы для протонов метиленовой группы у C(6) при локализации неспаренного электрона на C(5).

Дальнейший анализ заключался в сопоставлении значений конформационных углов θ , вычисленных из кристаллографических данных, со значениями этих углов, определенными путем полуэмпирических правил анализа спектров ЭПР для алкилзамещенных радикалов [10]. Основные положения этих правил сводятся к следующему.

1. Ширина спектра ЭПР (или расстояние между крайними линиями стс) равна сумме величин расщеплений на всех α - и β -протонах:

$$\sum A_H = \sum_{i=1}^3 A_H(\alpha_i) + \sum A_H(\beta_i). \quad (1)$$

2. Согласно [11], константа сверхтонкого расщепления для каждого α -протона равна

$$A_H(\alpha) = Q_\alpha \cdot \rho, \quad (2)$$

где ρ — спиновая плотность неспаренного электрона у α -атома углерода; Q_α — коэффициент пропорциональности, величина которого зависит от природы связей и типа заместителей [10]. Плотность неспаренного электрона ρ определяется природой заместителей. В радикалах типа X- $\dot{C}$ -Y значение ρ определяется по формуле

$$\rho = (1-\Delta X)(1-\Delta Y)(1-\Delta Z), \quad (3)$$

где ΔX — доля спиновой плотности, оттягиваемой на заместитель X. Предполагается, что каждый заместитель проявляет себя независимо от остальных.

3. Константа стс для β -протонов зависит от конформации радикала — угла поворота по связи C $_\alpha$ -C $_\beta$:

$$A_H(\beta) = Q_\beta \cdot \rho \cdot \cos^2 \theta, \quad (4)$$

где Q_β — постоянная, значение которой для алкилзамещенных радикалов равно 58,6 [12], θ — конформационный угол (см. рис.2).

При известных $A_H(\alpha)$ суммарная ширина спектра зависит от расщепления на β -протонах. Таким образом, если известна полная

ширина спектра, можно установить конформацию радикала и, наоборот, зная конформацию (угол θ), можно предсказать положение линий в спектре.

Константу расщепления для α - и β -протонов мы оценивали по формулам (2) и (4), где согласно [10], $19 < Q_\alpha < 26$ Гс и $Q_\beta = 58,6$. Значения углов θ использовали из таблицы 1, для вариантов а) и б). Спиновую плотность на α -атоме углерода определяли из формулы (3), используя ΔX для соответствующих функциональных групп и фрагментов молекул, приведенных в сводной таблице работы [10], значения которых рассчитаны из экспериментальных данных [12]. Например, для радикала со структурой $\text{CH}_2\text{OH}-\text{O}-\text{C}(1)-\text{OH}$ плотность неспаренного электрона на $\text{C}(1)$ атоме углерода рассчитывается следующим образом. Из таблицы работы [10] подбираются значения ΔX для OH , OSHO и $\text{CH}(\text{OH})$ групп, связанных с $\text{C}(1)$, которые соответственно равны 0,16, 0,136, 0,041, затем определяем согласно формуле (3): $\rho = (1-0,16)(1-0,136)(1-0,041) = 0,69$.

Таблица 1

Значения углов θ (в градусах), вычисленные из модели глюкопиранозного кольца в конформации C_1 , согласно кристаллографическим данным, и рассчитанные из величин констант stc для β -протонов, приведенных в работе [16].

Место локализации несп. электрона	C(1)	C(2)			C(3)		C(4)		C(5)		
Атомы C, у которых определяли угол θ	C(2)	$C_\alpha(1)$	$C_\beta(1)$	C(3)	C(2)	C(4)	C(3)	C(5)	C(4)	C(6)	C'(6)
Вариант а для конформации углов чистой α -глюкозы	24,8	25,9	87,5	17,3	17,9	20,4	14,1	17,6	19,8	—	—
Вариант а' для конформации углов α -глюкозы, входящей в состав трегалозы	33,4	34,5	96,1	22,8	23,4	17,1	10,8	8,0	10,2	—	—
Вариант б	29,2	13,3	56,3	34,0	33,3	32,9	39,1	39,8	37,6	—	—
Рассчитанные из констант stc [16], для α -глюкозы	38,6	—	56,6	33,5	36,7	33,8	38,7	40,7	30,1	61,8	66,4
Для β -глюкозы из [16]	38,6	43,1	—	43,1	35,8	34,2	41,6	42,3	24,6	67,3	70,2

Таким образом, описанный метод анализа конформаций и спектров ЭПР позволил нам в ряде случаев, в частности, при взаимодействии атомов водорода и дейтерия с углеводами, провести идентификацию структур как первичных, так и вторичных

свободных радикалов, соответствующих наблюдаемым спектрам ЭПР [13-15].

Однако следует отметить, что до 1981г. в литературе не было экспериментальных данных, из которых можно было бы оценить точные значения констант расщеплений для первичных свободных радикалов в углеводах, т.е. работ, выполненных с углеводами в каждой фазе при комнатной температуре, сравнение с которыми позволило бы выяснить — насколько достоверны результаты, полученные данным методом анализа конформаций. В 1981г. в работах [16,17] были опубликованы спектры ЭПР продуктов взаимодействия ОН радикалов, инициированных при комнатной температуре в реакции $Ti^{3+}-H_2O_2$ в проточной системе с α -, β -глюкозой и некоторыми другими углеводами. Анализ полученных спектров ЭПР позволил установить точные значения констант стс. Тем самым появилась возможность непосредственного сравнения результатов, полученных методом анализа конформаций, с этими данными.

В таблице 1, в отдельной графе приведены углы θ , вычисленные исходя из констант расщеплений на β -протонах, согласно данным [16], т.е. используя рассчитанные с помощью полуэмпирических правил анализа спектров ЭПР значения ρ и принимая $Q_\beta = 58,6$, из формулы (4) определяли угол θ . В таблице 2 значения расщеплений на β -протонах, вычисленные с помощью полуэмпирических правил анализа, используя конформационные углы θ из таблицы 1, сравниваются с соответствующих величинами, полученными экспериментально [16].

Таблица 2

Величины констант СТВ для β -протонов (в мТ), соответствующих углам для вариантов а, а', и б, а также соответствующие константы для α - и β -глюкозы в жидкой фазе согласно [16].

Место локализации	C(1)		C(2)		C(3)		C(4)		C(5)		
Атомы С, у которых определяли угол θ	C(2)	C _a (1)	C _p (1)	C(3)	C(2)	C(4)	C(3)	C(5)	C(4)	C(6)	C'(6)
Вариант а	3,45	3,45	0,007	3,89	3,87	3,75	4,02	3,88	3,94	1,11	1,11
Вариант а'	2,9	2,9	0,042	3,63	3,59	3,9	4,12	4,19	4,31	1,11	1,11
Вариант б	4,04	4,04	1,31	2,93	2,98	2,97	2,57	2,52	2,79	1,11	1,11
α -глюкоза, жидкая фаза	—	—	1,29	2,975	2,745	2,605	2,605	2,455	3,33	0,99	0,71
β -глюкоза, жидкая фаза	2,28	2,28	—	2,86	2,81	2,39	2,39	2,34	3,68	0,66	0,51

Как видно, хорошее совпадение с экспериментальными данными наблюдается для углов θ , рассчитанных в случае (б), т.е. ожидаемые конформации α -гидроксильных радикалов в глюкозе, в пределах точности измерений, совпали со значениями, характеризующими эти радикалы в водных растворах при комнатной температуре. А соответствующие этим углам константы стс α -гидроксильных радикалов в глюкозе (табл.2) удовлетворительно согласуются с соответствующими экспериментальными значениями разных авторов (собранных и обобщенных в работе [8]), характеризующими эти радикалы в монокристаллах, поликристаллических порошках, замороженных сернокислотных растворах при 77 К, а также в водных растворах при комнатной температуре.

Принято считать, что конформация радикала определяется величиной меж- и внутримолекулярных сил взаимодействия в пределах фрагмента молекулы, где локализована свободная валентность. Так как конформации углеводных радикалов в растворах, где роль межмолекулярных сил минимальна, и в монокристаллах с развитой сеткой межмолекулярных водородных связей одинаковы, то можно полагать, что конфигурация циклических углеводных радикалов формируется, в основном, силами внутримолекулярного взаимодействия.

ЛИТЕРАТУРА

1. G.M. Brown, H.A. Levy, Science, 147, n.3661, 1038 (1965).
2. S.C. Chu, G.A. Jeffrey, Acta Cryst., B24, 830 (1968).
3. T. Taga, M. Senma, K. Osaki, B28, 3258 (1972).
4. G.M. Brown, H.A. Levy, Science, 141, n.3584, 921 (1963).
5. R.B. Kelly, Can. J. Chem., 35, 149 (1957).
6. J. Hutterman, A. Muller, Rad. Res., 38, 248 (1969).
7. A. Graslund, G. Lofroth, Acta Chem. Scand., B29, 475 (1975).
8. Г.В. Абагян, Докторская дисс., Москва, ИХФ (1985).
9. H. Ueda, J. Phys. Chem., 67, 2185 (1963).
10. П.О. Бутягин, А.М. Дубинская, В.А. Радциг, Успехи химии, 38, 593 (1979).
11. H.M. McConnell, D.B. Chestnut, J. Chem. Phys., 28, 107 (1958).
12. R.W. Fessenden, R.H. Schuler, J. Chem. Phys., 39, 2147 (1963).
13. Г.В. Абагян, А.С. Апресян, А.М. Дубинская, Ж. физ. хим., 50, 28 (1976).
14. G.V. Abaghian, A.S. Apresian, Studia Biophys., 53, 95 (1975).
15. G.V. Abaghian, A.S. Apresian, Studia Biophys., 64, 217 (1977).
16. B.C. Gilbert, D.M. King, C.B. Thomas, J. Chem.Soc. Perkin Trans., II, №8, 1186 (1981).
17. B.C. Gilbert, D.M. King, C.B. Thomas, J. Chem.Soc. Perkin Trans., II, №2, 169 (1982).

ԱՇԽԱՋՐԵՐՈՒՄ ԱԶԱՏ ՈՒԴԻԿԱԼՆԵՐԻ ԿՈՆՖՈՐՄԱՅԻՄՆԵՐԻ
ԵՎ ԷՊՈՒ ՍՊԵԿՏՐՆԵՐԻ ՎԵՐԼՈՒԾՈՒԹՅՈՒՆԸ

Հ. Վ. ԱԲԱԳՅԱՆ, Ա. Հ. ԱԲԱԳՅԱՆ, Ա. Ս. ԱՊՐԵՍՅԱՆ

Դիտարկված են ազատ ռադիկալների կոնֆորմացիաները, որոնք առաջանում են, երբ չզուգորդված էլեկտրոնը լոկալիզացված է ածխաջրի ատոմների վրա: Ուսումնասիրվում են կոնֆորմացիաների վերլուծության հիման վրա կամխազուշակված են ԷՊՈՒ սպեկտրների գերնորը ստրուկտուրայում β -պրոտոնների հնարավոր ներդրումները: Կոնֆորմացիաների վերլուծության մեթոդով ստացված ազատ ռադիկալների ԷՊՈՒ սպեկտրների բնութագրերը համընկնում են համապատասխան փորձնական տվյալների հետ, որոնք ստացված են հեղուկ ֆազայի համար:

ANALYSIS OF CONFORMATIONS AND ESR SPECTRA
OF FREE RADICALS IN CARBOHYDRATES

G. V. ABAGHYAN, A. G. ABAGHYAN, A. S. APRESIAN

The conformations of free radicals arising when the unpaired electron is localized on carbon atoms in pyranose ring of carbohydrate molecule are considered. On the base of the analysis of expected conformations of radicals a possible contribution of β -protons in hyperfine structure of ESR spectra is predicted. The results of conformational analysis for different types of free radicals are in satisfactory agreement with the corresponding experimental data for the liquid phase.

Ա.Թ.Գևորգյան, Վ.Ա.Մալոյան. Փուլային համաձայնեցումը երկրորդ հարմոնիկի գեներացիայի ժամանակ	3
Ա.Հ.Հակոբյան. Ֆեմտոսեկունդային լազերային իմպուլսի ինքնազդումը ոչ գծային անդիսպերս միջավայրում.	9
Ա.Ս.Բաղդասարյան, Է.Ս.Վարդանյան, Ռ.Կ.Հովսեփյան, Ա.Ռ.Պողոսյան. Անցումային հոսանքները լիթիումի նիոբատի բյուրեղներում	13
Վ.Մ.Հարությունյան, Վ.Վ.Բունիաթյան. Թռիչքային տիրույթում խառնուրդների բաշխման բնույթի ազդեցությունը ինժեկցիոն - թռիչքային դիոդների բարձրահաճախական բնութագրերի վրա	22
Վ.Մ.Ժամկոչյան, Ա.Հ.Խուդավերդյան. Սերիական էներգետիկական ռեակտորները ենթակրիտիկական ռեժիմում.	31
Հ.Վ.Աբաղյան, Ա.Հ.Աբաղյան, Ա.Ս.Ապրեսյան. Ածխաջրերում ազատ ռադիկալների կոնֆորմացիաների և էՊՌ-սպեկտրների վերլուծությունը.	41

CONTENTS

S.T.Gevorkyan, W.A.Maloyan. Phase matching in second harmonic generation.	3
A.H.Hakobian. Self-influence of a femtosecond laser pulse in a nonlinear nondispersive medium.	9
A.S.Bagdasaryan, E.S.Vartanyan, R.K.Hovsepyan, A.R.Pogosyan. Transient currents in photochromic lithium niobate crystals	13
V.M.Aroutiounian, V.V.Buniatian. Influence of profile of doping density in the transit-time region on the microwave characteristics of BARITT diodes	22
V.M.Zhamkochyan, A.G.Khudaverdyan. Serial energetic reactors in subcritical regime.	31
G.V.Abaghyan, A.G.Abaghyan, A.S.Apresian. Analysis of conformations and ESR spectra of free radicals in carbohydrates	41

СОДЕРЖАНИЕ

С.Т.Геворкян, В.А.Малоян. Согласование фаз при генерации второй гармоники	3
А.А.Акопян. Самовоздействие фемтосекундного лазерного импульса в нелинейной бездисперсной среде	9
А.С.Багдасарян, Э.С.Вартанян, Р.К.Овсепян, А.Р.Погосян. Переходные токи в фотохромных кристаллах ниобата лития	13
В.М.Арутюнян, В.В.Буниатян. Влияние профиля распределения примесей в пролетной области на ВЧ характеристики инжекционно-пролетных диодов	22
В.М.Жамкочян, А.Г.Худавердян. Серийные энергетические реакторы в подкритическом режиме	31
Г.В.Абагян, А.Г.Абагян, А.С.Апресян. Анализ конформаций и спектров ЭПР свободных радикалов в углеводах	41

Заказ №26. Тираж 200.

Сдано в набор 15.10.97. Подписано к печати 26.12.97.

Печ. л. 6,5. Бумага КУМ-ultra. Цена договорная.

Издательство "Гитутюн" НАН РА

Компьютерная редакционно-издательская служба

375019, Ереван, пр. Маршала Баграмяна, 24-г.