

ФИЗИКА • ՖԻԶԻԿԱ • PHYSICS



ИЗВЕСТИЯ
НАЦИОНАЛЬНОЙ АКАДЕМИИ НАУК АРМЕНИИ

ՏԵՂԵԿԱԳԻՐ
ՀԱՅԱՍՏԱՆԻ ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ԱԶԳԱՅԻՆ ԱԿԱԴԵՄԻԱՅԻ

PROCEEDINGS
OF NATIONAL ACADEMY OF SCIENCES OF ARMENIA

A2K 413



ՀԱՅԱՍՏԱՆԻ ՀԱՆՐԱՊԵՏՈՒԹՅԱՆ ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ԱԶԳԱՅԻՆ ԱԿԱԴԵՄԻԱ
НАЦИОНАЛЬНАЯ АКАДЕМИЯ НАУК РЕСПУБЛИКИ АРМЕНИЯ

ՏԵՂԵԿԱԳԻՐ ИЗВЕСТИЯ
ՖԻԶԻԿԱ ФИЗИКА

ՀԱՏՈՐ ТОМ

50

№ 4



ՀՀ ԳԱՄ "ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆ" ՀՐԱՏԱԴԱՐԱՆՈՒԹՅՈՒՆ
ИЗДАТЕЛЬСТВО "ТИТУЦИОН" НАН РА
ԵՐԵՎԱՆ ЕРЕВАН

2015

© Национальная Академия наук Армении
Известия НАН Армении, Физика

Журнал издается с 1966 г.
Выходит 4 раза в год
на русском и английском языках

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

В. М. Арутюнян, главный редактор
Э. Г. Шароян, зам. главного редактора
А. А. Ахумян
Э. М. Казарян
А. О. Меликян
А. Р. Мкртчян
Д. Г. Саркисян
А. М. Сирунян
Ю. С. Чилингарян
А. А. Мирзаханян, ответственный секретарь

ԽՄԲԱԳՐԱԿԱՆ ԿՈՒԵԳԻԱ

Վ. Մ. Հարությունյան, գլխավոր խմբագիր
Է. Գ. Շառոյան, գլխավոր խմբագրի տեղակալ
Ա. Ա. Հախումյան
Է. Մ. Ղազարյան
Ա. Ն. Մելիքյան
Ա. Ռ. Մկրտչյան
Դ. Զ. Սարգսյան
Ա. Մ. Սիրունյան
Յու. Ս. Չիլինգարյան
Ա. Ա. Միրզախանյան, պատասխանատու քարտուղար

EDITORIAL BOARD

V. M. Aroutiounian, editor-in-chief
E. G. Sharoyan, associate editor
A. A. Hakhumyan
E. M. Kazaryan
A. O. Melikyan
A. R. Mkrtchyan
D. H. Sarkisyan
A. M. Sirunyan
Yu. S. Chilingaryan
A. A. Mirzakhanyan, executive secretary

Адрес редакции: Республика Армения, 0019
Ереван, пр. Маршала Баграмяна, 24-г.

Խմբագրության հասցեն՝ Հայաստանի Հանրապետություն,
0019, Երևան, Մարշալ Բաղրամյան պող., 24-գ:

Editorial address: 24-g, Marshal Baghramyan Ave.,
Yerevan, 0019, Republic of Armenia.

УДК 535.126

О РОЖДЕНИИ Λ - И Ω -ГИПЕРОНОВ В ЯДРО-ЯДЕРНЫХ СОУДАРЕНИЯХ

В.М. ЖАМКОЧЯН

Национальная научная лаборатория им. А.И. Алиханяна, Ереван, Армения

e-mail: vzh@mail.yerphi.am

(Поступила в редакцию 30 марта 2015 г.)

Рассмотрены процессы образования Λ^0 - и Ω^- -гиперонов в соударениях двух ядер в области фрагментации нуклонов налетающего ядра. Выполнены расчеты по инклюзивным спектрам таких процессов для различных ядер-мишеней. Представленные результаты могут быть использованы для анализа механизмов фрагментации и точности использованных модельных представлений.

В работе [1] был представлен общий метод вывода выражений для инклюзивных спектров вторичных адронов h в процессах соударения двух ядер, $BA \rightarrow hX$, в области фрагментации налетающего нуклона ядра B . Используемый при этом подход был основан на модели многократного рассеяния промежуточных лидирующих состояний [2], в рамках которой в свое время была описана [2,3] большая совокупность экспериментальных данных по инклюзивным спектрам процессов $hA \rightarrow h'X$.

Указанная модель в применении к процессам вида $hA \rightarrow h'X$ предполагает распространение в ядре промежуточной адроноподобной системы H , сохраняющей основные свойства начального адрона h [3]. Акт образования адрона h' может происходить как локально при взаимодействии с нуклонами ядра (например, образование J/ψ [4]), так и в результате фрагментации состояния H . Существенно, что, по предположению [3], длина фрагментации H при рассматриваемых энергиях превышает размеры ядер.

Необходимо отметить хорошее согласие модели [2] с фрагментационным механизмом образования конечных адронов с экспериментальными данными по соответствующим процессам $hA \rightarrow h'X$ [2,3]. В особенности, это касается процессов рождения Λ^0 -гиперонов, $pA \rightarrow \Lambda^0 X$, ввиду обширности и точности данных [5]. В связи с этим представляло бы интерес исследование аналогичных процессов рождения в ядро-ядерных соударениях. Это позволило бы получить важную дополнительную информацию как о пространственно-временной картине процессов, так и о механизме фрагментации лидирующих состояний в конечные адроны [1,2].

Рассмотрим в общем случае процесс вида $hA \rightarrow h'X$ в предположении, что конечный адрон образуется в результате фрагментации промежуточного лидирующего состояния H . В модели [3] для инклюзивного сечения такого процесса можно получить следующие выражения:

$$d\sigma^{hA \rightarrow h'X}(x)/dx = \sum_{n=1}^A N_n(A, \sigma_{hN}) d\sigma_{(n)}^{h \rightarrow h'}(x)/dx, \quad (1)$$

$$\begin{aligned} d\sigma_{(1)}^{h \rightarrow h'}(x)/dx &= d\sigma^{hN \rightarrow h'X}(x)/dx, \\ d\sigma_{(n)}^{h \rightarrow h'}(x)/dx &= (1/\sigma_{pN})^{n-1} \\ &\times \int d\sigma_{nd}^{hN \rightarrow HX}(x_1)/dx_1 d\sigma_{nd}^{HN \rightarrow HX}(x_2)/dx_2 \dots d\sigma^{HN \rightarrow h'X}(x_n)/dx \\ &\times \delta(x - x_1 \dots x_n) dx_1 \dots dx_n, \quad n \geq 2, \end{aligned} \quad (2)$$

где

$$\begin{aligned} N_n(A, \sigma) &= 1/(\sigma n!) \int (\sigma T_A(\mathbf{b}))^n \exp\{-\sigma T_A(\mathbf{b})\} d^2b, \\ T_A(\mathbf{b}) &= \int \rho_A(\mathbf{b}, z) dz. \end{aligned} \quad (3)$$

Здесь $x \equiv x_{Lab} \simeq x_F$ (x_F – фейнмановская переменная); $\rho_A(\mathbf{b}, z)$ – одночастичная ядерная плотность ядра-мишени с массовым числом A , σ_{hN} – полное сечение недифракционного hN – взаимодействия.

При выводе выражения (1), как и в работах [2,3], не ставилось целью детальное описание процессов при $x \rightarrow 1$, и для спектров $h(H)N \rightarrow HX$ использовалась упрощенная запись

$$d\sigma^{h(H)N \rightarrow HX}/dx = d\sigma_{nd}^{h(H)N \rightarrow HX}/dx + \sigma_{hN}^d \delta(x-1), \quad (4)$$

где $d\sigma_{nd}^{h(H)N \rightarrow HX}/dx$ – спектры в недифракционной области, σ_{pN}^d – сумма сечений упругого рассеяния и дифракционной диссоциации адрона h на нуклоне. Предполагалось также, что в сечениях $h(H)N \rightarrow h'X$ нет существенной зависимости от $s^{1/2}$ в акте соударения, т.е. выполняется фейнмановский скейлинг. Отметим, что для процессов рождения гиперонов это условие согласуется с экспериментальными данными FNAL [6].

Вероятностная трактовка выражений (1) и (2) проста. Величины $d\sigma_{(n)}^{h \rightarrow h'}/dx$ представляют собой дифференциальные сечения n -кратного недифракционного взаимодействия в ядре с регистрацией h' в конечном состоянии, тогда как множители $N_n(A, \sigma_{hN})$ определяют эффективное число нуклонов, на которых может происходить последний (n -ый) недифракционный акт взаимодействия с последующей фрагментацией за пределами ядра, $h(H)N \rightarrow h'X$.

Для определения процессов на нуклоне, в которых доминирует фрагментационный механизм образования конечных адронов, могут быть использованы предсказания в модели кваркового счета [7] и их сравнение с экспериментально наблюдаемой зависимостью спектров $pN \rightarrow h'X$ от переменной x .

В работе [8] представлено сравнение предсказаний модели [7] для показателя n в аппроксимации

$$xd\sigma^{pp \rightarrow h'X} / dx \sim (1-x)^n \quad (5)$$

с соответствующими экспериментальными значениями для процессов рождения гиперонов при энергиях FNAL. Отметим, что для ряда гиперонов ($\bar{\Lambda}^0$, Σ^+ , Ξ^0) теоретические и экспериментальные значения для величины n заметно различаются. Причины такого несогласия могут быть разными – от экспериментальных эффектов, обусловленных влиянием резонансов, до недостатков самой модели [7]. В то же время для процессов рождения Λ^0 -гиперонов такое несогласие минимально ($n_{th} = 1$, $n_{exp} = 0.9$), а для рождения Ω^- -гиперонов – вообще отсутствует ($n_{th} = 5$, $n_{exp} = 5$) [8]. Эти факты являются существенным доводом в пользу фрагментационного механизма образования Λ^0 - и Ω^- -гиперонов в pp -соударениях.

На рис.1 в качестве примера представлена простейшая диаграмма [7], описывающая фрагментацию состояния с валентным составом протона в Λ^0 -гиперон и K^+ -мезон.

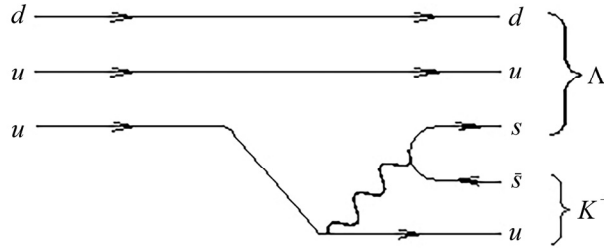


Рис.1. Диаграмма фрагментации состояния с валентным составом протона с образованием Λ^0 -гиперона.

Диаграмма фрагментации состояния с валентным составом нейтрона может быть получена из рис.1 путем замены $u \rightarrow d$, $d \rightarrow u$ и будет описывать образование Λ^0 -гиперона и K^0 -мезона. Согласно модели [7], ей будет соответствовать тот же показатель $n_{th} = 1$ и, соответственно, тот же спектр рождения Λ^0 , что и для фрагментации протона.

Рассмотрим далее в аналогичном подходе [1] процесс образования Λ^0 -гиперонов при соударении двух ядер B и A .

С учетом равенства вкладов от протонов и нейтронов налетающего ядра, как показано в работе [1], инклюзивное сечение рождения Λ^0 должно линейно

зависеть от массового числа B налетающего ядра:

$$d\sigma^{BA \rightarrow \Lambda^0 X}(x)/dx = B \sum_{n=1}^A N_n(A, \sigma_{pN}) d\sigma_{(n)}^{p \rightarrow \Lambda^0}(x)/dx, \quad (6)$$

где σ_{pN} – полное сечение недифракционного pN -взаимодействия; величины $d\sigma_{(n)}^{p \rightarrow \Lambda^0}(x)/dx$ и $N_n(A, \sigma_{pN})$ в общем виде определены в выражениях (2) и (3).

Подчеркнем, что выражения вида (6) могут быть справедливы в модели [1] лишь для спектров конечных частиц в области фрагментации нуклонов налетающего ядра. Линейность спектров по массовому числу B связана с тем, что использованные выше выражения, в их вероятностной трактовке [1,3], учитывают взаимодействия каждого из налетающих нуклонных состояний в среде ядра-мишени A и далее его фрагментацию вне ядра A .

Как было отмечено выше, сечения рождения гиперонов на нуклонах не зависят существенно от $s^{1/2}$ в акте соударения. Отсюда, если последний акт взаимодействия с последующей фрагментацией, $p(H)N \rightarrow \Lambda^0 X$, происходит на нуклоне ядра A , уже испытавшем до этого соударение, сечение этого процесса должно быть таким же, как и на покоящемся нуклоне. В связи с этим, число нуклонов B налетающего ядра, с которым связана вероятность повторных соударений для нуклонов ядра-мишени, в рассматриваемых процессах не имеет тех ограничений ($B \ll A$), какие имеют место для аналогичных процессов с рождением чармония [1]. В принципе, выражения вида (6) для процессов рождения гиперонов должны быть справедливыми и для соударения двух тяжелых ядер.

В проведенных расчетах по процессам $BA \rightarrow \Lambda^0 X$ для параметризации спектров рождения Λ^0 на нуклоне использовалась эмпирическая зависимость, описывающая экспериментальные данные FNAL, с параметрами из работы [6]:

$$\begin{aligned} d\sigma^{pp \rightarrow \Lambda^0 X}(x)/dx d^2 p_{\perp} = \\ = \exp\{c_1 + c_2 x + c_3 x^2 + c_4 x p_{\perp} + c_5 p_{\perp}^2 + c_6 p_{\perp}^4 + c_7 p_{\perp}^5 + c_8 x^4 + c_9 x^5 p_{\perp}\} \\ \times (1-x)^{(c_{10} + c_{11} p_{\perp}^2)} / x \left[\text{мб} / (\text{ГэВ} / \text{с})^2 \right]. \end{aligned} \quad (7)$$

Для сечений $d\sigma^{p(H)N \rightarrow HX}/dx$ использовались те же параметризация и константы, что и в работе [3].

Расчет эффективных нуклонных чисел (3) выполнялся в модели Ферми для одночастичной ядерной плотности [9].

В настоящей работе вычислялись отношения вида

$$R(x) = \frac{1}{BA} \left[\frac{d\sigma^{BA \rightarrow \Lambda^0 X}(x)/dx}{d\sigma^{pN \rightarrow \Lambda^0 X}(x)/dx} \right] \quad (8)$$

для различных ядер-мишеней и при величинах сечений σ_{pN} , соответствующих энергиям FNAL.

Отметим, что ввиду линейной зависимости спектров (6) от массового числа B , отношения $R(x)$ будут одинаковыми для любых налетающих ядер, включая одиночный протон.

На рис.2 представлены расчетные кривые $R(x)$ для процессов $BA \rightarrow \Lambda^0 X$ для ядер-мишеней Al^{27} , Cu^{64} и Pb^{207} .

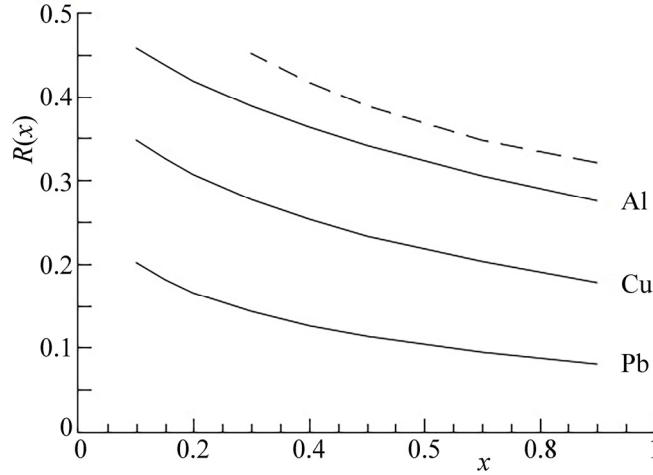


Рис.2. Отношения $R(x)$ для процессов $BA \rightarrow \Lambda^0 X$ для ядер-мишеней Al^{27} , Cu^{64} и Pb^{207} (сплошные кривые). Пунктирная кривая – величины $R(x)$ для процессов $BW \rightarrow J/\psi X$ для ядра W^{184} при $E_p = 200$ ГэВ [1].

С точки зрения модели [3], фрагментационный механизм образования конечных адронов должен доминировать в области фрагментации налетающей частицы, если регистрируемое состояние содержит хотя бы один из валентных кварков начального адрона. Это условие, однако, не является необходимым.

Примером процесса, где указанное условие не выполняется, является процесс образования Ω^- -гиперонов, $pp \rightarrow \Omega^- X$.

Ω^- -состоянию, состоящему из трех s -кварков, согласно модели [7], должен соответствовать в этом процессе спектр рождения вида (5) с показателем $n = 5$, соответствующий механизму фрагментации протонного состояния с испусканием трех глюонов и образованием трех $s\bar{s}$ -пар. (Диаграмма фрагментации нейтронного состояния приводит к аналогичному результату). Как отмечалось выше, именно такое поведение спектров $pp \rightarrow \Omega^- X$ было обнаружено экспериментально [8].

Для сечений процессов $BA \rightarrow \Omega^- X$ в области фрагментации нуклонов ядра B справедливы выражения вида (6) и (8) с заменой индексов $\Lambda^0 \rightarrow \Omega^-$, поскольку условие отсутствия зависимости от $s^{1/2}$ в сечении рождения гиперона остается в силе [6].

При расчете инклюзивных спектров $d\sigma^{BA \rightarrow \Omega^- X}(x)/dx$ была использована экспериментально определенная зависимость $d\sigma^{pp \rightarrow \Omega^- X}/dx \sim (1-x)^5/x$ [8].

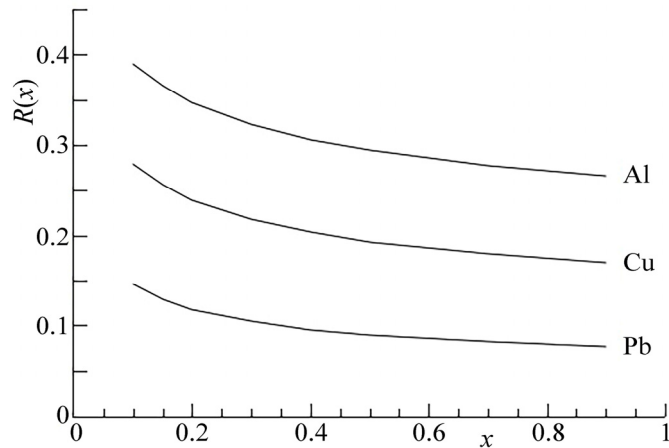


Рис.3. Отношения $R(x)$ для процессов $BA \rightarrow \Omega^- X$ для ядер-мишеней Al^{27} , Cu^{64} и Pb^{207} .

На рис.3 представлены полученные кривые $R(x)$ для процессов $BA \rightarrow \Omega^- X$ для ядер-мишеней Al^{27} , Cu^{64} и Pb^{207} .

Представленные на рис.2,3 значения для отношений $R(x)$ заметно отличаются от аналогичных результатов для процессов рождения чармония [1]. На рис.2 для сравнения приведена кривая из работы [1], описывающая величины $R(x)$ для таких процессов для ядра-мишени W^{184} . Очевидно, такое поведение кривых является следствием существенно разной пространственно-временной картины процессов: локализованного образования $c\bar{c}$ -состояний внутри ядра-мишени A и фрагментацией $H \rightarrow \Lambda^0$ или $H \rightarrow \Omega^-$ за пределами ядра A .

Учитывая хорошее согласие предсказаний модели [3] с большим набором данных по процессам $pA \rightarrow \Lambda^0 X$ [5], сравнение представленных на рис.2 результатов с экспериментальными данными позволило бы судить о справедливости и точности аналогичного подхода [1] в случае ядро-ядерных взаимодействий.

В отношении процессов $pA \rightarrow \Omega^- X$ и $BA \rightarrow \Omega^- X$ необходимо отметить, что обнаружение характерного поведения величин $R(x)$, в соответствии с кривыми рис.3, служило бы прямым указанием на доминирование фрагментационного механизма образования Ω^- -гиперонов в pN -соударениях [7].

Автор признателен Г.Р. Гулкянцу за ценные замечания.

ЛИТЕРАТУРА

1. В.М. Жамкочян. Изв. НАН Армении, Физика, **50**, 151 (2015).
2. В.М. Жамкочян. Ядерная физика, **52**, 1127 (1990); V.M. Zhamkochyan. Z. Phys., **C58**, 435 (1993).
3. В.М. Жамкочян. Ядерная физика, **58**, 1338 (1995).
4. V.M. Zhamkochyan. Z. Phys., **C60**, 557 (1993).
5. P. Skubic, et al. Phys. Rev. D, **18**, 3115 (1978).
6. L.G. Pondrom. Phys. Rep., **122**, 57 (1985).

7. **R. Blankenbecler, et al.** Phys. Rev. D, **12**, 3469 (1975); **I.F. Gunion.** Phys. Lett. B, **88**, 150 (1979).
8. **K.-B. Luk.** FERMILAB-Conf-89/40 (1989).
9. **P.V. Murthy, et al.** Nucl. Phys. B, **92**, 269 (1975).

Λ- ԵՎ Ω-ՀԻՊԵՐՈՆՆԵՐԻ ԾՆՄԱՆ ՄԱՍԻՆ
ՄԻՋՈՒԿ-ՄԻՋՈՒԿԱՅԻՆ ԲԱԽՈՒՄՆԵՐՈՒՄ
Վ.Մ. ԺԱՄԿՈՅԱՆ

Դիտարկված են երկու միջուկների բախումներում Λ^0 - և Ω^- -հիպերոնների ծնման պրոցեսները ընկնող միջուկի նուկլոնների բեկորացման տիրույթում: Հաշվարկված են այդպիսի պրոցեսների ինկլուզիվ սպեկտրները տարբեր թիրախ-միջուկների համար: Ներկայացված արդյունքները կարող են օգտագործվել բեկորացման մեխանիզմների և օգտագործած մոդելային պատկերացումների ճշգրտությունը վերլուծելու համար:

ON THE PRODUCTION OF Λ - AND Ω -HYPERONS IN NUCLEUS-NUCLEUS COLLISIONS

V.M. ZHAMKOCHYAN

Processes of production of Λ - and Ω -hyperons in collisions of two nuclei in the fragmentation region of the incident nucleus nucleons are considered. Calculations on inclusive spectra of such processes for different target nuclei are performed. Presented results may be used for the analysis of fragmentation mechanisms and the accuracy of used model approximations.

УДК 539.17

ИДЕНТИФИКАЦИЯ МНОГОЧАСТИЧНЫХ КОНЕЧНЫХ СОСТОЯНИЙ В ПОЛНОСТЬЮ ЭКСКЛЮЗИВНЫХ РЕАКЦИЯХ НА ОСНОВЕ ТОПОЛОГИИ СОБЫТИЙ И КИНЕМАТИКИ

Е.С. ГАНДИЛЯН

Национальная научная лаборатория им. А.И. Алиханяна, Ереван, Армения

e-mail: gh.yeranuhi@gmail.com

(Поступила в редакцию 5 июня 2015 г.)

Представлена методическая часть анализа когерентного фоторождения протон–антипротонной пары на основе экспериментальных данных, полученных на установке CLAS линейного ускорителя лаборатории им. Джефферсона (США). В эксперименте был использован пучок меченых фотонов с энергией до 5.75 ГэВ, падающий на жидкую дейтериевую мишень длиной 40 см. Описаны методы идентификации многочастичных конечных состояний в полностью эксклюзивных реакциях. Показано, как кинематика когерентного фоторождения γp , $\pi^+ \pi^-$, $k^+ k^-$ пар была использована для идентификации частиц конечных состояний и реакций.

1. Введение

В представленном анализе проведено исследование когерентного фоторождения $p\bar{p}$, $\pi^+ \pi^-$ и $k^+ k^-$ адронных пар на дейтериевой мишени с акцентом на возможное рождение и распад мезонных состояний на $p\bar{p}$ пару. Исследовалась реакция

$$\gamma d \rightarrow h^+ h^- d', \quad (1)$$

где h – рождённый адрон и d' – дейтрон отдачи. Поскольку фоторождение $p\bar{p}$ пар на дейтерии происходит когерентно, то механизм образования строго определён, и в отличие от фоторождения на протоне только одна диаграмма имеет значимый вклад.

Данные для представляемого анализа взяты из эксперимента по фоторождению, который проводился в лаборатории им. Джефферсона. Частицы конечных состояний регистрировались в установке CLAS. При используемой в эксперименте энергии минимальная величина квадрата переданного импульса в интересующих нас реакциях велика, так что дейтроны отдачи имели энергию достаточную, чтобы быть зарегистрированными на установке CLAS.

Целью данного анализа была проверка утверждения о существовании экзотических состояний, распадающихся на $p\bar{p}$ пару. Первые экспериментальные свидетельства о таких состояниях приходятся на начало 60-х годов прошлого

столетия, затем появляются новые данные [1–5]. В разных экспериментах было заявлено о существовании трёх кандидатов на подобные состояния: $p\bar{p}$ резонанс с порогом рождения около 1.93 ГэВ и состояния с $p\bar{p}$ инвариантными массами 2.02 ГэВ и 2.2 ГэВ. Более поздние эксперименты [6] подтвердили существование состояний барионных резонансов с массой 2.02 ГэВ.

2. Эксперимент

В данной работе приведено пошаговое описание механизма идентификации конечных состояний, состоящих из двух положительно и одной отрицательно заряженных частиц, в полностью эксклюзивных реакциях на дейтериевой мишени. В качестве критерия для идентификации реакций $\gamma d \rightarrow dp\bar{p}$, $\gamma d \rightarrow \pi^+\pi^-d$ и $\gamma d \rightarrow K^+K^-d$ используется закон сохранения перпендикулярной и продольной компонент трёхмерного импульса.

Далее из уже отобранных событий выделяются те, у которых имеется один меченый фотон, зарегистрированный в детекторе меченых фотонов в пределах 2 наносекунд от события, зарегистрированного в детекторе CLAS. Используя закон сохранения энергии $\sum \mathbf{P}_Z^i = E_\gamma = \sum E^i - M_d$ и информацию о времени пролёта, полученную на детекторе CLAS, мы отбираем интересующую нас реакцию.

Представленный здесь эксперимент (eg3) проводился в 2004–2005 гг. в лаборатории им. Джефферсона. Во время эксперимента электронный пучок линейного ускорителя CEBAF (Continuous Electron Beam Accelerator Facility) имел энергию 5.7 ГэВ. Меченые фотоны генерировались в экспериментальном зале B [7], в котором находилась установка CLAS (CEBAF Large Acceptance Spectrometer) [8]. Во время эксперимента было зарегистрировано около 4.2 миллиарда событий с объёмом информации исходных данных 32 ТБ.

Жидкая дейтериевая мишень была помещена в цилиндр с диаметром 4 см и длиной 40 см и установлена вдоль оси пучка на расстоянии 50 см от номинального центра детектора CLAS. Направление тороидального магнитного поля было установлено так, чтобы отклонять отрицательные частицы от линии пучка. Это позволило получить больший аксептанс для летящих вперёд отрицательно заряженных частиц.

Триггер срабатывал только тогда, когда в детекторе CLAS регистрировались треки трёх заряженных частиц и по крайней мере один фотон тормозного излучения с энергией больше 4.5 ГэВ регистрировался в годоскопе меченых фотонов. Тем не менее из-за случайных совпадений некоторые события, вызванные фотонами с энергией меньше 4.5 ГэВ, тоже регистрировались.

3. Анализ данных

Для интересующей нас реакции (1), физическими фоновыми реакциями с эксклюзивными конечными состояниями, которые могут дать вклад в статистику за счёт ошибочной идентификации частиц, являются: $\gamma d \rightarrow \pi^+\pi^-d$, $\gamma d \rightarrow K^+K^-d$

и $\gamma d \rightarrow p p \pi^-$. Последняя реакция не обсуждается в данном анализе. Конечные состояния, которые будут проанализированы, это $h^+ h^- d$, где $h = \pi, p, K$.

Процесс отбора конечных состояний включает в себя несколько шагов по идентификации частиц PID (Particle Identification) и кинематический отбор на основе разного рода обрезаний. Ниже детально представлена последовательность шагов, которые были применены для отбора и идентификации эксклюзивных реакций $\gamma d \rightarrow h^+ h^- d'$.

3.1. Отбор на основе топологии событий

Для анализа используется пособытийная запись данных, где под «событием» подразумевается набор соударений (*hit*) в детекторе, соответствующий одному срабатыванию триггера. После первичной обработки записи содержат в себе реконструированные трёхмерные импульсы, параметры вершин, измеренные время и энергию для каждого трека в событии. В качестве первого шага было проведено тестирование событий по всем записанным трекам (включая соударения в калориметре от возможных нейтральных частиц), и для дальнейшего анализа были отобраны события, для которых в детекторе CLAS зарегистрированы только два положительных и один отрицательный трек (критерий «+,+,-»).

3.2. Отбор на основе идентификации частиц (PID)

Начальная идентификация частиц проводилась по величине масс продуктов реакции, измеренных в детекторе CLAS. В том же цикле, в котором проводился анализ топологии события, анализировалась информация о массах треков, вычисленная на основе информации о времени пролета t , определенного в сцинтиляционном счетчике (SC), и измеренного импульса вылетающих частиц p :

$$\beta = \frac{R_{sc}}{t_{sc} - t_{st}} \frac{1}{c}, \quad (2)$$

$$m^2 = p^2 \frac{1 - \beta^2}{\beta^2}. \quad (3)$$

Здесь R_{sc} – расстояние от вершины взаимодействия до сцинтиляционного детектора, определенное по трекингу, t_{st} – стартовое время события, определенное по временной информации от детектора меченых фотонов, с поправками на вершину взаимодействия и на время, определенное по высокочастотной модуляции пучка и c – скорость света.

Так как в одном событии можно зарегистрировать более одного фотона, то на данном этапе стартовое время определялось по фотону, отобранному при первичной обработке данных. И поскольку стартовое время определялось с невысокой точностью (см. обсуждение ниже), то при отборе событий с конечными состояниями $\pi^+ \pi^- d$, $K^+ K^- d$, $p \bar{p} d$ и $p p \pi^-$ были применены не очень строгие ограничения по квадрату масс.

3.3. Сохранение трёхмерного импульса и энергии

Для дальнейшего отбора событий используется кинематика эксклюзивных конечных состояний. Для начала накладываются ограничивающие условия на величины $\sum \mathbf{P}_X^i$ и $\sum \mathbf{P}_Y^i$, здесь $P_{X(Y)}^i$ – $X(Y)$ -компонента трёхмерного импульса i -ой конечной частицы. На рис.1 показана зависимость $\sum \mathbf{P}_X^i$ от $\sum \mathbf{P}_Y^i$ для событий, удовлетворяющих ранее описанным критериям отбора на основе топологии событий и квадрата массы. Яркий выраженный пик в области $\sum P_X^i = 0$ и $\sum P_Y^i = 0$ соответствует полностью эксклюзивным событиям.

Ограничивающие условия, наложенные на величины $\sum \mathbf{P}_X^i (\sum \mathbf{P}_Y^i)$, имели $\sum P_Z^i$ -зависимость (P_Z^i – Z -компонента трёхмерного импульса i -ой конечной частицы). Это было сделано для учета эффектов, связанных с неправильной калибровкой или изменением в разрешении. Для получения таких ограничивающих

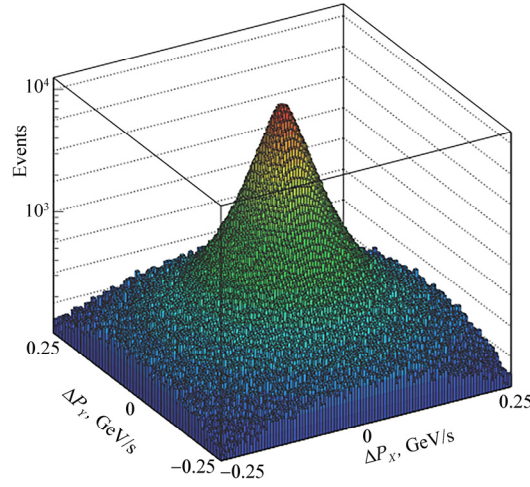


Рис.1. Распределение поперечных компонент импульса для трехчастичных событий.

условий величина $\sum P_Z^i$ была разбита на интервалы, для каждого из которых были построены одномерные распределения величин $\sum P_X^i (\sum P_Y^i)$. Полученные распределения были аппроксимированы функцией, представляющей из себя сумму полиномиального распределения второго порядка и распределения Гаусса. Таким образом, для каждого интервала $\sum P_Z^i$ были получены параметры аппроксимации величин $\sum P_X^i (\sum P_Y^i)$ функцией Гаусса: средние значения (Mean) и стандартные отклонения (σ).

Для описания полученной зависимости средних значений и стандартных отклонений от величины $\sum P_Z^i$ была использована линейная параметризация, параметры которой приведены в табл.1:

$$\begin{aligned} \text{Mean: } \sum P_X^i, \sum P_Y^i \left(\sum P_Z^i \right) &= p_0 + p_1 \times \sum P_Z^i, \\ \sigma: \sum P_X^i, \sum P_Y^i \left(\sum P_Z^i \right) &= p_0 + p_1 \times \sum P_Z^i. \end{aligned} \quad (4)$$

Табл.1. Параметризация медианы и дисперсии функции Гаусса, которыми описаны $\sum \mathbf{P}_X^i$ и $\sum \mathbf{P}_Y^i$.

Параметры функции Гаусса	Компоненты трехмерного импульса	p_0	p_1
Среднее значение	$\sum \mathbf{P}_X^i$	-0.6727×10^{-3}	0.451×10^{-3}
σ	$\sum \mathbf{P}_X^i$	0.4369×10^{-1}	0.4969×10^{-3}
Среднее значение	$\sum \mathbf{P}_Y^i$	-0.1458×10^{-3}	0.5178×10^{-3}
σ	$\sum \mathbf{P}_Y^i$	0.4128×10^{-1}	0.8422×10^{-3}

Для последующего анализа были отобраны события, в которых величины $\sum \mathbf{P}_X^i$ и $\sum \mathbf{P}_Y^i$ лежат в интервале $\pm 3\sigma$ от соответствующего среднего значения.

Итак, мы отобрали события с тремя заряженными частицами, а также использовали поперечные компоненты трёхмерного импульса для выделения полностью эксклюзивного процесса. Для дальнейшего отбора событий была использована Z-компонента трёхмерного импульса частиц в конечном состоянии ($\sum \mathbf{P}_Z^i$). В соответствии с кинематикой полностью эксклюзивной реакции Z-компонента трёхмерного импульса $\sum \mathbf{P}_Z^i$ должна быть равна энергии налетающего фотона E_γ .

На рис.2а показана зависимость разницы продольной составляющей конечного импульса и энергии начального фотона $\sum P_Z^i - E_\gamma$ от энергии фотона E_γ для событий, удовлетворяющих ранее описанным критериям отбора. Здесь, как и в случае распределения по поперечным составляющим импульса, виден явный пик в окрестности нуля, который соответствует полностью эксклюзивным событиям. Как и при анализе поперечных компонент импульса, был использован метод разбиения. Распределение фотонов по энергиям было разбито на малые интервалы ($\Delta E_\gamma = 0.05 \text{ ГэВ}$). Для каждого такого интервала разность Z-компоненты импульса и энергии фотона была аппроксимирована функцией, представляющей из себя сумму функции Гаусса и полинома второй степени. Полученная зависимость среднего значения и стандартного отклонения функции Гаусса от энергии фотона была параметризована линейной функцией. На рис.2б показаны полученные для каждого интервала энергии фотонов параметры функции Гаусса. Здесь также приведены линейные функции, которыми описывается зависимость среднего значения и стандартного отклонения функции Гаусса от энергии фотона. Полученные параметры линейных функций приведены в табл.2. Для отбора

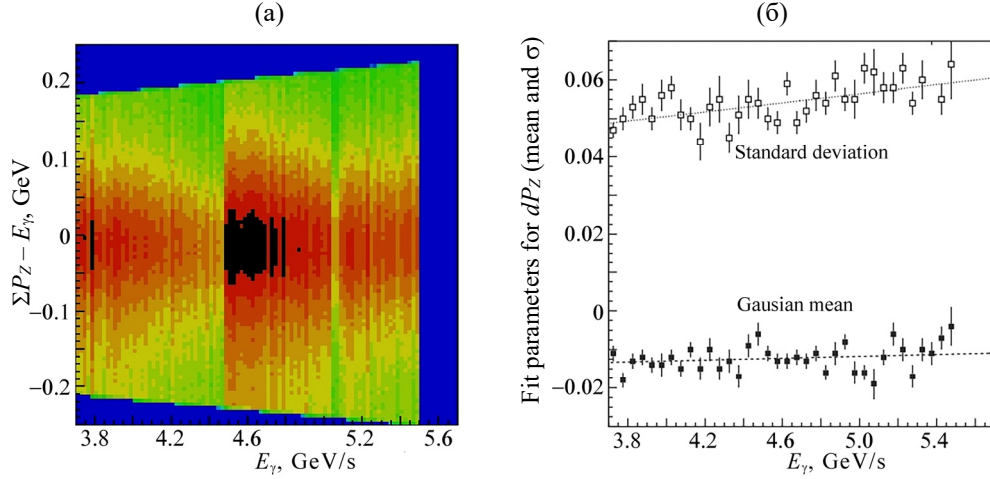


Рис.2. (а) Зависимость величины $\Sigma P_z^i - E_\gamma$ от E_γ для событий, отобранных по поперечным составляющим импульса. (б) Медианы и дисперсии функций Гаусса, которыми была описана величина $\Sigma P_z^i - E_\gamma$ в каждом интервале энергии фотона E_γ . Линиями показаны линейные функции, отобранные для описания зависимости параметров функции Гаусса от энергии фотона.

эксклюзивных событий с трехчастичным конечным состоянием на разницу Z-компоненты импульса и энергию фотона было наложено условие, что эта величина должна лежать в интервале $\pm 3\sigma$ от соответствующего среднего значения.

Табл.2. Параметры линейных функций, полученных для определения зависимости параметров функции Гаусса, описывающей величину $\Sigma P_z^i - E_\gamma$ от энергии фотона.

Параметры функции Гаусса	p_0	p_1
Среднее значение	-0.1783×10^{-3}	0.1214×10^{-3}
σ	0.2713×10^{-3}	0.5859×10^{-3}

3.4. Выбор меченного фотона

На рис.3а показано распределение числа фотонов, совпадающих с событиями в детекторе CLAS, после применения $\pm 3\sigma$ обрезания на разброс трёхмерного импульса. Видно, что события с более, чем двумя совпавшими фотонами составляют менее 0.5% от числа событий с одним и двумя фотонами. Мы ими пренебрегаем. Число событий с двумя фотонами составляет около 10% от числа событий с одним фотоном. Однако при более детальном рассмотрении оказывается, что число полезных событий с двумя совпавшими фотонами также ничтожно. Это показано на рис.3б, где по оси Y отложено число событий, а по оси

X – число совпавших фотонов, отвечающее следующим критериям: один совпавший фотон, и именно его мы выбрали во время обработки данных; один совпавший фотон, но не тот, который мы выбрали во время обработки данных; два совпавших фотона и только один имеет энергию выше 4.5 ГэВ; два совпавших фотона и оба имеют энергию выше 4.5 ГэВ; два совпавших фотона, но оба имеют энергию ниже 4.5 ГэВ. Из рисунка отчётливо видно, что число полезных событий с двумя совпавшими фотонами составляет менее 0.3% от числа однофотонных случаев. В последующем анализе мы игнорируем случаи с двумя совпавшими фотонами и используем только случаи с одним совпавшим фотоном при соответствующих ограничениях на сохранение трёхмерного импульса.

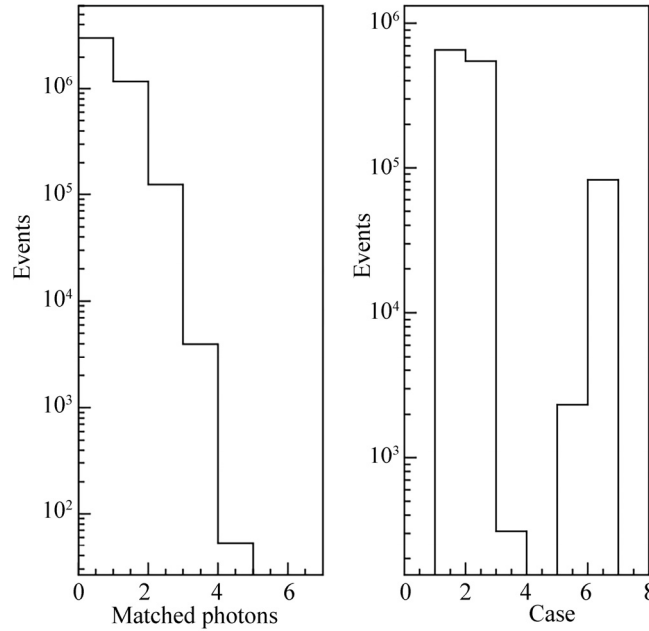


Рис.3. (а) Число меченых фотонов, после применения обрезания $\pm 3\sigma$ на $\sum P_Z^i - E_\gamma$. (б) Случаи с одним или двумя совпавшими мечеными фотонами.

Следующим шагом в отборе событий является временной анализ событий, зарегистрированных в детекторе CLAS. Как было показано выше, имеется два приблизительно равных набора событий с обнаружением одного совпавшего фотона. В первом случае это фотон, отобранный во время обработки данных для вычисления стартового времени реакции, следовательно, временной анализ не требует корректировки. Во втором же случае стартовое время реакции необходимо откорректировать по разнице во времени между пучками новых (t_{tagg}^n) и отобранных во время обработки данных (t_{tagg}^p) фотонов. Стартовое время $t_{\text{st}}^{\text{new}}$ для нового события скорректировано следующим образом:

$$t_{st}^{new} = t_{st}^{old} - t_{tagg}^p + t_{tagg}^n, \quad (5)$$

где t_{st}^{old} – время старта, определённое при обработке данных. После этой коррекции скорость частицы β , определённая по времени пролёта частицы между вершиной реакции и сцинтилляционным счётчиком, была пересчитана и произведена реидентификация с учётом новых ограничений на массу ($m^2 = p^2(1 - \beta^2)/\beta^2$).

3.5. Идентификация частиц конечных состояний

Для окончательной селекции частиц, принадлежащих определённым конечным состояниям, после проверки на сохранение трёхмерного импульса и определения стартового времени события, был применён ряд новых обрезаний по времени и энергетическим потерям. В процессе идентификации частиц первым идентифицировали дейтрон. После отбора (посредством нестрогого обрезания по m^2) кандидатов на дейтроны были рассмотрены три величины.

Первая из них, так называемое, «вершинное время» (*vertex time*), было вычислено по времени пролёта от вершины до сцинтилляционных счётчиков SC. При этом были использованы время старта, определённое с помощью меченого фотона, время пролёта от стартовых счётчиков (ST) до сцинтилляционных счётчиков и энергетические потери в сцинтилляционных счётчиках. Здесь вершинное время вычислялось по формуле

$$dt_v = t_{sc} - t_{st} - \frac{R_{sc}}{c\beta_c}, \quad (6)$$

где t_{sc} и R_{sc} – соответственно время, измеренное посредством сцинтилляционных счётчиков SC, и расстояние от вершины взаимодействия до счётчиков, t_{st} – стартовое время события, определённое с помощью меченного фотона (с поправкой на вершины рождения), c – скорость света и $\beta = p / \sqrt{p^2 + m_d^2}$, где p – импульс и m_d – масса дейтрона.

Вторая величина – скорость частицы β_{st} , рассчитанная на основе информации со стартового ST и сцинтилляционных SC счётчиков.

$$\beta_{st} = \frac{R_{sc} - R_{st}}{t_{sc} - t_{st}}, \quad (7)$$

где t_{st} и R_{st} – соответственно время, измеренное стартовым счётчиком ST, и расстояние от продуктов вершины до ST.

Третья величина – энергия, выделенная в сцинтилляторах (рис.4).

При идентификации частиц в детекторе CLAS используют данные об измеренном импульсе заряженной частицы и её времени пролета от мишени до сцинтилляционного счетчика. Работа ускорителя CEBAF основана на сверхпроводящих ускоряющих резонаторах, действующих с высокостабильной частотой

~ 2 нс. При регистрации дейтронов, пришедших от одного пучкового сгустка, во времяпролётном (TOF – time of flight) счётчике одновременно могут быть зарегистрированы и протоны, имеющие тот же импульс, но пришедшие от пучковых сгустков, отстоящих по времени на 4–6 нс. Чтобы избавиться от подобных ложных треков, мы используем энергетические потери дейтронов в сцинтилляторах.

Используя простое ограничение $\beta_{ST} < p / \sqrt{p^2 + 2.25}$, многие треки, находящиеся вне временной линии, были отброшены. Для очистки кандидатов в дейтроны были учтены энергетические потери треков в сцинтилляторах. На рис.4 показаны энергетические потери кандидатов в дейтрон и функции ограничения. Две линии соответствуют

$$\Delta E_{SC} > 220 \times p - 104 \text{ для } p < 0.65 \text{ ГэВ/с}, \quad (8)$$

$$\Delta E_{SC} > 25/p \text{ для } p \geq 0.65 \text{ ГэВ/с}. \quad (9)$$

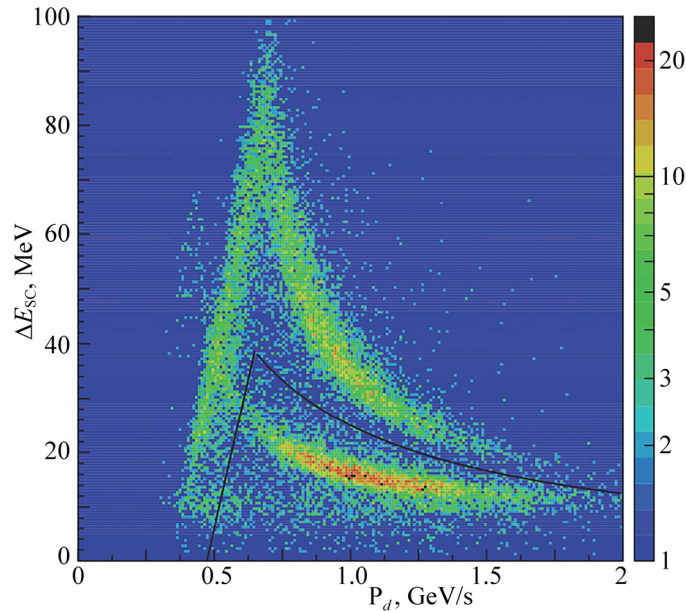


Рис.4. Потерянная в сцинтилляторах энергия кандидатов на дейтрон.

Для окончательного отбора дейтронов зависимость вершинного времени (dt_v) от импульса (рис.5а) была разбита на небольшие интервалы по импульсам, для каждого из которых была проделана процедура фитирования dt_v суммой функции Гаусса и полинома. Затем среднее значение и стандартное отклонение функции Гаусса были параметризованы в зависимости от импульса. Функция параметризации имеет форму

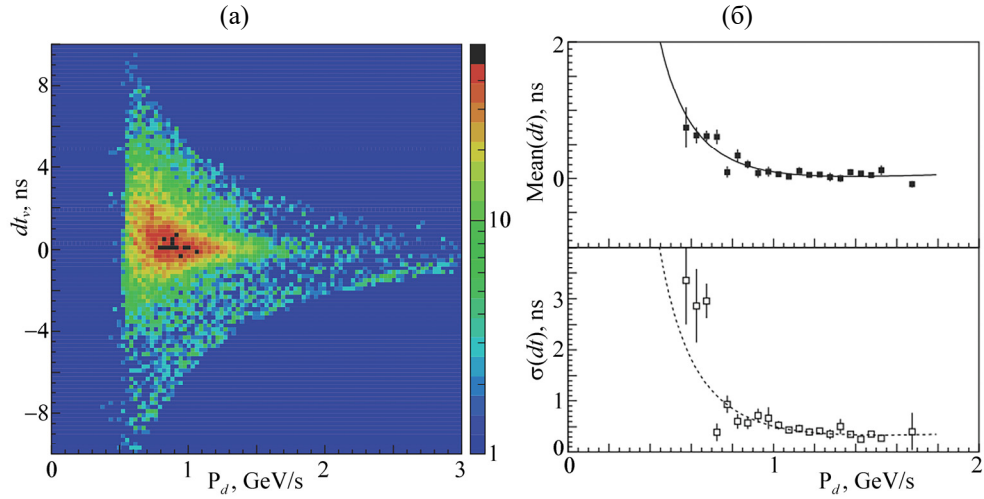


Рис.5. (а) Вершинное время кандидатов в дейтроны как функция от импульса трека. (б) Параметризация среднего значения и стандартного отклонения функции Гаусса, которой были отфитированы распределения вершинного времени в зависимости от импульса.

$$\text{Mean: } \mu / [\sigma] = f_0 + \frac{f_1}{p} + \frac{f_2}{p^2}. \quad (10)$$

Здесь f_i – параметры фита, приведённые в табл.3 и p – импульс дейтрона. На следующем этапе анализа дейтрон был отобран при помощи $\pm 3\sigma$ обрезания на dt_v .

Табл.3. Характеристики параметризации среднего значения и стандартного отклонения функции Гаусса при фитировании распределения dt_v .

Параметры функции Гаусса	f_0	f_1	f_2
Среднее значение	0.4828	-1.2516	0.8669
σ	0.9618	1.901	1.4498

3.6. Ограничения на энергию

Для выбора конечных состояний в качестве последнего кинематического теста проверялось сохранение энергии. Для каждого события с правильно идентифицированными частицами суммарные энергии начального и конечного состояний должны совпадать:

$$E_\gamma + M_d \equiv \sum \sqrt{p_i^2 + M_i^2}. \quad (11)$$

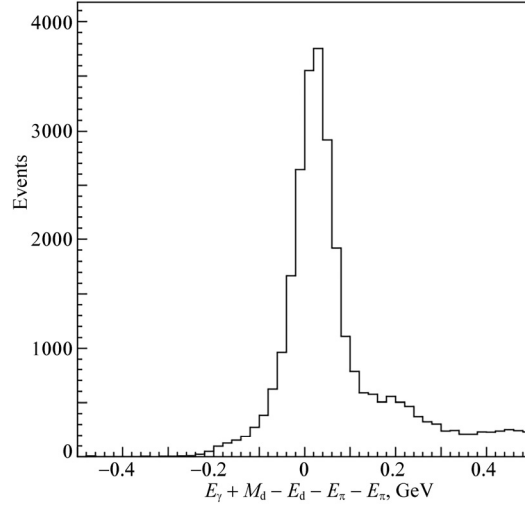


Рис.6. Распределение ΔE для реакции $d\pi^+\pi^-$.

Здесь M_d – масса дейтрона мишени и M_i^2 – масса i -ой частицы конечного состояния. Разница $\Delta E = E_\gamma + M_d - \sum \sqrt{p_i^2 + M_i^2}$ была рассчитана для конечных состояний $d\pi^+\pi^-$, dK^+K^- и dpp^- , и для каждого события разница ΔE была изучена в сочетании с ограничениями на PID. На рис.6 показана разница $\Delta E_{\pi^+\pi^-}$ для реакции $\gamma d \rightarrow \pi^+\pi^-d$. Пик в окрестности $\Delta E \approx 0$ соответствует реальным $d\pi^+\pi^-$ конечным состояниям. Эту реакцию легко обнаружить, поскольку сечение – максимальное, и идентификация пионов происходит проще всего. В результате имеем ярко выраженный пик в нуле с уширениями по обе стороны, обусловленными разрешением и неверно идентифицированными частицами, в основном, за счёт реакции $\gamma d \rightarrow pp\pi^-$. Для отбора событий, соответствующих реакции $\gamma d \rightarrow \pi^+\pi^-d'$, было применено обрезание по энергии: $|dE| < \pm 0.1$ ГэВ.

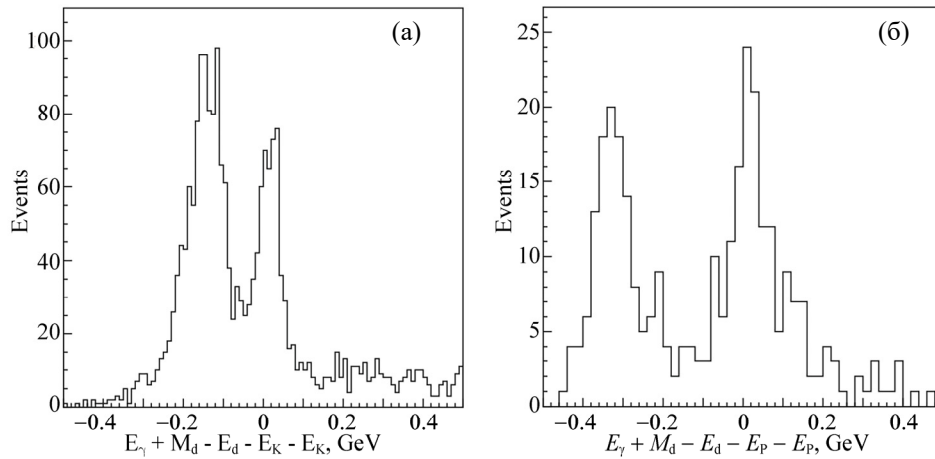


Рис.7. Распределение ΔE для реакции (а) dK^+K^- и (б) dpp^- , соответственно.

Распределения ΔE для двух других конечных состояний показаны на рис. 7а,б. Оба распределения имеют один пик при $dE \approx 0$ и второй пик в области отрицательных значений ΔE . Этот второй пик соответствует событиям реакции $\gamma d \rightarrow \pi^+ \pi^- d'$, «утечка» которых в конечные состояния $dK^+ K^-$ и $dp\bar{p}$ произошла на уровне идентификации частиц. Для отбора событий реакций $\gamma d \rightarrow K^+ K^- d'$ и $\gamma d \rightarrow p\bar{p}d'$ соответственно были применены обрезания $|dE| < 0.06$ ГэВ и $|dE| < 0.15$ ГэВ.

4. Заключение

В работе представлен анализ данных по фоторождению на жидкой дейтериевой мишени установки CLAS лаборатории им. Джефферсона (США). Изучены три эксклюзивные реакции: $\gamma d \rightarrow \pi^+ \pi^- d'$, $\gamma d \rightarrow K^+ K^- d'$ и $\gamma d \rightarrow p\bar{p}d'$. Показано, что в этих реакциях кинематические подборки могут играть важную роль для идентификации конечных состояний с малым выходом. Реакции с малыми выходами могут пострадать от притока событий с большими сечениями из-за разрешения детектора и случайных совпадений. Сочетание ограничений на PID, таких как измерение времени пролёта и энергетических потерь в детекторах, и чётко определённых кинематических ограничений может эффективно очистить реакции с очень малыми выходами.

Автор выражает благодарность С. Степаняну (JLAB) за постановку задачи, помощь при проведении расчётов и ценные замечания.

ЛИТЕРАТУРА

1. A.S. Carroll, et al.. Phys. Rev. Lett, **32**, 247 (1974).
2. P. Benkheiri, et al.. Phys. Lett. B, **68**, 484 (1977).
3. B.G. Gibbard, et al.. Phys. Rev. Lett., **42**, 1593 (1979).
4. D. Aston, et al.. Phys. Lett. B, **93**, 517 (1980).
5. J. Bodenkamp, et al.. Phys. Lett. B, **133**, 275 (1983).
6. A. Ferrer, A.A. Grigoryan, V.F. Perepelitsa, P. Sonderegger. Eur. Phys. J. C, **10** 249(1999).
7. D.I. Sober, et al.. NIM A, **440**, 263 (2000).
8. B.A. Mecking, et al.. NIM A, **503** 513 (2003).

IDENTIFICATION OF MULTIPARTICLE FINAL STATES IN FULLY EXCLUSIVE REACTIONS BASED ON EVENTS TOPOLOGY AND KINEMATICS

E.S. GHANDILYAN

Methodological part of analysis of coherent proton–antiproton photoproduction reaction using experimental data from the CLAS detector at the Jefferson National Accelerator Facility (USA) is presented. The experiment was performed using a tagged bremsstrahlung photon beam of up to 5.75 GeV incident on a 40 cm long liquid deuterium target. Methods of identification of multiparticle final states in fully exclusive reactions are described. It is shown how the kinematics of coherent photoproduction of $p\bar{p}$, as well as $\pi^+ \pi^-$ and $k^+ k^-$ pairs was used for identification of particle final states and reactions.

УДК 533.9

КАНАЛИРОВАННЫЕ ПОЗИТРОНЫ КАК ИСТОЧНИК ГАММА ИЗЛУЧЕНИЯ

К.Б. ОГАНЕСЯН

Национальная научная лаборатория им. А.И. Алиханяна, Армения

e-mail: bsk@yerphi.am

(Поступила в редакцию 28 ноября 2014 г.)

Показана возможность каналирования низкоэнергетических (5–20 МэВ) релятивистских позитронов вокруг отдельных кристаллографических осей с коаксиальной симметрией отрицательных ионов в некоторых типах кристаллов. Детально изучен процесс аннигиляции позитронов с электронами среды. Найдено время жизни позитрона в режиме каналирования (10^{-6} сек), которое в 10^9 – 10^8 раз больше, чем в обычных случаях.

1. Введение

Изучение способов генерации коротковолнового когерентного излучения всегда было существенной проблемой науки, стимулируемой его широким прикладным значением. В работе [1] впервые был предложен механизм излучения релятивистских электронов при их движении в периодических структурах (см. также [2]), позже такие типы структур были названы ондуляторами. Эта работа [1] существенно ускорила процесс создания современных устройств – лазеров на свободных электронах (ЛСЭ) [3,4]. Несмотря на то, что технология генерации ондуляторного излучения (ОИ) стабильно развивается и успехи её очевидны [5–7], однако проблемы также существуют и остаются нерешенными до наших дней. Частота ОИ определяется длиной периодического элемента (в ЛСЭ с ондулятором она макроскопическая – от нескольких миллиметров до нескольких сантиметров), энергией электронов и магнитным полем. Дефектами ондуляторов являются их большие размеры (несколько десятков метров) и использование электронов с большими энергиями (порядка ГэВ и больше).

После открытия каналирования электронов (позитронов) в кристаллах [8–10] и сопровождающим его коротковолновым излучением появилась надежда решить вышеуказанные проблемы хотя бы частично. В частности, были решены проблемы генерации коротковолнового рентгеновского излучения с менее энергетичными электронами (порядка нескольких МэВ) на очень малых расстояниях (порядка нескольких мкм). Однако возникает новая проблема, связанная с тем,

что в режиме каналирования частицы (электроны и позитроны), как правило, живут $10^{-14} - 10^{-15}$ сек, и это время мало для превращения значительной части энергии частиц в энергию излучения.

Квантовая теория каналирования электронов и позитронов разрабатывалась многими авторами [11–13]. Следует отметить, что электрон в кристалле может совершать как плоское, так и осевое каналирование, в то время как для позитронов только один тип реального каналирования известен – режим, где частица локализована между двумя смежными плоскостями. Возможность осевого каналирования положительных частиц не исследована серьезно до сих пор, потому что кристаллографические оси независимо от типа кристаллов заряжены положительно.

Исследование возможностей осевого каналирования позитронов и, следовательно, образование метастабильных релятивистских позитронных систем (ПС) – проблема, имеющая крайне важное значение для физики излучения. Изучению каналирования позитронов посвящена работа [14], где впервые сообщается о наблюдении аннигиляционного излучения позитронов с энергией 3 МэВ при прохождении кристалла золота. Эксперименты были выполнены на ускорителе Пеллетрон в Ливерморской национальной лаборатории с энергией позитронов 3 МэВ и выходом позитронов 10^5 позитрон/сек.

Макроскопическое каналирование в магнитных системах и в интенсивной электромагнитной волне изучалось в работах [15–24]. В более ранних работах [25] авторы исследовали возможности ионных кристаллов типа CsCl и показали, что главный фактор деканалирования – рассеяние частиц на фононах подсистемы, отсутствует при каналировании позитронов вокруг осей отрицательно заряженных ионов Cl^- .

В этой статье анализируется процесс аннигиляции релятивистских ПС или позитрон атома (ПА), который образуется позитроном и электроном среды, и найдены времена жизни позитрона в режиме каналирования.

2. Образование релятивистских позитронных систем

В предыдущей работе [26] мы показали, что если релятивистские позитроны с низкой энергией 5–20 МэВ рассеиваются под малыми углами $\theta < \theta_L$ (где θ_L – угол Линдхарда) к оси $\langle 100 \rangle$ ионов хлора Cl^- в кристаллах CsCl, то они попадают в режим осевого каналирования. Кроме того, движения позитронов сконцентрированы между двумя цилиндрами, что очень важно с точки зрения устойчивости движения. Показано, что эффективный 2D потенциал каналирования не зависит от температуры среды в широком диапазоне температур и имеет глубину ~ 10 эВ, которая достаточна для формирования нескольких квантовых состояний поперечного движения.

Эффективный потенциал такого типа может быть и в других кристаллах.

Например, таким является эффективный потенциал осей отрицательно заряженных ионов O_2 в кристалле SiO_2 , часто используемого в экспериментах. Другими словами, релятивистские позитроны в описанном режиме каналирования не взаимодействуют с фононами подсистемы. Это означает, что основной фактор деканалирования частиц в рассматриваемом случае отсутствует.

Учитывая симметрию эффективного потенциала вокруг оси отрицательных ионов для позитронов, можно написать следующую аналитическую формулу для эффективного потенциала:

$$U(\rho) = U_0(e^{-2\alpha\bar{\rho}} - 2e^{-\alpha\bar{\rho}}), \quad \bar{\rho} = (\rho - \rho_0)/\rho_0, \quad \rho = \sqrt{x^2 + y^2}, \quad (1)$$

где U_0 – глубина ямы, α – определяет ширину потенциала, ρ_0 – равновесное расстояние (рис.1). Для обычных кристаллов эти параметры находятся в интервалах $U_0 = 5-10$ эВ, $\alpha = 0.5-0.8$ и $\rho_0 \sim 0.5d$, где d – постоянная решетки.

Полная волновая функция позитрона в потенциале (1) и собственные значения локализованных состояний найдены и представлены в работе [26].

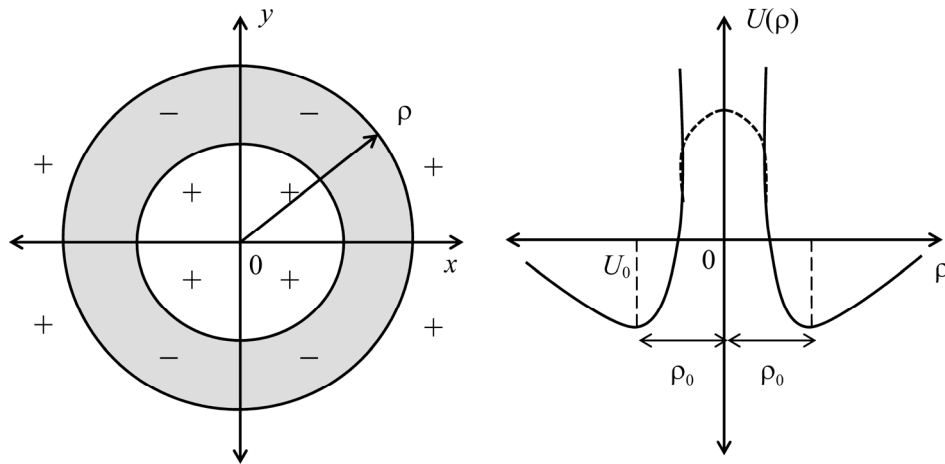


Рис.1. (а) Эффективный потенциал осевого каналирования для позитронов вокруг оси отрицательно заряженных ионов. (б) Профиль вдоль радиуса ρ , который в области локализации позитронов хорошо описывается потенциалом Морзе.

3. Процессы, приводящие к распаду ПС

После исключения основных факторов деканалирования по-прежнему остаются два разных процесса, которые приводят к распаду ПС: 1) аннигиляция позитрона с электроном среды на один γ -фотон; 2) аннигиляция позитрона с электроном среды на два γ -фотона. Нашей основной задачей является исследование времени жизни ПС.

3.1. Аннигиляция позитрона с электроном среды на один γ -фотон

Очевидно, что ПС может быть представлена в виде системы с общим нулевым спином (как парапозитроний), потому что скелет отрицательно заряженных ионных осей не обладает спином и, соответственно, спин-спиновое взаимодействие между ними и позитроном отсутствует, т.е. взаимодействие между позитроном и осью только электромагнитное. Другим различием между позитронием и ПС является возможность распада последнего на один γ -фотон. В этом случае выполняются законы сохранения энергии и импульса из-за наличия среды. Этот процесс определяется матричным элементом первого порядка [27]

$$Q = \langle f | S^{(1)} | i \rangle = \frac{2\pi i e}{\sqrt{2\omega}} \int \Psi^*(\mathbf{r}) \mathbf{e} e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \psi(\mathbf{r}) d^3r \delta(\varepsilon_p + \varepsilon_e - \omega), \quad (2)$$

где e – заряд электрона, Ψ и ε_p – волновая функция и полная энергия позитрона, ψ и ε_e – волновая функция и энергия электрона среды, $\mathbf{q}$ – импульс γ -фотона, ω – его частота и $\mathbf{e}$ – единичный вектор поляризации фотона.

Для эффективного дифференциального сечения аннигиляции можно написать следующее выражение:

$$d\sigma = \frac{e^2}{2(2\pi)^2 \omega} \sum_{v_e, v_p} |Q|^2 \delta(\varepsilon_p + \varepsilon_e - \omega) \omega^2 d\omega_\gamma, \quad (3)$$

где $d\omega_\gamma = \sin\theta d\theta d\phi$ – элемент телесного угла, внутри которого находится импульс фотона, v_e и v_p – индексы суммирования спинов электронов и позитронов в начальном состоянии.

Используя процедуру, описанную в работе [26], для Q получаем

$$Q = \frac{2(2\pi)^{5/2}}{\mu d} \delta(p_z - q_z) \hat{\psi}(0) p_z^{1/2} \int_0^\infty \Theta_0(p'_\perp) p'^{3/2}_\perp dp'_\perp, \quad (4)$$

где $\hat{\psi}(0)$ – Фурье-образ волновой функции электрона и функция $\Theta_0(p_\perp)$ определена в работе [26]. Используя выражение (4) и стандартное соотношение между амплитудой и вероятностью [27] однофотонного перехода распада ПС, мы можем оценить вероятность как

$$P_\gamma \sim 10^6 \text{ сек}^{-1}. \quad (5)$$

Для нахождения (5) мы использовали параметры кристалла CsCl с постоянной решетки $d = 0.411 \text{ нм}$.

3.2. Аннигиляция позитрона с электроном среды на два γ -фотона

Как уже отмечалось, ПА похож на позитроний, поэтому процессы распада должны быть похожи. Это означает, что вероятность аннигиляции ПА похожа на вероятность аннигиляции позитрония, и мы можем связать распад ПА с вероятностью уничтожения свободной пары позитрона и электрона. Очевидно, что процесс аннигиляции в рассматриваемом случае не зависит от ориентации спинов

электрона и позитрона.

Анализ Фурье-образа волновой функции ПА $\Theta_0(p_\perp)$ в основном состоянии показывает, что амплитуды вероятности найти позитрон и электрон с импульсами $p_\perp$ и $p_\perp$ являются существенными для моментов $p_\perp \sim 1/\rho_0$. Принимая это во внимание, сечение процесса для низкоэнергетических позитронов (а именно такими являются энергии локализации позитронов) может быть представлено формулой [27]

$$\sigma = \pi r_0^2 / v_\perp, \quad (6)$$

где r_0 – классический радиус электрона, $v_\perp = p_\perp / \mu$ – скорость позитрона в плоскости (x, y) , где движение позитрона локализовано между двумя кругами (рис.1).

Наконец, используя волновую функцию из работы [26] и выражение (6), мы можем написать для вероятности распада ПА на два γ -фотона

$$P_{2\gamma} = \frac{1}{(2\pi)^2 \rho_0 d} |\Phi_{0,0}(\rho_0)|^2 (v_\perp \sigma)_{v_\perp \rightarrow 0} = \frac{r_0^2}{4\pi \rho_0 d} |\Phi_{0,0}(\rho_0)|^2 \sim 10^6 \text{ сек}^{-1}, \quad (7)$$

где $\Phi_{n,m}(\rho)$ описывает радиальную часть волновой функции ПА, которая в основном состоянии обозначена как $\Phi_{0,0}(\rho)$ и определена в работе [26].

4. Заключение

Наши исследования показали, что проблема, связанная с короткой длиной деканализирования, решается, если рассматривать каналирование позитронов с энергией 5–20 МэВ, в частности, в ионных кристаллах типа CsCl вдоль ионов хлора (ось $\langle 100 \rangle$). В этом случае в кристалле образуется двумерная релятивистская ПС, которая с фононами подсистемы решетки практически не взаимодействует. Все другие типы воздействия на ПС, а именно: столкновения с электронами среды, рассеяние на дискретностях решетки и т.д., являются возмущениями. Другими словами, вышеупомянутым способом с высокой долей вероятности можно создать 2D релятивистскую ПС в среде со временем жизни больше, чем 10^{-6} – 10^{-7} сек. Это означает, что решена основная проблема создания наноондуляторов, имеющих большие времена жизни.

ЛИТЕРАТУРА

1. **В.Л. Гинзбург.** Изв. АН СССР, Сер. Физ., **11**, 165 (1947).
2. **G.A. Schott.** Electromagnetic Radiation and the Mechanical Reactions Arising from It. Cambridge Univ. Press, 1912.
3. **C.A. Brau.** Free-Electron Lasers. Boston, Academic, 1990.
4. **M.V. Fedorov.** Atomic and Free Electrons in a Strong Light Field. Singapore, World Scientific, 1997.
5. **C. Scholl, V. Schaa** (eds). Proc. FEL'13, New York, 2013.
6. **T. Satogata, C. Petit-Jean-Genaz, V. Schaa** (eds). Proc. NA PAC'13, Synchrotron Radiation and Light Sources, Pasadena, LA, USA, 2013.

7. **H.H. Braun.** Proc. IPAC 2012, FRAP01, New Orleans, USA, 2012, p. 4180.
8. **J.A. Davies, J. Friesen, J.D. McIntyre.** Can. J. Chem., **38** 1526 (1960).
9. **M.T. Robinson, O.S. Oen.** Appl. Phys. Lett., **2**, 30 (1963).
10. **J. Lindhard.** Mat.- Fys. Medd., Kog. Dan. Vid. Selsk. **14**, 34 (1965).
11. **M.A. Kumakhov.** Phys. Lett. A, **57**, 17 (1976).
12. **V.V. Beloshitsky, F.F. Komarov.** Phys. Rep., **93**, 117 (1982).
13. **В.А. Базылев, Н.К. Жеваго.** УФН, **25**, 565 (1982).
14. **A.W. Hunt, D.B. Cassidy, F.A. Selim, R. Haakenaasen, T.E. Cowan, R.H. Howell, K.G. Lynn, J.A. Golevchenko.** NIM in Physics Research, **B 164-165**, 44 (2000).
15. **K.B. Oganessian, M.L. Petrosyan.** YERPHI-475(18), 81, Yerevan, (1981).
16. **M.V. Fedorov, K.B. Oganessian.** IEEE J. Quant. Electr., **QE-21**, 1059 (1985).
17. **Д.Ф. Зарецкий, Э.А. Нерсесов, К.Б. Оганесян, М.В. Федоров.** Квантовая электроника, **13**, 685, (1986).
18. **Э.А. Нерсесов, К.Б. Оганесян, М.В. Федоров.** ЖТФ, **56**, 2402 (1986).
19. **К.Б. Оганесян, М.В. Федоров.** ЖТФ, **57**, 2105 (1987).
20. **M.L. Petrosyan, L.A. Gabrielyan, Yu.R. Nazaryan, G.Kh. Tovmasyan, K.B. Oganessian.** Laser Physics, **17**, 1077 (2007).
21. **M.V. Fedorov, K.B. Oganessian, A.M. Prokhorov.** Appl. Phys. Lett., **53**, 353 (1988).
22. **К.Б. Оганесян, А.М. Прохоров, М.В. Федоров.** ЖЭТФ, **94**, 80 (1988).
23. **Е.М. Sarkisyan, K.G. Petrosyan, K.B. Oganessian, V.A. Saakyan, N.Sh. Izmailyan, C.K. Hu.** Laser Physics, **18**, 621 (2008).
24. **М.Л. Петросян, Л.А. Габриелян, Ю.Р. Назарян, Г.Х. Товмасын, К.Б. Оганесян.** Изв. НАН Армении, Физика, **42**, 57 (2007).
25. **А.С. Геворкян.** ЖТФ, **34**, 285 (1989).
26. **A.I. Artemiev, M.V. Fedorov, A.S. Gevorgyan, N.Sh. Izmailyan, R.V. Karapetyan, K.B. Oganessian, A.A. Akopyan, Yu.V. Rostovtsev, M.O. Scully, G. Kurizki.** J. Mod. Optics, **56**, 2148 (2009).
27. **А.И. Ахиезер, В.Б. Берестецкий.** Квантовая электродинамика. Москва, Наука, 1969.

ԿԱՆԱԼԱՅՎԱԾ ՊՈԶԻՏՐՈՆՆԵՐԸ ՈՐՊԵՍ ԳԱՄՄԱ ՃԱՌԱԳԱՅԹՄԱՆ ԱՂԲՅՈՒՐ
Կ.Բ. ՆՈՎԶԱՆՆԻՍՅԱՆ

Ցույց է տրված ցածր էներգիաներով (5–20 MeV) ռելյատիվիստական պոզիտրոնների կանալացման հնարավորությունը համակենտրոն սիմետրիայով որոշ խոնային բյուրեղներում: Մանրամասն ուսումնասիրված է պոզիտրոնների աննիհիլյացիայի պրոցեսը միջավայրի էլեկտրոնների հետ: Գնահատված է պոզիտրոնի կյանքի տևողությունը կանալացման ռեժիմում (10^{-6} վ), որը 10^9 – 10^8 անգամ մեծ է սովորական դեպքերից:

CHANNELED POSITRONS AS A SOURCE OF GAMMA RADIATION

K.B. OGANESYAN

A possibility of channeling of low-energy (5–20 MeV) relativistic positrons around separate crystal axes with coaxial symmetry of negative ions in some types of crystals is shown. The annihilation processes of positrons with electrons of medium are investigated in details. The lifetime of a positron in the regime of channeling (10^{-6} sec), that is 10^9 – 10^8 times higher than in usual cases, is found.

УДК 535.343

АТОМНЫЕ ПЕРЕХОДЫ D₂ ЛИНИИ ЦЕЗИЯ В СИЛЬНЫХ ПОПЕРЕЧНЫХ МАГНИТНЫХ ПОЛЯХ

А.Д. САРГСЯН^{1*}, Г.Т. АХУМЯН¹, А.О. АМИРЯН^{1,2},
К. ЛЕРУА², А.С. САРКИСЯН¹, Д.Г. САРКИСЯН¹

¹Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

²Институт Карно Бургундии, Университет Бургундии, Дижон, Франция

*e-mail: sarmeno@mail.ru

(Поступила в редакцию 16 апреля 2015 г.)

Впервые исследованы атомные переходы цезия в сильных поперечных магнитных полях вплоть до 7 кГс с высоким спектральным разрешением. Использован $\lambda/2$ -метод на основе наноячейки с толщиной L в полдлины волны ($L = \lambda/2 = 426$ нм) резонансного с D₂ линией лазерного излучения, который позволяет проследить поведение каждого отдельного атомного перехода. В спектре поглощения при линейно-поляризованном (π) возбуждении и магнитных полях $B > 5$ кГс остаются всего 16 атомных переходов (при меньших полях имеются 56 переходов), которые имеют почти одинаковые амплитуды. Наблюдается хорошее согласие эксперимента с теорией.

1. Введение

Исследования поведения атомных уровней и переходов во внешних электрических и магнитных полях проводятся достаточно давно, поскольку позволяют лучше понять структуру атомов [1–4]. В последние годы активно изучается поведение атомных переходов (оптический диапазон) щелочных металлов во внешних сильных магнитных полях вплоть до наблюдения режима Пашена–Бака на сверхтонкой (ПБС) структуре [5–8]. Это стало возможным с появлением доступных сильных постоянных магнитов, узкополосных диодных лазеров и новых методик, обеспечивающих субдоплеровское спектральное разрешение [9,10]. Последнее требуется для идентификации отдельных переходов, поскольку спектры поглощения содержат большое число близкорасположенных компонент и необходимо их спектральное разрешение [8–11]. Например, в работе [12] при использовании заполненной Cs ячейки с толщиной в полдлины волны резонансного с D₂ линией лазерного излучения ($\lambda/2$ -метод) показано, что во внешнем магнитном поле происходит гигантское возрастание вероятностей атомных переходов D₂ линии $6S_{1/2} (F_g = 3) \rightarrow 6P_{3/2} (F_e = 5)$, которые запрещены при нулевом магнитном поле. Применяя $\lambda/2$ -метод, в работе [7] продемонстрировано, что в спектре поглощения паров Cs при круговой поляризации (σ^+ или σ^-) лазерного излучения и

при магнитной индукции $B > 5 \text{ кГс}$ регистрируются 16 атомных переходов, содержащихся в двух отдельных группах по 8 атомных переходов.

Помимо научного интереса, такие исследования имеют и практические применения, такие как: 1) формирование частотного репера на сильно смещенных частотах (до $\pm 20 \text{ ГГц}$) относительно исходных атомных уровней Cs и Rb при нулевом магнитном поле, а также привязка частоты лазера (стабилизация) к таким, сильно смещенным атомным уровням [11]; 2) разработка магнитометра для картографирования сильно неоднородных магнитных полей с субмикронным пространственным разрешением [10]; 3) создание оптического изолятора, работающего на эффекте Фарадея в сильных магнитных полях [13].

2. Конфигурация атомных переходов

В настоящей работе приведены экспериментальные результаты по изучению поведения атомных переходов Cs (D_2 линии) в сильных поперечных магнит-

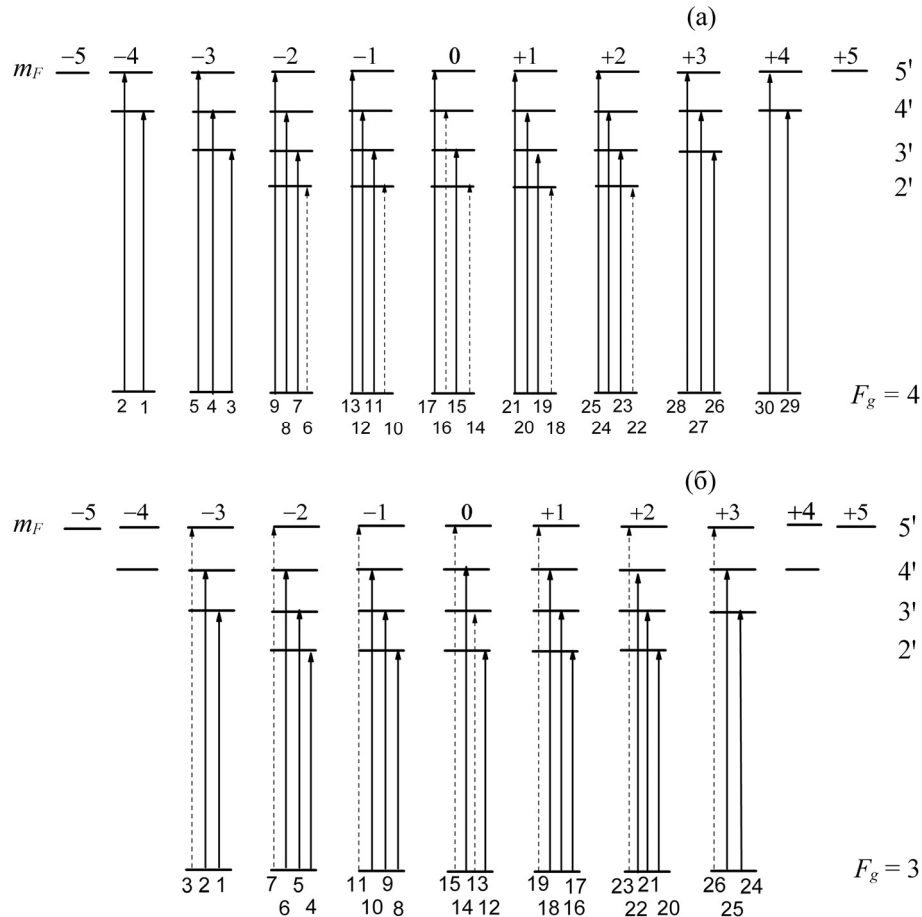


Рис.1. (а) Диаграмма для переходов $4 \rightarrow 3', 4', 5'$ и (б) диаграмма для переходов $3 \rightarrow 2', 3', 4'$.

ных полях в случае π -поляризованного возбуждающего излучения с использованием обеспечивающего высокое спектральное разрешение $\lambda/2$ -метода. Для определения величин магнитных полей, которые могут считаться сильными или слабыми, вводится характерная величина магнитного поля $B_0 = A_{\text{hfs}}/\mu_B$, где A_{hfs} – коэффициент связи сверхтонкой структуры для уровня $6S_{1/2}$ и μ_B – магнетон Бора [14]. Величина B_0 составляет ~ 1.7 кГс. Известно, что в слабых магнитных полях, когда $B \ll B_0$, расщепление атомных уровней описывается полным моментом атома $\mathbf{F} = \mathbf{J} + \mathbf{I}$ и его проекцией m_F , где $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ – полный угловой момента электрона, а $\mathbf{I}$ – магнитный момент ядра (для цезия $I = 7/2$).

Полное число атомных переходов в случае π -поляризованного излучения с учетом правил отбора для переходов между нижними F_g и верхними F_e уровнями ($F_e - F_g = \Delta F = 0, \pm 1$, $\Delta m_F = 0$) показано на диаграмме, приведенной на рис. 1. Для удобства диаграммы для переходов $4 \rightarrow 3', 4', 5'$ (рис. 1а) и переходов $3 \rightarrow 2', 3', 4'$ (рис. 1б) приведены отдельно. Штрихами отмечены верхние уровни. Здесь также добавлены атомные переходы, которые запрещены при нулевом магнитном поле и для которых $\Delta F = \pm 2$. В сильных магнитных полях происходит возрастание вероятности этих переходов: пять переходов $4 \rightarrow 2'$ на рис. 1а под номерами 6, 10, 14, 18 и 22 и семь переходов $3 \rightarrow 5'$ на рис. 1б под номерами 3, 7, 11, 15, 19, 23 и 26, отмеченные пунктирными линиями.

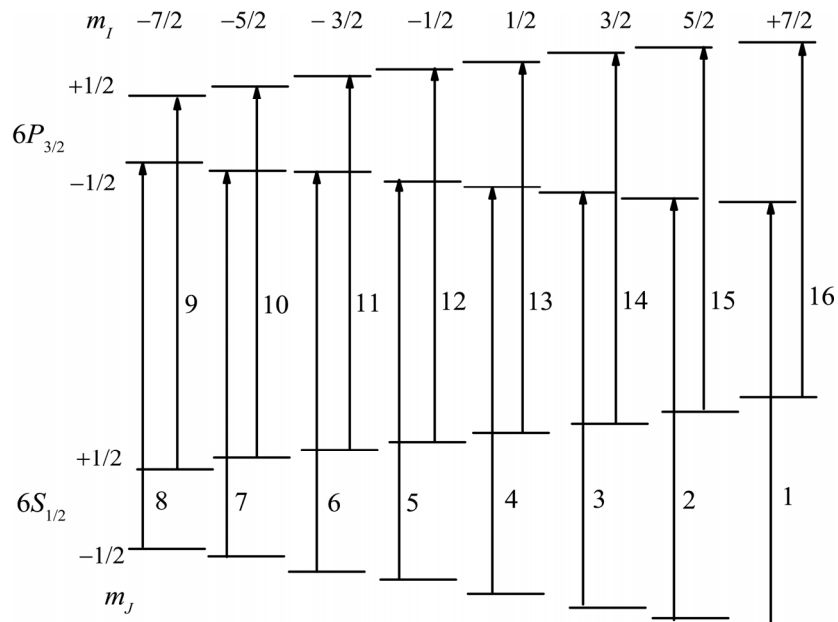


Рис.2. Диаграмма атомных переходов для D_2 линии атомов Cs в случае, когда реализуется режим ПБС. Правила отбора для атомных переходов между нижними и верхними уровнями для π -поляризованного возбуждения следующие: $\Delta m_J = 0$ и $\Delta m_I = 0$, поэтому в спектре остаются 16 переходов, отмеченные цифрами 1–16.

Во внешнем магнитном поле в спектре поглощения также могут регистрироваться переходы $F_g, m_F = 0 \rightarrow F_e, m_F = 0$. В случае, когда $\Delta F = 0$, один такой переход 4, $m_F = 0 \rightarrow 4'$, $m_F = 0$ показан на рис.1а под номером 16 и один такой переход 3, $m_F = 0 \rightarrow 3'$, $m_F = 0$ показан на рис.1б под номером 13. Эти переходы запрещены при $B = 0$, поэтому они отмечены пунктирными линиями. Полное число атомных переходов составляет 56, из которых 26 переходов с нижнего уровня $F_g = 3$ и 30 переходов с нижнего уровня $F_g = 4$. В сильных магнитных полях (режим ПБС), когда $B \gg B_0$, начинает происходить разрыв связи между **J** и **I**, и расщепление атомных уровней описывается проекциями m_J и m_I . Диаграмма переходов в случае π -поляризованного излучения для D₂ линии атомов Cs (с учетом новых правил отбора для для m_J и m_I) приведена на рис.2. В режиме ПБС происходит существенное уменьшение числа атомных переходов: из 56 атомных переходов, показанных на рис.1, в сильных магнитных полях остаются 16 переходов. Такое существенное уменьшение числа атомных переходов характерно для режима ПБС в щелочных металлах [15,16].

Другие проявления режима ПБС следующие: а) внутри каждой группы вероятности переходов (или интенсивности линий в спектрах поглощения)

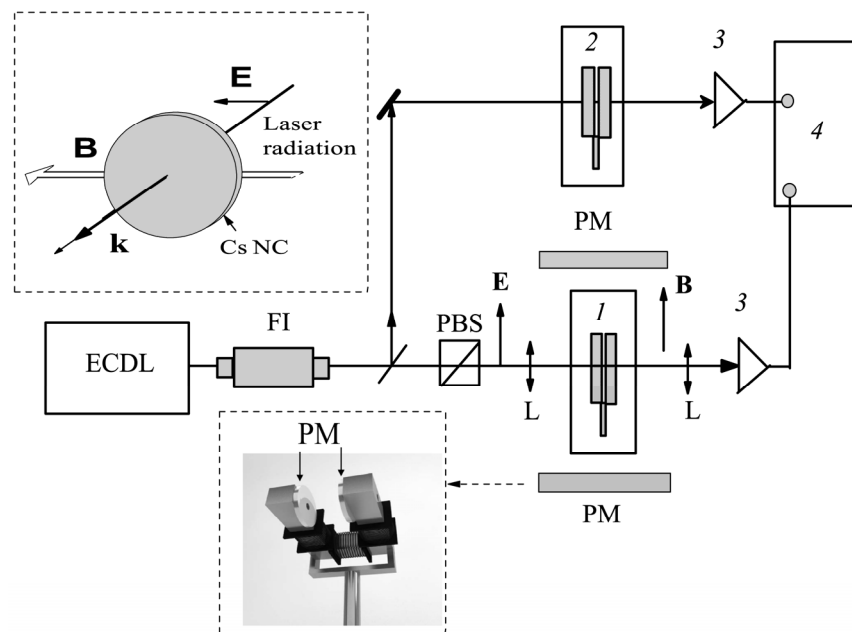


Рис.3. Схема экспериментальной установки. ECDL – диодный лазер; FI – фарадеевский изолятор; PBS – поляризационная призма, 1 – основная Cs наночайка внутри печки; PM – постоянные магниты, закрепленные на магнитопроводе (показаны на вставке внизу); 2 – дополнительная наночайка с Cs для формирования репера; L – линзы, 3 – фотоприемники; 4 – четырехлучевой цифровой осциллограф Tektronix TDS2014B.

асимптотически стремятся к одной и той же величине; б) к одной и той же величине асимптотически стремятся и частотные наклоны в единицах МГц/Гс для атомных переходов, находящихся в той же группе; в) при $B \gg B_0$ частотные сдвиги (энергии) зеемановских подуровней уровней $6S_{1/2}$ и $6P_{3/2}$ D₂ линии атомов Cs становятся линейными по B и описываются формулой [14]

$$E_{|Jm_JIm_I\rangle} = A_{\text{hfs}}m_Jm_I + B_{\text{hfs}} \frac{3(m_Jm_I)^2 + 1.5m_Jm_I - I(I+1)J(J+1)}{2J(2J-1)I(2I-1)} + \mu_B(g_Jm_J + g_I m_I)B_z, \quad (1)$$

где A_{hfs} и B_{hfs} – константы сверхтонкого расщепления уровня, g_J и g_I – факторы Ланде для полного момента электрона $\mathbf{J}$ и магнитного момента ядра $\mathbf{I}$, которые приведены в [14].

3. Экспериментальные результаты

На рис.3 приведена экспериментальная схема. Для регистрации спектра поглощения используется наноячейка (НЯ) заполненная Cs с толщиной в направлении лазерного излучения равной полдлины волны ($L = \lambda/2 = 426$ нм) резонансного с D₂ линией лазерного излучения. НЯ использовалась для реализации $\lambda/2$ -метода, который обеспечивает существенное сужение линий поглощения, что особенно важно при наличии большого числа близкорасположенных атомных переходов. НЯ помещалась в печку, в которой имелись отверстия для прохождения лазерного излучения, и нагревалась до 110°C, что обеспечивало плотность атомов $N \sim 10^{13} \text{ см}^{-3}$ (детали конструкции НЯ приведены в работе [17]). Использовалось излучение перестраиваемого узкополосного диодного лазера с внешним резонатором (extended cavity diode laser – ECDL) с длиной волны 852 нм и спектральной шириной ~ 1 МГц. НЯ с $L = \lambda/2$ помещалась между сильными постоянными магнитами, которые фиксировались на металлическом магнитопроводе для формирования магнитного поля $B \sim 6$ кГс (см. нижнюю вставку на рис.3). На магнитопроводе помещалась катушка с обмоткой, через которую пропусклся постоянный ток и которая позволяла варьировать величину B в интервале 4–7 кГс. Излучение фокусировалось линзой (фокусное расстояние $F = 20$ см) в НЯ с размером пучка в перетяжке ~ 0.4 мм и далее коллимировалось с помощью второй линзы. Взаимное расположение магнитной индукции $\mathbf{B}$, напряженности лазерного поля $\mathbf{E}$ и направление лазерного излучения $\mathbf{k}$ ($k = 2\pi/\lambda$) приведено на верхней вставке рис.3. Для формирования частотного репера при $B = 0$ (от него измеряются частотные сдвиги) часть лазерного излучения направлялась на узел, состоящий из дополнительной НЯ с $L = \lambda/2$, спектр поглощения которой служил частотным репером [12].

Полный спектр атомных переходов $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ при $B \approx 5650$ Гс, полученный $\lambda/2$ -методом, при π -поляризованном возбуждении приведен рис.4. Нижний

спектр – частотный репер при $B = 0$. Проверка линейности сканирования частоты лазера проводилась по реперному спектру. Прямоугольниками отмечены номера переходов, которые при $B = 0$ являются запрещенными, однако с увеличением B их вероятности быстро растут. Абсолютная величина поглощения при использовании $\lambda/2$ -метода составляет 1–2%, поэтому величина поглощения может быть записана как $A = \sigma NL$, где $\sigma \sim d^2$ и d – дипольный момент перехода, N – плотность атомов и L – толщина НЯ. Следовательно, амплитуды переходов в спектрах поглощения пропорциональны вероятностям атомных переходов. Линии поглощения в спектре (рис.4) могут быть аппроксимированы функциями «псевдо-Войгта» (программа Origin). Как видно из рис.4, $\lambda/2$ -метод позволяет зарегистрировать поведение всех шестнадцати атомных переходов. Если использовать заполненную Cs обычную ячейку с длиной $L = 0.1$ –1 см (в этом случае доплеровская ширина каждого перехода больше 400 МГц), то атомные переходы будут сильно перекрываться [6,13].

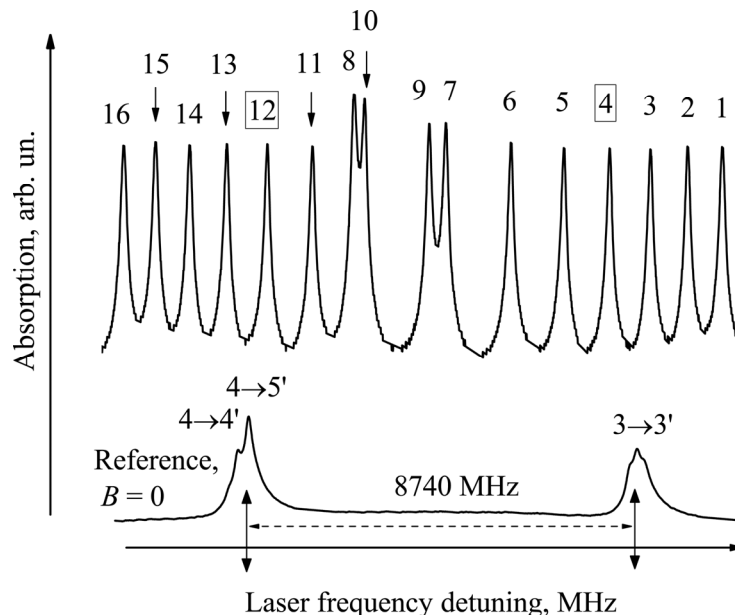


Рис.4. D_2 линия атомов Cs. Полный спектр поглощения полученный $\lambda/2$ -методом при $B \approx 5650$ Гс и мощности лазера 10 мкВт. Спектр содержит 16 атомных переходов для $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$. Нижняя кривая – исходный спектр поглощения атомов при $B = 0$ (реперный спектр) для определения частотных сдвигов от перехода $4 \rightarrow 5'$ атомов Cs.

На рис.5 приведен полный спектр атомных переходов $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ при $B \approx 6.8$ кГц, полученный $\lambda/2$ -методом при π -поляризованном возбуждении. Нижний спектр – частотный репер при $B = 0$. Как видно, все 16 атомных переходов спектрально хорошо разрешены. Прямоугольниками отмечены номера переходов

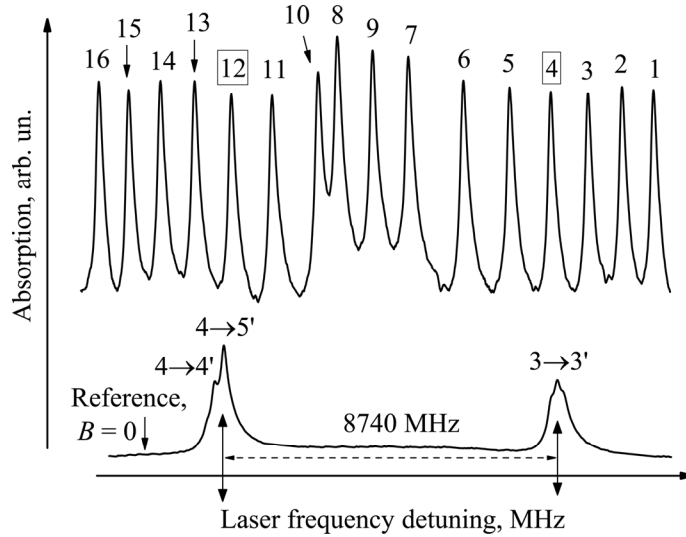


Рис.5. Полный спектр поглощения D₂ линия атомов Cs, полученный $\lambda/2$ -методом при $B \approx 6.8$ кГс и мощности лазера 6 мкВт. Спектр содержит 16 атомных переходов для $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$. Нижняя кривая – исходный спектр поглощения атомов при $B = 0$ (реперный спектр) для определения частотных сдвигов от перехода $4 \rightarrow 5'$ атомов Cs.

$F_g, m_F = 0 \rightarrow F_e, m_F = 0$, ($F_g = F_e$), которые при $B = 0$ являются запрещенными, однако с увеличением B их вероятности быстро растут.

Для количественного определения частот и вероятностей атомных переходов D₂ линии атомов Cs нами применена известная модель, использующая матрицу гамильтониана в магнитном поле с учетом всех переходов внутри сверхтонкой структуры атома [1,2,18,19]. На рис.6 приведены частоты компонент 1–16 при изменении магнитного поля вплоть до 10 кГс. Как видно, при $B > 8.5$ кГс переходы перегруппировываются, образуя две большие группы. В первой группе переходы 1–8, а во второй группе переходы 9–16, при этом частотное разделение этих двух групп возрастает с увеличением магнитного поля. На рис.6 приведена группа из семи атомных переходов, заключенная в овал в верхней части рисунка. Эти семь переходов расположены на высокочастотном крыле спектра, отмечены как атомные переходы 1'–7' и приведены на рис.7. Заметим, что их вероятности с увеличением магнитного поля B стремятся к нулю (см.ниже). Для этих переходов нижние и верхние значения F , m_F приведены в прямоугольнике в левом верхнем углу рис.6.

На рис.6 приведена также группа из семи атомных переходов, заключенная в овал в нижней части рисунка. Эти семь переходов расположены на низкочастотном крыле спектра, отмечены как 1''–7'' и приведены на рис.8. Вероятности этих переходов с увеличением магнитного поля B также стремятся

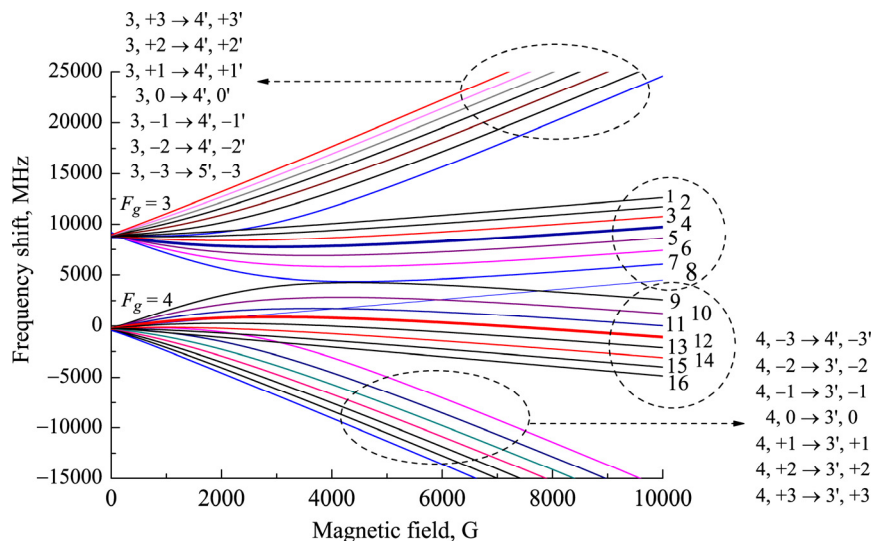


Рис.6. Расщепление и частотные сдвиги атомных переходов D₂ линии от магнитного поля B . При $B \gg B_0$ атомные переходы перегруппировываются в две новые группы: переходы 1–8 и переходы 9–16. Приведены заключенные в овалы 2 группы по семь переходов, вероятности которых при $B \gg B_0$ стремятся к нулю.

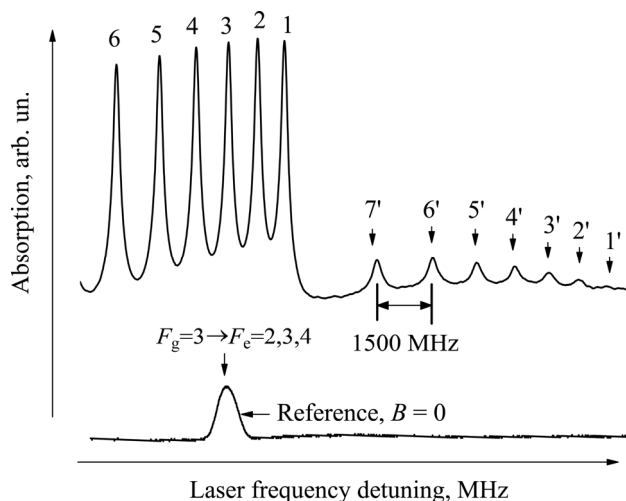


Рис.7. Фрагмент высокочастотного крыла спектра переходов $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$, содержащий атомные переходы 1–6 и 1'–7' при $B \approx 5$ кГс. Нижняя кривая – атомные переходы $F_g = 3 \rightarrow F_e = 2, 3, 4$ при $B = 0$, полученные в ячейке с $L = 3$ см.

к нулю. Для этих переходов нижние и верхние значения F , m_F приведены в прямоугольнике в правом нижнем углу рис.6. То обстоятельство, что вероятности переходов 1'–7' и 1''–7'' должны стремиться к нулю при $B \gg B_0$ (см. рис.9), следует также из диаграммы для атомных переходов D₂ линии атомов Cs в случае, когда реализуется режим ПБС. Из диаграммы видно, что в сильных магнитных

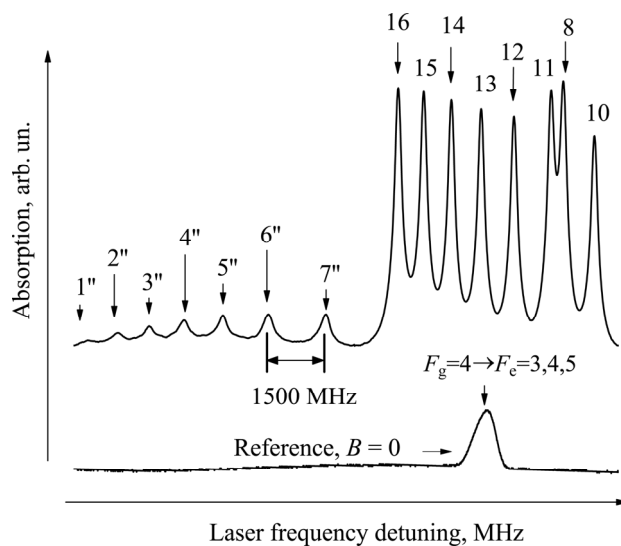


Рис.8. Фрагмент низкочастотного крыла спектра переходов $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$, содержащий атомные переходы 8, 10–16, и 1''–7'' при $B \approx 5$ кГс. Нижняя кривая – атомные переходы $F_g = 4 \rightarrow F_e = 3, 4, 5$ при $B = 0$, полученные в ячейке с $L = 3$ см.

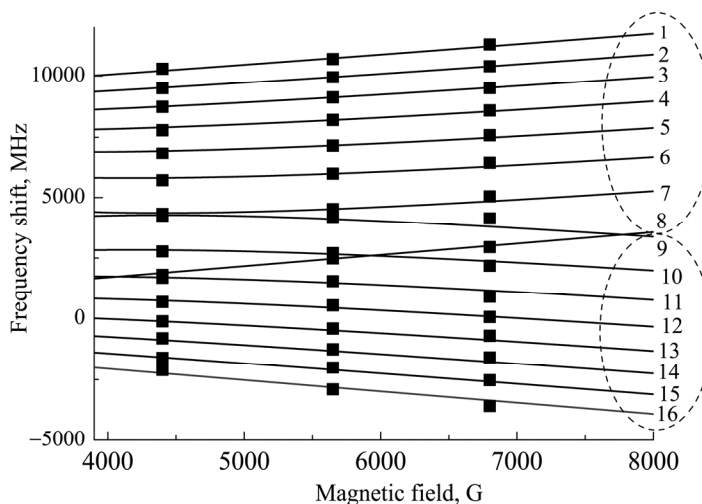


Рис.9. Расчетные величины частотных сдвигов переходов 1–16 в зависимости от магнитного поля B . При $B \gg B_0$ переходы перегруппировываются в две группы: 1–8 и 9–16. Сплошные линии – расчетные кривые, черными квадратами показаны экспериментальные данные (ошибка 2%).

полях в спектре поглощения $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ остаются только переходы 1–16.

На рис.9 сплошными линиями приведены расчетные величины частотных сдвигов переходов 1–16 в зависимости от магнитного поля B в интервале 4–7 кГс. При $B \gg B_0$ переходы перегруппировываются и образуют две группы, в каждой

из которых находится восемь атомных переходов. Черными квадратами показаны экспериментальные результаты, размер квадратов соответствует ошибке эксперимента, которая составляет $\sim 2\%$). Измерение смещения частот выполняется от перехода Cs, $4 \rightarrow 5'$ (отмечен на рис.4,5).

Расчетные значения интенсивностей переходов в зависимости от магнитного поля B приведены на рис.10. При магнитных полях $B > 5$ кГс интенсивности переходов 1–16 стремятся к той же асимптотической величине. Следовательно, режим ПБС, когда происходит выравнивание интенсивностей переходов в группе, достигается при больших магнитных полях, что хорошо согласуется с экспериментальными спектрами (рис.4,5). Отметим, что вероятности переходов $1'-7'$ и $1''-7''$ при $B > 5$ кГс стремятся к нулю.

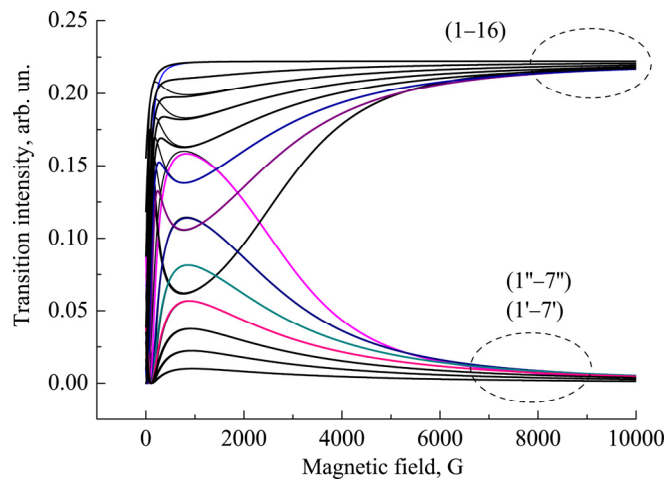


Рис.10. Расчетные значения вероятностей (интенсивностей) переходов D_2 линии атомов Cs, при π -поляризованном возбуждении в зависимости от магнитного поля B . При $B \gg B_0$ вероятности всех шестнадцати (1–16) переходов стремятся к той же асимптотической величине.

4. Обсуждение результатов

Частотные наклоны атомных переходов при полях $B \gg B_0$ для двух групп, содержащих переходы 1–8 и 9–16 (рис.6), можно легко получить из формулы (1): $s \approx [g_J(P_{3/2}) m_J - g_J(S_{1/2}) m_J] \mu_B/B$, где $g_J(P_{3/2}) \approx 1.334$, $g_J(S_{1/2}) \approx 2.002$, $\mu_B \approx 1.399$ МГц/Гс (член $g_J m_J$ – мал, поэтому опущен). Для группы, содержащей переходы 1–8, величина $s \approx 0.47$ МГц/Гс, а для группы, содержащей переходы 9–16, величина $s \approx -0.47$ МГц/Гс.

Интересно провести сравнение результатов исследования поведения переходов D_2 линии атомов Cs в сильных поперечных (в случае π -поляризованного излучения) и продольных (в случае σ^+ -поляризованного излучения [7]) магнитных полях с использованием $\lambda/2$ -метода. На рис.11 приведен полный спектр

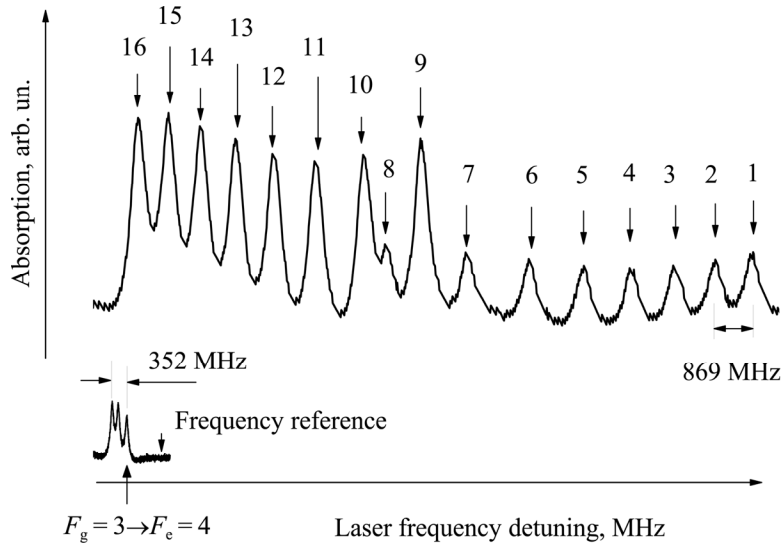


Рис.11. Полный спектр поглощения атомных переходов D_2 линии атомов Cs при σ^+ возбуждении, $B = 6.8$ кГс. Спектр содержит 16 компонент – атомные переходы $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$. Кривая в нижнем углу – реперный спектр.

атомных переходов $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ (переходы 1–16) при $B = 6.8$ кГс, полученный $\lambda/2$ -методом, при σ^+ возбуждении [7]. Как видно из рисунка, в случае σ^+ возбуждения переходы 1–8 и 9–16 имеют разные амплитуды, однако в своих группах (1–8) и (9–16) амплитуды равны. Это сильно отличается от случая π -поляризованного возбуждения (сравните с рис.5). Это первое и важное отличие.

Второе отличие было показано в работе [12], что во внешнем магнитном поле в интервале 0.5–4 кГс при σ^+ возбуждении происходит гигантское возрастание вероятности семи атомных переходов $6S_{1/2}(F_g = 3) \rightarrow 6P_{3/2}(F_e = 5)$ D_2 линии атомов Cs, которые расположены на высокочастотном крыле спектра. Однако, в случае π -поляризованного возбуждения вероятности этих переходов быстро стремятся к нулю уже при полях $B \sim 300$ Гс, а семь переходов 1'–7', которые расположены на высокочастотном крыле спектра (рис.7), являются разрешенными (для них нижние и верхние F, m_F приведены в прямоугольнике в левом верхнем углу рис.6).

Третье, в случае π -поляризованного возбуждения имеются запрещенные (при $B = 0$) переходы $F_g, m_F = 0 \rightarrow F_e, m_F = 0$ (когда $F_g = F_e$), вероятности которых быстро растут с увеличением магнитного поля (номера переходов отмечены прямоугольниками на рис.4,5). Такие переходы отсутствуют при σ^+ -поляризованном возбуждении.

Последнее, частотный интервал между переходами под номерами 1 и 16 при $B = 7$ кГс в случае π -поляризованного возбуждения составляет 14 760 МГц, а для σ^+ возбуждения эта величина почти на 1 ГГц больше.

В качестве практического применения полученных результатов отметим следующее. В работе [16] приведено простое устройство на основе заполненной Cs микроячейки и двух сильных постоянных магнитов, между которыми помещается микроячейка. Все устройство, закрепленное на одном держателе, является удобным перестраиваемым частотным репером, поскольку содержит в спектре пропускания узкие спектральные линии, сильно смещенные по частоте. Аналогичное устройство может быть создано на основе микроячейки, заполненной Cs (линии D_1 и D_2) и для случая π -поляризованного возбуждения.

5. Заключение

Впервые приводятся результаты экспериментального исследования поведения атомных переходов Cs в сильных поперечных магнитных полях вплоть до 7 кГс с высоким спектральным разрешением. Использованный метод на основе НЯ с толщиной в полдлины волны $L = \lambda/2 = 426$ нм резонансного с D_2 линией лазерного излучения ($\lambda/2$ -метод) позволил проследить поведение атомных переходов 1–16, а также слабых атомных переходов 1'–7' и 1''–7''.

Важно отметить, что аналогичные исследования поведения атомных переходов в сильных магнитных полях с высоким спектральным разрешением можно реализовать с помощью достаточно сложной и дорогостоящей техники с использованием атомных пучков [20,21]. Приведены различия поведения атомных переходов D_2 линии атомов Cs в сильных поперечных (в случае π -поляризованного возбуждения) и продольных (в случае σ^+ -поляризованного возбуждения) магнитных полях.

Работа выполнена в рамках International Associated Laboratory IRMAS (CNRS-France & SCS-Armenia). Авторы благодарят за финансовую поддержку ГКН МОН РА (проект № SCS 13-1C029) и ANSEF (грант Opt 3700)

ЛИТЕРАТУРА

1. P. Tremblay, A. Michaud, M. Levesque, et al. Phys. Rev. A, **42**, 2766 (1990).
2. Е.Б. Александров, Г.И. Хвостенко, М.П. Чайка Интерференция атомных состояний. Москва, Наука, 1991.
3. А.Д. Саргсян, А.С. Саркисян, А.В. Папоян, Д.Г. Саркисян. Известия НАН Армении, Физика, **44**, 195 (2009).
4. А. Саргсян, Г. Ахумян, Д. Саркисян. Известия НАН Армении, Физика, **47**, 98 (2012).
5. A. Sargsyan, G. Hakhumyan, C. Leroy, et al. Opt. Lett., **37**, 1379 (2012).
6. L. Weller, K.S. Kleinbach, M.A. Zentile, et al. Opt. Lett. **37**, 3405 (2012).
7. А. Саргсян, Г. Ахумян, Р. Мирзоян, Д. Саркисян. Письма в ЖЭТФ, **98**, 499 (2013).
8. А.Д. Саргсян, Р.К. Мирзоян, А.С. Саркисян, А.О. Амирян, Д.Г. Саркисян. Известия НАН Армении, Физика, **49**, 31 (2013).
9. А.Д. Саргсян, Д.Г. Саркисян, Е. Пашаян-Леруа, К. Леруа, П. Морошкин, А. Вейс. Известия НАН Армении, Физика, **43**, 11 (2008).

10. A. Sargsyan, G. Hakhumyan, A. Papoyan, et al. Appl. Phys. Lett., **93**, 021119 (2008).
11. A. Sargsyan, A. Tonoyan, R. Mirzoyan, et al. Opt. Lett., **39**, 2270 (2014).
12. A. Sargsyan, A. Tonoyan, G. Hakhumyan, et al. Las. Phys. Lett., **11**, 055701 (2014).
13. M.A. Zentile, R. Andrews, L. Weller, et al. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., **47**, 075005 (2014).
14. D.A. Steck. Alkali D line data, available from: steck.us/alkalidata/ [cited March 7, 2011].
15. A. Саргсян, Г. Ахумян, А. Папоян, Д. Саркисян. Письма в ЖЭТФ, **101**, 330 (2015).
16. A. Саргсян, Б. Глушко, Д. Саркисян. ЖЭТФ, **147**, 668 (2015).
17. J. Keaveney, A. Sargsyan, U. Krohn, et al. Phys. Rev. Lett., **108**, 173601 (2012).
18. G. Hakhumyan, C. Leroy, Y. Pashayan-Leroy, et al. Opt. Commun., **284**, 4007 (2011).
19. A. Sargsyan, A. Tonoyan, G. Hakhumyan, et al. Optics Commun., **334**, 208 (2015).
20. C. Umfer, L. Windholz, M. Musso. Z. Phys. D, **25**, 23 (1992).
21. S. Werbowy, J. Kwela, N. Anjum, et al. Phys. Rev. A, **90**, 032515 (2014).

Cs-ի D_2 գծի ԱՏՈՄԱԿԱՆ ԱՆՑՈՒՄՆԵՐԸ
ՈՒԺԵՂ ԼԱՅՆԱԿԱՆ ՄԱԳՆԻՏԱԿԱՆ ԴԱՇՏԵՐՈՒՄ

Ա.Դ. ՍԱՐԳՍՅԱՆ, Հ.Թ. ՀԱԽՈՒՄՅԱՆ, Ա.Հ. ԱՄԻՐՅԱՆ,
Կ. ԼԵՐՈՒՅ, Հ.Ս. ՍԱՐԿԻՍՅԱՆ, Դ.Հ. ՍԱՐԿԻՍՅԱՆ

Տարածական բարձր լուծողունակությամբ փորձնականորեն հետազոտված են Ցեզիումի ատոմական անցումները ուժեղ ընդիույթ միջև 7 կԳս մագնիսական դաշտերում: Օգտագործված է կես-ալիքի երկարությամբ նանոբջջի $L = \lambda/2 = 426$ նմ վրա հիմնված մեթոդ, որը հնարավորություն է տալիս հետևել յուրաքանչյուր ատոմական անցման վարքը: Լազերային ճառագայթը գտնվում է D_2 գծի հետ ռեզոնանսի մեջ: Գծային բևեռացված լազերային ճառագայթման կլանման սպեկտրում և արտաքին՝ $B > 5$ կԳս մագնիսական դաշտերում մնում են միայն 16 ատոմական անցումներ (փոքր դաշտերում անցումների թիվը 56 է): Փորձական արդյունքներն ու տեսական հաշվարկները գտնվում են լավ համապատասխանության մեջ:

ATOMIC TRANSITIONS OF Cs D_2 LINE
IN STRONG TRANSVERSE MAGNETIC FIELDS

A.D. SARGSYAN, G.T. HAKHUMYAN, A.H. AMIRYAN,
C. LEROY, H.S. SARKISYAN, D.H. SARKISYAN

Atomic transitions of D_2 line of the Cs atoms in the strong transverse magnetic fields up to 7 kG with high spectral resolution were studied for the first time. The method based on the nanocell with half-wavelength thickness ($\lambda/2$ method) which allows to study the individual atomic transitions is used. When the laser radiation has linear π polarization and magnetic fields of $B > 5$ kG only 16 atomic transitions (at lower fields there are 56 transitions), which have nearly the same amplitudes, remain in absorption spectrum. Experiment is in a good agreement with the theory.

УДК 535.343.1

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СИЛЫ ЛИНИЙ $d-f$ ПЕРЕХОДОВ В КРИСТАЛЛЕ $YAG:Ce^{3+}$

Д.Г. ЗАРГАРЯН

Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

e-mail: dzargaryan@gmail.com

(Поступила в редакцию 4 марта 2015 г.)

Теоретически исследованы спектроскопические свойства кристалла $YAG:Ce^{3+}$, обусловленные $d-f$ переходами ионов Ce^{3+} . В приближении среднего кристаллического поля определены энергии штарковских состояний $5d^1$ электронной конфигурации иона Ce^{3+} и построены соответствующие волновые функции. Вычислены силы линий электродипольных $d-f$ переходов, рассчитаны вероятности спонтанных переходов и радиационные времена жизни.

1. Введение

Ионы Ce^{3+} являются единственными в ряду трехкратно-ионизированных редкоземельных (R^{3+}) ионов, оптические спектры которых имеют наиболее простую структуру: по два мультиплета основной $4f^1$ ($^2F_{7/2}$ и $^2F_{5/2}$) и первой возбужденной $5d^1$ ($^2D_{5/2}$, $^2D_{3/2}$) электронных конфигураций. С этой точки зрения активированные ионами Ce^{3+} кристаллы являются удобной модельной системой для апробации различных теоретических построений. Кроме того, ионы Ce^{3+} являются хорошим сенсibilизатором для ионов Er^{3+} как в инфракрасной, так и в видимой областях спектра. Именно этим в большей степени обусловлен повышенный интерес к активированным R^{3+} ионами кристаллам, коактивированным ионами Ce^{3+} .

Исследованию спектроскопических свойств кристаллов, активированных и коактивированных ионами Ce^{3+} , посвящено много работ [1–9]. В работе [1] определены параметры кристаллического поля (КП) кристаллов $YAG:Ce^{3+}$ для $4f^1$ и $5d^1$ конфигураций, исследованы оптические спектры поглощения и люминесценции. В работах [2–3] изучены кинетические характеристики люминесценции кристалла $YAG:Ce^{3+}$. Штарковская структура оптических спектров основной конфигурации исследована в [6]. Сенсibilизационные свойства ионов Ce^{3+} в кристаллах $YAG:Er^{3+}, Ce^{3+}$ экспериментально исследованы в [7–9].

Настоящая работа посвящена теоретическому исследованию спектроскопических свойств кристалла $YAG:Ce^{3+}$ в видимой и ультрафиолетовой областях спектра (переходы $5d-4f$). Известно, что штарковские уровни возбужденной $5d^1$ конфигурации сильно отдалены друг от друга ($\sim 10000\text{ см}^{-1}$), поэтому волновые

функции этих состояний необходимо определить с учетом смешанных состояний $J-J$. Это автоматически достигается, если штарковскую задачу решить в приближении среднего КП, в рамках которого одновременно учитываются спин-орбитальное (SO) взаимодействие и потенциал КП. С другой стороны мультиплетная группа ${}^2F_{7/2}$ и ${}^2F_{5/2}$ основной электронной конфигурации состоит из сравнительно близко расположенных ($\sim 500 \text{ см}^{-1}$) штарковских подуровней, поэтому при рассмотрении $d-f$ переходов штарковским расщеплением мультиплетов ${}^2F_{7/2}$ и ${}^2F_{5/2}$ можно пренебречь.

2. Волновые функции штарковских состояний $5d^1$ конфигурации иона Ce^{3+}

Как известно, единственный 10-кратно вырожденный электронный терм 2D электронной $5d^1$ конфигурации в КП расщепляется на штарковские подуровни, волновые функции и энергии которых определяются из решений стационарного уравнения Шредингера с гамильтонианом

$$\hat{H}(d) = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{SO}}(d) + \hat{H}_{\text{cr}}(d), \quad (1)$$

где $\hat{H}_0$ учитывает взаимодействие оптического электрона с электронным остовом ядра примесного иона, $\hat{H}_{\text{SO}}(d) = \xi_d (\hat{\mathbf{L}}\hat{\mathbf{S}})$ – гамильтониан SO взаимодействия ($\xi_d = 1082 \text{ см}^{-1}$ – постоянная SO взаимодействия [1]), $\hat{H}_{\text{cr}}(d)$ – гамильтониан взаимодействия оптического электрона примесного иона с КП. В кристаллах YAG примесные ионы замещают ионы иттрия в положениях с точечной группой симметрии ближайшего окружения D_2 , следовательно, в приближении теории КП точечных зарядов гамильтониан $\hat{H}_{\text{cr}}(d)$ можно записать в виде [10]

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{cr}}(d) = & B_{20}\hat{C}_{20} + B_{22}(\hat{C}_{22} + \hat{C}_{2-2}) + B_{40}\hat{C}_{40} \\ & + B_{42}(\hat{C}_{42} + \hat{C}_{4-2}) + B_{44}(\hat{C}_{44} + \hat{C}_{4-4}), \end{aligned} \quad (2)$$

где B_{kq} – параметры КП, $\hat{C}_{kq} = \sqrt{4\pi / 2k + 1} \times Y_{kq}$ – нормированные сферические функции (Y_{kq} – сферические функции). Численные значения параметров КП для YAG:Ce³⁺ приведены в [1]: $B_{20} = 20263$, $B_{22} = 4321$, $B_{40} = -6867$, $B_{42} = 47398$, $B_{44} = -22850$ (в см^{-1}).

В рамках приближения среднего КП в качестве возмущения выступает оператор $\hat{H}_{\text{SO}}(d) + \hat{H}_{\text{cr}}(d)$, матричные элементы которого вычисленные на основе волновых функций гамильтониана $\hat{H}_0$ в LSM представлении (L и S – соответственно орбитальный и спиновый моменты, M и m – их проекции) можно записать в виде

$$\begin{aligned} L_1 M_1 S_1 m_1 | \hat{H}_{\text{SO}} + \hat{H}_{\text{cr}} | L_2 M_2 S_2 m_2 = \\ \xi_d L_1 M_1 S_1 m_1 | (\hat{\mathbf{L}}\hat{\mathbf{S}}) | L_2 M_2 S_2 m_2 + \delta_{S_1, S_2} \delta_{S_1, S_2} L_1 M_1 | \hat{H}_{\text{cr}} | L_2 M_2. \end{aligned} \quad (3)$$

Здесь матричные элементы оператора SO взаимодействия и оператора $\hat{C}_{kq}$, связывающие $L_1 M_1 S_1 m_1$ и $L_2 M_2 S_2 m_2$ состояния имеют вид [11]:

$$\begin{aligned} & \langle L_1 M_1 S_1 m_1 | \hat{H}_{\text{SO}}(d) | L_2 M_2 S_2 m_2 \rangle = \\ & = \xi_d \sqrt{L_2 S_2 (L_2 + 1)(2L_2 + 1)(S_2 + 1)(2S_2 + 1)} \delta_{L_1, L_2} \delta_{S_1, S_2} \\ & \times \sum_{\lambda=-1}^1 (-1)^{L_2 + S_2 + M_1 + m_1 + \lambda} \begin{pmatrix} L_2 & 1 & L_1 \\ M_2 & \lambda & -M_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} S_2 & 1 & S_1 \\ m_2 & -\lambda & -m_1 \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (4)$$

$$\langle L_1 M_1 | \hat{C}_{kq} | L_2 M_2 \rangle = (-1)^{M_1} \sqrt{(2L_1 + 1)(2L_2 + 1)} \begin{pmatrix} L_1 & k & L_2 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} L_1 & k & L_2 \\ -M_1 & q & M_2 \end{pmatrix}, \quad (5)$$

где $\begin{pmatrix} \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \end{pmatrix}$ – $3j$ символы.

Проводя вычисления на основе базисных функций неприводимых представлений группы D_2 ($D_2 = 2\Gamma_{r1} + \Gamma_{r2} + \Gamma_{r3} + \Gamma_{r4}$) [12]

$$\begin{aligned} & \Gamma_{r2} : \Phi_3 = -\frac{1}{\sqrt{2}} |2, 1\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}} |2, -1\rangle, \\ & \Gamma_{r3} : \Phi_4 = \frac{1}{\sqrt{2}} |2, 2\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}} |2, -2\rangle, \\ & \Gamma_{r4} : \Phi_5 = -\frac{1}{\sqrt{2}} |2, 1\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}} |2, -1\rangle, \\ & \Gamma_{r1} : \begin{cases} \Phi_1 = |2, 0\rangle \\ \Phi_2 = \frac{1}{\sqrt{2}} |2, 2\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}} |2, -2\rangle \end{cases} \end{aligned} \quad (6)$$

для энергий и волновых функций штарковских состояний $5d^1$ конфигурации иона Ce^{3+} получим: $\varepsilon_1 = 20442$, $\varepsilon_2 = 28794$, $\varepsilon_3 = 43472$, $\varepsilon_4 = 49082$, $\varepsilon_5 = 60534$ (в см^{-1}),

$$\begin{aligned} v_1 &= 0.6141 \left| \mp 2, \mp \frac{1}{2} \right\rangle + 0.0053 \left| \mp 1, \pm \frac{1}{2} \right\rangle - 0.4064 \left| 0, \mp \frac{1}{2} \right\rangle \\ & - 0.0262 \left| \pm 1, \pm \frac{1}{2} \right\rangle + 0.676 \left| \pm 2, \mp \frac{1}{2} \right\rangle, \\ v_2 &= -0.0206 \left| \mp 2, \mp \frac{1}{2} \right\rangle - 0.7181 \left| \mp 1, \pm \frac{1}{2} \right\rangle + 0.0562 \left| 0, \mp \frac{1}{2} \right\rangle \\ & - 0.6927 \left| \pm 1, \pm \frac{1}{2} \right\rangle + 0.0313 \left| \pm 2, \mp \frac{1}{2} \right\rangle, \\ v_3 &= \pm 0.6953 \left| \mp 2, \pm \frac{1}{2} \right\rangle \pm 0.0087 \left| \mp 1, \mp \frac{1}{2} \right\rangle \pm 0.0798 \left| 0, \pm \frac{1}{2} \right\rangle \\ & \pm 0.0486 \left| \pm 1, \mp \frac{1}{2} \right\rangle \mp 0.7126 \left| \pm 2, \pm \frac{1}{2} \right\rangle, \end{aligned} \quad (7)$$

$$v_4 = \mp 0.3377 \left| \mp 2, \mp \frac{1}{2} \right\rangle \pm 0.0023 \left| \mp 1, \pm \frac{1}{2} \right\rangle \mp 0.9066 \left| 0, \mp \frac{1}{2} \right\rangle$$

$$\mp 0.0768 \left| \pm 1, \pm \frac{1}{2} \right\rangle \mp 0.2412 \left| \pm 2, \mp \frac{1}{2} \right\rangle,$$

$$v_5 = \mp 0.025 \left| \mp 2, \mp \frac{1}{2} \right\rangle \mp 0.6942 \left| \mp 1, \pm \frac{1}{2} \right\rangle \mp 0.0587 \left| 0, \mp \frac{1}{2} \right\rangle$$

$$\pm 0.7166 \left| \pm 1, \pm \frac{1}{2} \right\rangle \pm 0.0206 \left| \pm 2, \mp \frac{1}{2} \right\rangle,$$

где нумерация начинается с нижнего штарковского состояния (рис.1).

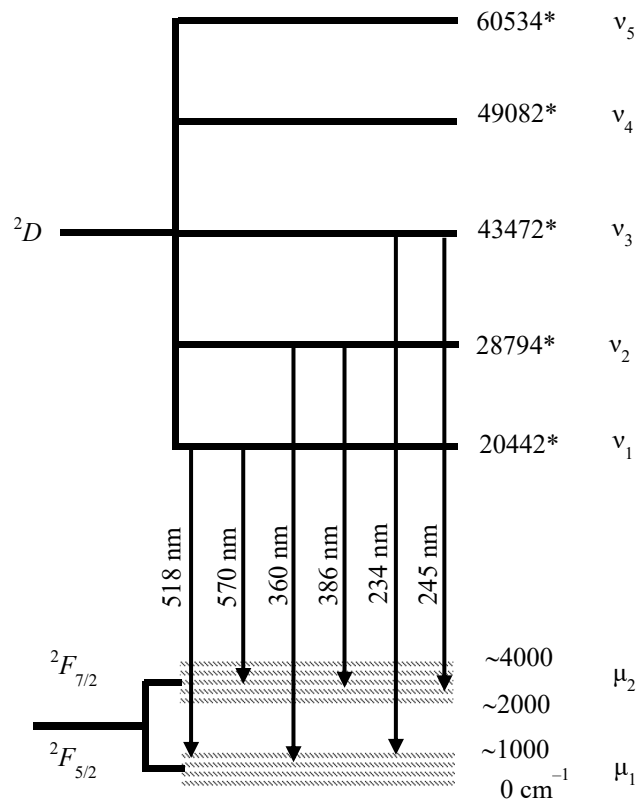


Рис.1. Схема энергетических уровней иона Ce³⁺ в YAG. Расчетные значения энергетических уровней отмечены звездочкой.

3. Силы линий и вероятности 5d–4f переходов

Отметим, что в отличие от f - f переходов прямые электро-дипольные (ED) переходы между d и f состояниями разрешены, что существенно упрощает вычисления. Для дальнейших расчетов удобно использовать волновые функции 6- и 8-кратно вырожденных мультиплетов $²F_{5/2}$ и $²F_{7/2}$ основной $4f^1$ конфигурации в

$LSJM_J$ представления (M и M_S – проекции орбитального и спинного моментов), перейдя от $LSJM_J$ представления к $LMSM_S$ по формуле [11]

$$\begin{aligned} |LSJM_J\rangle &= \sum_{M=-L}^L \sum_{M_S=-S}^S (-1)^{-L-M-M_S+S} \sqrt{2J+1} \\ &\times \begin{pmatrix} L & S & J \\ M & M_S & -M-M_S \end{pmatrix} \delta_{M_J, M+M_S} |LSM M_S\rangle. \end{aligned} \quad (8)$$

Для расчета силы линии ED перехода $S_{i \rightarrow f}^{(ED)} = \sum_{q=-1}^1 \left| \langle f | r \hat{C}_{1q} | i \rangle \right|^2$, согласно (7), запишем угловую часть волновой функции i -ого штатковского состояния 2D терма $5d^1$ конфигурации в виде линейной комбинации по функциям $|m, m_s\rangle$ (значения $L = 2$ и $S = 1/2$ фиксированные):

$$|v_i\rangle = \sum_{m, m_s} a_{m, m_s}^{(i)} |m, m_s\rangle, \quad (9)$$

где численные коэффициенты $a_{m, m_s}^{(i)}$ определяются выражением (7). Представляя волновые функции (8) мультиплетных состояний 2F_J ($J = 5/2, 7/2$) в виде

$$|LSJM_J\rangle = \sum_{M, M_S} b_{M, M_S}^{(JM_J)} |LSM M_S\rangle, \quad (10)$$

для матричного элемента ED перехода $|v_i\rangle \rightarrow |LSJM_J\rangle$ получим выражение

$$\begin{aligned} \langle v_i | \hat{C}_{1q} | JM_J \rangle &= \sum_{m, m_s} \sum_{M, M_S} (-1)^m \sqrt{5 \times 7} \\ &\times a_{m, m_s}^{(i)} b_{M, M_S}^{(JM_J)} \delta_{m_s, M_S} \begin{pmatrix} 2 & 1 & 3 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 2 & 1 & 3 \\ -m & q & M \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (11)$$

а для силы линии ED перехода $|v_i\rangle \rightarrow |LSJ\rangle$ получим

$$S_{v_i \rightarrow \{LSJ\}}^{(ED)} = \left\langle \sum_{M_J} \left| \sum_{m, m_s} \sum_{M, M_S} (-1)^{m+1} \sqrt{3} a_{m, m_s}^{(i)} b_{M, M_S}^{(JM_J)} \delta_{m_s, M_S} \begin{pmatrix} 2 & 1 & 3 \\ -m & q & M \end{pmatrix} \right|^2 \right\rangle_{av} \langle r^2 \rangle, \quad (12)$$

где $\langle r \rangle_{5d, 4f} = \int_0^\infty r^3 R_{5d} R_{4f} dr$ (R_{5d} и R_{4f} – радиальные волновые функции оптического электрона в $5d$ и $4f$ состояниях), $\langle \dots \rangle_{av}$ означает усреднение по начальным состояниям. Для радиального матричного элемента $5d-4f$ перехода было использовано значение $\langle r \rangle_{eff} = 0.284 \text{ \AA}$ [13].

Расчетные значения силы линий, вероятностей спонтанных переходов

$$A(v_i \rightarrow \{LSJ\}) = \frac{32 \pi^3 e^2}{3 \hbar \lambda^3} \frac{n(n^2 + 2)^2}{9} S_{v_i \rightarrow \{LSJ\}}^{(e-d)} \quad (13)$$

и радиационного времени жизни подуровней 2D терма

$$\tau(v_i) = \frac{1}{A(v_i \rightarrow {}^2F_{5/2}) + A(v_i \rightarrow {}^2F_{7/2})} \quad (14)$$

приведены в табл.1. В формулах (13) и (14) используются следующие обозначения: e – заряд электрона, $\hbar$ – постоянная Планка, λ – длина волны перехода и n – коэффициент преломления на длине волны перехода ($n \approx 1.85$ [14]). Видно, что отклонение расчетного значения радиационного времени жизни основного состояния $5d^1$ конфигурации от экспериментального значения составляет 17%, что вполне допустимо, учитывая недостаток спектроскопических экспериментальных данных и грубость используемых приближений. Что касается времени жизни уровня v_2 , то оно составляет $\tau_{\text{exp}}(v_2) = 8$ нс в керамике YAG [15]. Время жизни уровня v_1 в том же керамическом материале составляет 20–30 нс [15,16], т.е. примерно в 2–3 раза меньше его значения в кристалле YAG – 67 нс [2,3]. Это дает основание предположить, что в кристалле YAG ожидаемое значение $\tau_{\text{exp}}(v_2)$ находится в диапазоне 16–24 нс, что вполне согласуется с расчетным значением.

Табл.1. Спектроскопические параметры кристалла YAG:Ce³⁺.

Переход		$\lambda_{\text{em}},$ нм	$S,$ $\times 10^{-18} \text{ см}^2$	$A,$ $\times 10^7 \text{ с}^{-1}$	$\tau_{\text{cal}},$ нс	$\tau_{\text{exp}},$ нс
$v_1 \rightarrow$	μ_1	518	2.295	0.697	78.5	67 [2]
	μ_2	570	2.544	0.577		
$v_2 \rightarrow$	μ_1	360	2.370	2.261	24	~8 [15]
	μ_2	386	2.469	1.911		
$v_3 \rightarrow$	μ_1	234	1.991	6.918	6.4	-
	μ_2	245	2.848	8.620		

4. Заключение

Таким образом, предлагаемая схема расчета штарковской структуры возбужденной $5d^1$ электронной конфигурации правильно интерпретирует наличие всех наблюдаемых спектральных линий, обусловленных разрешенными ЕД переходами. Действительно, в рамках часто используемого приближения слабого КП возбужденный терм (2D) SO взаимодействием расщепляется на ${}^2D_{3/2}$ основной и ${}^2D_{5/2}$ возбужденный мультиплеты. Однако при этом ЕД переход ${}^2D_{3/2} \rightarrow {}^2F_{7/2}$, соответствующий экспериментально наблюдаемой интенсивной линии люминесценции в области длин волн 570–650 нм [17], оказывается запрещенным. Полученные результаты позволяют качественно объяснить имеющиеся экспериментальные данные. Для более детальной интерпретации спектров поглощения и люминесценции ионов Ce³⁺, обусловленных $f-d$ переходами, следует провести детальный расчет спектроскопических характеристик с учетом штарковской структуры энергетических уровней основной $4f^1$ электронной конфигурации.

Автор выражает благодарность Р.Б. Костяню и Г.Г. Демирханяну за предоставление темы, полезные обсуждения и постоянное внимание при выполнении работы.

Исследование выполнено при финансовой поддержке ГКН МОН РА в рамках научного проекта № SCS 13-1C269.

ЛИТЕРАТУРА

1. H. Przyblinska, Ch.-G. Ma, M.G. Brik, et al. Appl. Phys. Lett., **102**, 241112 (2013).
2. E. Zych, C. Brecher, J. Glodo. J. Phys.: Condens. Matter, **12**, 1947 (2000).
3. M.J. Weber. Solid State Communications, **12**, 741 (1973).
4. M. Wanga, R. Wang, Ch. Li, Y. Xu, J. Wang, et al. J. Crystal Growth, **310**, 3820 (2008).
5. L. van Pieteron, M.F. Reid, R.T. Wegh, et al. Phys. Rev. B, **65**, 045113 (2002).
6. G.G. Demirkhanyan, R.B. Kostanyan, et al. Proc. Conf. LP-2009, Ashtarak, Armenia, 109 (2010).
7. В.Г. Бабаджанян, Р.Б. Костянян, П.Г. Мужикян и др. Изв. НАН РА, Физика, **46**, 85 (2011).
8. V.G. Babajanyan, R.B. Kostanyan, P.H. Muzhikyan, et al. Proc. SPIE, **7998**, 799806 (2011).
9. Y. Yu, S. Zhang, Sh. Tie, M. Song. J. Alloys and Compounds, **217**, 148 (1995).
10. А. Абрагам, Б. Блини. Электронный парамагнитный резонанс переходных ионов. Москва, Мир, 1973.
11. Д.А. Варшалович, А.Н. Москалев, В.К. Херсонский. Квантовая теория углового момента. Ленинград, Наука, 1975.
12. А.М. Леушин. Таблицы функций, преобразующихся по неприводимым представлениям кристаллографических точечных групп. Москва, Наука, 1968.
13. T. Chen, Ch.-K. Duan, Sh. Xia. J. Alloys Compounds, **439**, 363 (2007).
14. D.E. Zelmon, D.L. Small, R. Page. Appl. Opt., **37**, 4933 (1998).
15. V. Pankratov, A.I. Popov, L. Shirmane, A. Kotlov, W. Strek, 2009, http://photon-science.desy.de/annual_report/files/2010/20101220.pdf
16. S.W. Allison, G.T. Gillies, A.J. Rondinone, M.R. Cates. J. Nanotechnology, **14**, 859 (2003).
17. S.M. Kaczmarek, A.J. Wojtowicz, W. Drozdowski, et al. Proc. SPIE, **3724**, 339 (1998).

DETERMINATION OF LINE STRENGTH OF $d-f$ TRANSITIONS IN YAG:Ce³⁺ CRYSTAL

D.G. ZARGARYAN

The theoretical study of the spectroscopic properties induced by $d-f$ transitions in YAG:Ce³⁺ crystal is carried out. In the framework of the mean-field approximation for crystal field the Stark states energies of $5d^1$ excited electronic configuration of Ce³⁺ ion are determined, as well as the wave functions of the corresponding Stark states are constructed. The line strengths of electric dipole $d-f$ transitions, the probabilities of spontaneous transitions and radiative lifetimes are calculated.

УДК 621.3

ГАЗОВЫЕ СЕНСОРЫ НА ОСНОВЕ ДЕКОРИРОВАННЫХ УГЛЕРОДНЫХ НАНОТРУБОК

В.М. АРУТЮНЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

e-mail: kisahar@ysu.am

(Поступила в редакцию 28 июня 2015 г.)

Газовые сенсоры, изготовленные из углеродных нанотрубок без их легирования и декорирования различными методами, имеют серьезные недостатки. В обзоре проанализированы физика и техника декорирования углеродных нанотрубок органическими полимерами, металлическими наночастицами/нанокластерами, примесями и использование нанотрубок в металлооксидных нанокомпозитах для значительного повышения чувствительности, улучшения временных характеристик и понижения потребляемой мощности сенсоров важнейших газов.

1. Введение

Углеродные нанотрубки (УНТ) – одномерные материалы. Интенсивные их исследования привели к получению многих интересных научных результатов в области нанофизики и открыли новые возможности применения этих наноразмерных материалов. УНТ проявляют интересные эффекты и свойства, отмеченные в первой публикации в этой области Сумио Идзима [1], монографиях П. Харриса [2], М. Эндо и др. [3] и многих обзорах и статьях. Методы синтеза, обеспечивающие значительное производство нанотрубок, обсуждены в литературе. Большинство УНТ синтезированы методами дугового разряда, лазерного осаждения и напыления из химических паров. Информация об технологиях изготовления УНТ здесь не приводится (см. [2,3]).

УНТ представляет собой свернутый в полый цилиндр графеновый слой из ковалентно связанных молекул углерода. Существуют два основных типа УНТ: одностенные нанотрубки (ОСУНТ), состоящие из одного углеродного слоя диаметром $\sim 1\text{--}5$ нм, и многостенные (МСУНТ), состоящие из двух или нескольких углеродных слоев (с расстоянием между слоями 0.34 нм), концентрически вложенных друг в друга. Многостенные трубки имеют внешний диаметр как минимум 5.5 нм и внутренний диаметр как минимум 2.3 нм. По существу, УНТ является одномерным материалом – квантовой проволокой. Они интенсивно исследуются по сей день и демонстрируют различные квантовые эффекты. УНТ проявляют уникальную смесь электрических, оптических, термических и меха-

нических свойств. Показана широкая область применений УНТ в науке и технике – наноэлектронике, сенсорике, дисплеях, системах хранения водорода, батареях и т. д. (см., например, обзорные работы [4–8]).

Дешевые высокочувствительные и избирательные сенсоры крайне необходимы сегодня для обеспечения безопасности помещений, контроля окружающей среды, контроля качества и т. д. Разработка основанных на УНТ сенсоров и сенсорных систем в последние годы вызвала значительный интерес у исследователей из-за большого потенциала селективного и быстрого детектирования различных газов такими новыми наносенсорами, допускающими создание миниатюрных и с низким потреблением электроэнергии интегральных электронных систем. Очень часто в качестве наносенсоров используются такие простые конфигурации УНТ, как химические резисторы и полевые транзисторы. В этих сенсорах электрические свойства и характеристики наноструктур драматически меняются при контакте с исследуемым газом, делая УНТ химически активными, чувствительными к переносу заряда и эффектам химического легирования различными молекулами и примесями [9]. Когда вносящую в систему электроны молекулы (например, NO_2 , O_2) или отбирающие электроны молекулы (например, NH_3) взаимодействуют с полупроводниковыми УНТ p -типа, они изменяют концентрацию дырок в нанотрубке и, соответственно, ее проводимость. Эти явления лежат в основе применения УНТ в качестве газовых сенсоров [5].

Электрические, механические и электромеханические характеристики ОСУНТ и датчиков температуры, давления, потока и биосенсоров на их основе обсуждены в [4,6]. Например, высокочувствительный ОСУНТ сенсор водорода доложен в [10]. Теоретические исследования и моделирование явления адсорбции газов на ОСУНТ доложены в [7,8]. Соответствующие расчеты проведены, в частности, с использованием функциональной теории плотности [11]. Рассчитаны равновесное расстояние между молекулами в трубке, энергия адсорбции, перенос зарядов с NO_3 , O_2 , H_2O , NH_3 , CH_4 , CO_2 , H_2 , N_2 , и Ar на ОСУНТ. Однако количество молекул, детектируемых ОСУНТ, весьма ограничено из-за больших энергий связи и переноса заряда в нанотрубках. Некоторые газы (CO , O_2 , N_2 , и CO_2) и вода, например, физически не адсорбируются, не влияют на собственные энергетические спектры и не детектируются ОСУНТ. В случае NO_2 и NH_3 они физически адсорбируются на поверхности ОСУНТ уже при комнатной температуре. Десорбция многих газов слишком мала даже в условиях высокого вакуума, что препятствует созданию сенсоров. Очень часто необходимо резко увеличить температуру подогрева рабочего тела сенсора (операционную температуру) – иной раз вплоть до 500°C [12]. Поэтому, к сожалению, газовые сенсоры, изготовленные на основе собственных ОСУНТ, имеют такие серьезные ограничения, как малая энергия адсорбции и большие времена восстановления. Эти недостатки могут быть устранены, по крайней мере частично, путем декорирования УНТ. Известны следующие методы его реализации: декорирование поверхности УНТ

органическим материалом, легирование УНТ, использование каталитических металлических наночастиц/нанокластеров и оксидов металлов. Эти варианты обсуждаются ниже.

2. УНТ, декорированные органическими полимерами

Существуют ковалентное декорирование поверхности и ее нековалентная функционализация [13–15]. Нековалентное декорирование в основном базируется на субмолекулярной комплексации, использующей различные адсорбционные и притягивающие силы, такие как Ван-дер-Ваальсовы взаимодействия без разрушения физических свойств УНТ [16,17]. Примеры такого декорирования обсуждались в [5].

Последние достижения по декорированию УНТ газовых сенсоров органическими полимерами TS1 приведены ниже. Физические и химические свойства органических полимеров при реакции с аналитами (веществами, определяемыми при анализе) изменяются [18]. Среди таких полимеров, имеющих делокализованные зоны, которые делают их полупроводниками или высокопроводящими материалами, отметим полианилин, полипиррол и политиофен. Амперометрические, вольтамперметрические, кондуктометрические и потенциометрические сенсоры аммония, диоксида азота, монооксида углерода и летучих органических соединений (ЛОС), включающих бензол, ацетон и др., изготовлены из таких полимеров [7,19]. Проводимость изменялась из-за модуляции уровня легирования в проводящих полимерах под воздействием аналита. Редокс-взаимодействие электронно-активных аналитов имеет место или с самой основой полимера или с легирующими молекулами в нем.

Повышенная чувствительность к газам ОСУНТ с органическими полимерами доложена в [5]. Кви и др. показали, что нековалентное осаждение полиэтилена и нафтона на химические полевые транзисторы на основе ОСУНТ обеспечивает их повышенную чувствительность и селективность к NO_2 и NH_3 [20]. ОСУНТ на основе электронного полупроводника в отличие от *p*-типа способны детектировать менее 1 ppm NO_2 будучи нечувствительными к NH_3 . В отличие от покрытых полиэтиленом сенсоров нафтоновые ОСУНТ сенсоры нечувствительны к NO_2 , но показывают хорошую чувствительность к NH_3 [21]. Покрытые полиэтиленом ОСУНТ химические полевые транзисторы имели характеристики *n*-типа и использовались как CO_2 сенсоры с высокой чувствительностью, быстрым временем восстановления и полной воспроизводимостью характеристик для концентраций CO_2 в воздухе от 500 ppm до 10%. Предложены ОСУНТ-этилцеллюлоза и полиметилметакрилат сенсоры, хлорсульфон полиэтилен и гидроксипропил целлюлоза, которые были использованы для детектирования Cl_2 и HCl [7].

NH_3 сенсор, изготовленный из композитного PVP полимера и УНТ пленки, показал довольно быстрый отклик при комнатной температуре, что не

наблюдалось для УНТ сенсоров [22]. Покрытые полимером ОСУНТ сенсоры для детектирования диметил метилфосфоната реализованы в [23] с использованием различных полимеров. Синергетический эффект при детектировании кислорода и аммиака наблюдался у полипиррол-ОСУНТ композитов [24]. Модификация с полипирролом обеспечивает синергетический эффект – вышеуказанные нанокompозиты имеют в 10 раз большую чувствительность, чем сенсоры, изготовленные из отдельных компонентов.

3. УНТ сенсоры, декорированные металлическими наночастицами/нанокластерами

Элементарные Pd и Pt являются хорошо известными катализаторами с высокой растворимостью и диффузностью водорода, а также коррозиестойкостью. Они широко используются в водородных технологиях – топливных элементах, батареях и водородных сенсорах, изготовленных на основе различных металлооксидов [5,8,25,26]. Золото также найдено чувствительным к ароматным газам, содержащим пары триола и H_2S [27]. По сравнению с полимерными сенсорами декорированные металлическими наночастицами/нанокластерами сенсоры механически и химически более стабильны, устойчивы и могут работать при более высоких температурах и в агрессивных средах [28].

Многочисленные теоретические и экспериментальные исследования сфокусированы на декорировании поверхности УНТ или/и декорировании ее границ с металлическими нанокластерами [29–36]. В работе [33] теоретически установлено, что поверхности металлических кластеров могут функционировать в качестве центров реакции для адсорбции исследуемых молекул. Конг и др. [30]. Кумар и Рамапрабху [34] и Стар и др. [35] использовали декорированную платиной или палладием УНТ для детектирования водорода. Функционирующие при комнатной температуре водородные сенсоры TS12 и TS2 были изготовлены на основе наночастиц Pd ($\sim 5 \text{ \AA}$), осажденных на поверхность ОСУНТ методом распыления электронных пучков [5,37,38]. Декорированные палладием ОСУНТ показали на 50% большую чувствительность к водороду для индивидуальных сенсоров по сравнению с пучком ОСУНТ, при этом при 400 ppm водорода наблюдалось изменение сопротивления на 50%. Время отклика было 5–10 с, время восстановления – около 400 с. Адсорбированные молекулы H_2 диссоциировали на атомы водорода, которые растворялись в Pd, что приводило к понижению работы выхода Pd. Это увеличивало поток электронов из Pd в ОСУНТ и уменьшало электрическое сопротивление. Этот процесс является обратным.

Одиночные и мультиквантовые УНТ, декорированные различными металлами (Rh, Ni, Au, Pd и др.), предложены для детектирования H_2S , CH_4 , H_2 , CO , O_3 , C_6H_6 и NH_3 [36]. Некоторые из этих сенсоров функционировали даже при комнатной температуре (без нагрева рабочего тела сенсора). Так как адсорбция

малого количества газов приводит к драматическому изменению их проводимости, УНТ с гребенчатыми электродами могут быть использованы для детектирования малых концентраций газов (например, ppb-уровня) [39]. Алюминиевые кластеры на УНТ обеспечили ее чувствительность к аммонии [30,40]. Операционная температура у Ag-МСУНТ для детектирования NO_2 возросла до 150°C в потоке сухого воздуха. Модифицированные Pd-УНТ для детектирования NO_2 , NH_3 , CO_2 , CH_4 , CO и $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ работали при температуре 120°C [40]. УНТ пленки, покрытые наноразмерным Co-катализатором, выполняют детектирование NO_2 , NH_2 , CO_2 , CH_4 , CO и $\text{C}_2\text{H}_5\text{CH}$ и действуют при комнатной температуре [41].

4. Обзор предыдущих работ

Некоторые из тонких и толстых пленок оксидов металлов показывают быстрый отклик в различных газовых средах и пригодны для создания газочувствительных устройств. Полупроводниковые газовые сенсоры, изготовленные из *n*-типа полупроводниковых оксидов металлов, впервые были предложены в 1962 г. [42]. Сенсоры такого типа широко исследуются и используются уже 50 лет. Различные газовые, дымовые и ионно-селективные сенсоры исследованы и разработаны нами в ЕГУ (Ереванском государственном университете). Газовые сенсоры были изготовлены из Bi_2O_3 , SnO_2 , ZnO , TiO_2 , In_2O_3 , Ga_2O_3 , Fe_2O_3 тонких пленок и из пористого кремния [25,43–45]. Ранее были разработаны теоретические основы и практически реализованы газовые сенсоры, работающие в ряде случаев без подогрева рабочего тела сенсора. Например, в случае сенсоров, изготовленных из Bi_2O_3 , $\text{NaBiTi}_2\text{O}_6$, $\text{LaAlO}_3\text{--CaTiO}_3$, Fe_2O_3 и $\text{Bi}_2\text{V}_4\text{O}_{11}$, операционная температура была равна $20\text{--}70^\circ\text{C}$. Такие сенсоры чувствительны к дыму, парам этанола (этилового спирта) и серы, а также к парам воды (влажности). Наши Bi_2O_3 -сенсоры дыма конкурентоспособны с радиационными и оптоэлектронными датчиками дыма, используемыми сегодня в противопожарных системах [46,47]. Независимое тестирование таких сенсоров адсорбционного типа в США подтвердило перспективность их использования. Мы исследовали также фотоэлектроды, изготовленные из простых и сложных оксидов металлов, перспективные для фотоэлектрохимического преобразования солнечной энергии [48].

Существует целый ряд коммерческих газовых сенсоров, изготовленных из SnO_2 (см. например, www.figarosensor.com, www.honeywell.com, www.sinkera.com и др.). Имеющиеся на рынке сенсоры основаны на изменении их сопротивления R при контакте с газом. Достоинства таких полупроводниковых сенсоров – их довольно большая чувствительность (отклик), сравнительно простая конструкция и дешевизна. Тем не менее, коммерческие сенсоры нуждаются в высокой температуре предварительного нагрева их рабочего тела, т. е. высоком потреблении энергии, имеют малую селективность, нестабильны во времени, что ограничивает их широкое применение. Область их операционных температур $200\text{--}500^\circ\text{C}$. Например, сенсор для кислорода наиболее эффективен

при температуре 350°C [49–51]. Много коммерческих сенсоров на SnO_2 для детектирования ЛОС и горючих газов (например, CO и NO) работают при высоких температурах нагрева вплоть до 400°C. Заметим, что существующие платиновые сенсоры также нуждаются в их подогреве выше 400°C и имеют очень высокую стоимость.

Главная проблема сегодня – разработка новых полупроводниковых газовых сенсоров, работающих при комнатной (или вблизи нее) температуре рабочего тела. В дополнение, они должны быть малого объема, дешевыми и легко совместимыми с интегральными схемами. Ниже нами вкратце доложены результаты наших исследований металлооксидных и УНТ сенсоров, проведенных нами с целью снижения их рабочей температуры.

Ранее доложены результаты наших исследований металлооксидных сенсоров водорода. Существует много типов H_2 сенсоров – см., например, обзорные статьи [25,26,44,45]. Ниже рассмотрим только свойства полупроводниковых металлооксидных H_2 сенсоров. Имеем в виду, что физические и газочувствительные свойства полупроводниковых сенсоров напрямую зависят от методов и режимов их изготовления. Одной из главных целей исследований в ЕГУ является разработка наночастиц, поскольку уменьшение их размеров ведет к увеличению эффективной площади для адсорбции газа. Наноразмерные частицы, пористость пленки и большее отношение ее площади к объему обеспечивают высокую чувствительность сенсоров.

С другой стороны, ниже определенного критического размера нанокристаллита чувствительность газового сенсора резко возрастает. Это свидетельствует о том, что размер нанокристаллита становится сравнимым с толщиной двойного слоя объемного заряда для рассматриваемого полупроводника. Для

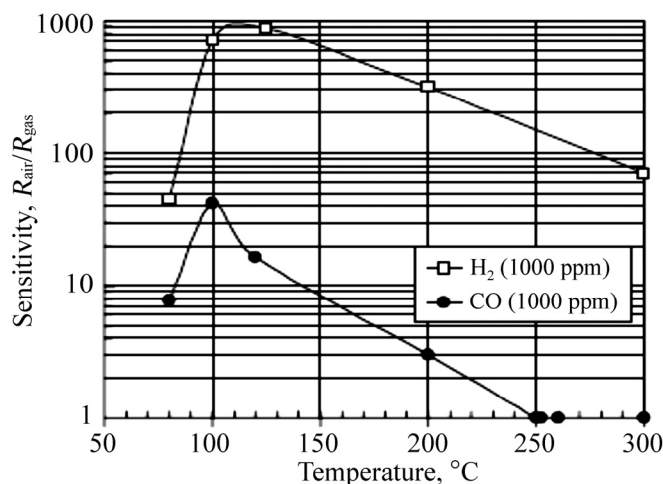


Рис.1. Отклик на H_2 или CO газы с концентрацией 1000 ppm в зависимости от рабочей температуры сенсора [25].

нанокристаллических SnO_2 пленки или порошка расчетная величина толщины слоя пространственного заряда равна примерно 3 нм. Существуют различные способы получения наночастиц требуемых размеров. Среди них метод золь-гель технологии имеет многие преимущества по сравнению с другими. Это – низкие температуры процессов при ее реализации, различные комбинации решений, лучший контроль результатов, большая удельная площадь чувствительного слоя.

Наши усилия были в основном сосредоточены на разработке и улучшении технологии получения нанокристаллического SnO_2 [52,53]. Изучен отклик сенсоров на присутствие водорода в воздухе в диапазоне рабочих температур подогрева 80–130°C, хотя и при комнатной температуре наблюдалась довольно высокая чувствительность к водороду. Для проверки селективности сенсоров исследования проводились при различных концентрациях водорода и монооксида СО (см. рис.1). Доложена другая технология получения тонких пленок SnO_2 , основанная на реактивном ионно-плазменном осаждении в присутствии смеси газов аргона и кислорода. Это ведет к улучшению адгезии чувствительных слоев этих газовых сенсоров к подложке, их надежности и долговременности функционирования. Анализ показал, что в случае получения пленок SnO_2 ионно-плазменным методом изготовленные пленки содержат частички металлического олова и субоксидов. Суперпозиция вышеуказанных технологий позволяет получить и двухслойную структуру SnO_2 с высокой адгезией пленки к подложке и высокочувствительные к газу одномерные SnO_2 наноструктуры. Сравнение параметров Figaro сенсоров #TGS 2442, 2611, 3870, и 821, Synkera Technologies Inc. (Trace H_2 Sensor P/N 701) с нашими водородными SnO_2 и пористыми кремневыми сенсорами приведена на рис.2 и в табл.1.

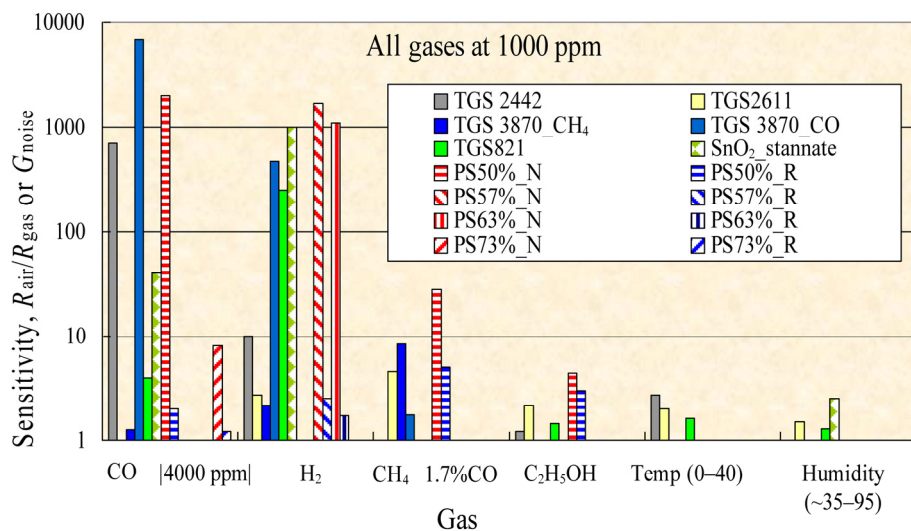


Рис.2. Отклик различных газов на газы [44]. Приведены данные для сенсоров Фигаро TGS 2442, 2611, 3870 и 821, а также золь-гель сенсора и сенсора из пористого кремния, разработанных в ЕГУ.

Табл.1.

Свойства	Обозначения	P/N 701 сенсор	Замечания	ЕГУ сенсор	Замечания	TGS 821 сенсор	Замечания
Потребляемая мощность нагревателя	P_H	~ 600 МВт	При $V_H = 5.4$ В	120 МВт	При $V_H = 3.5$ В	660 МВт	При $V_H = 5.0$ В
Напряжение нагревателя	V_H	$5.4 V_{DC}$	$T_{sens} \sim 240^\circ C$	$3.5 V_{DC}$	$120^\circ C$	5.0 ± 2 В	АС или DC
Сопротивление нагревателя	R_H	32 ± 2 Ом	Комнатная темп.	75 Ом	Комнатная темп.,	3.8 ± 3.0 Ом	Комнатная темп.
Напряжение сенсора	V_C	$5.0 V_{DC}$	Рекомендуемое	5.0	Рекомендуемое	Макс. 24 В	DC только
Чувствительность при 1000 ppm H ₂	$S (R_{air}/R_{gas})$	~ 10	—	~10 ³	—	1.6×10^2	—
Время отклика при 100 ppm	T_{res}	15 с	(90% чувствительность)	< 7 с	(90% чувствительность)	—	—

В литературе опубликованы другие обзорные работы по металлооксидным сенсорам, чувствительным к CH_x, NO_x и CO газам [25, 54–56].

5. Газовые сенсоры на основе металлооксидов, легированных катионами металлов

Ряд исследований посвящен повышению чувствительности легированных SnO₂ сенсоров [54–59] путем введения катионов переходных металлов в матрицу металлооксида, что ведет к увеличению поверхностных состояний, других активных состояний и свободных зарядов, важных для создания газовых сенсоров. Например, введение ниобия в TiO₂ увеличивает отклик к CO, так как это индуцирует формирование новых электронных состояний донорного типа. Легирование SnO₂ ванадием обеспечивает высокий отклик на CO₂ газ из-за их высокой редокс-активности при окислении CO₂ в CO₃. Легирование CuO, MoO₃ и Fe₂O₃ ведет к понижению температуры рабочего тела сенсора и увеличивает отклик к газам. Ванадиевые катионы служат в качестве возобновляемых каталитических центров при проведении окислительных реакций и увеличивают выделение кислорода [58–61]. Известно также, что дисперсированная V–O структура адсорбирует угарный газ при комнатной температуре.

6.Metalloоксид–УНТ газовые сенсоры

Технология изготовления различных металлооксид–УНТ образцов детально изучена (см. например, статьи наших венгерских и швейцарских коллег [62–71]). МСУНТ были изготовлены в [71] методом каталитического осаждения паров во вращающейся печи при температуре 720°C в потоке азота. В качестве источника углерода был использован ацетилен и как катализатор – Fe, Co/CaCO₃. Следующим этапом является осаждение тонких пленок для газовых сенсоров.

Как отмечалось выше, комбинации металлооксид–УНТ были использованы недавно как материалы для изготовления полупроводниковых газовых сенсоров, литиевых батарей и катализаторов [72–79]. Газовые сенсоры реализованы на основе SnO₂/УНТ, TiO₂/УНТ, Fe₂O₃/УНТ, WO₃/УНТ и Co₃O₄/УНТ компози- тов. Например, газовые сенсоры могут быть основаны на УНТ, покрытых SnO₂, УНТ, заполненных SnO₂ и УНТ, легированных SnO₂ [77–79]. Например, NH₃-сенсоры, созданные только на УНТ [80–81] и SnO₂ [82–86], также интенсивно изу- чались, но заметное улучшение чувствительности к газу не наблюдалось.

Упомянем только варианты изготовления таких пленок. Используя в ка- честве чувствительного материала SnO₂, смешанный с 1 вес% УНТ (100:1), были изготовлены газовые сенсоры на микроплатформах из тонких SiN_x мембран [87]. Такой материал смешивался с полимером, создавались паста и соответственно сенсоры для детектирования NO₂, NH₃ и ксилена. После проведения исследова- ний чувствительности в диапазоне температур рабочего тела сенсора от 180 до 380°C установлено, что 220°C – оптимальная температура для получения наилуч- шей чувствительности. Наносенсоры имели наилучшую селективность при мощ- ности ниже 30 мВт. При этом чувствительность к NO₂ была выше. Показано, что наибольшая чувствительность к NO₂, NH₃ и ксилену при 220°C равнялась 1.06 при концентрации газа 1.2 ppm, 0.19 при 60 ppm и 0.15 при 3.6 ppm, соответ- ственно. В результате, такие наносенсоры оказались лучше, чем SnO₂ сенсоры.

Мы использовали МСУНТ мембраны, изготовленные в ЕГУ и Универси- тете города Сегеда (Венгрия), для изготовления методом зол-гель нанокompозит- ных SnO₂/МСУНТ тонкопленочных газовых сенсоров (см. например [52]). Модификация поверхности таких гибридных сенсоров благородными металлами (Pt, Pd, Au, Ru, Rh) способствовала улучшению чувствительности и селективно- сти газовых сенсоров, поскольку такие металлы или их оксиды являются катали- заторами для реакций, имеющих место на поверхности [88,89]. Как обычно, отклик (чувствительность) МСУНТ/SnO₂/Pd сенсора к газам определяется как от- ношение электрического сопротивления сенсора в воздухе (R_{air}) к сопротивлению в присутствии газа после достижения его стационарной концентрации (R_{gas}). Уве- личение концентрации электронов в зоне проводимости полупроводника приво- дит к уменьшению его сопротивления в случае детектирования восстанови- тельных газов.

Известно, что рутений делает чувствительным SnO_2 и позволяет увеличить его чувствительность и селективность к углеводородам. Рутений стимулирует увеличение скорости окислирования и других реакций на поверхности, включая адсорбцию кислорода из воздуха на поверхность структуры, что ведет к увеличению толщины слоя пространственного заряда в приповерхностном слое полупроводника и к увеличению отклика сенсора. Наши исследования показали, что высокий отклик сенсора обеспечивается только после сенсibilизации таблеток МСУНТ/ SnO_2 в 0.01 и 0.03 водных растворах $\text{Ru}(\text{OH})\text{Cl}_3$. Изменения сопротивления сенсора были зарегистрированы в диапазоне температур нагрева его рабочего тела 100–350°C. Например, сенсоры, изготовленные из МСУНТ/ SnO_2 /Pd таблеток, сенсibilизированных в 0.03 М $\text{Ru}(\text{OH})\text{Cl}_3$ растворе в течении 20 минут, проявили высокую чувствительность к водороду и изобутану уже при 120°C (см. рис.3). Сопротивление рабочего тела сенсора (~700 кОм) уменьшалось в 10 раз за ~10 и ~30 с после инъекции изобутана и водорода, соответственно. К сожалению, при такой температуре сенсоры восстанавливаются довольно плохо. Время восстановления такого сенсора равнялось примерно 30 и 15 минут после подачи соответственно изобутана и водорода при 120°C.

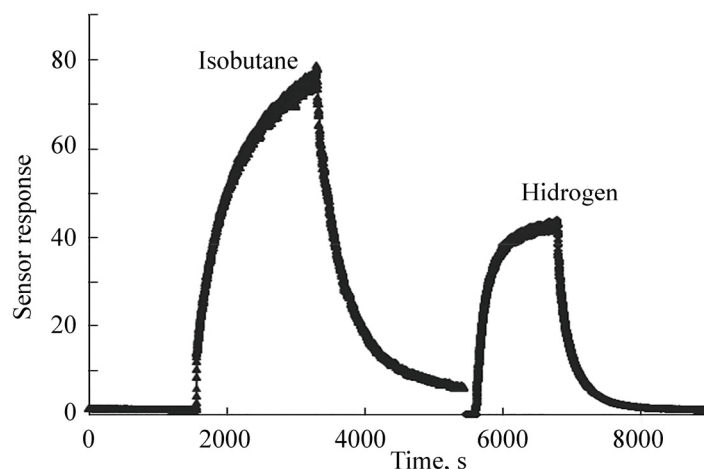


Рис.3. Чувствительность сенсора к 500 ppm водорода и изобутана для сенсора, изготовленного из нанокompозита МСУНТ/ SnO_2 /Pd, сенсibilизированного в растворе 0.03 М $\text{Ru}(\text{OH})\text{Cl}_3$ при 120°C [89].

Между тем, изобутан широко используется на практике, в том числе при охлаждении и в качестве топлива, будучи частью природного газа. Пары изобутана опасны для человека. Поэтому детектирование этого газа в окружающей среде является важной задачей. Заметим, что мы не могли детектировать этот газ сенсорами, изготовленными только из SnO_2 или УНТ. Мы установили, что отклик и селективность нанокompозита, содержащего и нефункционирующие

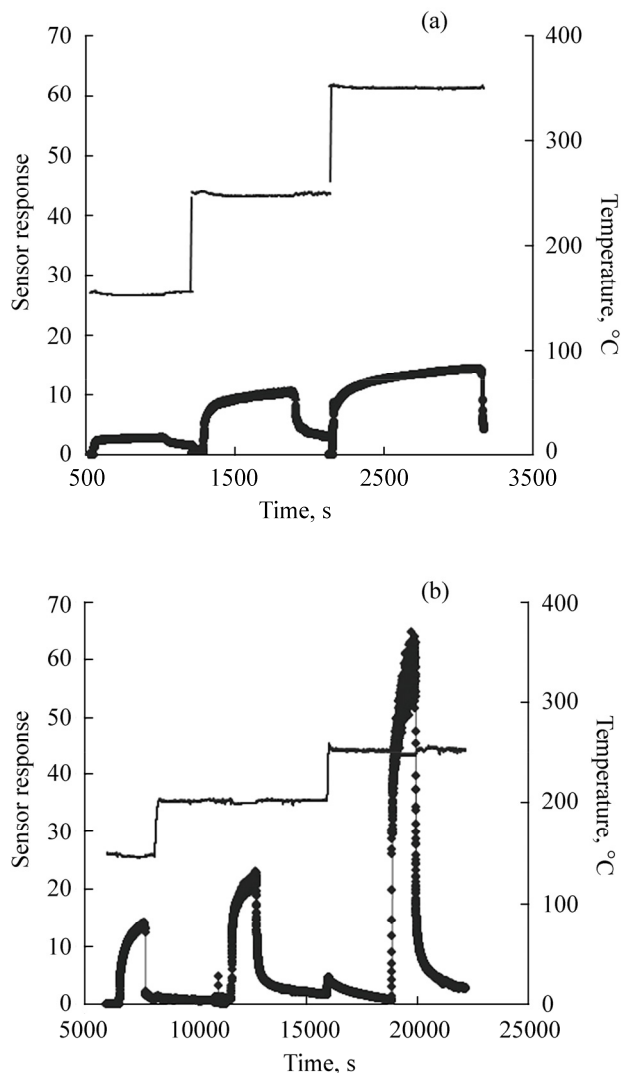


Рис.4. Чувствительность сенсора к 5000 ppm изобутана для сенсора, изготовленного из нанокompозита MCuNT/SnO₂/Pd, сенсibilизированного в растворах 0.01 М (а) и 0.03 М (б) Ru(OH)Cl₃ при различных температурах [89].

УНТ и неорганические металлооксиды SnO₂, ZnO и др., резко возрастают. Налицо синергетический эффект. Измерения отклика изобутановых сенсоров при высоких температурах свидетельствуют об их более стабильной работе. Сенсоры достигают равновесного состояния быстрее, их время восстановления уменьшается до ~10 минут (рис.4а). Время отклика сенсора увеличивается с повышением температуры рабочего тела. Чувствительность MCuNT/SnO₂ композита увеличивалась в 0.03 М Ru(OH)Cl₃ растворе (рис.4б). Однако время отклика образцов, сенсibilизированных в 0.01 М Ru(OH)Cl₃ растворе, было меньше. У

таких сенсоров оно равнялось $\sim 30\text{--}40$ сек, в то время как для образцов, сенсibilизированных в 0.03 M Ru(OH)Cl_3 растворе, оно равнялась $\sim 2\text{--}3$ минутам. Недостаток сенсора – его медленное восстановление после прекращения подачи газа. Изготовленные из МСУНТ/ SnO_2 /Pd нанокompозита и сенсibilизированные рутением сенсоры испытывались в атмосфере изобутана в течении 24 часов с целью улучшения их характеристик. Результаты измерений отклика таких сенсоров, проведенных спустя 20 минут после их вывода из среды изобутана, представлены на рис.5. Несмотря на некоторое уменьшение времени отклика улучшалось время восстановления на 2–3 минуты. Для дальнейшего улучшения характеристик сенсоров был проведен второй отжиг (при более высоких температурах – 650°C и 850°C).

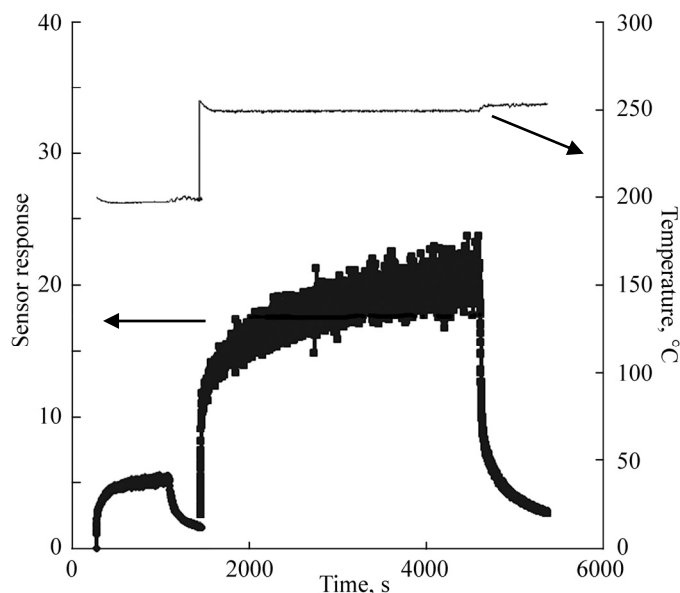


Рис.5. Чувствительность сенсора к 5000 ppm изобутана для сенсора, изготовленного из нанокompозита МСУНТ/ SnO_2 /Pd, сенсibilизированного в растворе 0.03 M Ru(OH)Cl_3 и находящегося в атмосфере изобутана при различных температурах [89].

Зависимость времени отклика МСУНТ/ SnO_2 /Pd сенсоров от концентрации изобутана почти линейна (рис.6). Времена отклика и восстановления при низких концентрациях газа были около 30–40 с. Параметры структур стабильны в течении довольно большого времени тестирования сенсоров.

Были изготовлены также толстые пленки МСУНТ/ SnO_2 нанокompозита, используя зол-гель технологию (были получены образцы с соотношением компонентов 1:50) и технологию гидротермального синтеза (образцы с соотношением 1:4 и 1:8). Такие сенсоры показали хорошую чувствительность к изобутану при температурах выше 200°C . Сенсibilизация пленок в 0.01 M Ru(OH)Cl_3 рас-

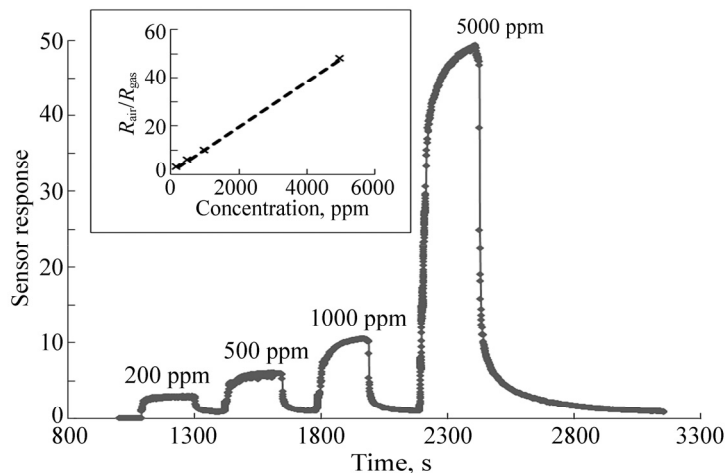


Рис.6. Чувствительность сенсора к различным концентрациям изобутана для сенсоров, изготовленных из наноструктуры МСУНТ/SnO₂/Pd с использованием биндера и сенсibilизированного в растворе 0.01 M Ru(OH)Cl₃ при 300°C [89].

творе ведет к лучшему отклику. Лучшая его величина наблюдалась при температуре рабочего тела 240°C. Времена отклика и восстановления равны ~30 с. Сенсоры были чувствительны к изобутану уже при его концентрации 200 ppm. Максимальный отклик (около 50) наблюдался при концентрации 5000 ppm. Для каждого из сенсоров была установлена оптимальная температура рабочего тела.

Анализ результатов тестирования ряда образцов без катализаторов показал их хорошую чувствительность к парам метанола и этанола. С целью повышения чувствительности и селективности этих сенсоров к парам алкоголя мы сенсibilизировали МСУНТ/SnO₂ нанокомпозиты рутениевым катализатором, что обеспечивает резкий рост отклика сенсора к парам метанола и этанола вплоть до 10³ и выше. При этом кросс-чувствительность к другим газам уменьшается. Максимальный отклик к парам метанола и этанола при операционной температуре 200°C экспоненциально уменьшается при ее увеличении до 300°C.

Заметная чувствительность к изобутану сенсоров с рутением наблюдалась начиная с концентрации газа 50 ppm. Типичные времена отклика и восстановления для таких сенсоров изобутана при операционной температуре 200°C равнялись 5–7 секундам и 1 минуте, соответственно. Увеличение температуры нагрева до 250°C привело к резкому уменьшению обоих времен до 1–2 и 10 секундам, соответственно. Чувствительность практически не менялась, поэтому, если приоритет отдается быстрому отклику, температура 250°C предпочтительна. С дальнейшим увеличением температуры (≥300°C) кислород все сильнее десорбируется с поверхности и отклик к изобутану резко уменьшается.

Нанокомпозит с рутением, содержащий большое количество SnO₂ нанокристаллитов (1:50), показывал хорошую чувствительность к парам метанола и

этанола, сохраняя чувствительность к изобутану. Примерно та же чувствительность к алкоголям (около 10^3) оставалась и в случае нанокompозита с отношением 1:8, но чувствительность к изобутану резко уменьшалась. Отклик к водороду и изобутану полностью исчезает с соответствующим уменьшением части SnO_2 в нанокompозите (при 1:4 весовом соотношении компонент).

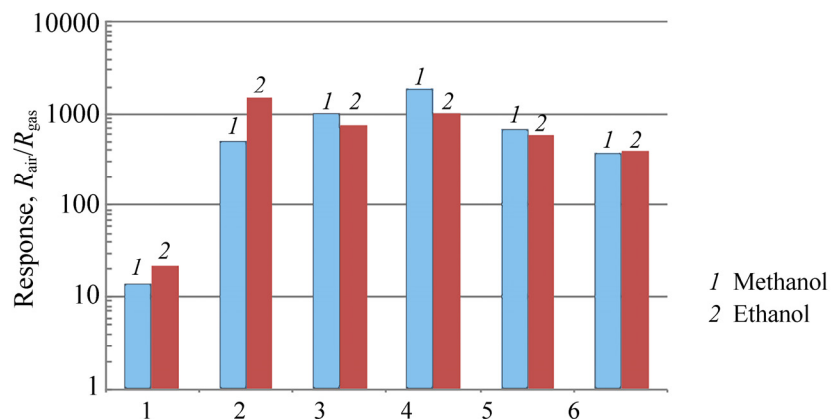


Рис.7. Отклик на пары метанола и этанола с концентрацией 1000 ppm при рабочей температуре сенсора 200°C [90].

Толсто пленочные сенсоры ЛОС на основе $\text{MCuNT}/\text{SnO}_2$ с рутением были изготовлены тремя способами – гидротермальным, золь-гель и их комбинацией. Показано, что оптимальные условия для использования ацетонных, толуоловых, этаноловых и метаноловых сенсоров из-за их высокой чувствительности и селективности зависят от метода изготовления, соотношения масс компонентов в нанокompозите и выбранной рабочей температуры (рис.7,8) [90]. Сенсорные структуры $\text{MCuNT}/\text{SnO}_2$, имеющие соотношение масс в компаундах 1:4 и 1:24, показали селективную чувствительность к парам ацетона и толуола, соответственно, при операционной температуре 150°C. Образцы с соотношением масс 1:200 были селективными и чувствительными к парам ацетона при рабочих температурах 200–250°C. Высокая чувствительность к парам метана и этана выявлена у структур, изготовленных различными методами с соотношением масс 1:8, 1:24, 1:50 и 1:66 при рабочей температуре 200°C [90].

С увеличением рабочей температуры отклик к парам ацетона возрастает до 360.4 при температуре 250°C, при этом селективность остается существенно высокой. Наибольший отклик к парам ацетона ($R_{\text{air}}/R_{\text{gas}} = 555.62$) в установившемся режиме зафиксирован для образцов с соотношением компонент 1:200 при 1000 ppm паров и рабочей температуре 250°C (рис.8). Времена отклика и восстановления соответственно равны 22 и 27 секундам.

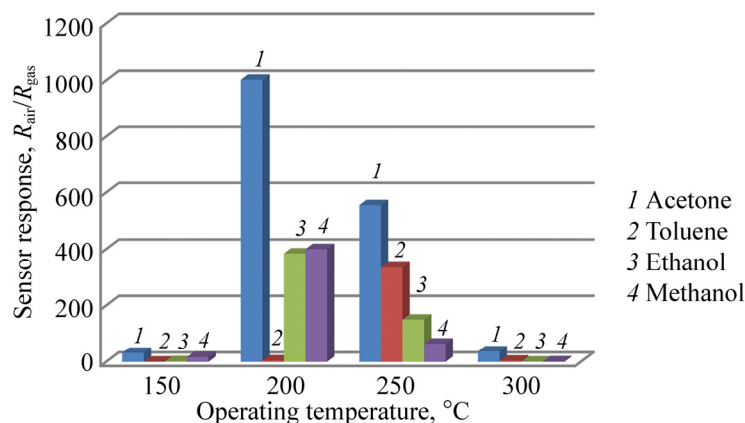


Рис.8. Отклик образцов на летучие органические газы (ЛОС) в зависимости от рабочей температуры [90].

Тонкопленочные этаноловые сенсоры на основе $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3/\text{МСУНТ}$ (25:1) были изготовлены методом распыления электронным пучком [91]. Отклик сенсоров был исследован при различных концентрациях газов и рабочих температурах. Продемонстрирован хороший отклик изготовленных сенсоров к парам этанола уже при температуре рабочего тела 150°C (рис.9–14).

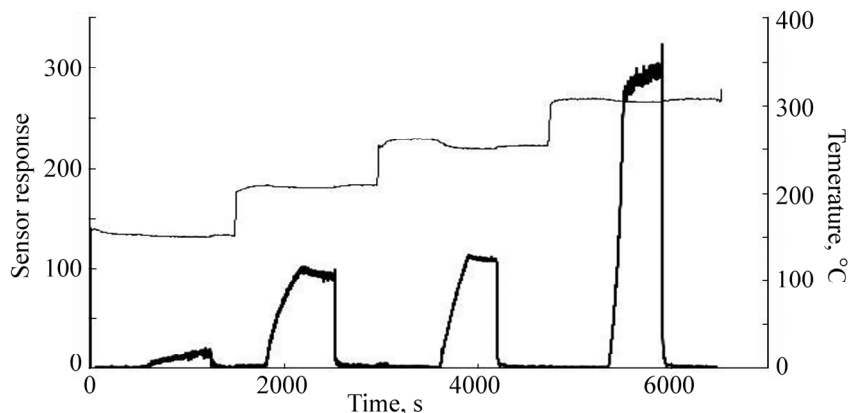


Рис.9. Отклик на пары этанола сенсоров, изготовленных из МСУНТ, декорированных $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$, при различных температурах рабочего тела сенсора. Концентрация паров этанола была равна 5000 ppm. Данные о температуре рабочего тела приведены на рисунке на правой оси, об отклике – на левой оси [91].

Одномерные (1D коаксиальные) $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{МСУНТ}$ -сенсоры были синтезированы в [92] методом осаждения атомных слоев с использованием в качестве прекурсоров ферроцена и кислорода. УНТ необходимо химически модифицировать. Легированные азотом УНТ были введены в указанные выше пленки Fe_2O_3 . Различные 1D-гетероструктурные коаксиальные УНТ были получены путем хорошо

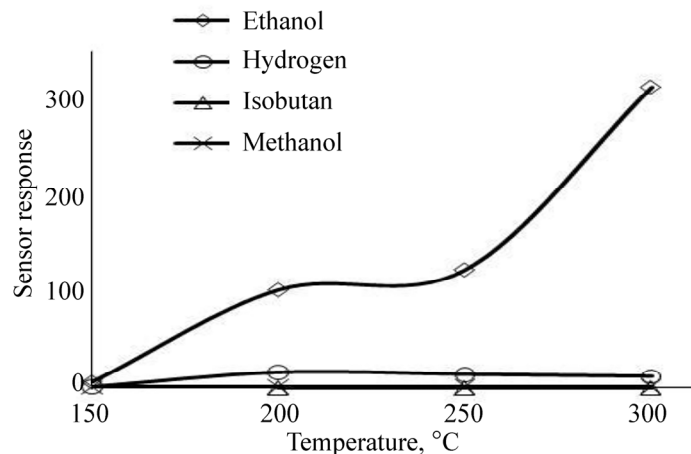


Рис.10. Отклик на тестируемые газы для сенсоров из ОСУНТ, декорированных $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ при различных температурах рабочего тела. Концентрация газа – 5000 ppm [91].

контролируемого роста Fe_2O_3 на N-УНТ. Такие трубки могут найти широкое применение в областях фотокатализа, газовых сенсоров и магнитоэлектронике.

Наноккомпозиты $\text{Co}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Fe}_2\text{O}_4/\text{МСУНТ}$ ($x = 0.2, 0.4, 0.5, 0.6, 0.8$) синтезировались зольтермическим методом, используя в качестве растворителя этиленгликоль. Такие наноккомпозиты имели высокую селективность к аммонии [93].

Композитная пленка из нанослоя оксида кобальта и УНТ, которая была изготовлена с использованием преципитационно-окислительного метода, изменяла сопротивление при адсорбции и десорбции СО газа [94]. Адсорбция малого количества СО вела к большому изменению проводимости УНТ. Следовательно, УНТ может детектировать малые концентрации газа (низкого ppb уровня). Такой микро СО сенсор был интегрирован с соответствующей управляющей цепью по коммерческой 0.35 мкм МОП технологии. Управляющая цепь использовалась для конвертации сопротивления сенсора в напряжение. Преимущества сенсора –

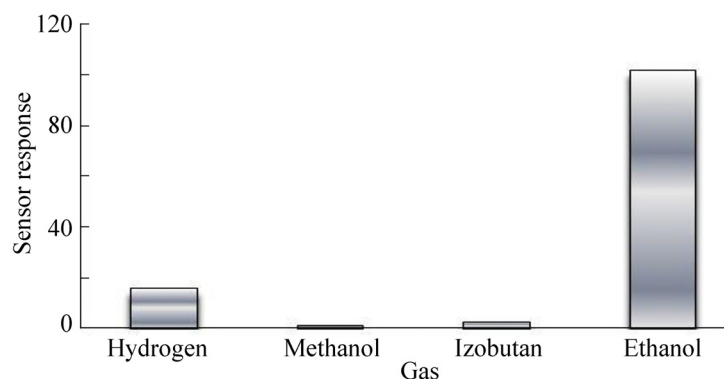


Рис.11. Чувствительность сенсоров, изготовленных из структуры $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3/\text{МСУНТ}$ (25:1) при 200°C [91].

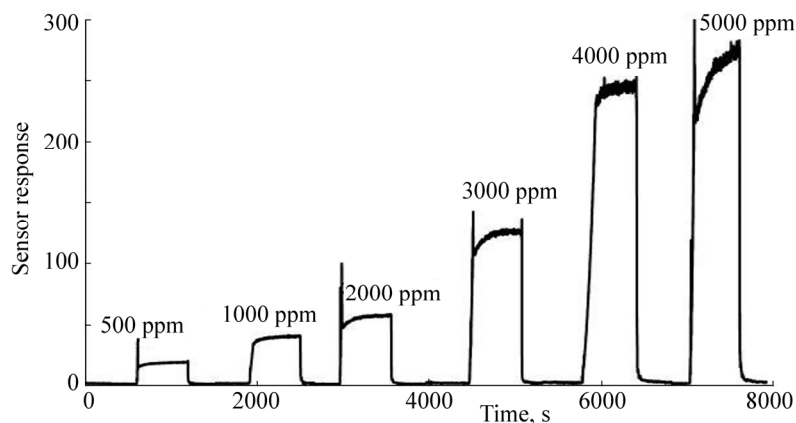


Рис.12. Отклик сенсоров, изготовленных из наноструктуры $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3/\text{МСУНТ}$ (25:1) при различных концентрациях паров этанола. Температура рабочего тела сенсора – 300°C [91].

работа при комнатной температуре, быстрый отклик и простота последующих процессов. Чувствительность сенсора к CO была равна 0.19 при 34 мВ/ppm, а времена отклика и восстановления были равны 23 и 34 секундам, соответственно, при 200 ppm CO.

Нанокompозитные структуры, изготовленные из оксида кобальта и ОСУНТ для детектирования газов NO_x и H_2 , имели 200%-ный отклик при 4% H_2 при комнатной температуре [95].

Оксид меди–УНТ пленочные газовые сенсоры этанола были изготовлены методами CVD (МСУНТ) и магнетронного распыления на постоянном токе (CuO пленки). Максимальный отклик сенсора наблюдался при температуре рабочего тела ~400°C [96].

Сенсоры на основе нелегированного и легированного WO_3 1%-ного МСУНТ были изготовлены с использованием методов смешанной мощности и

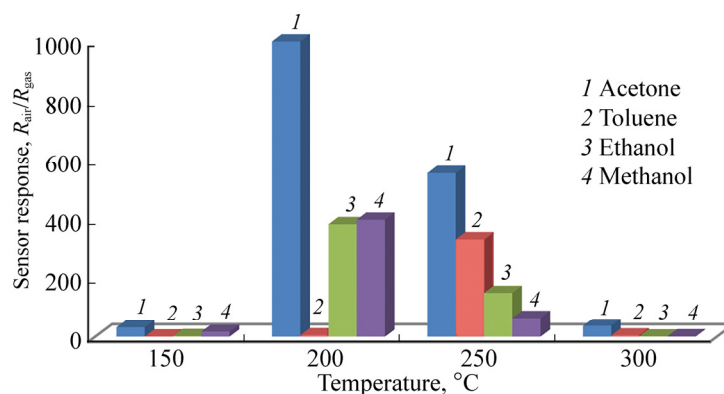


Рис.13. Отклик образцов к 1000 ppm ЛОС газам при различных рабочих температурах [91].

электронного распыления [97]. Чувствительность водороду наблюдалась в диапазоне 100–50000 ppm. Полученные результаты свидетельствуют, что тонкие пленки WO_3/MCYNT имели высокую чувствительность к водороду при пониженной рабочей температуре [98,99].

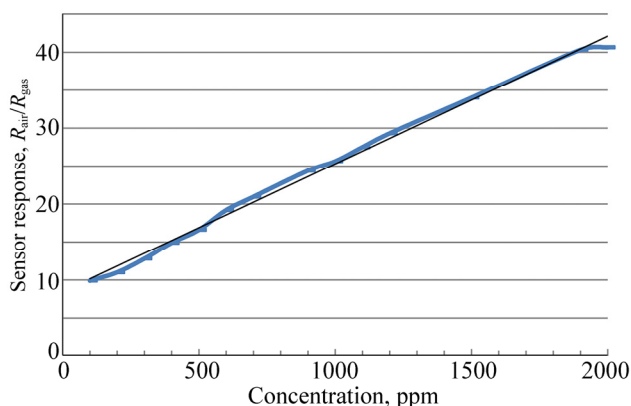


Рис.14. Зависимость отклика сенсора от концентрации паров ацетона [91].

7. Сенсоры, функционирующие при комнатной температуре

Представленные выше сенсоры функционируют при нагреве их рабочего тела. Лишь немногие авторы наблюдали некоторые газы, используя сенсоры без подогрева рабочего тела. Как отмечалось выше, NH_3 сенсор, изготовленный из композитного PVP полимера и УНТ пленки, показал довольно быстрый отклик при комнатной температуре [22]. Функционирующие при комнатной температуре водородные сенсоры были изготовлены на основе Pd наночастиц ($\sim 5 \text{ \AA}$), осажденных на поверхность ОСУНТ методом распыления электронным пучком [5,37]. Декорированные палладием ОСУНТ показали на 50% большую чувствительность к водороду для индивидуальных сенсоров по сравнению с пучком ОСУНТ, при этом при 400 ppm водорода наблюдалось 50%-ное изменение сопротивления. Время отклика было 5–10 с, время восстановления – около 400 с. Адсорбированные молекулы диссоциировали на атомы водорода, которые растворялись в Pd, что приводило к понижению работы выхода Pd. Это увеличивало поток электронов из Pd в ОСУНТ и уменьшало электрическое сопротивление. Этот процесс – обратимый.

Ниже будет показано, какие сенсоры имели лучший отклик и меньшие времена восстановления и отклика, чем изготовленные только на металлооксиде (например, SnO_2) и УНТ. Нанокompозитный сенсор аммиака $\text{SnO}_2/\text{MCYNT}$, функционирующий при комнатной температуре, был изготовлен в [100] по стандартной тонкопленочной микроэлектронной технологии, используя и УНТ и

SnO₂. При комнатной температуре такой наносенсор проявлял высокую чувствительность к аммиаку и более быстрое время восстановления (менее 5 минут) в диапазоне газа от 60 до 800 ppm в сравнении с основанным только на УНТ сенсоре аммиака. 10 вес%-ный МСУНТ/SnO₂ композит был кальцинирован при 500°C в вакууме при 10⁻² торр. Как и ожидалось, сопротивление сенсора увеличивалось при его экспозиции в среде аммиака.

Увеличение сопротивления может быть следствием того, что композитный чувствительный слой становится полупроводником *p*-типа. Возможно, отклик композитного сенсора, в основном, может быть обеспечен МСУНТ, который, как хорошо известно, становится полупроводником *p*-типа [80–83]. По сравнению с УНТ сенсором аммиака [82,84] и таковым на основе SnO₂ [84–86], доложенным ранее, основанные на композите SnO₂/МСУНТ сенсоры имеют больший отклик к аммиаку уже при комнатной температуре.

Сенсоры, изготовленные из легированного SnO₂/МСУНТ композита, для детектирования NO₂ при комнатной температуре доложены в [100]. Ранее было показано [78,101,102], что введение УНТ в матрицу SnO₂ приводит к резкому увеличению отклика сенсора при очень малых рабочих температурах и даже при комнатной температуре. Возможно, главной причиной такого роста отклика является сосуществование двух различных обедненных слоев и соответствующих потенциальных барьеров [78,101]: одного на поверхности металлооксидных зерен и второго на границе раздела МСУНТ и металлооксида. Легированные азотом или бором УНТ, добавленные в матрицу SnO₂, увеличивали проводимость нанотрубок. Такой гибридный сенсор регистрировал концентрацию NO₂ в воздухе и демонстрировал по меньшей мере в 10 раз больший отклик к NO₂ при комнатной температуре по сравнению с сенсорами из «чистого» SnO₂ или легированного N или B УНТ. Легированные азотом МСУНТ сенсоры имели повышенные времена отклика и восстановления (порядка нескольких секунд).

В [103] показано, что SnO₂/МСУНТ композитные сенсоры в отличие от сенсоров, изготовленных на «чистых» диоксиде олова и УНТ, чувствуют двуокись азота и угарный газ. Такие гибридные сенсоры газочувствительны даже при комнатной температуре. Время восстановления в случае детектирования 1 ppm NO₂ было равно 4 и 3 минутам при функционировании при комнатной температуре и при 150°C, соответственно. Сенсоры, изготовленные из смеси промежуточного количества прекурсора двуокиси олова (20 мл) с 12 мг обработанной в окислительной плазме МСУНТ, также были чувствительны к угарному газу. Но чувствительность к нему значительно ниже, чем к двуокиси азота. Время отклика к 2 ppm CO равнялось 5 минутам. Такие сенсоры показывают понижение сопротивления при экспозиции СО при комнатной температуре. Этот результат согласуется с наблюдениями, полученными Жао и др. [104], Янгом и др. [105] и Лу и др. [106], и объясняются понижением работы выхода двуокиси олова в присутствии СО и уменьшением ее сопротивления.

Материал $\text{Co}_3\text{O}_4\text{--SnO}_2$ был использован в [107]. Его максимальный отклик в диапазоне температур 25–100°C наблюдался при 25°C. Легирование $\text{Co}_3\text{O}_4\text{--SnO}_2$ 0.1%-ным УНТ увеличивает отклик к CO в диапазоне от 20 ppm до 1000 ppm.

Легированные платиной $\text{TiO}_2/\text{МСУНТ}$ композиты были получены золь-гель методом, использованы в качестве газочувствительных слоев резистивных сенсоров и протестированы [108]. Безотносительно от соотношения C/Ti формируется только анатазная фаза TiO_2 . Установлено, что наилучшими были образцы $\text{TiO}_2/\text{МСУНТ}$ композита с соотношением C/Ti от 3.5 до 17.0. Чувствительность к 0.5–3% водорода имела место только у Pt/ $\text{TiO}_2/\text{МСУНТ}$ сенсоров, что делает их перспективными в качестве детекторов утечки водорода.

Возможно также изготовление сенсоров из ОСУНТ. Сенсоры на базе $\text{SnO}_2/\text{ОСУНТ}$, полученных дуговым разрядом, предложены для детектирования NH_3 и O_3 при комнатной температуре [109,110]. Здесь также налицо синергетический эффект. Предел детектирования при комнатной температуре был ниже 20 ppb для NH_3 и O_3 . Быстрый отклик (несколько минут) и полное восстановление наблюдались при комнатной температуре. Водородный наносенсор на основе $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{ОСУНТ}$, работающий вплоть до 4% водорода при комнатной температуре, предложен в работе [111].

Нанокompозиты $\text{Co}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Fe}_2\text{O}_4/\text{МСУНТ}$ ($x = 0.2, 0.4, 0.5, 0.6, 0.8$) были синтезированы зольотермическим методом с использованием этиленгликоля в качестве растворителя. Такие нанокompозиты имели высокую чувствительность к аммиаку. Композитная пленка из наноксидов кобальта и УНТ (CoOOH/CNT), изготовленная преципитационно-окислительным методом, меняла сопротивление, когда пленка адсорбировала или десорбировала угарный газ. Адсорбция его малого количества (низкий ppb уровень) вела к значительному изменению проводимости УНТ. Такой микро CO сенсор был интегрирован с соответствующей схемой, изготовленной с использованием коммерческой 0.35 мкм МОП технологии и последующего процесса. Схема конвертировала значения сопротивления в напряжение. Последующий процесс включал соответствующее травление и покрытие газочувствительной пленкой. Сенсор функционировал при комнатной температуре, наблюдались малые времена отклика и восстановления (23 и 34 с при 200 ppm CO, соответственно).

В табл.2 сведены лучшие результаты, полученные на сенсорах из различных металлооксидов.

8. Сенсоры на основе металлооксида и графена

Такие материалы весьма перспективны для создания функционирующих при комнатной температуре газовых сенсоров из-за очень высокой подвижности

Табл.2.

Материал	Темп., °C	Концентр. газа, ppm	Времена отклика/восстан., сек	Литература	Детектир. газы
SnO ₂ -МСУНТ/Pd/Ru золь-гель 0.03 M Ru(OH)Cl ₃	120	200	10/1800 30/900 30–40/180–120	[88,89]	Изобутан, водород
SnO ₂ МСУНТ / Ru золь-гель 1:50 гидротерм. 1:4 и 1:8		200 250	5–7/60 1–2/10	[88,89]	CH ₃ OH, C ₂ H ₅ OH, изобутан
SnO ₂ -ОСУНТ золь-гель	КТ	1 < 20 ppb		[109]	NH ₃ , O ₃
SnO ₂ <N или B>/МСУНТ высокая селективность	КТ			[99]	NO ₂ , NH ₃ , CO
ОСУНТ/Pd, Pt				[37]	CO, NO
УНТ/Pt	120	50 ppb в NO ₂		[40]	NO ₂ , NH ₃ , CO ₂ , CH ₄ , H ₂
Co _{1-x} N _x Fe ₂ O ₄ /МСУНТ x = 0.2; 0.4; 0.5; 0.6; 0.8				[93]	NH ₃
CoOOH/УНТ СМОП <Pd> <Au, Ag>	КТ 150		23/34	[41,99]	CO (200 ppm), H ₂ , NO ₂ (500 ppm)
SnO ₂ <PtO ₂ , PdO, La ₂ O ₃ , CuO, Fe ₂ O ₃ > /МСУНТ ле- гир. 1 вес%				[59]	C ₂ H ₅ OH, жидкий нефтяной газ
Rh/МСУНТ (Rh, Ni, Au)/УНТ/Pd	КТ			[36]	NO ₂ , C ₂ H ₄ , CO, H ₂ , H ₂ S, C ₆ H ₆ , CH ₄ , NH ₃
SnO ₂ -МСУНТ (1%) е-пучок	180–380			[87]	Ксилен, NO ₂ , NH ₃ , CO
УНТ/Pd	120/КТ		60	[38]	O ₃ /H ₂
ОСУНТ/polyurethane				[24]	
Pt-TiO ₂ /МСУНТ золь-гель	Ок. КТ			[108]	H ₂
Fe ₂ O ₃ <N> 1D/УНТ				[92]	
CuO/МСУНТ	400–407			[96]	
SnO ₂ -МСУНТ кислород. плазма	КТ, 150		< 5 мин	[102]	NO ₂ , CO, NH ₃
Co ₃ O ₄ /SnO ₂ /УНТ 4:1	25-100			[106]	CO
rGO/УНТ/ SnO ₂	КТ		8/77	[116]	Ацетон, H ₂ S, NO ₂
МСУНТ-SnO ₂ (1:4, 1:24) 1:200 1:8, 1:50; 1:66	150 200–250 200			[90]	Ацетон, C ₂ H ₅ OH, толуол, CH ₃ OH

носителей заряда в графене при комнатной температуре, значительного изменения сопротивления образцов при адсорбции и десорбции различных газов, большой площади поверхности, хорошей физической и химической стабильности графена. «Чистый» графен может быть изготовлен различными методами и используется для детектирования газов при комнатной температуре. Газовые сенсоры на графене обсуждались нами ранее в работе [112]. Но сенсоры из восстановленного оксида графена (rGO) имеют недостатки – низкий отклик и большое время восстановления, что ограничивает их применение. Недавно двуокись олова SnO₂ как известный материал для реализации газочувствительных

структур был использован для модификации rGO для увеличения его чувствительности. Хорошо ориентированные нанопалочки SnO₂ на слое графена [113], SnO₂ наночастички/rGO [114–115] и SnO₂ нановолокна, декорированные rGO [116], успешно использованные для детектирования ацетона, водорода и двуокиси азота, требуют высоких температур нагрева. SnO₂–rGO гибридные сенсоры также были использованы для детектирования газов при низких температурах (даже комнатной температуре), но, к сожалению, важнейшие для сенсоров характеристики (чувствительность, времена отклика и восстановления) нуждаются в значительном их улучшении для удовлетворения критериям, необходимым для практического применения.

МСУНТ были введены в SnO₂–rGO гибриды [117], rGO–МСУНТ–SnO₂ гибриды были изготовлены гидротермальным методом. Сравнение их характеристик с известными металлооксид–rGO сенсорами для двуокиси азота показали, что они значительно улучшались после введения УНТ. NO₂ сенсоры, функционирующие при комнатной температуре, были изготовлены после осаждения дисперсии rGO–CNT–SnO₂ гибрида на керамическую подложку с предварительно напечатанными золотыми электродами. Такой гибридный сенсор продемонстрировал более высокую чувствительность, малые времена отклика и восстановления и лучшую стабильность по сравнению с NO₂ сенсорами на «чистом rGO» и rGO–SnO₂ гибриде.

9. О механизме отклика декорированных сенсоров к газам

Сегодня стало очевидным, что легирование металлооксидами УНТ ведет к лучшей чувствительности и меньшей температуре нагрева рабочего тела такого гибридного сенсора. Сегодня невозможно представить полную картину сложных процессов и явлений в таких структурах. Обратим внимание на следующее. МСУНТ имеют развитую поверхность и наноразмерную структуру, что обеспечивает большое количество состояний, с которыми могут реагировать газы. Детектирование различных газов может быть осуществлено при низких температурах нагрева рабочего тела сенсора. Электропроводность УНТ существенно выше по сравнению с электропроводностью металлооксидов, что может быть использовано для увеличения чувствительности газовых микросенсоров. Чаще всего УНТ приводят к уменьшению сопротивления результирующего композита. Частицы металлооксида, в основном, контролируют газочувствительность. Так как металлооксиды являются, в основном, полупроводниками *n*-типа, а МСУНТ – *p*-типа, существуют два обедненных слоя в этих гибридных пленках. Отметим, что первый обедненный слой локализован у поверхности металлооксида, второй – на границе раздела наночастица металлооксида – МСУНТ.

Создание наноканалов и формирование гетеропереходов приводит к увеличению чувствительности таких сенсоров, так как изменения высоты барьера

или проводимости чувствительного слоя металлооксида модулируют сопротивление. Последнее может быть причиной улучшения чувствительности газового сенсора при более низких температурах нагрева его рабочего тела. Чем выше концентрация УНТ, тем больше носителей заряда в наноструктуре. Когда МСУНТ/SnO₂ композит контактирует с NH₃ газом, молекулы NH₃ могут замещать предварительно адсорбированный кислород. Поэтому потенциальный барьер гетероперехода МСУНТ/SnO₂ может модулироваться, а проводимость композита меняться при контакте с аммиаком.

Конечно, обсужденные возможные механизмы требуют дальнейших уточнений и подтверждений на опыте и в теории. Отклик композитного тонкопленочного газового сенсора к тому же сильно зависит от технологии изготовления чувствительного материала. Например, если содержание МСУНТ 15%, диаметр трубок 60–100 нм, температура кальцинации 530°C при вакууме 10⁻² торр, толщина пленки 400 нм оптимальна. Этот результат подразумевает, что режимы технологии каждый раз должны быть оптимизированы.

10. Заключение

1. Использование «чистых» УНТ для создания газовых сенсоров неперспективно. Необходима их функционализация.
2. Декорирование УНТ может быть осуществлено с помощью органических материалов. Повышенная чувствительность и селективность детектирования NO₂, CO₂, NH₃, CH_x, диметиндиметилфосфата наблюдалась у УНТ, покрытой полиэтиленимином, полианилином и полипирролом.
3. УНТ газовые сенсоры, декорированные металлическими наночастицами/нанокластерами (платины, палладия, родия, никеля и золота), позволяют реализовать хорошие H₂, CH₄, CO, O₃, C₆H₆, NH₃, NO₂, C₂H₅OH и H₂S сенсоры (в некоторых случаях до их ppb уровня).
4. Композиты из металлооксидов, декорированных УНТ, очень чувствительны к многим газам. Большинство работ выполнено на УНТ, декорированных SnO₂. Модификация поверхности таких наносенсоров благородными металлами (Pt, Pd, Au, Rd, Ru) способствует значительному улучшению чувствительности и селективности сенсоров.
5. Наибольшие отклик, селективность и стабильность, а также времена отклика и восстановления наблюдались на МСУНТ/SnO₂/Pd гибридных сенсорах, сенсibilизированных рутением. При этом сенсibilизация УНТ–SnO₂ сенсоров в водных растворах Ru(OH)Cl₃ обеспечивает не только высокую чувствительность к водороду. Впервые измерен отклик нанокompозитных сенсоров к изобутану. Он отсутствует у сенсоров, изготовленных на основе и «чистого» УНТ и SnO₂ сенсоров, в случае же сенсора изобутана на основе

композита УНТ–SnO₂ наблюдается синергетический эффект и высокая чувствительность к изобутану, а также понижение температуры подогрева рабочего тела до 150–2000°C.

6. Такие сенсоры чувствительны к парам летучих органических соединений (ацетону, толуолу, парам этилового и метилового спиртов).
7. Тонкопленочные (в том числе, одномерные) сенсоры этанола были изготовлены также на основе УНТ–Fe₂O₃, а датчики водорода, горючего газа и NO_x – на УНТ с окисью кобальта, меди и двуокиси титана.
8. Значительный интерес вызвали разработки наносенсоров, функционирующих без подогрева (при комнатной температуре). Это – 10% SnO₂–УНТ нанокompозитный сенсор аммиака и двуокиси азота. Легирование УНТ азотом или бором и синтез его с металлооксидом SnO₂ позволяет резко увеличить проводимость наносенсора, его чувствительность к CO и NO₂. Наносенсоры на основе Co₃O₄–SnO₂, Pt//TiO₂/УНТ были чувствительны к водороду, NH₃ и O₃ на уровне концентрации газа 20 ppb.
9. Наносенсоры на основе вышеуказанных выше композитов металлооксид–УНТ имеют более высокое быстродействие (низкие времена включения и восстановления).
10. Гибридные SnO₂–восстановленный оксид графена rGO/ и rGO–УНТ–SnO₂ сенсоры также функционируют без подогрева.
11. Очевидно, что легирование УНТ металлооксидами ведет к увеличению чувствительности к газам, лучшему быстродействию наносенсоров и понижению температуры нагрева их рабочего тела (вплоть до комнатной температуры, когда предварительный нагрев не требуется). Обсужден возможный механизм отклика разработанных сенсоров. Несомненно, что различный тип проводимости металлооксидов и УНТ, изменение работы выхода (потенциального барьера) сенсора и параметров формируемых гетеропереходов необходимо детально изучить при анализе сложных процессов и явлений, имеющих место в исследуемых газочувствительных структурах.

Выражаю свою благодарность со-авторам публикаций в Армении, Венгрии, США и Швейцарии за многолетнее сотрудничество и плодотворные обсуждения.

Настоящая работа выполнена в рамках проектов NATO EAP.SFPP 984.587 и 13-1C075 ГК МОН РА.

ЛИТЕРАТУРА

1. S. Iijima. Letters to Nature, **354**, 56 (1991).
2. P.J.F. Harris. Carbon Nanotubes and Related Structures. Cambridge University Press, 1999.
3. Carbon Nanotubes. M. Endo, S. Iijima, M.S. Dresselhaus, eds., Pergamon Press, 1996.

4. **B. Mahar, C. Laslau, R. Yip, Y. Sun.** IEEE Sensors, **7**, 266 (2007).
5. **T. Zhang, S. Mubeen, N.V. Myung, M.A. Deshusses.** Nanotechnology, **19**, 332001 (2008).
6. **Ch. Li, E. Thostenson, T.W. Chou.** Composites Science and Technology, **68**, 1227 (2008).
7. **Y. Wang, J.T.W. Yeow.** Sensors, **2009**, 493904 (2009).
8. **A. Goldoni, L. Petaccia, S. Lizzit, R. Larciprete.** J. Phys. Condens. Matter, **22**, 0123001 (2010).
9. **M. Meyyappan.** Carbon Nanotubes: Science and Applications. Boca Baton Fl, CRC Press, 2005.
10. **W. Li, N.D. Hoa, D. Kim.** Sensors and Actuators B, **149**, 184 (2010).
11. **J.J. Zhao, A. Buldum, J. Han, J.P. Lu.** Nanotechnology, **13**, 195 (2002).
12. **J. Kong, N.R. Franklin, C.W. Zhou et al.** Science, **287**, 622 (2000).
13. **J. Chen, M.A. Hamon, H. Hu et al.** Science, **282**, 95 (1998).
14. **M.A. Hamon, P. Brownik et al.** Chem. Phys. Lett., **347**, 8 (2001).
15. **Ch. Gao, J. Zheng, H. Kong et al.** J. Phys. Chem. B, **109**, 11925 (2005).
16. **A. Star, J.F. Stoddart, D. Steuerman et al.** Angew. Chem., **113**, 1771 (2001).
17. **F.L. Jin, S.J. Park.** Carbon Letters, **12**, 57 (2011).
18. **Y. Osada, D.E. Rossi.** Polymer Sensors and Actuators. Berlin, Springer, 2000.
19. **J. Janata, M. Jozowicz.** Nat. Mater, **2**, 19 (2003).
20. **P.F. Qi, O. Vermesh, M. Crecu et al.** Nano Lett., **3**, 347 (2003).
21. **A. Star, T.R. Han, V. Joshi et al.** Adv. Mater., **16**, 2049 (2004).
22. **M. Joshi, R.P. Singh.** Sensors and Actuators B, **135**, 656 (2009).
23. **C.R. Field, J. Yeomb, A. Salehi-Khojina, R.I. Masela.** Sensors and Actuators B, **148**, 315 (2010).
24. **D.N. Huyen, N.T. Tung, T.D. Vinh, N.D. Thien.** Sensors, **12**, 7954 (2012).
25. **V. Aroutiounian.** Hydrogen sensors, In: Encyclopedia of Nanoscience and Nanotechnology. CRC Press, 2014; V. Aroutiounian, Int. Sci. J. Altern. Energy and Ecology, **3**, 21 (2005); V. Aroutiounian. Int. J. Hydrogen Energy, **32**, 1145 (2007).
26. **T. Huebert, L. Boon-Brett, G. Black, U. Banach.** Sensors and Actuators B, **157**, 329 (2011); H. Cu, Zh. Wang, Y. Hu. Sensors, **12**, 4417 (2012).
27. **J.D. Galipeau, R.S. Falkoner, J.F. Vetelino et al.** Sensors and Actuators B, **24**, 49 (1995).
28. **A. Ruez, J. Arbiol, A. Citera et al.** Mater. Sci. Eng. C, **19**, 105 (2002).
29. **A. Leghrib, F. Felten.** Carbon, **48**, 3477 (2010).
30. **M.G. Kong, H.D. Chapline.** Adv. Mater., **13**, 1384 (2001).
31. **J.-C. Charlier, L. Arnaud, I.V. Aivilov et al.** Nanotechnology, **20**, 375501 (2009).
32. **D.R. Kauffman, D.C. Sorescu, D.P. Schofield et al.** Nano Lett., **10**, 958 (2010).
33. **Q. Zhao, M.B. Nardelli, W. Lu, J. Bernhoc.** Nano Lett., **5**, 847 (2005).
34. **M.K. Kumar, S. Ramaprabhu.** J. Phys. Chem. B, **110**, 11291 (2006).
35. **A. Star, V. Joshi, S. Skarupo et al.** J. Phys. Chem. B, **110**, 21014 (2006).
36. **R. Leghrib, T. Dufour, F. Demoisson et al.** Sensors and Actuators B, **160**, 974 (2011).
37. **K. Li, W. Wang, D. Cao.** Sensors and Actuators B, **159**, 171 (2011).
38. **S.C. Colindres, K. Aguir, F.C. Sodi et al.** Sensors, **14**, 6806 (2014).
39. **L. Valentini, C. Cantalini, I. Armentano et al.** Diamond Relat. Mater., **13**, 1301 (2004).
40. **M. Penza, R. Rossi, M. Alvisi et al.** Thin Solid Films, **520**, 9590965 (2011).
41. **C.-L. Dai, Y.-C. Chen, C.-C. Wu, C.-F. Kuo.** Sensors, **10**, 1753 (2010).
42. **N. Taguchi.** Patent Japan No. 45-38200, 1962; Chemical Sensors. T. Seiyama, ed., Tokyo, Kodasha Ltd. and Elsevier, 1981.

43. **В.М. Арутюнян.** Микроэлектроника, **20**, 337 (1991).
44. **V. Aroutiounian.** Porous silicon gas sensors, in Semiconductor gas sensors. R. Jaaniso, ed., Woodhead Publishing, 2013.
45. **V.M. Aroutiounian.** Use of Metaloxide, Porous Silicon and Carbon Nanotube Gas Sensors for Safety and Security, in Advanced Sensors for Safety and Security, A. Vaseashta, S. Khudaverdyan, eds., NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics. Chapter 9, 2012.
46. **V.M. Aroutiounian, H.V. Abovian, Z.N. Adamyan et al.** Method of Making Smoke Detector. Patent USA, No 5382341, 1995.
47. **A.Z. Adamyan, Z.N. Adamyan, V.M. Aroutiounian.** Sensors and Actuators B, **93**, 416 (2003).
48. **V.M. Aroutiounian, V.M. Arakelyan, G.E. Shahnazaryan.** Solar Energy, **78**, 581 (2005).
49. **G. Korotcenkov, I. Blinov, M. Ivanov, J.R. Stetter.** Solar Energy, **120**, 679 (2007).
50. **L. Berry, J. Brunet.** Sensors and Actuators B, **129**, 450 (2008).
51. **C.-T. Wang, M.-T. Chen.** Sensors and Actuators B, **150**, 360 (2010).
52. **A.Z. Adamyan, Z.N. Adamyan, V.M. Aroutiounian et al.** Int. J. Hydrogen Energy, **32**, 4101 (2007).
53. **A.Z. Adamyan, Z.N. Adamyan, V.M. Aroutiounian.** Int. J. Hydrogen Energy, **34**, 8438 (2009).
54. **V.M. Aroutiounian.** Int. Sci. J. Alternative Energy and Ecology, **4**, 40 (2007).
55. **V.M. Aroutiounian.** Int. Sci. J. Alternative Energy and Ecology, **1**, 11 (2006).
56. **V.M. Aroutiounian.** Int. Sci. J. Alternative Energy and Ecology, **2**, 11 (2007).
57. **G. Zhang, M. Liu.** Sensors and Actuators B, **69** 144 (2000).
58. **C.-T. Wang, M.-T. Chen.** Sensors and Actuators B, **150**, 360 (2010).
59. **N.V. Hieua, N. Dueb, T. Trunge et al.** Sensors and Actuators B, **144**, 450 (2010).
60. **R. Ionescu, E.H. Espinosa, R. Leghrib et al.** Sensors and Actuators B, **131**, 174 (2008).
61. **W.K. Hsu, S. Firth et al.** J. Mater. Chem., **1**, 1425 (2000).
62. **K. Hernadi, E. Ljubovic, J.W. Seo, L. Forro.** Acta Materialia, **51**, 1447 (2003).
63. **E. Ljubovic, K. Hernadi, J.W. Seo et al.** Chem. Phys. Lett., **378**, 9 (2003).
64. **A. Magrez, J.W. Seo, C.S. Miko et al.** J. Phys. Chem B, **109**, 10087 (2005).
65. **R. Smajda, M. Mionic, M. Duchamp et al.** Phys. Status Solidi (c), **7**, 1236 (2010).
66. **B. Reti, K. Nemeth, Z. Nemeth et al.** Phys. Status Solidi (b), **248**, 2475 (2011).
67. **R. Smajda, Z. Gyouri, A. Sapi et al.** J. Molecular Structure, **834**, 471 (2007).
68. **Z. Nemeth, C. Dieker, A. Kukovecz et al.** Compos. Sci. Technol., **71**, 87 (2011).
69. **P. Berki, Z. Nemeth, B. Reti et al.** Carbon, **60**, 266 (2013).
70. **Z. Nemeth, B. Reti, Z. Pallai et al.** Phys. Status Solidi (b), **1**, 51141 (2014).
71. **Z. Nemeth, Z. Pallai, B. Reti et al.** J. Coat. Sci. and Technology, **1**, 137 (2014).
72. **J. Xie, V.K. Varadan.** Mater. Chem. Phys., **91**, 274 (2005).
73. **M.H. Chen, Z.C. Huang, G.T. Wu et al.** Mater. Res. Bull., **38**, 831 (2003).
74. **W. Wanga, P. Serp, P. Kalck, J.L. Faria.** Appl. Catal. B: Environ., **56**, 301 (2004).
75. **O.K. Varghese, P.D. Kichambre.** Sensors and Actuators B, **81**, 32 (2001).
76. **Y.-L. Liu, H.-F. Yang, Y. Yang et al.** Thin Solid Films, **497**, 355 (2006).
77. **L. Zhao, L. Gao.** Carbon, **42**, 3251 (2004).
78. **B.-Y. Wei, M.-C. Hsu, P.-G. Su et al.** Sensors and Actuators B, **101**, 81 (2004).
79. **A. Wisitsoraat, A. Tuantranont, C. Thanachayanont et al.** J. Electroceram., **17**, 45 (2006).
80. **S.G. Wang, Q. Zhang, D. J. Yang et al.** Diamond Relat. Mater., **13**, 1327 (2004).

81. **J. Kong, N.R. Franklin, C. Zhou et al.** *Science*, **287**, 622 (2000).
82. **M. Arab, F. Berger, F. Picaud et al.** *Chem. Phys. Lett.*, **433**, 175 (2006).
83. **E. Bekyarova, M. Davis, T. Burch et al.** *J. Phys. Chem. B*, **108**, 19717 (2004).
84. **V.V. Kovalenko, A.A. Zhukova, M.N. Rumyantsev et al.** *Sensors and Actuators B*, **126**, 52 (2006).
85. **J. Kaur, S.C. Roy, M.C. Bhatnagar.** *Sensors and Actuators B*, **96**, 1090 (2006).
86. **Y.-D. Wang, X.-H. Wu, Q. Su et al.** *Solid State Electron*, **45**, 347 (2001).
87. **K.-Y. Choi, J.-S. Park, K.-B. Park.** *Sensors and Actuators B*, **150**, 65 (2010).
88. **V.A. Aroutiounian, A.Z. Adamyan, E.A. Khachaturyan et al.** *Sensors and Actuators B*, **177**, 308 (2013).
89. **V.M. Aroutiounian, V.M. Arakelyan, E.A. Khachaturyan et al.** *Sensors and Actuators B*, **173**, 890 (2012).
90. **V. Aroutiounian, A. Adamyan, A. Sayunts et al.** *Int. J. Emerging Trends in Sci. and Technology*, **1**, 1309 (2014).
91. **V.M. Aroutiounian, V.M. Arakelyan, G.E. Shahnazaryan et al.** *Advances in Nano Research*, **3**, 1 (2015).
92. **X. Meng, M. Ionescu, M.N. Banis et al.** *J. Nanopart. Res.* **13**, 1207 (2011).
93. **Y. Tang, Q. Zhang, Y. Li, H. Wang.** *Sensors and Actuators B*, **169**, 229 (2012).
94. **C.-L. Dai, Y.-C. Chen, C.-C. Wu, C.-F. Kuo.** *Sensors*, **10**, 1753 (2010).
95. **W. Li, H. Jung, N.D. Hoa et al.** *Sensors and Actuators B*, **158**, 229 (2011).
96. **M. Parmar, R. Bhati, V. Prasad, K. Rajann.** *Sensors and Actuators B*, **158**, 229 (2011).
97. **C. Wongchoosuk, A. Wisitsoraat, D. Phokharatkul et al.** *Sensors*, **10**, 7705 (2010).
98. **A. Bittencourt, E.H. Felten, Espinosa et al.** *Sensors and Actuators B*, **115**, 33 (2006).
99. **N.V. Hieu, L.T.B. Thuy, N.D. Chien.** *Sensors and Actuators B*, **129**, 888 (2008).
100. **R. Leghrib, A. Felten, J.J. Pireaux, E.L. Llobet.** *Thin Solid Films*, **520**, 966 (2011).
101. **Y. Chen, C. Zhu, T. Wang.** *Nanotechnology*, **17**, 3012 (2006).
102. **J. Prasek, J. Drbohlavova, J. Chomoucka et al.** *Chemical Vapor Depositions for Carbon Nanotubes Synthesis*, in *Carbon Nanotubes*. A.K. Mishra, ed., Nova Science Publishers, pp.87–106, 2013.
103. **R. Leghrib, R. Pavelko, A. Felten, A. Vasiliev.** *Sensors and Actuators B*, **145**, 411 (2010).
104. **L. Zhao, M. Choi, H.S. Kim, S.H. Hong.** *Nanotechnology*, **18** 445501 (2007).
105. **A. Yang, X.M. Tao, R.X. Wang, S.C. Lee.** *Appl. Phys. Letters*, **91**, 133110 (2007).
106. **G. Lu, L.E. Ocola.** *J. Chem. Advanced Materials*, **21**, 2487 (2009).
107. **R.-J. Wu, J.-G. Wu, M.-R. Yu et al.** *Sensors and Actuators B*, **131**, 306 (2008).
108. **L. De Luca, A. Donato, G. Apa, G.F. Santangelo.** 15-th Italian Conference on Sensors and Microsystems, AISEM 2010, **91**, LNEE, 2011.
109. **S. Trocino, A. Donato, M. Latino et al.** *Sensors*, **12**, 12361 (2012).
110. **B. Ghaddab, J.B. Sanchez, C. Mavon et al.** *Sensors and Actuators B*, **170**, 67 (2012).
111. **W. Li, H. Jung, N.D. Hoal et al.** *Sensors and Actuators B*, **150**, 160 (2010).
112. **V.M. Aroutiounian.** *Graphene Sensors*, in *Graphene Science Handbook: Applications and Industrialization*, Volume 6 (in press).
113. **Z. Zhang, R. Zou, G. Song et al.** *J. Mater. Chem.*, **21**, 17360 (2011).
114. **G. Giovanni, S.G. Leonardi, M. Latino et al.** *Sensors and Actuators B*, **179**, 61 (2013).
115. **C. Marichy, P.A. Russo, M. Latino et al.** *J. Phys. Chem. C*, **117**, 19729 (2013).
116. **S.-J. Choi, B.-H. Jang, S.-J. Lee et al.** *ACS Appl. Mater. and Interfaces*, **6**, 2588 (2014).
117. **S. Liu, Z. Wang, Y. Zhang et al.** *Sensors and Actuators B*, **211**, 318 (2015).

ՖՈՒՆԿՑԻՈՆԱԼԻԶԱՑՎԱԾ ԱԾԽԱԾՆԱՅԻՆ ՆԱՆՈՒՌՈՂՈՎԱԿԱՅԻՆ ԳԱԶԱՅԻՆ
ՍԵՆՍՈՐՆԵՐ

Վ.Մ. ՀԱՐՈՒԹՅՈՒՆՅԱՆ

Առանց լեգիրացման և տարբեր եղանակներով ֆունկցիոնալիզացված ածխածնային նանոխողովակների հիման վրա պատրաստված գազային սենսորները ունեն լուրջ թերություններ: Կատարված է օրգանական պոլիմերներով, խառնուրդներով, մետաղական նանոմասնիկներով/նանոկլաստերներով ածխածնային նանոխողովակների ֆունկցիոնալիզացիայի ֆիզիկայի և տեխնիկայի, ինչպես նաև մետաղօքսիդներով ֆունկցիոնալիզացված ածխածնային նանոխողովակային նանոկոմպոզիտների հիման վրա խիստ բարելավված զգայնությամբ, ավելի լավ ժամանակային բնութագրերով և ավելի փոքր սպառվող հզորությամբ տարբեր կարևոր գազերի սովիչների իրագործելու հնարավորությունների վերլուծությունը:

FUNCTIONIONALIZED CARBON NANOTUBES GAS SENSORS

V.M. AROUTIOUNIAN

Gas sensors made from carbon nanotubes without their doping and functionalization by various methods have serious shortcomings. Analysis of physics and technics of functionalization of carbon nanotubes by organic polymers, impurities, metallic nanoparticles/nanoclusters, and use of nanotubes in metal oxide nanocomposites for realization of detectors of different important gases with dramatically improved response, better time characteristics and smaller consumed power is carried out.

УДК 537.311

НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЙ ФАЗОВЫЙ КОРРЕЛЯТОР ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ФАЗЫ СУБПИКОСЕКУНДНОГО ЛАЗЕРНОГО ИМПУЛЬСА В СРЕДНЕМ ИК ДИАПАЗОНЕ ДЛИН ВОЛН

А.А. АХУМЯН*, Г.Д. ОГАНЕСЯН

Институт радиофизики и электроники НАН Армении, Аштарак, Армения

*e-mail: office@irphe.am

(Поступила в редакцию 2 марта 2015 г.)

Предлагается метод определения фазового сдвига центральной частоты субпикосекундного лазерного импульса в среднем ИК диапазоне длин волн. Метод основан на генерации излучения суммарной частоты двумя одинаковыми линейно-поляризованными лазерными субпикосекундными импульсами накачки с разностью фаз, распространяющимися в кристалле GaSe с регулярной доменной структурой. Показано, что в поле субпикосекундного ИК лазерного импульса на центральной длине волны 9.6 мкм, распространяющегося в кристалле GaSe с регулярной доменной структурой с периодом 216 мкм происходит одновременная квазисинхронная генерация второй, третьей и четвертой гармоник импульса накачки на длинах волн 4.8 мкм, 3.2 мкм и 2.4 мкм, соответственно. Полученные результаты могут быть использованы для разработки нелинейно-оптического фазового коррелятора для определения фазы субпикосекундного лазерного импульса в среднем ИК диапазоне длин волн.

1. Введение

В последние годы многими научными группами исследуются возможности создания компактной техники и устройств генерации и приема электромагнитного излучения среднего ИК диапазона длин волн. Это диктуется, помимо спектроскопических и экологических проблем, также и широкими возможностями применения приёмно-передающих устройств этого диапазона для решения важных задач военного и гражданского назначения. Среди последних важнейшим является мониторинг атмосферы, диагностика повреждений газо- и нефтепроводов, контроль по предотвращению аварий на производстве, медицинская хирургия и офтальмология, тепловидение с повышенным температурным контрастом, беспроводная оптическая связь и др. По существу, лазерный мониторинг атмосферы – единственная возможность быстрого как дистанционного, так и локального мониторинга загрязнений. И в этом отношении средний ИК диапазон является уникальной областью спектра. Прежде всего, в этом диапазоне рас-

положены «окна» прозрачности атмосферы (3–5 мкм, 8–12 мкм и др.) и различные источники теплового излучения. Кроме того, в среднем ИК диапазоне лежат линии поглощения колебательных переходов – «маркеров» разнообразных молекул. Это даёт возможность дистанционного определения по спектрам поглощения и рассеяния сложных органических молекул – загрязнителей атмосферы, содержащих С-Н, С-Н и N-О связи. Излучение среднего ИК диапазона в «окнах» прозрачности менее подвержено влиянию погодных условий или рассеянию, чем излучения ближнего ИК, видимого или УФ диапазонов.

В абсорбционной спектроскопии выделяются два метода: фотоэлектрический и фотографический. В фотоэлектрическом методе фотоприёмным устройством, преобразующим световой сигнал в электрический, регистрируется небольшой спектральный интервал, как правило, соответствующий одной линии. Перестройка длины волны излучения в подобных системах нужна, чтобы увеличить чувствительность при анализе загрязнений за счёт свипирования частоты лазера через линию поглощения исследуемого вещества. Одним из путей решения проблемы мониторинга среды является создание мощных оптических перестраиваемых параметрических генераторов на основе твердотельных лазеров и преобразование частоты в нелинейных кристаллах, что позволяет осуществить дистанционный мониторинг на больших расстояниях (1 км и более). В фотографическом методе абсорбционной спектроскопии, где в качестве зондирующего излучения используется импульсное широкополосное ИК излучение, временное разрешение несколько ниже, чем в фотоэлектрическом методе, и определяется длительностью широкополосного ИК излучения.

Фотографический метод получил широкое применение из-за возможности получения большего объема информации. Кроме данных, представляющих непосредственный спектроскопический интерес, широкополосная регистрация поглощения даёт возможность независимого определения температуры поглощающей среды, например, по относительной интенсивности линии. Значительный интерес представляет средняя ИК область спектра, в которой лежат линии поглощения, соответствующие колебательно-вращательным переходам молекул среды. Возможности продвижения фотографического нестационарного метода абсорбционной спектроскопии в среднюю ИК область связаны с внедрением нелинейно-оптических методов.

Прогресс в области генерации субпикосекундных лазерных импульсов в среднем ИК диапазоне определяется также применением нелинейно-оптических методов [1–10]. Нелинейная оптика даёт возможность как получения широкополосного импульса ИК излучения, так и широкополосной регистрации ИК спектров. Получение широкополосного ИК излучения возможно в нелинейно-оптических кристаллах в процессе генерации излучения на разностной частоте (ИРЧ) (down-conversion) в поле фемтосекундного лазерного импульса (ФЛИ). При нелинейном взаимодействии ФЛИ с нелинейным кристаллом из широкого спектра

ФЛИ выделяется множество пар частотных компонент, смещение которых приводит к генерации широкополосного ИК излучения. Применение нелинейно-оптических кристаллов с регулярной доменной структурой (РДС) позволяет реализовать условия фазового синхронизма взаимодействующих волн для генерации ИРЧ практически в любых, в том числе в изотропных (но не centrosymmetric), кристаллических средах за счет компенсации сдвига обобщенной фазы при переходе от одного домена к другому (так называемый «квазисинхронизм») [11]. Для субпикосекундных лазерных импульсов излучения в среднем ИК диапазоне создание нелинейно-оптических методов определения смещения фазы несущей частоты относительно огибающей имеет весьма важное практическое значение в таких фундаментальных и прикладных задачах, как нестационарная ИК спектроскопия многоатомных молекул, абсорбционная спектроскопия, исследование процессов возбуждения и релаксации многоатомных молекул, изучение физики узкозонных полупроводников и разработка импульсных лазеров в среднем ИК диапазоне со стабилизацией фазы.

В настоящей работе предлагается нелинейно-оптический фазовый коррелятор для определения фазы субпикосекундного лазерного импульса в среднем ИК диапазоне, основанный на генерации излучения суммарной частоты в поле субпикосекундного лазерного импульса, распространяющегося в среде с РДС.

2. Нелинейно-оптическое преобразование разности фаз взаимодействующих субпикосекундных лазерных импульсов излучения в среднем ИК диапазоне в разность интенсивностей гармоник на суммарной частоте

В настоящем разделе на основе системы нелинейных уравнений Максвелла рассматривается процесс влияния разности фаз между двумя одинаковыми линейно-поляризованными субпикосекундными лазерными импульсами в среднем ИК диапазоне длин волн, распространяющихся в кристалле GaSe с РДС, на эффективность генерации излучения на суммарной частоте.

Рассмотрим одинаковые линейно-поляризованные лазерные импульсы с плоскими волновыми фронтами и с компонентами электромагнитного поля (E_{x1} , E_{x2}) и (H_{z1} , H_{z2}), распространяющимися вдоль главной оптической оси (z -срез) кристалла GaSe с точечной группой симметрии $\bar{6}2m$ и с РДС (рис.1). При этом между импульсами существует некоторая разность фаз. Благодаря нелинейной поляризации среды в процессе распространения импульсов генерируются также компоненты поля E_y и H_x . Как видно из рис.1, направление распространения импульсов совпадает с оптической осью Z [001] анизотропного кристалла GaSe, импульс E_y поляризован вдоль кристаллической оси Y [010], а импульс E_x – вдоль X [100]. В рассматриваемой геометрии импульсы (E_{x1} , E_{x2}) и E_y соответствуют волнам с обыкновенной поляризацией. В этом случае система уравнений Максвелла, описывающих данный процесс, может быть представлена в виде

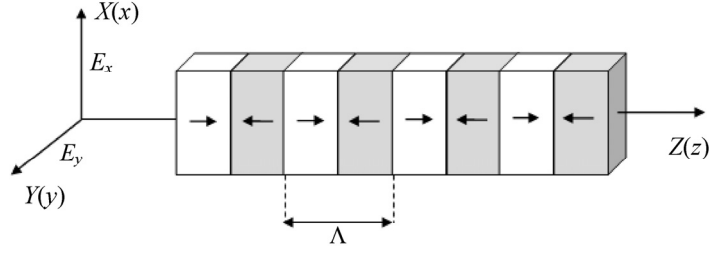


Рис.1. Анизотропный кристалл GaSe с периодической РДС.

$$\begin{aligned}\frac{\partial D_y}{\partial t} &= \frac{\partial H_x}{\partial z}, \\ \frac{\partial H_x}{\partial t} &= \frac{1}{\mu_0} \frac{\partial E_y}{\partial z},\end{aligned}\quad (1)$$

$$E_y = \frac{D_y - P_{yL} - P_{yNL}}{\epsilon_0},$$

$$\begin{aligned}\frac{\partial D_x}{\partial t} &= -\frac{\partial H_y}{\partial z}, \\ \frac{\partial H_y}{\partial t} &= -\frac{1}{\mu_0} \frac{\partial E_x}{\partial z},\end{aligned}\quad (2)$$

$$E_x = \frac{D_x - P_{xL} - P_{xNL}}{\epsilon_0},$$

где D_x и D_y – компоненты электрической индукции, ϵ_0 и μ_0 – проницаемости вакуума, а P_{xL} , P_{yL} , P_{xNL} и P_{yNL} – соответственно линейная и нелинейная поляризации среды. D_x и D_y определяются согласно материальным уравнениям, в которых учитываются линейная дисперсия и нелинейная поляризация среды:

$$D_x = \epsilon_0 E_x + P_{xL} + P_{xNL}, \quad (3)$$

$$D_y = \epsilon_0 E_y + P_{yL} + P_{yNL}. \quad (4)$$

Линейная поляризация среды может быть представлена в виде

$$\begin{aligned}P_{xL}(t) &= \epsilon_0 \int_{-\infty}^t \chi_x^{(1)}(t-\tau) E_x(\tau) d\tau, \\ P_{yL}(t) &= \epsilon_0 \int_{-\infty}^t \chi_y^{(1)}(t-\tau) E_y(\tau) d\tau.\end{aligned}\quad (5)$$

Нелинейная поляризации оптического кристалла GaSe рассматривается в квазистатическом приближении:

$$P_{xNL}(t) = -2\epsilon_0 d_{22} E_x(t) E_y(t), \quad (6a)$$

$$P_{yNL}(t) = -\varepsilon_0 d_{22} E_x^2(t) + \varepsilon_0 d_{22} E_y^2(t), \quad (66)$$

где $d_{22} = 54$ пм/В – нелинейная восприимчивость кристалла GaSe. Согласно [10], при описании процесса генерации излучения как на суммарной, так и на разностной частоте, в полосе прозрачности кристалла можно использовать квазистатическое приближение, соответствующее мгновенному нелинейному отклику среды. В линейной части поляризации (5) частотно-зависимые линейные восприимчивости $\chi_x^{(1)}(\omega)$, $\chi_y^{(1)}(\omega)$ в рассматриваемой нами геометрии определяются через показатель преломления $n_o(\omega, T)$ обыкновенной волны следующим образом:

$$\chi_x^{(1)}(\omega) = \chi_y^{(1)}(\omega) = n_o^2(\omega) - 1. \quad (7)$$

Вдали от резонанса, в пределах полосы прозрачности (0.62–20 мкм), показатель преломления нелинейного кристалла GaSe аппроксимируется формулой Селмейера [12], которая основана на классической лоренцевской модели атома и которая при $T = 293$ К имеет вид

$$\varepsilon_o(\omega) = n_o^2(\omega) = 7.4437 + \frac{0.3757}{4\pi^2 c^2 / \omega^2 - 0.1260} - 0.00154 \frac{4\pi^2 c^2}{\omega^2}, \quad (8)$$

где λ – длина волны (в мкм), c – скорость света в вакууме (в мкм/с). Согласно (8), линейные частотные функции отклика $\chi_x^{(1)}(\omega)$, $\chi_y^{(1)}(\omega)$ могут быть представлены в виде

$$\chi_x^{(1)}(\omega) = \chi_y^{(1)}(\omega) = a_0 + \frac{b_0 \omega^2}{(2\pi c)^2 - c_0 \omega^2} - q_0 \frac{(2\pi c)^2}{\omega^2}, \quad (9)$$

где $a_0 = 6.4437$, $b_0 = 0.3757$, $c_0 = 0.1260$ и $q_0 = 0.00154$.

С учетом трех слагаемых в формуле (9) линейная поляризация среды во временном представлении может быть записана в виде

$$P_{xL}(t) = \varepsilon_0 \varepsilon_{co} E_x(t) + S_x(t) + G_x(t), \quad (10a)$$

$$P_{yL}(t) = \varepsilon_0 \varepsilon_{co} E_y(t) + S_y(t) + G_y(t), \quad (10b)$$

где $\varepsilon_{co} = (a_0 - b_0/c_0)$, а $G_{x,y}(t)$ и $S_{x,y}(t)$ – решения обыкновенных дифференциальных уравнений

$$\begin{aligned} c_0 \frac{\partial^2 S_{x,y}(t)}{\partial t^2} + (2\pi c)^2 S_{x,y}(t) &= \varepsilon_0 \frac{b_0}{c_0} (2\pi c)^2 E_{x,y}(t, y), \\ \frac{\partial^2 G_{x,y}(t)}{\partial t^2} &= -\varepsilon_0 q_0 (2\pi c)^2 E_{x,y}(t, y). \end{aligned} \quad (11)$$

Система уравнений (11) описывает свойства линейной дисперсии среды в области прозрачности. В РДС на границах доменов происходит периодическое

изменение знака квадратичной восприимчивости, что создает условия для конструктивной интерференции сигнальной и холостой волн в объемных кристаллах с произвольными дисперсионными характеристиками. Нелинейная восприимчивость для периодически поляризованных кристаллов может быть представлена в виде [11]

$$d_{22}(z) = d_{22} \sum_{m=0}^M \frac{\sin(2\pi z[2m+1]/\Lambda) \sin[\pi(m+1)/M]}{(2m+1) \pi(m+1)/M}, \quad (12)$$

где Λ – значение периода РДС, $m = 0, 1, 2, \dots, M$ и M – количество слагаемых в сумме (12). Очевидно, что в данном случае нелинейная поляризация среды, обусловленная нелинейной квадратичной восприимчивостью, также будет периодической функцией от координаты.

Выбор значения периода Λ_2 для реализации условия квазисинхронной генерации у-поляризованного излучения второй гармоники (ВГ), с учетом рассматриваемой геометрии задачи, определяется из условий выполнения законов сохранения энергии и импульса

$$\begin{aligned} \frac{1}{\lambda_{S2}} &= \frac{2}{\lambda_{IR}}, \\ \frac{n_o(\lambda_{S2})}{\lambda_{S2}} &= \frac{n_o(\lambda_{IR})}{\lambda_{IR}} + \frac{1}{\Lambda_2}, \end{aligned} \quad (13)$$

где λ_{IR} – центральная длина волны субпикосекундного импульса накачки в среднем ИК диапазоне, λ_{S2} – центральная длина волны импульса ВГ. Как видно из (6а) и (13), в рассматриваемом случае имеет место *ooo*-тип взаимодействия волн. Когерентная длина для данного процесса определяется как $L_{c2} = \pi/\Delta k_2$, где $\Delta k_2 = 2\pi(n_o(\lambda_{S2})/\lambda_{S2} - 2n_o(\lambda_{IR})/\lambda_{IR})$.

При дальнейшем *ooo*-типе взаимодействия *x*-поляризованного субпикосекундного ИК импульса накачки с у-поляризованным импульсом ВГ происходит генерация *x*-поляризованного излучения третьей гармоники (ТГ). Выбор значения периода Λ_3 для реализации условия квазисинхронной генерации у-поляризованного ТГ определяется из условий выполнения законов сохранения энергии и импульса

$$\begin{aligned} \frac{1}{\lambda_{S3}} &= \frac{1}{\lambda_{S2}} + \frac{1}{\lambda_{IR}}, \\ \frac{n_o(\lambda_{S3})}{\lambda_{S3}} &= \frac{n_o(\lambda_{S2})}{\lambda_{S2}} + \frac{n_o(\lambda_{IR})}{\lambda_{IR}} + \frac{1}{\Lambda_3}, \end{aligned} \quad (14)$$

где λ_{S3} – центральная длина волны импульса ТГ. Когерентная длина для данного процесса определяется как $L_{c3} = \pi/\Delta k_3$, где $\Delta k_3 = 2\pi(n_o(\lambda_{S3})/\lambda_{S3} - n_o(\lambda_{S2})/\lambda_{S2} - n_o(\lambda_{IR})/\lambda_{IR})$.

Выбор значения периода Λ_4 для реализации условия квазисинхронной генерации у-поляризованного излучения четвертой гармоники (ЧГ), обусловленной *ooo*-типом взаимодействия волн, (см. второе слагаемое в (6б)) определяется из условий

$$\frac{1}{\lambda_{S4}} = \frac{2}{\lambda_{S2}},$$

$$\frac{n_o(\lambda_{S4})}{\lambda_{S4}} = \frac{n_o(\lambda_{S2})}{\lambda_{S2}} + \frac{1}{\Lambda_4},$$
(15)

где λ_{S4} – центральная длина волны импульса ЧГ. Когерентная длина для данного процесса определяется как $L_{c4} = \pi/\Delta k_4$, где $\Delta k_4 = 2\pi(n_o(\lambda_{S4})/\lambda_{S4} - 2n_o(\lambda_{S2})/\lambda_{S2})$.

При дальнейшем *ooo*-типе взаимодействия х-поляризованного субпикосекундного ИК импульса накачки с у-поляризованным импульсом ЧГ происходит генерация х-поляризованного излучения пятой гармоники (ПГ).

Выбор значения периода Λ_5 для реализации условия квазисинхронной генерации х-поляризованного излучения пятой гармоники (ПГ), обусловленной *ooo*-типом взаимодействия волн, (см. (6а)) определяется из условий

$$\frac{1}{\lambda_{S5}} = \frac{1}{\lambda_{S4}} + \frac{1}{\lambda_{IR}},$$

$$\frac{n_o(\lambda_{S5})}{\lambda_{S5}} = \frac{n_o(\lambda_{S4})}{\lambda_{S4}} + \frac{n_o(\lambda_{IR})}{\lambda_{IR}} + \frac{1}{\Lambda_5},$$
(16)

где λ_{S5} – центральная длина волны импульса ПГ. Когерентная длина для данного процесса определяется как $L_{c5} = \pi/\Delta k_5$, где $\Delta k_5 = 2\pi(n_o(\lambda_{S5})/\lambda_{S5} - n_o(\lambda_{S4})/\lambda_{S4} - n_o(\lambda_{IR})/\lambda_{IR})$.

При дальнейшем рассмотрении процессы генерации более высоких гармоник не будут учитываться ввиду их весьма малой эффективности. Как показано в [13], для заданного значения λ_{IR} при отношениях когерентных длин L_{c1}/L_{c2} , L_{c1}/L_{c3} , L_{c1}/L_{c4} , L_{c1}/L_{c5} , равных целому нечетному числу или отношению целых нечетных чисел, возможна реализация одновременного квазисинхронизма для всех рассматриваемых процессов *ooo*-типа взаимодействия. С учетом (1)–(6), материальные уравнения могут быть представлены в виде

$$D_y = \varepsilon_0 E_y + \varepsilon_0 \varepsilon_{co} E_y(t) + S_y(t) + G_y(t) - \varepsilon_0 \bar{d}_{22}(z) E_x^2(t) + \varepsilon_0 \bar{d}_{22}(z) E_y^2(t), \quad (17)$$

$$D_x = \varepsilon_0 E_x + \varepsilon_0 \varepsilon_{co} E_x(t) + S_x(t) + G_x(t) - 2\varepsilon_0 \bar{d}_{22}(z) E_x(t) E_y(t). \quad (18)$$

В данной работе вышеописанная модель взаимодействия импульса длительно в несколько колебаний применяется для описания процесса генерации излучения на суммарной частоте (ИСЧ) в поле субпикосекундного лазерного ИК импульса, распространяющегося в кристалле GaSe с РДС. Начальные условия для численного решения системы нелинейных уравнений Максвелла (1)–(6) выбираются в виде

$$E_x(t, z=0) = E_{x0} \exp\left(-\frac{t^2}{\tau_{x0}^2}\right) \cos\left(\frac{2\pi c}{\lambda_{x0}} t\right) + E_{x0} \exp\left(-\frac{t^2}{\tau_{x0}^2}\right) \cos\left(\frac{2\pi c}{\lambda_{x0}} t + \delta\phi\right), \quad (19a)$$

$$E_y(t, z=0) = 0, \quad (19b)$$

где E_{x0} – амплитуда x -поляризованного импульса, $\tau_{x0} = 300$ фс – длительность x -поляризованного импульса, $\lambda_{x0} = \lambda_{IR} = 9.6$ мкм – центральная длина волны и $\delta\phi$ – разность фаз между двумя начальными x -поляризованными импульсами. Амплитуда импульса $E_{x0} = 400$ МВ/м. Использование такого широкополосного импульса накачки с шириной полосы $\Delta\nu \approx 1/\tau_{x0} = 3.33$ ТГц на несущей частоте $\nu_0 = c/\lambda_{IR} = 31.25$ ТГц может привести к увеличению эффективности генерации ИСЧ, что определяется количеством длинноволновых и коротковолновых спектральных компонент, удовлетворяющих условиям законов сохранения (13)–(16).

Начальное условие (19a) может быть представлено также в виде

$$E_x(t, z=0) = 2E_{x0} \exp\left(-\frac{t^2}{\tau_{x0}^2}\right) \cos\left(\frac{2\pi c}{\lambda_{x0}} t + \frac{\delta\phi}{2}\right) \cos\left(\frac{\delta\phi}{2}\right), \quad (20)$$

откуда следует, что суммарная амплитуда x -поляризованного импульса пропорциональна $\cos(\delta\phi/2)$. Следовательно, изменению разности фаз между двумя x -поляризованными импульсами будет соответствовать изменение интенсивности импульса накачки, а изменению интенсивности импульса накачки будет соответствовать изменение эффективности генерации ИСЧ. Таким образом, при изменении разности фаз $\delta\phi$ от 0 до π имеет место однозначное соответствие между эффективностью генерации ИСЧ и разностью фаз между входными x -поляризованными субпикосекундными ИК импульсами. При этом диапазон длин волн, в котором происходит эффективная селективная генерация ИСЧ, определяется возможностью реализации одновременного квазисинхронизма для всех рассматриваемых процессов генерации гармоник в поле субпикосекундного лазерного импульса, распространяющегося в кристалле GaSe с РДС.

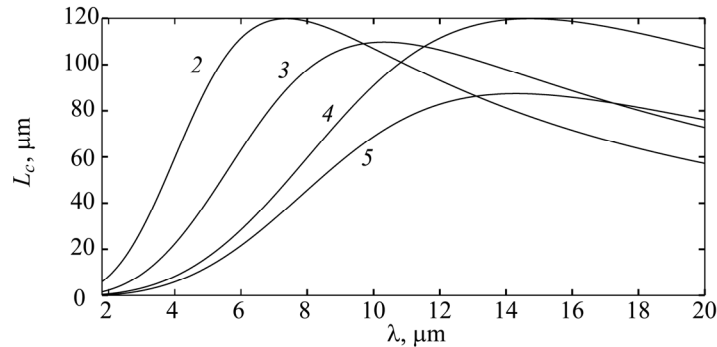


Рис.2. Зависимости когерентных длин для генерации ВГ ($L_{c2} - 2$), ТГ ($L_{c3} - 3$), ЧГ ($L_{c4} - 4$) и ПГ ($L_{c5} - 5$) от центральной длины волны x -поляризованного субпикосекундного импульса накачки λ .

На рис.2 показаны зависимости когерентных длин для генерации ВГ (L_{c2} – кривая 2), ТГ (L_{c3} – кривая 3), ЧГ (L_{c4} – кривая 4) и ПГ (L_{c5} – кривая 5) от центральной длины волны x -поляризованного субпикосекундного импульса накачки λ . Согласно рис.2, при $\lambda = 9.6$ мкм $L_{c2} = L_{c3} = L_0 = 108$ мкм, $L_{c4} = 84$ мкм и $L_0/L_{c4} = 9/7$. Из вышеизложенного следует, что в поле субпикосекундного импульса, распространяющегося в кристалле GaSe с РДС, на центральной длине волны $\lambda_{IR} = 9.6$ мкм и с периодом $2L_0$ возможна реализация квазисинхронной генерации ВГ, ТГ и ЧГ. Вместе с тем, при $\lambda_{IR} = 9.6$ мкм и периоде РДС $2L_0$ квазисинхронная генерация ПГ невозможна.

3. Результаты численных расчетов и обсуждение

Здесь приведены результаты численных расчетов спектров и временных профилей x - и y -поляризованных ИСЧ, возникающих на выходе из нелинейного кристалла. Период РДС Λ в расчетах выбирался равным 216 мкм, что обеспечивало квазисинхронную генерацию ВГ, ТГ и ЧГ импульса накачки на длинах волн 4.8 мкм, 3.2 мкм и 2.4 мкм, соответственно. Количество периодов рассматриваемой доменной структуры выбиралось равным 15, а длина кристалла с РДС составляла 15×216 мкм = 3.24 мм. С целью обеспечения условий приближения плоской волны длина кристалла должна быть меньше, чем $\pi\sigma^2/2\lambda_{IR}$, где σ – диаметр пучка накачки. Так при $\sigma = 300$ мкм параметр $\pi\sigma^2/2\lambda_{IR} = 14.72$ мм, что в 4.54 раза превосходит выбранную длину кристалла, и следовательно, приближение плоской волны применимо. Характерная нелинейная длина $L_n = \lambda_{IR}/2d_{22}E_{x0}$, на которой сдвиг фазы из-за нелинейного взаимодействия достигает $\pi/2$, равна примерно 222 мкм, а длина дисперсии второго порядка $L_d = \tau_0^2/2|\beta_2|$ равна 55.78 мм

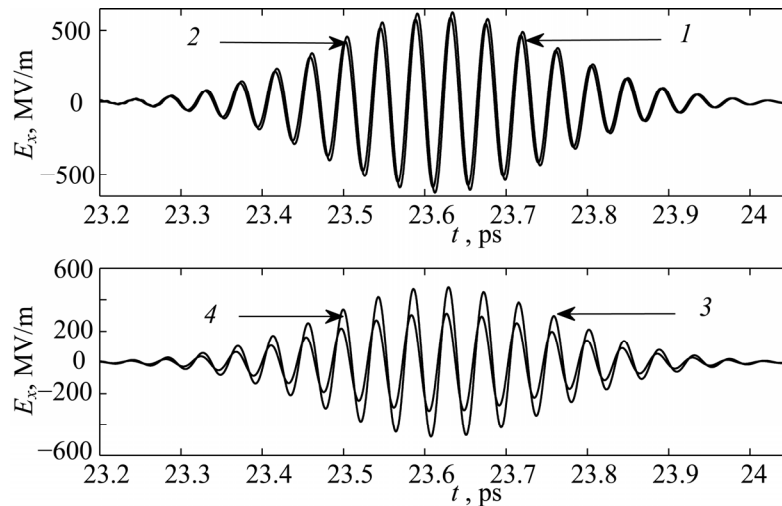


Рис.3. Временные профили x -поляризованного субпикосекундного ИК импульса на выходе из кристалла при значениях разности фаз $\delta\varphi$ 0° (1), 40° (2), 80° (3) и 120° (4).

(где $\beta_2 = \partial^2 k(\omega) / \partial \omega^2|_{\omega_0}$). Таким образом, выбранная толщина кристалла в 17.2 раза меньше, чем дисперсионная длина.

В ходе численного моделирования процессов, описываемых уравнениями (1)–(6) и (17)–(18), в дальнейшем переходим к сеточным функциям для полей E_x , E_y , H_y и H_x , электрической индукции D_x и D_y линейной и нелинейной откликов [14]. Численная сетка вдоль координаты z определяется как $k\Delta z$ ($k = 0, 1, 2, \dots$), а по времени – как $n\Delta t$ ($n = 0, 1, 2, \dots$). Шаг пространственной ячейки Δz выбирается равным $\lambda_{\text{IR}}/400 = 24$ нм ($\lambda_{\text{IR}} = 9.6$ мкм), а шаг по времени Δt определяется условием Куранта $\Delta t = \Delta z/2c = 0.04$ фс. Число пространственных ячеек в расчетах составляет $K = 3 \times 10^5$. В работе [14] показано, что конечно-разностная схема обладает хорошей стабильностью и слабой числовой дисперсией, а учет нелинейности не приводит к расходимости в числовой схеме для рассматриваемых значений амплитуд полей и толщины кристалла. В частности, при $E_{x_max} = 400$ МВ/м и $\gamma = \bar{d}_{22} \bar{E}_{x_max} = 0.0216$ отношение фазовой скорости $v_{pnum}(N = 400)$, полученной численным методом, к величине $v_{p_phys} = c/n(\lambda_0)$ для сплошной среды равно $v_{pnum}(N = 400)/v_{p_phys} = 0.9972$. Численные оценки показывают, что относительная ошибка определения фазовой скорости составляет 0.28%. Отношение групповой скорости $v_g(N = 400)$, полученной численным методом, к величине $v_{g_phys} = c/n(\lambda_0)$ для сплошной среды равно $v_g(N = 400)/v_{g_phys} = 0.9936$. Согласно численным оценкам, относительная ошибка определения групповой скорости составляет 0.64%.

На рис.3 показаны временные профили x -поляризованного субпикосекундного ИК импульса на выходе из кристалла для значений разности фаз $\delta\varphi$ 0° , 40° , 80° , 120° и 160° . Согласно (20) и как видно из рисунка, увеличение разности фаз $\delta\varphi$ приводит к увеличению смещения фазы центральной частоты импульса

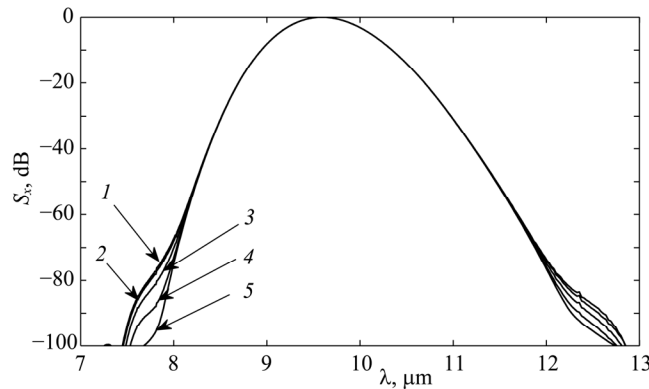


Рис.4. Зависимости нормированных на максимум спектральных плотностей x -поляризованного субпикосекундного ИК импульса на выходе из кристалла при значениях разности фаз $\delta\varphi$ 0° (1), 40° (2), 80° (3), 120° (4) и 160° (5) в диапазоне длин волн от 7 мкм до 13 мкм.

относительно огибающей и к уменьшению амплитуды импульса.

На рис.4 приведены нормированные на максимум зависимости спектральных плотностей x -поляризованного субпикосекундного ИК импульса на выходе из кристалла для значений разности фаз $\delta\phi$ 0° , 40° , 80° , 120° и 160° в диапазоне длин волн от 7 мкм до 13 мкм. Как видно из рисунка, в спектральном распределении ниже уровня -65 дБ с уменьшением разности фаз $\delta\phi$ наблюдается уширение спектра как в коротковолновую, так и в длинноволновую часть спектра.

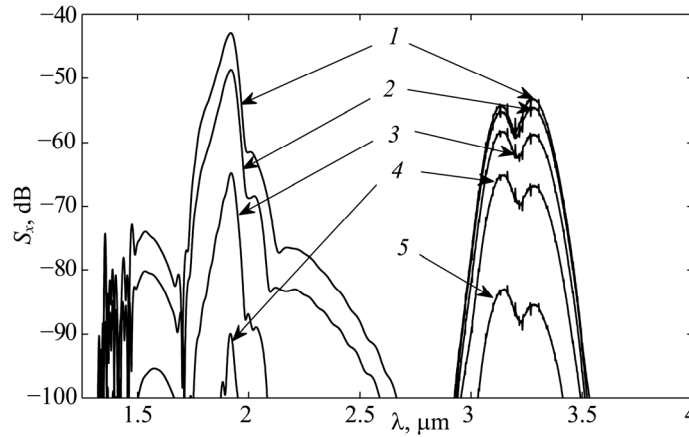


Рис.5. Зависимости нормированных на максимум спектральных плотностей x -поляризованного субпикосекундного ИК импульса на выходе из кристалла при значениях разности фаз $\delta\phi$ 0° (1), 40° (2), 80° (3), 120° (4) и 160° (5) в диапазоне длин волн от 1 мкм до 4 мкм.

На рис.5 представлены нормированные на максимум зависимости спектральных плотностей x -поляризованного субпикосекундного ИК импульса на выходе из кристалла для значений разности фаз $\delta\phi$ 0° , 40° , 80° , 120° и 160° в диапазоне длин волн от 1 мкм до 4 мкм. Согласно рис.5, с увеличением разности фаз $\delta\phi$ амплитуда спектра в окрестностях длин волн, соответствующих ТГ (3.2 мкм) и ПГ (1.92 мкм), уменьшается. При этом, если генерация ТГ имеет место в условиях квазисинхронизма, то как было отмечено выше, генерация ПГ происходит в отсутствие условия квазисинхронизма. Согласно (20), в приближении бездисперсного распространения волн интенсивность гармоник (ВГ, ТГ, ЧГ и ПГ) определяется через интенсивность импульса накачки (основной гармоники) и разность фаз следующим образом:

$$I_{n\omega_0} \propto I_{\omega_0}^n \cos^{2n} \left(\frac{\delta\phi}{2} \right). \quad (21)$$

На рис.6 показаны временные профили y -поляризованного импульса ИСЧ на выходе из кристалла для значений разности фаз $\delta\phi$ 0° , 40° , 80° и 120° . Как

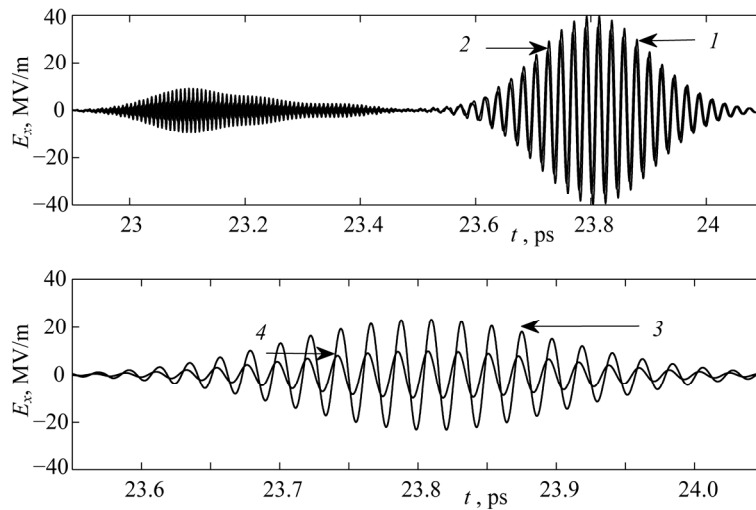


Рис.6. Временные профили у поляризованного импульса ИСЧ на выходе из кристалла при значениях разности фаз $\delta\phi$ 0° (1), 40° (2), 80° (3) и 120° (4).

видно из рисунка, увеличение разности фаз $\delta\phi$ приводит к уменьшению амплитуды импульсов второй и четвертой гармоник. Для значений $\delta\phi$ 80° и 120° амплитуды импульса ЧГ становятся пренебрежимо малы по сравнению с амплитудой импульса ВГ. Как было отмечено выше, генерация как ЧГ, так и ВГ происходит в условиях квазисинхронизма.

На рис.7 представлены зависимости нормированных на максимум спек-

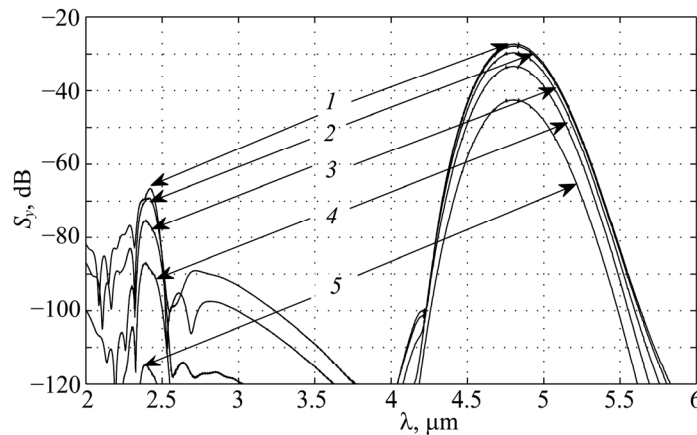


Рис.7. Нормированные на максимум спектральной плотности x -поляризованного субпикосекундного ИК импульса спектральные плотности y -поляризованного импульса ИСЧ на выходе из кристалла при значениях разности фаз $\delta\phi$ 0° (1), 40° (2), 80° (3), 120° (4) и 160° (5) в диапазоне длин волн от 2 мкм до 6 мкм.

тральной плотности x -поляризованного субпикосекундного ИК импульса спектральные плотности y -поляризованного импульса ИСЧ на выходе из кристалла для значений разности фаз $\delta\phi$ 0° , 40° , 80° , 120° и 160° в диапазоне длин волн от 2 мкм до 6 мкм. В соответствии с выражением (21) и как видно из рисунка, увеличению разности фаз $\delta\phi$ соответствует уменьшение интенсивности импульсов ВГ и ЧГ. Коэффициент пропорциональности между интенсивностью n -ой гармоники, деленной на интенсивность основной гармоники, и разностью фаз, согласно (21), определяется как

$$\left| \frac{d(I_{n\omega_0}/I_{\omega_0})}{d(\delta\phi)} \right| = I_{\omega_0}^{n-1} \frac{\sin(\delta\phi)}{2}. \quad (22)$$

Как следует из (22), коэффициент пропорциональности определяется $(n - 1)$ -ой степенью интенсивности основной гармоники, а максимальное значение коэффициента пропорциональности принимает при разности фаз $\delta\phi$ $\pi/2$.

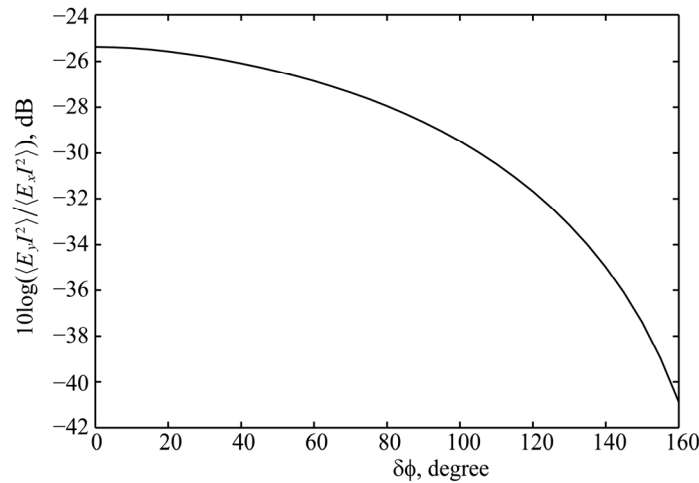


Рис.8. Зависимость отношения интенсивности y -поляризованного импульса ВГ к интенсивности x -поляризованного субпикосекундного ИК импульса в децибелах.

На рис.8 показана зависимость отношения интенсивности y -поляризованного импульса ВГ к интенсивности x -поляризованного субпикосекундного ИК импульса в децибелах. В общем случае, в выражении (22) следует учитывать изменение временных профилей и спектров импульсов накачки, обусловленных нелинейным взаимодействием с дисперсным нелинейным кристаллом GaSe с РДС. Как видно из рис.8, максимум эффективности генерации y -поляризованного излучения ВГ при $\delta\phi = 0^\circ$ составляет -25.52 дБ, а при $\delta\phi = 160^\circ$ составляет -41 дБ.

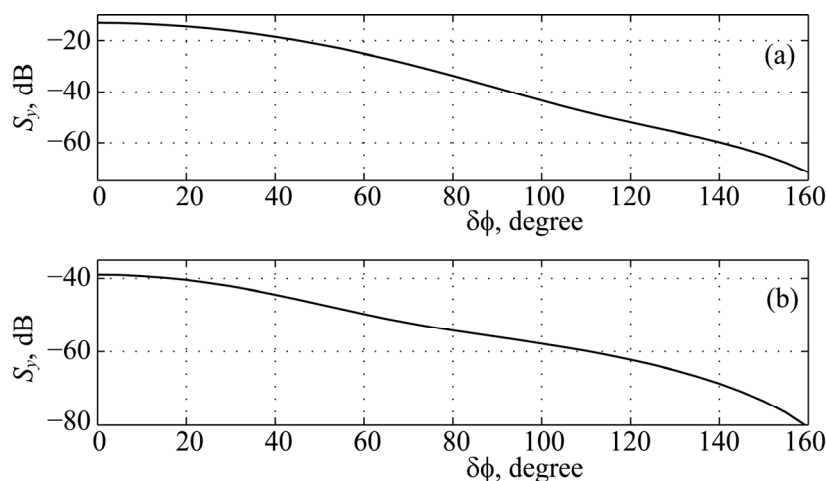


Рис.9. Зависимости (а) нормированной на максимум спектральной плотности у-поляризованного импульса ВГ спектральной плотности у-поляризованного импульса ИСЧ в диапазоне длин волн от 1 мкм до 4 мкм и (б) нормированной на максимум спектральной плотности х-поляризованного импульса накачки спектральной плотности х-поляризованного импульса ИСЧ в диапазоне длин волн от 1 мкм до 6 мкм на выходе из кристалла от разности фаз $\delta\phi$.

На рис.9 приведена зависимость нормированной на максимум спектральной плотности у-поляризованного импульса ВГ спектральная плотность у-поляризованного импульса ИСЧ в спектральном диапазоне от 1 мкм до 4 мкм на выходе из кристалла от разности фаз $\delta\phi$. Согласно рисунку, максимум эффективности генерации у-поляризованного ИСЧ в диапазоне от 1 мкм до 4 мкм на выходе из кристалла при $\delta\phi = 0^\circ$ составляет -12.8 дБ, а при $\delta\phi = 160^\circ$ составляет -70 дБ. Там же показана зависимость нормированной на максимум спектральной плотности х-поляризованного импульса накачки спектральная плотность х-поляризованного импульса ИСЧ в спектральном диапазоне от 1 мкм до 6 мкм на выходе из кристалла от разности фаз $\delta\phi$. Согласно рисунку, максимум эффективности генерации х-поляризованного ИСЧ в диапазоне от 1 мкм до 6 мкм на выходе из кристалла при $\delta\phi = 0^\circ$ составляет -38.1 дБ, а при $\delta\phi = 160^\circ$ составляет -80 дБ.

Таким образом, как следует из вышеизложенного, при генерации ИСЧ в поле двух сонаправленных субпикосекундных линейно-поляризованных лазерных импульсов в среднем ИК диапазоне, распространяющихся в нелинейном кристалле с РДС, эффективность генерации ИСЧ пропорциональна разности фаз между субпикосекундными импульсами. А диапазон длин волн, в котором происходит селективная эффективная генерация ИСЧ, определяется периодом РДС.

4. Заключение

Показано, что в поле субпикосекундного лазерного ИК импульса на центральной длине волны 9.6 мкм, распространяющегося в кристалле GaSe с РДС с периодом $\Lambda = 216$ мкм происходит одновременная квазисинхронная генерация ВГ, ТГ и ЧГ импульса накачки на длинах волн 4.8 мкм, 3.2 мкм и 2.4 мкм, соответственно. Показано, что при изменении разности фаз $\delta\varphi$ между x -поляризованными субпикосекундными лазерными импульсами от 0° до 160° эффективность генерации y -поляризованного излучения ВГ изменяется от -25.52 дБ до -41 дБ, а эффективность генерации y -поляризованного ИСЧ в диапазоне длин волн от 1 мкм до 4 мкм на выходе из кристалла изменяется от -12.8 дБ до -70 дБ. Полученные зависимости между разностью фаз и эффективностью селективной генерации ИСЧ могут быть использованы для определения фазы одного из x -поляризованных субпикосекундных лазерных импульсов в среднем ИК диапазоне длин волн, когда в качестве второго x -поляризованного субпикосекундного лазерного импульса используется импульс от лазерного источника со стабилизированной фазой.

Полученные результаты могут быть использованы при разработке нелинейно-оптического фазового коррелятора для определения фазы субпикосекундного лазерного импульса в среднем ИК диапазоне длин волн.

ЛИТЕРАТУРА

1. A. Bianchi, M. Garbi. Opt. Commun., **30**, 122 (1979).
2. K.L. Vodopyanov, L.A. Kulevskii, V.G. Voevodin, A.I. Gribenyukov, K.R. Allakhverdiev, T.A. Kerimov. Opt. Commun., **83**, 322 (1991).
3. A.O. Okorogu, S.B. Mirov, W. Lee, D.I. Crouthamel, N. Jenkins, A.Yu. Dergachev, K.L. Vodopyanov, V.V. Badikov. Opt. Commun., **155**, 307 (1998).
4. R.A. Kaindl, M. Wurm, K. Reimann, P. Hamm, A.M. Weiner, M. Woerner. J. Opt. Soc. Am. B, **17**, 2086 (2000).
5. R. Huber, A. Brodschelm, F. Tauser, A. Leitenstorfer. Appl. Phys. Lett., **76**, 3191 (2000).
6. W. Shi, Y.J. Ding, X. Mu, N. Fernelius. Appl. Phys. Lett., **80**, 3889 (2002).
7. K. Finsterbusch, A. Bayer, H. Zacharias. Appl. Phys. B, **79**, 457 (2004).
8. W. Shi, Y.J. Ding. Appl. Phys. Lett., **84**, 1635 (2004).
9. T. Tanabe, K. Suto, J. Nishizawa, T. Sasaki. J. Phys. D: Appl. Phys., **37**, 155 (2004).
10. G.D. Hovhannisyan. Optical Memory and Neural Networks (Information Optics), **22**, 135 (2013).
11. А.А. Ахумян, Э.М. Лазиев, А.С. Никогосян, Д.Л. Оганесян, Г.Д. Оганесян. Изв. НАН Армении, Физика, **45**, 28 (2010).
12. D.N. Nikogosyan. Nonlinear Optical Crystals: A Complete Survey. Springer, 2005.
13. В.Г. Дмитриев, Л.В. Тарасов. Прикладная нелинейная оптика. Москва, Наука, 2004.
14. D.L. Hovhannisyan, A.A. Hakhoumian, R.M. Martirosyan, A.S. Nikoghosyan, E.M. Laziev, G.D. Hovhannisyan. J. Modern Optics, **57**, 1228 (2010).

ՈՉ ԳԾԱՅԻՆ ՕՊՏԻԿԱԿԱՆ ՓՈԻԼԱՅԻՆ ԿՈՐԵԼԱՏՈՐ ՄԻՋԻՆ ԻԿ ՏԻՐՈՒՅԹՈՒՄ
ԵՆԹԱՊԻԿՈՎԱՅՐԿՅԱՆԱՅԻՆ ԼԱԶԵՐԱՅԻՆ ԻՄՊՈՒԼՍԻ
ՓՈԻԼԻ ՈՐՈՇՄԱՆ ՀԱՄԱՐ

Ա.Ա. ՀԱԽՈՒՄՅԱՆ, Գ.Դ. ՀՈՎՀԱՆՆԻՍՅԱՆ

Առաջարկված է ենթապիկտվարկյանային լազերային իմպուլսի կենտրոնական հաճախության փուլային շեղման որոշման եղանակ միջին ԻԿ տիրույթում: Մեթոդը հիմնված է գումարային հաճախության բաղադրիչների ճառագայթման գեներացման վրա, որոնք առաջանում են պարբերական բևեռացված դոմենային կառուցվածք ունեցող GaSe բյուրեղում տարբեր փուլերով երկու գծային բևեռացմամբ ԻԿ լազերային իմպուլսների տարածմամբ: Ցույց է տրված որ 9.6 մկմ կենտրոնական ալիքի երկարությամբ ենթապիկտվարկյանային լազերային ԻԿ իմպուլսի 216 մկմ պարբերությամբ կանոնավոր դոմենային կառուցվածք ունեցող GaSe բյուրեղում տարածվելիս տեղի է ունենում մղման իմպուլսի երկրորդ, երրորդ և չորրորդ հարմոնիկների միաժամանակյա քվադրսինքրոն գեներացում 4.8 մկմ, 3.2 մկմ և 2.4 մկմ ալիքների երկարությունների վրա համապատասխանաբար: Ստացված արդյունքները կարող են կիրառվել ոչ գծային օպտիկական փուլային կորելյատորի նախագծման նպատակով միջին ԻԿ ենթապիկտվարկյանային լազերային իմպուլսի փուլի որոշման համար:

NONLINEAR OPTICAL PHASE CORRELATOR FOR DETERMINATION
OF THE PHASE OF SUBPICOSECOND LASER PULSES
IN THE MID-IR WAVELENGTH RANGE

A.A. HAKHOUMIAN, G.D. HOVHANNISYAN

The method of determination of the phase shift of the central frequency of subpicosecond laser pulse in the mid-IR wavelength range is proposed. The method is based on the generation of sum frequency radiation by two equally linearly polarized subpicosecond laser pulses of pump with a phase difference, propagating in GaSe crystals with a regular domain structure. It is shown that in the field of subpicosecond IR laser pulse at the 9.6 μm central wavelength propagating in GaSe crystal with a regular domain structure with a period 216 μm takes place simultaneous quasi-synchronous generation of the second, third and fourth harmonics of the pump pulse at 4.8 μm , 3.2 μm and 2.4 μm wavelengths, respectively. The obtained results can be used for developing the nonlinear optical phase correlator for determination of the phase of subpicosecond mid-IR laser pulse.

УДК 539.24

ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННАЯ МОДИФИКАЦИЯ СВОЙСТВ МОНОКРИСТАЛЛОВ CuO, ПОКРЫТЫХ МЕТАЛЛИЧЕСКОЙ ПЛЕНКОЙ

С.Т. ПАШАЯН^{1*}, Н.В. ТАРАСЕНКО², А.В. БУЦЕНЬ², А.С. КУЗАНЯН¹

¹Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

²Институт физики им. Б.И. Степанова НАН Беларуси, Минск, Беларусь

*e-mail: svetlana1207@yahoo.com

(Поступила в редакцию 24 июля 2015 г.)

Изучены свойства монокристаллов оксида меди CuO, покрытых пленкой Cu или Ag до и после обработки их поверхности излучением YAG:Nd³⁺ лазера. С увеличением плотности энергии лазерного излучения наблюдались кардинальные изменения микроструктуры поверхности, элементного состава и электрических свойств исследуемых монокристаллов. На температурной зависимости сопротивления не обнаружено особенностей, присущих гранулированным образцам. Модификация свойств оксидов меди под воздействием лазерного излучения может быть использована для улучшения характеристик различных устройств на их основе.

1. Введение

В настоящее время лазерные технологии находят широкое применение в различных отраслях как фундаментальной и прикладной науки, так и промышленности. Все большую значимость они приобретают в микро- и наноэлектронике [1–8]. Воздействие лазерного излучения на поверхность полупроводника может сопровождаться изменением ее структурно-морфологических и электрофизических свойств [9–11]. Установлено, что при воздействии лазерного излучения в системе SiO₂/Si происходят структурные изменения, которые вызывают изменение электрофизических свойств в областях подложки, удаленных от зоны непосредственного воздействия лазерного луча (эффект дальнего действия) [11]. В работах [12,13] наблюдалось изменение электрофизических свойств системы SiO₂/Si под действием лазерного излучения наносекундного диапазона. Характер этих изменений зависит от параметров излучения лазера – длины волны, фокусировки лазерного пучка, длительности импульса и плотности энергии излучения, а также скорости и направления перемещения образца. Если импульс излучения достаточно короткий, а плотность энергии достаточно высока, то малый объем вещества может расплавиться и испариться до того, как тепло из зоны облучения успеет распространиться в окружающий материал.

В работах [14–16] изучено влияние лазерного излучения на микроструктуру, элементный состав и электропроводящие свойства керамических и монокристаллических образцов оксидов меди. В работах [17,18] выявлены особенности модификации морфологии, структуры и состава наноразмерных частиц оксидов меди в результате воздействия импульсного лазерного излучения с длиной волны 532 нм.

Оксиды меди представляют интерес из-за своих фотовольтаических и антиферромагнитных свойств и широко применяются в различных устройствах: газовых сенсорах, литиевых батареях, эмиттерах, поляризаторах, модуляторах и др. Интенсивное исследование оксидов меди и соединений на их основе начало проводиться после открытия явления высокотемпературной сверхпроводимости. В силу дешевизны, нетоксичности и широкой распространенности в природе они привлекательны для использования в солнечных элементах нового поколения и могут составить конкуренцию дорогостоящему кремнию.

Целью настоящей работы является исследование возможности лазерной модификации свойств монокристаллов CuO, покрытых тонкой пленкой меди или серебра, а также сравнение полученных результатов с предыдущими нашими исследованиями керамики CuO.

2. Методика эксперимента

Для экспериментов использовались монокристаллы CuO, полученные разными способами: из газовой фазы (образцы 1 и 4) и из раствора в расплаве (образцы 2 и 3). На естественные грани образцов 1 и 3 методом термического испарения в вакууме 6×10^{-5} торр наносилась пленка меди толщиной ~ 760 нм, а на образцы 2 и 4 – пленка серебра толщиной ~ 620 нм. Нанесенная на образец пленка делилась на 4 области, к которым припаивались контакты. Образцы закреплялись эпоксидным клеем в углублении подложки из гетинакса. Температурная зависимость сопротивления $R(T)$ измерялась четырехзондовым способом. Лазерная обработка осуществлялась лазером на основе иттрий-алюминиевого граната (YAG:Nd³⁺) с длиной волны 1.06 мкм. Характеристики лазерного излучения при обработке образцов 1 и 2 составляли: плотность энергии $F = 1.9$ Дж/см², длительность импульса $\tau = 3 \times 10^{-8}$ с. Образцы 3 и 4 обрабатывались излучением с большей плотностью энергии $F = 30$ Дж/см² при длительности импульса $\tau = 250 \times 10^{-6}$ с путем сканирования лазерным пучком по поверхности кристалла. Морфология поверхности образцов изучалась с помощью сканирующего электронного микроскопа VEGA TS5130MM, исследование элементного состава проводилось методом энергодисперсионного рентгеновского (EDX) микроанализа с использованием системы INCA Energy 300. Измерения проводились до и после лазерного воздействия на образцы. Далее в тексте подвергнутые лазерному воздействию образцы обозначены 1'–4'.

3. Результаты и обсуждение

3.1. Исследование микроструктуры поверхности образцов CuO/Cu и CuO/Ag

Образцы монокристаллов имели гладкую поверхность, однако у некоторых из них имелись области с дефектами. Лазерная обработка производилась на гладких участках поверхности. Рассмотрим сначала результаты воздействия излучения с $F = 1.9 \text{ Дж/см}^2$ на поверхность исследуемых образцов.

На рис. 1а,с представлены общий вид поверхности образцов 1' (CuO/Cu) и 2' (CuO/Ag), подвергнутых лазерной обработке. Лазерное воздействие привело к испарению металлической пленки на обоих образцах. В некоторых областях образца 1' появились выпуклости неправильной формы, свидетельствующие о частичном расплавлении поверхности кристалла (рис. 1б). В отдельных же областях поверхности образца 2' наблюдаются сферические частички микронных размеров (рис. 1д), которые, скорее всего, являются застывшими каплями расплавленной пленки серебра.

Совершенно иначе выглядят поверхности образцов 3' и 4', обработанных излучением с $F = 30 \text{ Дж/см}^2$ (рис. 2). Здесь можно видеть бороздки шириной порядка 30 мкм, образованные в результате сканирования лазерного пучка по поверхности образца. Расстояние между бороздками составляет $\sim 50 \text{ мкм}$. Видно,

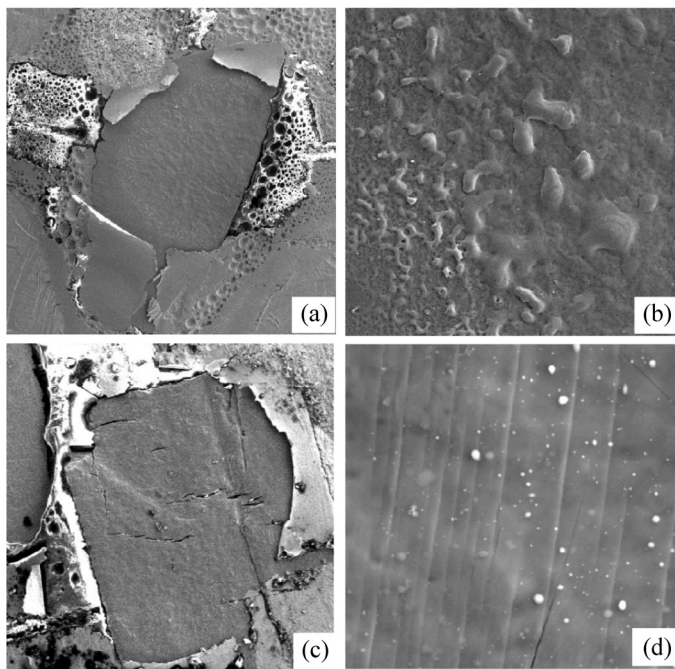


Рис.1. Микрофотографии поверхности образцов: (а,б) – 1' (CuO/Cu) и (с,д) – 2' (CuO/Ag). Увеличение: (б) – 1000, (д) – 5000.

что поверхность оплавлена и на ней нет частиц, которые можно принять за металлические включения. Ощутимой разницы между морфологией поверхности образцов, покрытых медной или серебряной пленкой не наблюдается, как в случае менее интенсивного (рис.1), так и более интенсивного (рис.2) излучения.

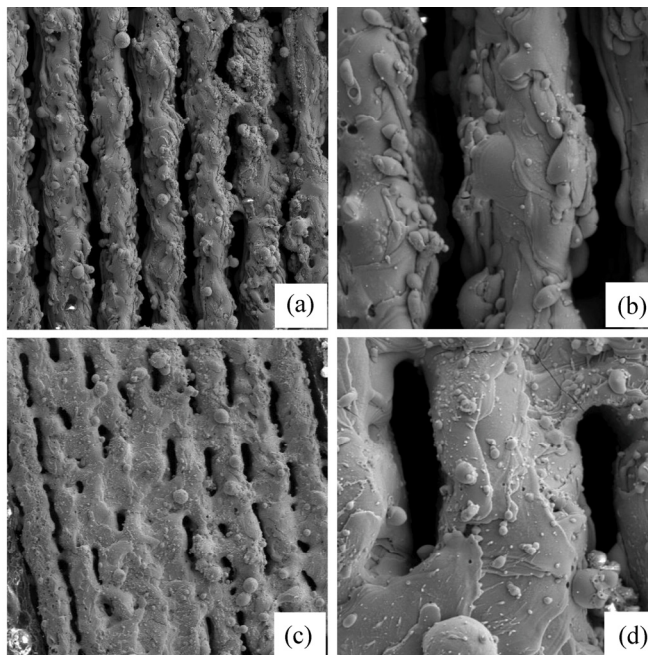


Рис.2. Микрофотографии поверхности образцов: (a,b) – 3' (CuO/Cu) и (c,d) – 4' (CuO/Ag). Увеличение: (a) – 200, (b) – 1000, (c) – 300, (d) – 1000.

3.2. Исследование элементного состава образцов CuO/Cu

Очевидно, что лазерная обработка многослойных образцов приводит к изменению химического состава приповерхностного слоя. Глубина и химический состав этого слоя должны определяться характеристиками используемого лазерного излучения и физико-химическими свойствами монокристаллов. В табл.1 приведены результаты рентгеновского микроанализа с указанием анализируемой области и данными по содержанию кислорода и меди и их отношения (Cu/O). Из приведенных данных видно, что составы образцов 1 и 3 (до покрытия медной пленкой и лазерной обработки) соответствуют химической формуле CuO. Данные анализа для образца 1' показывают, что лазерное воздействие приводит к испарению пленки Cu с поверхности, но не оказывает существенного влияния на состав образца под ней ни в центре лазерного пучка, ни на краю. Следовательно, лазерное излучение с малой плотностью энергии (1.9 Дж/см^2) не изменяет химический состав покрытого металлической пленкой образца, хотя и приводит к испарению этой пленки.

Табл.1. Содержание элементов в образцах CuO/Cu.

Область образца / анализируемая область, мкм ²	O, ат%	Cu, ат%	Cu/O
Образец 1			
1/70×70	49.64	50.36	1.01
Образец 1'			
Край фокального пятна / 5×5	48.59	51.41	1.06
Край фокального пятна / 50×50	49.51	50.49	1.02
Середина между центром и краем / 70×70	48.86	51.14	1.05
Центр фокального пятна / 70×70	49	51	1.04
Образец 3			
Край образца / 140×140	48.21	51.79	1.07
Центр образца / 140×140	47.78	52.22	1.09
Образец 3'			
1/5×5	32.16	67.84	2.1
2/ 5×5	38.46	61.54	1.6
3/ 5×5	28.88	71.12	2.46
4/ 5×5	16.47	83.53	5.07
5/ 5×5	38.09	61.91	1.63

Образец 3 также имеет состав, близкий к стехиометрическому (среднее значение $\text{Cu/O} = 1.08$). Отметим, что образцы 1, 1' и 3 имели гладкую поверхность, рентгеновский микроанализ проводился как с малых ($5 \times 5 \text{ мкм}^2$), так и с различных больших площадей. Как отмечалось выше, поверхность образца 3' бороздчатая, поэтому анализ состава проводился на малых гладких участках поверхности между бороздками. Данные табл.1 показывают, что воздействие лазерного пучка привело к значительному изменению состава приповерхностного слоя образца 3'. На глубине нескольких микрон, где происходит формирование характеристического рентгеновского излучения при исследованиях методом EDX, отношение Cu/O существенно превосходит значение этого параметра до лазерной обработки. По данным измерений на 5 различных участках поверхности образца 3' наблюдается большой разброс значений Cu/O , но даже минимальное значение этого параметра (1.6) значительно превосходит значение 1.08, соответствующее образцу 3. Таким образом, лазерное воздействие является мощным средством, с помощью которого можно кардинально изменять химический состав как керамических [14–16], так и монокристаллических образцов.

3.3. Исследование элементного состава образцов CuO/Ag

Монокристаллы (образцы 2 и 4) до покрытия серебром и лазерной обработки также имели состав, близкий к стехиометрическому (табл.2). Отношение Cu/O в образцах 2 и 4 изменяется в пределах 0.9–0.997. После лазерной обработки

Табл.2. Содержание элементов в образцах CuO/Ag.

Область образца / анализируемая область, мкм ²	O, ат%	Cu, ат%	Ag, ат%	Cu/O
Образец 2				
Край образца / 140×140	52.02	47.98	-	0.92
Центр образца / 5×5	52.59	47.41	-	0.9
Образец 2'				
Центр образца / 140×140	49.38	50.62		1.025
Центр образца / 5×5	49.8	50.2		1.01
Край образца / 5×5	50.88	48.05	1.06	0.95
Центр образца / 5×5	49.14	50.86		1.035
Край образца / 5×5	50.16	49.44	0.41	0.99
Образец 4				
Край образца / 140×140	50.07	49.93	-	0.997
Центр образца / 140×140	51.44	48.56	-	0.94
Край образца / 5×5	51.47	48.53	-	0.94
Центр образца / 5×5	51.2	48.8	-	0.95
Край образца / 5×5	51.85	48.15	-	0.93
Образец 4'				
Край образца / 5×5	37.91	61.16	0.93	1.61
Край образца 2 / 5×5	32.17	66.37	1.46	2.06
Край образца 3 / 5×5	34.84	63.72	1.43	1.83
Центр образца / 5×5	38.07	60.81	1.12	1.58
Центр образца / 5×5	41.44	57.53	1.02	1.39
Центр образца / 5×5	43.26	55.22	1.52	1.28
Центр образца / 5×5	39.17	59.75	1.09	1.53

отношение Cu/O образца 2' практически не изменяется. Оно увеличивается значительно для образца 4' (1.28–2.06) при лазерной обработке излучением с большей плотностью энергии, когда серебро входит в состав кристаллов в значительных количествах. Следовательно, лазерная обработка покрытых металлической пленкой кристаллов CuO, является достаточно простым способом их обогащения примесями различных металлов. Для образца 3' увеличение отношения Cu/O происходит как за счет потери кислорода в результате теплового воздействия лазерного излучения, так и вхождения ионов меди из пленки в кристалл.

Согласно [16,19], при высоких температурах оксид меди теряет кислород. Охлаждение в режиме закалки способствует сохранению химического состава образцов. Короткие лазерные импульсы обеспечивают аналогичные условия термообработки образцов и создают описанные выше изменения их элементного состава.

3.4. Исследование температурной зависимости сопротивления

Исследование температурной зависимости сопротивления $R(T)$ образцов проводилось в атмосфере азота в интервале температур 77–300К до и после лазерного воздействия. Образцы, находящиеся в герметичной вставке, охлаждались постепенным погружением в сосуд Дьюара с жидким азотом. Результаты измерений представлены на рис.3–5.

После лазерного воздействия образцы становятся существенно неоднородными, поэтому исследовалась температурная зависимость сопротивления $R(T)$. Рассмотрим сопротивление образцов до лазерной обработки (рис.3).

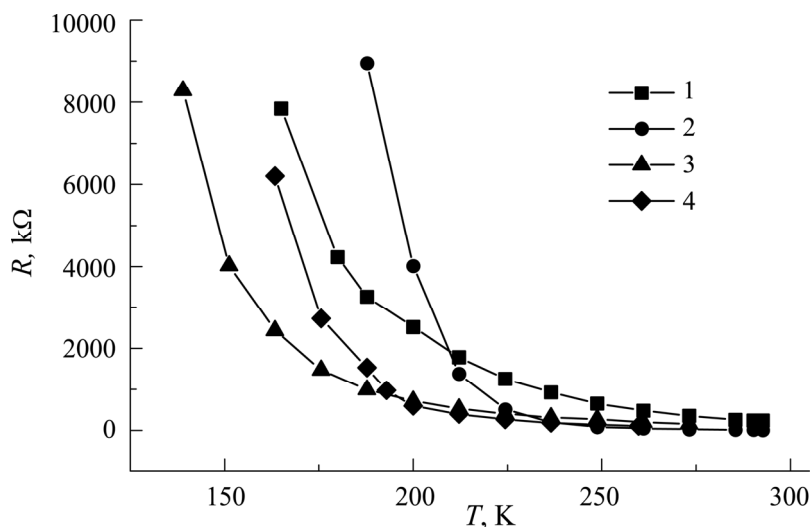


Рис.3. Температурные зависимости сопротивления образцов до лазерной обработки (номера кривых соответствуют номерам образцов).

У всех образцов наблюдается полупроводниковый ход зависимости $R(T)$. При комнатной температуре их сопротивления мало отличаются. Анализ кривых показывает, что с понижением температуры быстрее остальных увеличивается сопротивление образца 2, тогда как сопротивление образца 3 имеет наименьший рост. Эти образцы были выращены раствор-расплавным методом. Зависимости $R(T)$ для образцов 1 и 4, полученных из газовой фазы, располагаются между ними. Можно утверждать, что наблюдаемое различие зависимостей $R(T)$ монокристаллов CuO обусловлено различием их дефектной структуры, которая не всегда напрямую зависит от метода выращивания.

Зависимости сопротивления образцов R от обратной температуры до и после лазерной обработки представлены в логарифмическом масштабе на рис.4 и 5. По ним рассчитывалась энергия активации сопротивления W образцов. В табл.3 приводятся данные по W , средней статистической ошибке δW и разности значений энергии активации ΔW до и после лазерной обработки.

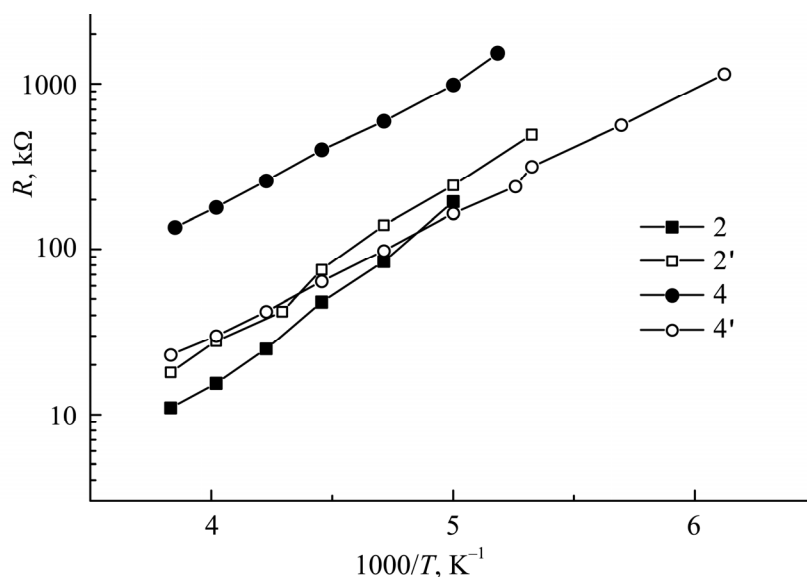


Рис.4. Температурные зависимости сопротивления образцов CuO/Ag (номера кривых соответствуют номерам образцов).

Рассмотрим кривые для образцов, покрытых пленкой Ag (рис.4), и сопоставим их с данными табл.3. Сравнение кривых 2 и 2' показывает, что лазерное излучение с малой плотностью энергии практически не изменяет сопротивление при комнатной температуре и энергию активации образца ($\Delta W = 0.02$ эВ). Сравнение же кривых 4 и 4' позволяет сделать вывод о том, что излучение с большой плотностью энергии изменяет оба эти параметра: сопротивление при комнатной температуре уменьшается, энергия активации увеличивается ($\Delta W = 0.11$ эВ).

Табл.3. Энергия активации образцов CuO до и после лазерного облучения.

Номер образца	F , Дж/см ²	W , эВ	δW , эВ	ΔW , эВ
1	-	0.23	0.0085	0.13
1'	1.9	0.36	0.0048	
2	-	0.38	0.0082	0.02
2'	1.9	0.40	0.0057	
3	-	0.17	0.0018	0.19
3'	30	0.36	0.0082	
4	-	0.22	0.0027	0.11
4'	30	0.33	0.0079	

На рис.5 представлены температурные зависимости сопротивления образцов, покрытых медной пленкой до и после лазерного воздействия. У образца 1

после лазерной обработки сохраняется сопротивление при комнатной температуре, а угол наклона кривой 1' к оси абсцисс увеличивается. Более существенные изменения после лазерной обработки наблюдаются у образца 3: уменьшается сопротивление при комнатной температуре и угол наклона кривой 3' увеличивается в большей степени. Значения энергии активации сопротивления отличаются в образцах до лазерной обработки и практически совпадают после нее. Большая плотность энергии лазерного пучка вызывает большее изменение энергии активации образца 3 ($\Delta W = 0.19$ эВ).

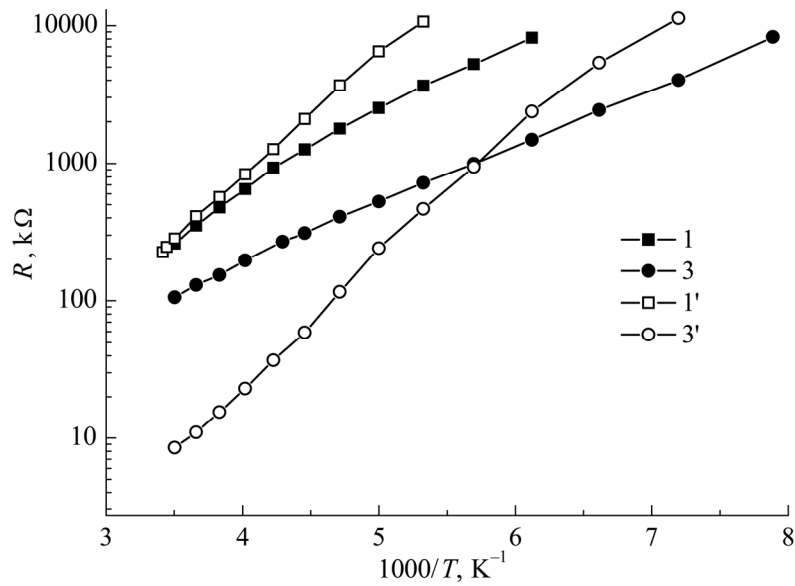


Рис.5. Температурные зависимости сопротивления образцов до лазерной обработки (номера кривых соответствуют номерам образцов).

Сопоставление полученных результатов с данными по воздействию лазерного излучения на элементный состав позволяет сделать вывод, что для образца 1 обработка лазерным излучением с $F = 1.9$ Дж/см² приводит к изменению энергии активации сопротивления вследствие изменения дефектной структуры, тогда как излучение с большей плотностью энергии $F = 30$ Дж/см² в случае лазерной обработки образца 3 изменяет дефектную структуру и элементный состав. Именно суммарное воздействие этих двух факторов приводит к более значительному изменению энергии активации.

На температурной зависимости сопротивления монокристаллов оксида меди не обнаружены особенности, наблюдавшиеся ранее для керамики CuO [16]. Можно заключить, что особенности обусловлены гранулированной структурой керамики.

4. Заключение

В результате проведенных исследований выявлена возможность изменения в широких пределах элементного состава и энергии активации сопротивления покрытых металлической пленкой монокристаллических образцов под воздействием лазерного излучения. После лазерной обработки в образцах CuO/Ag обнаруживаются атомы серебра. В результате воздействия излучения с плотностью энергии 30 Дж/см² изменяется отношение Cu/O. Это отношение изменяется в большей степени при лазерной обработке образцов CuO/Cu. Для этих же образцов получены максимальные изменения энергии активации сопротивления.

Авторы выражают благодарность В.Т. Татояну и В.С. Кузаныну за помощь в эксперименте.

ЛИТЕРАТУРА

1. **В.П. Вейко.** Лазерные микро- и нанотехнологии в микроэлектронике. СПб, НИУ ИТМО, 2011.
2. **B.W. Baird, R.F. Hainsey, X. Peng, P.Y. Pirogovsky.** Proc. SPIE, **6451**, 64511K-1 (2007).
3. **F. Korte, J. Serbin, J. Koch, et al.** Appl. Phys., **77**, 229 (2003).
4. **S.T. Hendow, S.A. Shakir.** Optics express, **18**, 10188 (2010).
5. **Р.П. Сейсян.** ЖТФ, **81**, 1 (2011).
6. **N. Dahotre.** Lasers in Surface Engineering. Surface Engineering Series. Materials Park, Ohio, ASM International, 1998, p.35–67.
7. **A.A. Majida, J.K. Asmaa, M.Y. Hanaa et al.** Int. Rev. Physics, **7**, 283 (2013).
8. **M. Zenou, O. Ermak, A. Saar, Z. Kotler.** J. Phys. D: Appl. Phys. **47**, 025501 (2014).
9. **A. Medvid, P. Onufrijevs et al.** Nanoscale Res. Lett., **8**, 264 (2013).
10. **D.Y. Kim.** J. Korean Phys. Soc., **44**, 341 (2004).
11. **А.М. Скворцов, Р.А. Халецкий, К.Т. Хуинь.** Научно-технический вестник СПб НИУ ИТМО, **83**, 119 (2013).
12. **V.P. Veiko, A.M. Skvortsov et al.** Proc. SPIE, **7996**, 79960S (2010).
13. **З.Ю. Готра, С.А. Осередько.** Зарубежная электронная техника, **12**, 3 (1985).
14. **А.С. Кузанын, С.Т. Пашаян, В.Т. Татоян.** Изв. НАН РА, Физика **49**, 28 (2014).
15. **А.С. Кузанын, С.Т. Пашаян, В.С. Кузанын, В.Т. Татоян.** ФТТ, **56**, 641 (2014).
16. **С.Т. Пашаян, А.С. Кузанын.** Изв. НАН РА, Физика, **50**, 251 (2015).
17. **В.С. Бураков, Н.А. Савастенко, Н.В. Тарасенко, Е.А. Невар.** ЖПС, **75**, 372 (2008).
18. **В.С. Бураков, Е.А. Невар, М.И. Неделько, Н.В. Тарасенко.** Рос. хим. журн., **LVII** (2014).
19. **A.M. Gadala, W.F. Ford, J. White.** Trans. J. Br. Ceram. Soc., **62**, 57 (1963).

ՄԵՏԱՂԱԿԱՆ ԹԱՂԱՆԹՈՎ ՊԱՏՎԱԾ CuO ՄԻԱԲՅՈՒՐԵՂՆԵՐԻ
ՀԱՏԿՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ԼԱԶԵՐԱՅԻՆ ՁԵՎԱՓՈԽՈՒՄԸ

Ս.Տ. ՓԱՇԱՅԱՆ, Ն.Վ. ՏԱՐԱՍԵՆԿՈ, Ա.Վ. ԲՈՒՑԵՆ, Ա.Ս. ԿՈՒԶԱՆՅԱՆ

Հետազոտված են պղնձի կամ արծաթի թաղանթով պատված պղնձի օքսիդի CuO միաբյուրեղների հատկությունները մինչև YAG:Nd³⁺ լազերի ճառագայթումը և ճառագայթումից հետո: Դիտարկված են նմուշների մակերեսի միկրոկառուցվածքի, տարրային բաղադրության և էլեկտրական հատկությունների կտրուկ փոփոխությունները լազերային ճառագայթման էներգիայի խտության աճին զուգընթաց: Հատիկավոր կառուցվածքով նմուշներին բնորոշ դիմադրության ջերմաստիճանային կախման առանձնահատկություններ չեն հայտնաբերվել: Լազերային ճառագայթման ազդեցությամբ պղնձի օքսիդի հատկությունների ձևափոխումը կարող է օգտագործվել տարբեր սարքավորումներում:

LASER INDUCED MODIFICATION OF THE PROPERTIES OF CuO SINGLE
CRYSTALS, COATED BY METAL FILM

S.T. PASHAYAN, N.V. TARASENKO, A.V. BUTSEN, A.S. KUZANYAN

The properties of copper oxide CuO single crystals, coated by metal film Cu or Ag before and after of their surface treatment by YAG:Nd³⁺ laser radiation were studied. The drastically changes in the surface microstructure, elemental composition and electrical properties of the investigated single crystals with increasing in energy density of laser radiation were observed. The features corresponding to granular samples on the temperature dependence of the resistance were not detected. Modification of copper oxides properties by the laser irradiation influence can be used to improve the characteristics of the various devices based on them.

УДК 541.64

ОБОБЩЕННАЯ МОДЕЛЬ ПОЛИПЕПТИДНОЙ ЦЕПИ ДЛЯ ПЕРЕХОДА СПИРАЛЬ–КЛУБОК В ДВУХКОМПОНЕНТНОМ РАСТВОРИТЕЛЕ

Ш.А. ТОНОЯН, А.В. АСАТРЯН*, С. МИРТАВУСИ,
Е.Ш. МАМАСАХЛИСОВ, В.Ф. МОРОЗОВ

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: asarevik@gmail.com

(Поступила в редакцию 1 февраля 2015 г.)

В рамках обобщенной модели полипептидной цепи (ОМПЦ) исследовано влияние на переход спираль–клубок лигандов, взаимодействующих различным способом. Показано, что модель сводится к базовой путем преобразования энергетического и энтропийного параметров. В отличие от случая чистого растворителя на оба параметра влияют как конкурентное, так и неконкурентное взаимодействия. В результате на температурной кривой плавления видно больше переходов. Обсуждается влияние полиэтиленгликоля на переход спираль–клубок в полиаланине.

1. Введение

Экспериментальные исследования переходов спираль–клубок в биополимерах, как правило, проводятся в водных растворах в присутствии других химических соединений. Как известно, *in vivo* биополимеры проявляют свою биологическую активность также в сложном водном окружении. Вода может как конкурировать с повторяющимися единицами биополимеров за образование водородных связей, так и не конкурировать, и связываться с повторяющимися единицами непосредственным образом, изменяя картину внутримолекулярных взаимодействий. Аналогичным образом могут действовать и другие вещества, растворенные в воде. Практически все биологические явления связаны с взаимодействиями макромолекул с лигандами. В предыдущих публикациях мы рассматривали различные модели, учитывающие разнообразные взаимодействия биополимер–растворитель. В результате получен ряд интересных эффектов влияния на переход различных механизмов воздействия на такие параметры переходов, как степень спиральности, корреляционная длина, теплоемкость и т.д., свидетельствующих о богатстве модели переходами, включающими в себя как плавление, так и выстраивание.

Целью настоящей работы является изучение влияния лигандов, различным образом взаимодействующих с биополимером, на параметры перехода спираль–клубок.

2. Гамильтониан базовой модели и гамильтониан в двухкомпонентном растворителе

Как и в предыдущих наших публикациях, посвященных переходу спираль–клубок [1–5], исследования проводятся в рамках ОМПЦ. Гамильтониан базовой ОМПЦ выглядит следующим образом:

$$-\beta H = J \sum_{i=1}^N \delta(\gamma_{i-\Delta+1}, 1) \delta(\gamma_{i-\Delta+2}, 1) \dots \delta(\gamma_{i-1}, 1) \delta(\gamma_i, 1) = J \sum_{i=1}^N \delta_i^{(\Delta)}. \quad (1)$$

Здесь $J = U/T$ – энергия водородной связи, приведенная к температуре, $\delta(\gamma_i, 1)$ – символ Кронекера, γ_i – переменная, описывающая конформацию одной повторяющейся единицы и принимающая значения от 1 до Q . Произведение символов Кронекера $\delta_i^{(\Delta)} = \prod_{k=\Delta-1}^0 \delta(\gamma_{j-k}, 1)$ равняется единице и выделяется энергия J , если Δ подряд соседних повторяющихся единиц находятся в спиральной конформации, обозначенной нами $N1$.

Рассмотрим биополимер, взаимодействующий с растворителем и состоящий из низкомолекулярных соединений двух типов. Одну из компонент назовем растворителем (S), а другую – лигандом (L). Эти обозначения будем использовать для того, чтобы различать параметры, соответствующие растворителю и лиганду. Пусть растворитель и лиганд взаимодействуют с цепью как конкурентным, так и неконкурентным способами. Рассмотрим наиболее общий случай, когда для каждого типа взаимодействия существует несколько мест посадки лиганда или растворителя. Мы исходим из предположения, что лиганд и растворитель располагаются равномерно около каждого из мест посадки. Пусть число молекул, способных взаимодействовать с каждым местом посадки, равно n , причем p из них являются молекулами лиганда, а $(n - p)$ – растворителя. В таком случае $p/n = c$, где c – концентрация лиганда. Введем переменную f , обозначающую номер молекулы, находящейся вблизи места посадки, и функцию $\delta(f < p)$, которая обращается в единицу, если с данным местом посадки взаимодействует молекула лиганда, и обращается в ноль, если – взаимодействует молекула растворителя, тогда $\delta(f > p) = 1 - \delta(f < p)$.

В таких обозначениях гамильтониан системы биополимер–двухкомпонентный растворитель запишется в следующем виде:

$$-\beta H = -\beta H_0 - \beta H_S \times \delta(f > p) - \beta H_L \delta(f < p), \quad (2)$$

где βH_0 – гамильтониан базовой модели без растворителя. Введем переменные l для молекул лиганда и s для молекул растворителя следующим образом:

$l_{i,st,k}$ – переменная, указывающая на ориентацию молекул лиганда, находящихся в окрестностях k -ого места посадки в спиральной структуре, т.е. i -я повторяющаяся единица связана водородной связью, причем водородная связь образуется, если молекула лиганда находится в ориентации $N1$;

$l_{i,h,k}$ – переменная, указывающая на ориентацию молекулы лиганда, находящегося в окрестностях k -ого места посадки в спиральной конформации, т.е. i -я повторяющаяся единица находится в конформации N1 независимо от того, связана она водородной связью или нет;

$l_{i,dst,k}$ – переменная, указывающая на ориентацию молекулы лиганда, находящегося в окрестностях k -ого места посадки с разорванной водородной связью;

$l_{i,c,k}$ – переменная, указывающая на ориентацию молекулы лиганда, находящегося в окрестностях k -ого места посадки в клубкообразной конформации, т.е. i -я повторяющаяся единица не находится в конформации 1.

Аналогичные обозначения вводятся для молекул растворителя. Тогда имеем:

$$\begin{aligned} -bH_S = & \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^{m_{st}^S} I_{k,st}^S d_i^{(D)} d(s_{i,st}^k, 1) + \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^{m^S} I_k^S (1 - d_i^{(D)}) d(s_{i,k}, 1) \\ & + \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^{m_h^S} I_{k,h}^S d_i^{(1)} d(s_{i,h,k}, 1) + \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^{m_c^S} I_{k,c}^S (1 - d_i^{(1)}) d(s_{i,c,k}, 1), \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} -\beta H_L = & \sum_{k=1}^{m_{st}^L} I_{k,st}^L \delta_i^{(\Delta)} \delta(l_{i,st}^k, 1) + \sum_{k=1}^{m^L} I_k^L (1 - \delta_i^{(\Delta)}) \delta(l_i^k, 1) \\ & + \sum_{k=1}^{m_h^L} I_{k,h}^L \delta_i^{(1)} \delta(l_{i,h}^k, 1) + \sum_{k=1}^{m_c^L} I_{k,c}^L (1 - \delta_i^{(1)}) \delta(l_{i,c}^k, 1), \end{aligned} \quad (4)$$

3. Статистическая сумма и преобразование параметров

Статистическая сумма для описанной выше модели будет иметь вид

$$Z = \sum_{\{\gamma\}} \sum_{\{s\}} \sum_{\{l\}} \sum_f e^{-\beta H}. \quad (5)$$

Просуммируем (5) по f , после чего получим выражение

$$Z = n^N \sum_{\{\gamma\}} \prod_{i=1}^N e^{-\beta H_0} c \sum_{\{S\}} \sum_{\{L\}} e^{-\beta H_L} + n^N \sum_{\{\gamma\}} \prod_{i=1}^N e^{-\beta H_0} (1 - c) \sum_{\{S\}} \sum_{\{L\}} e^{-\beta H_S}, \quad (6)$$

где каждый из членов, связанных с растворителем и с лигандом можно преобразовать так, как это было сделано в [6,7]. При этом учитываем, что каждый тип взаимодействия полимер–растворитель и полимер–лиганд происходит в нескольких местах связывания. Поскольку первая сумма в формуле (6) не зависит от $\{S\}$ а вторая от $\{L\}$, то для первой суммы возникнет произведение всех $q_{\{s_i\}}$, а для второй – произведение всех $q_{\{l_i\}}$. Тогда, после вынесения всех произведений $\{q_{\{l_i\}}\}$ и $\{q_{\{s_i\}}\}$, статсумма с точностью до произведения констант может быть приведена к линейному по концентрации виду и состоять из двух подстатсумм $\sum_{\{l\}}$ и $\sum_{\{s\}}$:

$$Z = \sum_{\{\gamma\}} \prod_i c \sum_{\{l\}} \frac{e^{-\beta H_L}}{\prod \{q_l\}} + \sum_{\{\gamma\}} \prod_i (1-c) \sum_{\{s\}} \frac{e^{-\beta H_S}}{\prod \{q_s\}}. \quad (7)$$

Проведем суммирование по всем переменным ориентации молекул растворителя и лиганда. Поскольку в гамильтониане каждый тип взаимодействия содержит слагаемые с независимыми переменными, то в каждой из подстатсумм

$\sum_{\{l\}}$ и $\sum_{\{s\}}$ содержатся произведения типа $q_j \left(1 + \left[\left(\frac{e^{I_j} - 1}{q_j} + 1 \right) - 1 \right] \delta \right)$, где под δ

следует понимать $\delta_i^{(\Delta)}, 1 - \delta_i^{(\Delta)}, \delta_i^{(1)}, 1 - \delta_i^{(1)}$. Используя очевидное равенство

$$\prod_j (1 + (A_j - 1)\delta) = 1 + \left(\prod_j A_j - 1 \right) \delta, \text{ для статсуммы с точностью до константы по-}$$

лучим выражение

$$\begin{aligned} Z = & c \sum_{\{g\}} \prod_i e^J \delta_i^{(\Delta)} \left[1 + \left(\prod_{k=1}^{m_{st}^L} \left(\frac{e^{I_{st,k}^L} - 1}{q_k^L} + 1 \right) - 1 \right) \delta_i^{(\Delta)} \right] \\ & \times \left[1 + \left(\prod_{k=1}^{m_{dst}^L} \left(\frac{e^{I_{dst,k}^L} - 1}{q_k^L} + 1 \right) - 1 \right) (1 - \delta_i^{(\Delta)}) \right] \left[1 + \left(\prod_{k=1}^{m_h^L} \left(\frac{e^{I_{h,k}^L} - 1}{q_k^L} + 1 \right) - 1 \right) \delta_i^{(1)} \right] \\ & \times \left[1 + \left(\prod_{k=1}^{m_c^L} \left(\frac{e^{I_{c,k}^L} - 1}{q_k^L} + 1 \right) - 1 \right) (1 - \delta_i^{(1)}) \right] \\ & + (1-c) \sum_{\{g\}} \prod_i e^J \delta_i^{(\Delta)} \left[1 + \left(\prod_{k=1}^{m_{st}^S} \left(\frac{e^{I_{st,k}^S} - 1}{q_k^S} + 1 \right) - 1 \right) \delta_i^{(\Delta)} \right] \\ & \times \left[1 + \left(\prod_{k=1}^{m_{dst}^S} \left(\frac{e^{I_{dst,k}^S} - 1}{q_k^S} + 1 \right) - 1 \right) (1 - \delta_i^{(\Delta)}) \right] \left[1 + \left(\prod_{k=1}^{m_h^S} \left(\frac{e^{I_{h,k}^S} - 1}{q_k^S} + 1 \right) - 1 \right) \delta_i^{(1)} \right] \\ & \times \left[1 + \left(\prod_{k=1}^{m_c^S} \left(\frac{e^{I_{c,k}^S} - 1}{q_k^S} + 1 \right) - 1 \right) (1 - \delta_i^{(1)}) \right]. \end{aligned} \quad (8)$$

После перемножения в (8) статсумма преобразуется в форму

$$\begin{aligned} \sum_{\{\gamma\}} \prod_i & \left[\delta_i^{(1)} + (Q-1) \frac{c D_{dst}^L D_c^L + (1-c) D_{dst}^S D_c^S}{c D_{dst}^L D_h^L + (1-c) D_{dst}^S D_h^S} (1 - \delta_i^{(\Delta)}) \right. \\ & \left. + \left(e^J \frac{c D_{st}^L D_h^L + (1-c) D_{st}^S D_h^S}{c D_{dst}^L D_h^L + (1-c) D_{dst}^S D_h^S} - 1 \right) \delta_i^{(\Delta)} \right], \end{aligned} \quad (9)$$

где использованы обозначения $D_j = \prod_k \left(1 + \frac{e^{I_{j,k}} - 1}{q_{j,k}} \right)$.

Таким образом, исследуемая модель сводится к базовой со сложным, зависимым от концентрации, переопределением энергетического и энтропийного параметров теории, согласно выражениям:

$$\tilde{Q} - 1 = \frac{cD_{dst}^L D_c^L + (1-c)D_{dst}^S D_c^S}{cD_{dst}^L D_h^L + (1-c)D_{dst}^S D_h^S} \times (Q - 1), \quad (10)$$

$$\tilde{W} = e^J \times \frac{cD_{st}^L D_h^L + (1-c)D_{st}^S D_h^S}{cD_{dst}^L D_h^L + (1-c)D_{dst}^S D_h^S}. \quad (11)$$

4. Результаты и обсуждение

Как видно из уравнений (10) и (11), в отличие от случая чистого растворителя, когда конкурентное взаимодействие влияет только на энергетический параметр $\tilde{W}$, а неконкурентное взаимодействие – только на конформационный параметр $\tilde{Q}$, в случае двухкомпонентного растворителя наблюдается перемешивание параметров – неконкурентное взаимодействие со спиралью входит как в выражение $\tilde{W}$, так и в выражение $\tilde{Q}$. То же самое имеет место в случае конкурентного взаимодействия. Из полученных формул (10) и (11) ясно, что система в двухкомпонентном окружении (растворитель–лиганд) обладает более разнообразным поведением, чем в однокомпонентном, рассмотренном нами ранее [6,7].

На рис.1 показано поведение $\tilde{W}$ и $\tilde{Q}$ при определенном соотношении энергий внутри- и межмолекулярного взаимодействий при разных концентрациях молекул лигандов. Для иллюстрации мы привели случай, когда число мест посадки молекул лиганда и растворителя равно единице, межмолекулярные взаимодействия как с растворителем, так и с лигандами энергетически более выгодны по сравнению с внутримолекулярными, и для неконкурентного взаимодействия с лигандом более выгодны спиральные, а с растворителем – клубкообразные конформации. Видно, что двухкомпонентный растворитель может проявлять большее количество переходов (спираль–клубок и клубок–спираль), чем однокомпонентный. С изменением концентрации молекул лигандов количество переходов изменяется, причем максимальное количество переходов происходит при промежуточных значениях концентрации.

Рассмотрим поведение температуры перехода спираль–клубок T_m . Она определяется из соотношения $\tilde{W} = \tilde{Q}$. Используя формулы (10) и (11), это условие примет вид

$$cD_{dst}^L \left[\frac{e^J D_{st}^L}{D_{dst}^L} - \left(1 + (Q-1) \frac{D_c^L}{D_h^L} \right) \right] + (1-c)D_{dst}^S \left[\frac{e^J D_{st}^S}{D_{dst}^S} - \left(1 + (Q-1) \frac{D_c^S}{D_h^S} \right) \right] = 0. \quad (12)$$

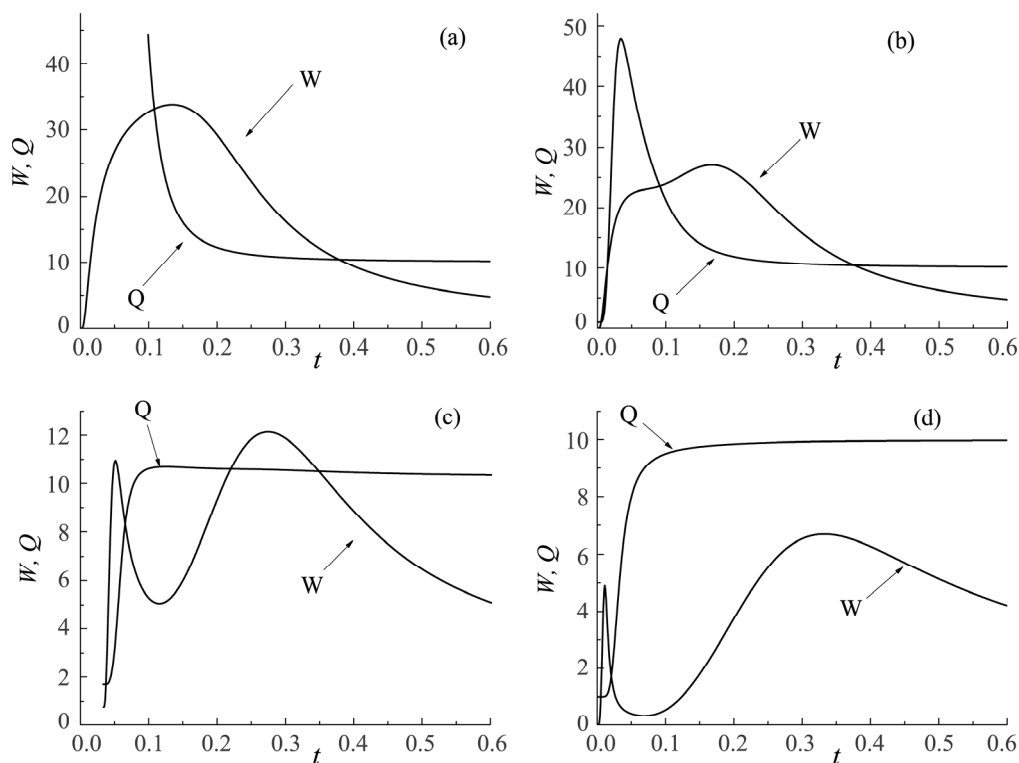


Рис.1. Температурные зависимости энергетического и энтропийного параметров при (a) $c = 0$, (b) $c = 0.022$, (c) $c = 0.28$ и (d) $c = 0.88$ значениях концентрации молекул лиганда.

Из формулы (12) видно, что выражения в квадратных скобках определяют точку перехода для чистых лиганда и растворителя. Таким образом, точка перехода для смеси лиганд–растворитель находится между точками перехода спираль–клубок чистых лиганда и растворителя, т.е. концентрационное поведение точки перехода является монотонным от точки перехода чистого растворителя до точки перехода чистого лиганда.

В наших ранних работах [6,7] было показано, что поскольку вода является конкурентом за образование водородной связи, то точка перехода спираль–клубок в водном окружении лежит ниже точки перехода базовой модели, определяемой соотношением $e^J = Q$. Именно этот результат дает нам возможность проинтерпретировать эксперименты со стабилизирующим эффектом полиэтиленгликоля (ПЭГ) на спиральную структуру полипептида.

В работах [8] экспериментально изучался переход спираль–клубок в полиаланине в присутствии ПЭГ. Было показано, что хотя ПЭГ не взаимодействует с полипептидом, он стабилизирует спиральную структуру. Механизм этого эф-

фекта, изложенный нами ранее в рамках теории однокомпонентного растворителя, имел сложное объяснение [9]. В рамках приведенной в данной работе модели мы получаем этот результат

$$(1-c)[\tilde{W}_S - \tilde{Q}_S] - c[\tilde{W}_L - \tilde{Q}_L] = 0. \quad (13)$$

Поскольку ПЭГ не взаимодействует с полипептидом, то все D^L обратятся в единицу, и выражение для определения точки перехода примет вид

$$(1-c)D_{dst}^S \left[\frac{e^J D_{st}^S}{D_{dst}^S} - \left(1 + (Q-1) \frac{D_c^S}{D_h^S} \right) \right] + c[e^J - Q] = 0. \quad (14)$$

5. Заключение

Как уже было сказано, температура перехода спираль–клубок базовой модели выше, чем в водном окружении. Поэтому с ростом концентрации ПЭГ, точка перехода должна расти. Этот результат можно интерпретировать следующим образом: вода конкурирует за образование водородной связи, а лиганд, который хоть и не взаимодействует, но занимая место, мешает этой конкуренции, что приводит к стабилизации.

Работа выполнена при финансовой поддержке ГКН МОН РА в рамках проекта 13-1F343.

ЛИТЕРАТУРА

1. N.S. Ananikyan, Sh.A. Hayryan, E.Sh. Mamasakhlisov, V.F. Morozov. Biopolymers, **30**, 357 (1990).
2. Sh.A. Hayryan, E.Sh. Mamasakhlisov, V.F. Morozov. Biopolymers, **35**, 75 (1995).
3. V.F. Morozov, A.V. Badasyan, A.V. Grigoryan, M.A. Sahakyan, E.Sh. Mamasakhlisov. Biopolymers, **75**, 434 (2004).
4. Е.Ш. Мамасахлисов, А.В. Бадасян, В.Ф. Морозов, А.В. Григорян, А.В. Царукян. Изв. НАН Армении, Физика, **40**, 111 (2005).
5. Ш.А. Тоноян, Г.Н. Айрапетян, А.В. Иванов, И.В. Багдян, А.В. Царукян. Изв. НАН Армении, Физика, **44**, 456 (2009).
6. Ш.А. Тоноян, А.С. Мирзаханян, Г.Н. Айрапетян, А.В. Царукян, В.Ф. Морозов. Изв. НАН Армении, Физика, **45**, 133 (2010).
7. A. Badasyan, Sh. Tonoyan, A. Giacometti, R. Podgornik, V.A. Parsegian, Y. Mamasakhlisov, V.F. Morozov. Phys. Rev. E, **89**, 022723 (2014).
8. A. Koutsioubas, D. Lairez, S. Combet, G.C. Fadda, S. Longeville, G. Zalczer. arXiv:1112.4676v1 (2011).
9. A. Badasyan, Sh. Tonoyan, A. Giacometti, R. Podgornik, V.A. Parsegian, Y. Mamasakhlisov, V. Morozov. Phys. Rev. Lett., **109**, 068101 (2012).

ՊՈԼԻՊԵՊՏԻԴԱՅԻՆ ՇՂԹԱՅԻ ԸՆԴՀԱՆՐԱՑՎԱԾ ՄՈԴԵԼԸ
ԵՐԿԿՈՄՊՈՆԵՆՏԱՅԻՆ ԼՈՒԾԻԶՈՒՄ ՊԱՐՈՒՅՐ-ԿՕԻԿ ԱՆՑՄԱՆ ՀԱՄԱՐ

Շ.Ա. ՏՈՆՈՅԱՆ, Ա.Վ. ԱՍԱՏՐՅԱՆ, Ս. ՄԻՐՏԱՎՈՒՍԻ,
Ե.Շ. ՄԱՄԱՍԱԽԼԻՍՈՎ, Վ.Ֆ. ՄՈՐՈԶՈՎ

Պոլիպեպտիդային Շղթայի Ընդհանրացված Մոդելի (ՊՇԸՄ) շրջանակներում ուսումնասիրված է տարբեր ձևով փոխազդող լիգանդների ազդեցությունը պարույր-կծիկ անցման վրա: Ցույց է տրված, որ մոդելը բերվում է բազային մոդելի էներգիական և էնթալպիական պարամետրերի ձևափոխման եղանակով: Ի տարբերություն մաքուր լուծիչի դեպքի, երկու պարամետրերի վրա ազդում են ինչպես մրցակցային, այնպես էլ ոչ մրցակցային փոխազդեցությունները: Արդյունքում նկարագրված համակարգի ջերմաստիճանային վարքը ավելի հարուստ է անցումներով: Քննարկված է պոլիէթիլենգլիկոլի ազդեցությունը պարույր-կծիկ անցման վրա պոլիալանինում:

GENERALIZED MODEL OF POLYPEPTIDE CHAIN FOR HELIX-COIL
TRANSITION IN TWO-COMPONENT SOLVENT

SH.A. TONoyAN, A.V. ASATRYAN, S. MIRTAVUSI,
Y.SH. MAMASAKHLISOV, V.F. MOROZOV

In the framework of Generalized Model of Polypeptide Chain (GMPC), the influence on the helix-coil transition of the ligands which interact in different ways was studied. It is shown that the model is reduced to the base model by converting of energy and entropy parameters. In contrast to the case of the pure solvent, both competitive and noncompetitive interactions affect both parameters. As a result temperature behavior of system is described by the abundance of transitions. The influence of polyethyleneglycol on the helix-coil transition in polyalanine is discussed.

УДК 577.323

СПЕКТРЫ ПОГЛОЩЕНИЯ И ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ КОМПЛЕКСОВ ПОЛИНУКЛЕОТИДОВ С БРОМИСТЫМ ЭТИДИЕМ

П.О. ВАРДЕВАНЯН*, А.П. АНТОНЯН,
М.А. ПАРСАДАНЯН, М.В. МИНАСЯНЦ

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: biophys_dep@mail.ru

(Поступила в редакцию 22 апреля 2015 г.)

Проведено исследование взаимодействия бромистого этидия (БЭ) с полинуклеотидами poly(dA)-poly(dT) и poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] при ионной силе раствора 0.02 М и pH = 7.2. Выявлено, что БЭ с poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] связывается тремя способами – интеркаляционным, полуинтеркаляционным и слабым (электростатическим), в то время как с poly(dA)-poly(dT) двумя способами – интеркаляционным и полуинтеркаляционным. Более того, с poly(dA)-poly(dT) БЭ связывается кооперативно, а с poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] – некооперативно.

1. Введение

Изучение функций ДНК представляет определенный интерес, поскольку они тесно связаны с ее упорядоченной пространственной структурой (конформациями). ДНК в растворе представляет аperiодический одномерный кристалл, который может переходить из одного конформационного состояния в другое подобно фазовым переходам в кристаллах [1]. На эти переходы существенно может влиять нуклеотидная последовательность ДНК, которая играет важную роль в установлении ее конформаций в растворе. Изменения в нуклеотидной последовательности ДНК могут сдвигать равновесие между различными конформациями, так как при этом изменяются гетерогенность системы (энергия межплоскостных перпендикулярных взаимодействий), степень гидратированности молекулы и распределение плотности заряда в данном участке макромолекулы [2–9]. Естественно предположить, что эти эффекты должны влиять на конформационные изменения ДНК в растворе [10–13], что в свою очередь может приводить к изменениям характеристик ее взаимодействия с лигандами [14–21]. Для определения зависимости структуры ДНК от нуклеотидной последовательности информативными могут быть сравнительные исследования комплексообразования БЭ с такими полинуклеотидами, которые состоят из одинаковых оснований, но представляют собой различные последовательности. Таковыми являются poly(dA)-poly(dT) и poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)]. Poly(dA)-poly(dT) при низкой concentra-

ции соли и высокой относительной влажности волокон имеет структуру типичной В'-ДНК. В растворе этот полинуклеотид более гидратирован, чем poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] или ДНК. Это единственный случай, когда структурные характеристики poly(dA)-poly(dT) в волокнах и в растворе полностью совпадают. У этого полинуклеотида на каждый виток спирали приходится 10.1 ± 0.1 пар оснований [3], к тому же спираль poly(dA)-poly(dT) не переходит в другие структурные формы. В частности, уменьшение активности воды при добавлении этанола в раствор не вызывает конформационного перехода из В- в А-форму, как в случае poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] или ДНК. У poly(dA)-poly(dT) особый спектр кругового дихроизма (КД) и этот полинуклеотид не образует нуклеосом при взаимодействии с гистоновыми октамерами [3]. У этого полинуклеотида малая бороздка более узкая и молекула в целом имеет более жесткую структуру, чем В-ДНК.

Poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] в растворе приобретает более гибкую структуру и по своим структурным характеристикам мало отличается от природной ДНК. В противоположность ему, poly(dA)-poly(dT), poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] является альтернирующей последовательностью, т. е. в одной и той же нити адениновые и тиминовые основания чередуются. На уровне двухцепочечной структуры это приводит к тому, что в poly(dA)-poly(dT) каждая элементарная ячейка (А-Т пара) находится по соседству с гомологичными элементами, в то время как в poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] каждая А-Т пара находится между Т-А парами и наоборот. Это обуславливает существенные структурные и функциональные различия между указанными полинуклеотидами, что не может не отразиться на их взаимодействии с лигандами.

Целью настоящей работы является сравнительное исследование взаимодействия БЭ с poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] и poly(dA)-poly(dT), а также определение параметров связывания для более точного понимания функциональных свойств различных структур ДНК.

2. Материалы и методы исследований

В работе были использованы синтетические полинуклеотиды poly(dA)-poly(dT) и poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] (с одинаковой длиной цепи) фирмы «Sigma» (США), бромистый этидий (БЭ), «Serva» (Германия), NaCl, Na-цитрат, этилендиаминтетраацетат (ЭДТА) (ос.ч.). Все препараты использовались без дополнительной очистки. Концентрации препаратов были определены абсорбционным методом с использованием следующих коэффициентов экстинкции: poly(dA)-poly(dT) – $\varepsilon_{260} = 6000 \text{ M}^{-1}\text{cm}^{-1}$, poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] – $\varepsilon_{260} = 6600 \text{ M}^{-1}\text{cm}^{-1}$, БЭ – $\varepsilon_{480} = 5800 \text{ M}^{-1}\text{cm}^{-1}$. Исследования проводились при ионной силе $\mu = 0.02 \text{ M}$, температуре 25°C и $\text{pH} = 7.0$.

Соединения, содержащие группу ароматических хромофорных колец, в том числе БЭ, в растворе могут образовывать димеры при высоких концентрациях (более $1.5 \times 10^{-4} \text{ M}$). Учитывая это, при исследовании комплексов БЭ с полинуклеотидами необходимо работать с такими концентрациями красителя, чтобы

димеризация была бы ничтожна и ею можно было бы пренебречь. При простой димеризации можно определить концентрации как димеров, так и мономеров. Константа связывания K при димеризации в 10^{-1} М NaCl при $t = 25^\circ\text{C}$ составляет $K = 70 \text{ M}^{-1}$ [20]. При простой димеризации $2C_M \rightarrow C_D$, где C_M – концентрация мономеров, C_D – концентрация димеров, можно применить формулу

$$C_D = K_D C_M^2. \quad (1)$$

Полная концентрация молекул БЭ

$$C_0 = C_M + 2C_D \quad (2)$$

или

$$C_0 = C_M + 2K_D C_M^2. \quad (3)$$

Поскольку полная концентрация БЭ в наших исследованиях составляла 6×10^{-5} М, то подставляя это значение и учитывая константу димеризации в (3), можно оценить долю мономеров и димеров молекул красителя. В нашем случае концентрация димеров составляла $\sim 0.1\%$, поэтому ею можно пренебречь.

Спектрофотометрические измерения проводили на спектрофотометрах РУЕ Unicam SP8-100. Спектры флуоресценции регистрировали на спектрофлуориметре Varian Cary Eclipse. Для измерений использовали кварцевые кюветы объемом 0.5 мл с длиной оптического пути 1 см. Титрование растворов исследуемых образцов проводили микропипеткой объемом 10 мкл фирмы «Hamilton».

При измерении спектров поглощения концентрация БЭ в растворе оставалась постоянной, а концентрация полинуклеотидов возрастала по ходу титрования. Спектры комплексов БЭ с полинуклеотидами и чистого БЭ измеряли в диапазоне длин волн от 400 нм до 600 нм. Максимум поглощения чистого БЭ соответствует длине волны 480 нм. По ходу спектрофотометрического титрования максимум поглощения раствора БЭ уменьшается и сдвигается в более длинноволновую область. При этом наблюдаются изобестическая точка при 510 нм для двухцепочечных полинуклеотидов [21]. С некоторого значения C_p/C_0 , где C_p – концентрация полинуклеотидов в растворе и C_0 – концентрация БЭ, в области длин волн 520–525 нм сдвиг максимума в длинноволновую область прекращается, а спектры отклоняются от изобестической точки, что указывает на то, что БЭ находится в полностью связанном состоянии.

Спектры флуоресценции БЭ с полинуклеотидами получены в интервале длин волн 500–750 нм при длине волны возбуждения $\lambda = 480$ нм.

Для получения r/C_f и r из спектров поглощения комплексов БЭ – полинуклеотид определялась концентрация несвязанного лиганда C_f с помощью уравнения

$$\frac{C_f}{C_0} = \frac{A - A_\infty}{A_0 - A_\infty}, \quad (4)$$

где A – поглощение комплекса при данной концентрации лиганда, A_0 и A_∞ – поглощение полностью свободного и связанного лигандов, соответственно, $C_0 =$

$C_f + C_b$ – полная концентрация БЭ в растворе, $r = C_b/C_p$, C_b – концентрация связанного лиганда и C_p – концентрация фосфатных групп полинуклеотида.

Из спектров флуоресценции рассчитывали концентрацию интеркалированного БЭ, используя уравнение

$$\frac{c_r^\Phi(t)}{c_0(t)} = \frac{[I(t) - I_1(t)]}{[I_2(t) - I_1(t)]}, \quad (5)$$

где $I(t)$, $I_1(t)$, $I_2(t)$ – измеряемые интенсивности флуоресценции соответственно исследуемого образца, контрольных образцов со свободным и полностью связанным БЭ ($\lambda_{\text{возб}} = 510$ нм, $\lambda_{\text{фл}} = 610$ нм), $C_0 = C_1 + C_2$ – сумма концентраций свободного C_1 , определяемого из абсорбционных кривых, и связанного C_2 БЭ в растворе. Здесь $C_2 = C_2^\Phi + C_2^{\text{н}\Phi}$, C_2^Φ – связанный флуоресцирующий и $C_2^{\text{н}\Phi}$ – связанный нефлуоресцирующий БЭ, $r_\Phi = C_2^\Phi/C_p$, $r^{\text{н}\Phi} = C_2^{\text{н}\Phi}/C_p$, $r = r^\Phi + r^{\text{н}\Phi}$.

Кривую связывания в координатах Скэтчарда строили из спектров поглощения абсорбции и флуоресценции комплексов БЭ с указанными полинуклеотидами с использованием формул [19]:

$$\frac{r}{C_f} = K(1 - nr) \left[\frac{(2\omega - 1)(1 - nr) + r - R}{2(\omega - 1)(1 - nr)} \right] \left[\frac{1 - (n + 1)r + R}{2(1 - nr)} \right]^2, \quad (6)$$

$$R = \left([1 - (n + 1)r]^2 + 4\omega r(1 - nr) \right)^{1/2},$$

где ω – фактор кооперативности, который при связывании БЭ с poly(dA)-poly(dT) принимает значения больше 1, K – константа связывания, n – число мест связывания, значения которых определяются из кривых связывания.

В случае связывания БЭ с poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] фактор кооперативности $\omega = 1$, поэтому кривую связывания строили по формуле

$$\frac{r}{C_f} = K(1 - nr) \left[\frac{1 - nr}{1 - (n - 1)r} \right]^{n-1}, \quad (7)$$

которую линеаризовали, согласно [22], по формуле

$$\frac{r}{C_f} = K(1 - (2n - 1)r). \quad (8)$$

Экспериментальная ошибка не превышала 10%.

3. Результаты и обсуждение

Спектроскопическими (абсорбционным и флуориметрическим) методами исследовано взаимодействие БЭ с двумя синтетическими двухцепочечными (дц) гомополинуклеотидами, состоящими из адениновых и тиминового оснований, причем один из гомополинуклеотидов является гомопурин-гомопиримидиновой

спиралью, другой – пурин-пиримидин альтернирующей спиралью. На рис.1а,b приведены спектры поглощения и флуоресценции БЭ (кривые 1) и его комплексов с poly(dA)-poly(dT) (кривые 2–17 на рис.1а и 2–13 – на рис.1b). Аналогичные спектры получены для случая дц-poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] (спектры не приводятся). Из приведенного рисунка видно, что, как и в случае ДНК тимуса телят, при связывании с poly(dA)-poly(dT) спектры поглощения БЭ уменьшаются в максимумах и сдвигаются в длинноволновую область по сравнению со спектром БЭ без указанных полинуклеотидов. При этом все спектры поглощения комплексов БЭ–poly(dA)-poly(dT) проходят через изобестическую точку. Изобестическая точка указывает на то, что в растворе молекулы БЭ находятся в двух спектрофотометрически различимых формах – свободной и связанной. Важно отметить, что изобестическая точка обычно проявляется на спектрах ДНК–лиганд, если последний связывается интеркаляционным способом.

Из рис.1b видно, что интенсивность флуоресценции БЭ возрастает примерно в 40–50 раз при связывании с poly(dA)-poly(dT) по сравнению с интенсив-

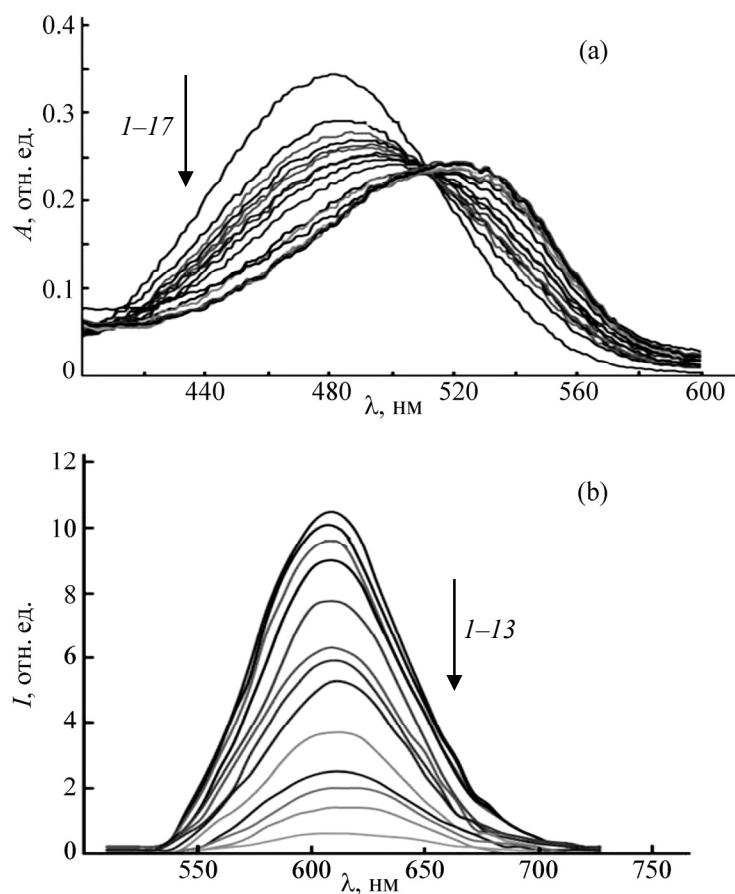


Рис.1. Спектры поглощения (а) и флуоресценции (b) комплексов полинуклеотидов с БЭ.

ностью флуоресценции БЭ. Это обусловлено тем, что молекулы лиганда, интеркалируя в плоскость между парами оснований, становятся недоступными для молекул тушителя (в данном случае для воды и растворенного в ней молекулярного кислорода), вследствие чего интенсивность флуоресценции возрастает [23–26].

Из спектров поглощения и флуоресценции комплексов БЭ с poly(dA)-poly(dT) и poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] получены значения r/C_f , r и построены кривые зависимостей, которые приведены на рис.2. Видно, что взаимодействие БЭ с poly(dA)-poly(dT) (рис.2a) имеет кооперативный характер, в то время как с дц-poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] (рис.2b) кооперативность не обнаруживается. Более того, кривые связывания БЭ с этим полинуклеотидом в координатах Скэтчарда совпадают с аналогичными кривыми, полученными при взаимодействии БЭ с ДНК [24,25].

Известно, что poly(dA)-poly(dT) имеет структуру, отличную от ДНК. Более того, этот полинуклеотид более гидратирован и имеет более жесткую структуру, чем ДНК [3,23]. По всей вероятности, эти структурные особенности

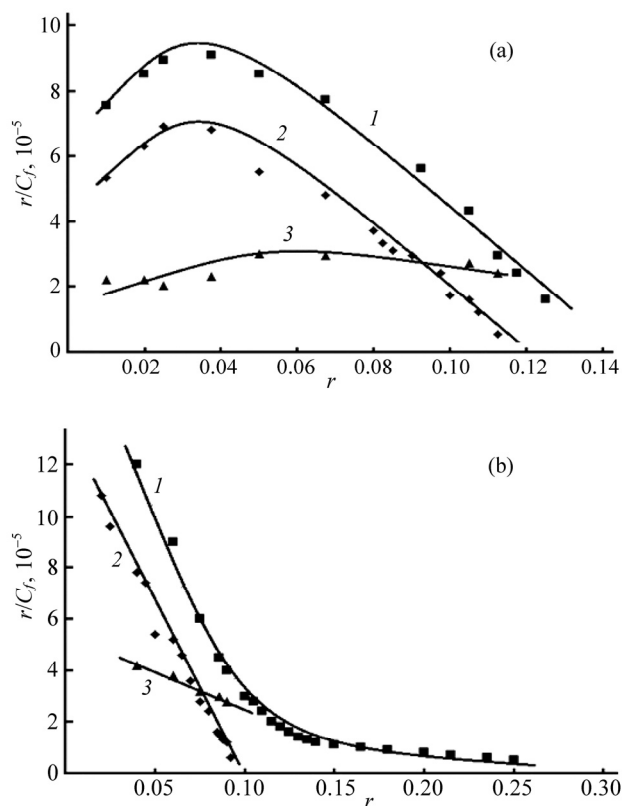


Рис.2. Кривые связывания БЭ с (a) poly(dA)-poly(dT) и (b) с poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)], полученные на основании спектров поглощения (кривая 1) и флуоресценции (кривая 2). Кривые 3 получены вычитанием соответствующих кривых 2 из кривых 1. Ионная сила раствора $\mu = 0.02$ М и pH = 7.2.

poly(dA)-poly(dT) и являются причиной возникновения кооперативности при интеркаляции БЭ в дц-структуру этого полинуклеотида. Примечательно, что кривые связывания, полученные из абсорбционных и флуориметрических данных (кривые 1 и 2 на рис.2а) различаются. Вычитанием кривой 2 из кривой 1 при одних и тех же значениях r получена кривая 3. Как видно из приведенного рисунка, данные, соответствующие кривой 3, слабо возрастают в интервале $0 < r \leq 0.06$, затем с увеличением r претерпевают небольшое уменьшение. Разность кривых 1 и 2 указывает на то, что кроме сильного флуоресцирующего (интеркаляционного способа), БЭ с poly(dA)-poly(dT) связывается также слабым нефлуоресцирующим способом, который также носит кооперативный характер.

Иная ситуация обнаруживается при связывании БЭ с poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)], который состоит из альтернирующих А и Т нуклеотидов в каждой из цепей. Из рис.2b видно, что связывание БЭ с этим полинуклеотидом не носит кооперативного характера. Это указывает на то, что структуры poly(dA)-poly(dT) и poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] радикально отличаются. Также очевидно (рис.2b), что кривая связывания (1), полученная из абсорбционных данных, нелинейная и состоит из двух участков. В то же время, кривая 2, полученная из флуориметрических данных, линейная, при этом кривые 1 и 2 также различаются (рис.2b).

Вычитанием кривой 2 из кривой 1 получена кривая 3. Эта кривая при $r \approx 0.15$ пересекается с кривой 1. В работах [24,27] показано, что БЭ с ДНК кроме сильного флуоресцирующего (интеркаляционного) комплекса, образует также сильный нефлуоресцирующий (полуинтеркаляционный) комплексы. Эти данные указывают на то, что структура poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] практически не отличается от структуры природных ДНК.

Из кривых связывания БЭ с poly(dA)-poly(dT) и poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] определены параметры K и n с помощью уравнений (3)–(5). Из полученных данных следует, что при сильном способе связывания БЭ с poly(dA)-poly(dT) $K_1 \approx 1 \times 10^6 \text{ M}^{-1}$ и $n_1 \approx 4.5\text{--}5$ при слабом способе – $K_2 \approx 3.5 \times 10^5 \text{ M}^{-1}$ и $n_2 \approx 2$. При связывании же БЭ с poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)]: $K_1^{\Phi} \approx 1.5 \times 10^6 \text{ M}^{-1}$, $n_1 \approx 5$, $K_1^{\text{abc}} \approx 2 \times 10^6 \text{ M}^{-1}$, $n_1 \approx 4\text{--}4.5$, $K_2^{\text{нф}} \approx 5.6 \times 10^5 \text{ M}^{-1}$ и $n_2 \approx 3$. Необходимо отметить, что K_s , соответствующая интеркаляционному способу связывания БЭ с poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)], больше, чем значение K_s для комплексов БЭ-poly(dA)-poly(dT) примерно в два раза. На основании этих данных мы полагаем, что различие обусловлено структурной особенностью poly(dA)-poly(dT) по сравнению с poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] и ДНК кооперативностью связывания БЭ с poly(dA)-poly(dT). Высокая степень гидратированности этого полинуклеотида приводит к тому, что интеркаляция молекул БЭ в плоскость пар оснований полинуклеотида затруднена, поскольку при интеркаляции молекулы лиганда должны вклиниваться в плоскость между парами оснований и вступать в стэкинг-взаимодействие с ними. Кооперативность, по всей вероятности, обусловлена тем, что при интеркаляции пер-

вой молекулы лиганда нарушается гидратная оболочка, а также имеет место раскручивание спирали. Вследствие этого меняется структура полинуклеотида и интеркаляция для других молекул БЭ облегчается. Poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] менее гидратирован и его структура соответствует структуре ДНК, что приводит к тому, что БЭ с этим полинуклеотидом связывается некооперативно.

Второй способ связывания БЭ с poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] также примерно в два раза больше, чем с poly(dA)-poly(dT). С другой стороны, из полученных данных следует, что БЭ с poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] связывается еще одним, более слабым способом, характеризующимся константой связывания $K_3 \approx 1.6 \times 10^5 \text{ M}^{-1}$ и $n_3 \approx 1.5$. Как и в случае ДНК, этот способ соответствует электростатическому механизму связывания [24,25].

4. Заключение

Таким образом, полученные результаты указывают на то, что взаимодействие БЭ с ДНК зависит от типа оснований и последовательности этих оснований [27]. В частности, полинуклеотиды, состоящие из адениновых и тиминových нуклеотидов, но имеющие разную последовательность этих нуклеотидов, в дц-состоянии имеют существенно различные структуры, что обуславливает сродство лигандов с ними. Из полученных данных следует, что БЭ с poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] связывается тремя способами: интеркаляционным, полуинтеркаляционным и слабым (электростатическим), как и в случае ДНК [24], в то время как с poly(dA)-poly(dT) двумя способами – интеркаляционным и полуинтеркаляционным. При этом различаются и константы связывания БЭ с этими полинуклеотидами интеркаляционным способом. В случае poly(dA)-poly(dT) значение K меньше, чем в случае poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)]. Этот факт обусловлен тем, что poly(dA)-poly(dT) по сравнению с poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] имеет более высокую степень гидратированности и более жесткую структуру, что затрудняет внедрение молекул интеркалятора в плоскость пар оснований. Другая важная особенность poly(dA)-poly(dT) заключается в том, что слабый электростатический способ связывания БЭ с ним не обнаружен. Тем не менее, эти результаты не исключают возможность связывания БЭ электростатически с этим полинуклеотидом, несмотря на то, что в условиях нашего эксперимента этот способ не обнаружен.

Выявлено, что связывание БЭ с poly(dA)-poly(dT) носит кооперативный характер. Это в некоторых случаях может иметь важное биологическое значение, в частности, способствовать более тонкой модуляции функций ДНК в клетке.

ЛИТЕРАТУРА

1. **M.D. Frank-Kamenetskii.** Unraveling DNA. The Most Important Molecule of Life. Massachusetts, Perseus Books, Reading, 1997.
2. **A.N. Lane, T.C. Jenkins.** Q. Rev. Biophys., **33**, 255 (2000).
3. **В. Зенгер.** Принципы структурной организации нуклеиновых кислот. Москва, Мир, 1987.

4. L.A. Marky, R.Jr. Macgregor. *Biochemistry*, **29**, 4805 (1990).
5. H.C.M. Nelson, J.T. Finch, B.F. Luisi, A. Klug. *Nature*, **330**, 221 (1987).
6. В.А. Николаев, А.Н. Суровая, Н.Ю. Сидорова, С.Л. Гроховский, А.С. Заседателев, Г.В. Гурский, А.Л. Жузе. *Мол. биол.*, **27**, 192 (1993).
7. D. Suh. *Exp. Mol. Medicine*, **32**, 204 (2000).
8. D. Suh, J.B. Chaires. *Bioorganic Med. Chem.*, **3**, 723 (1995).
9. T.V. Chalikian, G.E. Plum, A.P. Sarvazyan, K.J. Breslauer. *Biochemistry*, **26**, 8629 (1994).
10. Ш.А. Тоноян, Г.Н. Айрапетян, А.В. Иванов, И.В. Багдян, А.В. Царукян. *Изв. НАН Армении, Физика*, **44**, 456 (2009).
11. Е.Ш. Мамасахлисов. *Изв. НАН РА, Физика*, **45**, 142 (2010).
12. Ш.А. Тоноян, А.С. Мирзаханян, Г.Н. Айрапетян, А.В. Царукян, В.Ф. Морозов. *Изв. НАН Армении, Физика*, **45**, 133 (2010).
13. А.В. Бадасян, А.В. Григорян, А.Ю. Чухаджян, Е.Ш. Мамасахлисов, В.Ф. Морозов. *Изв. НАН РА, Физика*, **37**, 320 (2002).
14. J. Monaselidze, G. Majagaladze, Sh. Barbakadze, D. Khachidze, M. Gorgoshidze, Y. Kalandadze, S. Haroutiunian, Y. Dalyan, V. Vardanyan. *J. Biomol. Struct. Dyn.*, **25**, 419 (2007).
15. О.Ф. Борисова, А.А. Щелкина, А.Т. Карапетян, А.Н. Суровая. *Мол. биол.*, **32**, 855 (1998).
16. S.A. Bailay, D.E. Graves, R. Hill, G. Marsch. *Biochemistry*, **32**, 5881 (1993).
17. J.B. Chaires. *Biopolymers*, **44**, 201 (1998).
18. C.A. Hunter. *J. Mol. Biol.*, **230**, 1025 (1993).
19. C.A. Hunter, X.J. Lu. *J. Mol. Biol.*, **265**, 603 (1997).
20. Ю.С. Бабаян. *Биополимеры и клетка*, **5**, 79 (1989).
21. P.O. Vardevanyan, V.L. Elbakyan, M.A. Shahinyan, M.V. Minasyants, M.A. Parsadanyan, N.S. Sahakyan. *J. Applied Spectroscopy*, **81**, 1060 (2015).
22. V.B. Arakelyan, Yu.S. Babayan, G. Potikyan. *J. Biomol. Struct. Dyn.*, **18**, 231 (2000).
23. Е.И. Тищенко, А.Т. Карапетян, О.Ф. Борисова. *Мол. биол.*, **30**, 1970 (1996).
24. P.O. Vardevanyan, A.P. Antonyan, M.A. Parsadanyan, H.G. Davtyan, A.T. Karapetyan. *Exp. Mol. Medicine*, **35**, 527 (2003).
25. P.O. Vardevanyan, A.P. Antonyan, M.A. Parsadanyan, H.G. Davtyan, Z.R. Boyajyan, A.T. Karapetian. *J. Biomol. Struct. Dyn.*, **22**, 465 (2005).
26. Дж. Лакович. *Основы флуоресцентной спектроскопии*. Москва, Мир, 1986.
27. А.Н. Веселков, С.Ф. Барановский, Л.Н. Дымант, Н.В. Петренко, Д.А. Веселков, А. Такер, Д.Б. Дэвис. *Мол. биол.*, **31**, 263 (1997).

ABSORPTION AND FLUORESCENCE SPECTRA OF POLYNUCLEOTIDE COMPLEXES WITH ETHIDIUM BROMIDE

P.O. VARDEVANYAN, A.P. ANTONYAN, M.A. PARSADANYAN, M.V. MINASYANTS

The study of ethidium bromide (EtBr) interaction with poly(dA)-poly(dT) and poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] polynucleotides at 0.02 M ionic strength of solution and pH = 7.2 was carried out. It was revealed that EtBr binds to poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] by three modes – intercalation, semi-intercalation and weak (electrostatic) modes, while with poly(dA)-poly(dT) by two modes – intercalation and semi-intercalation. Moreover, EtBr binds to poly(dA)-poly(dT) cooperatively and to poly[d(A-T)]-poly[d(A-T)] – non-cooperatively.

УДК 548.732

ИССЛЕДОВАНИЕ АНИЗОТРОПИИ НЕМАТИЧЕСКИХ ЖИДКИХ КРИСТАЛЛОВ В ОБЛАСТИ РЕНТГЕНОВСКИХ ЧАСТОТ

Л.Г. ГАСПАРЯН*, В.П. МКРТЧЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: laura@ysu.am

(Поступила в редакцию 29 апреля 2015 г.)

Рентгено-интерферометрическим методом исследована анизотропия нематических жидких кристаллов типа 5CB. Определены показатели преломления n_o и n_e и установлено, что нематический жидкий кристалл типа 5CB является рентгено-оптически положительной анизотропной средой.

1. Введение

Известно, что диэлектрическая проницаемость анизотропных сред — тензорная величина [1], вследствие чего показатель преломления электромагнитных волн в такой среде зависит от их поляризации. Рассмотрим распространение электромагнитных волн в оптически анизотропной одноосной среде. Плоскость, проходящая через нормаль к волновому фронту и оптическую ось, называется главным сечением. Вектор поляризации волны разложим на две составляющие — перпендикулярную и параллельную к главному сечению. Для составляющей вектора поляризации, перпендикулярной к главному сечению, показатель преломления не зависит от угла, образованного нормалью к волновому фронту волны и оптической осью. Однако для составляющей вектора поляризации, лежащей в плоскости главного сечения, показатель преломления является функцией угла, образованного нормалью к волновому фронту и оптической осью. Луч с поляризацией, перпендикулярной главному сечению, называется обыкновенным, а луч с поляризацией, лежащей в плоскости главного сечения, называется необыкновенным лучом.

Для излучения с поляризацией, перпендикулярной главному сечению, показатель преломления обозначается n_o , а для излучения с поляризацией, лежащей в плоскости главного сечения и параллельной оптической оси, показатель преломления обозначается через n_e . Если $n_o > n_e$, то среда называется оптически отрицательной, а при $n_o < n_e$ — положительной.

В оптике проведено множество исследований, связанных с изучением оп-

тической анизотропии. Однако рентгено-оптическая анизотропия сред, в основном, исследована в условиях брэгговского отражения, когда диэлектрическая проницаемость отражающего кристалла рассматривается как тензор. Эти явления существенны для частот в непосредственной близости к краю поглощения кристалла [2–4]. В работах [5,6] описана рентгено-оптическая искусственная анизотропия монокристалла кремния, когда отражающий рентгено-оптически изотропный кристалл под влиянием температурного градиента или ультразвука приобретал рентгено-оптическую анизотропию. Это выражалось в расщеплении максимума кривой отражения на два максимума для σ - и π -поляризации неполяризованного падающего излучения, так как показатели преломления для этих составляющих в искусственно анизотропном кристалле различались.

Целью настоящей работы является исследование рентгено-оптической анизотропии в отсутствие брэгговского отражения для некристаллических сред. В качестве такой среды был выбран нематический жидкий кристалл (НЖК) типа 5CB.

2. Схема эксперимента

Для исследования рентгено-оптической анизотропии среды необходимо каким-то образом регистрировать разность фаз, возникающую при прохождении через такую среду рентгеновских волн с различными поляризациями. В качестве такого чувствительного прибора можно использовать трехблочный рентгеновский Лауэ интерферометр (LLL интерферометр) [7], состоящий из трех кристаллических блоков (рис.1), отражающие плоскости которых перпендикулярны их поверхностям. Толщина блоков выбрана так, чтобы они удовлетворяли условию

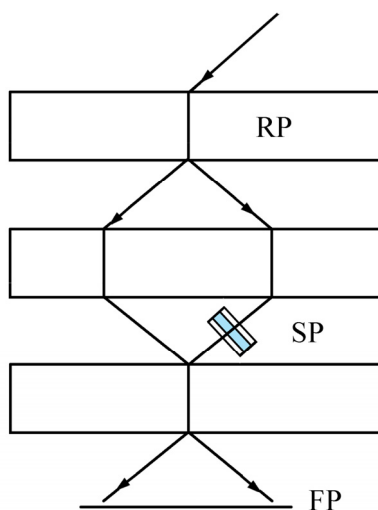


Рис.1. Ход лучей в LLL интерферометре. RP – отражающие плоскости блоков, SP – исследуемый образец, PF – фотографическая пленка.

бормановского прохождения $\mu t \gg 1$, где μ – линейный коэффициент поглощения материала интерферометра и t – толщина блока. В случае бормановского прохождения при неполяризованном падающем пучке после прохождения через блоки интерферометра остаются только волны σ -поляризации, вектор поляризации которых перпендикулярен плоскости дифракции. Известно, что в рентгеновском интерферометре интерферируют пучки, накладывающиеся на третьем блоке – анализаторе, вследствие чего в двух пучках, выходящих из блока анализатора наблюдаются интерференционные муаровые полосы. Когда нарушается идеальность структур кристаллических блоков, образуются интерференционные картины разного типа, период и расположение которых зависят от типа искажений кристаллической структуры. Обычно различают два типа интерференционных картин: дилатационный и ротационный муары. Линии дилатационного муара параллельны отражающим плоскостям и образуются, когда различаются межплоскостные расстояния интерферометрических блоков. Линии ротационного муара перпендикулярны отражающим плоскостям и наблюдаются при существовании взаимных поворотов отражающих плоскостей в интерферометрических блоках.

Если на пути одного из интерферирующих пучков поставить исследуемый образец (рис.1), то, измеряя смещение линий муара относительно исходного положения, можно определить показатель преломления образца. Этот метод в рентгеновской области частот применялся при исследовании рентгено-оптически изотропных сред [8,9].

Основная суть предложенного метода заключается в том, что между блоками интерферометра помещается образец, направление оптической оси которого известно, и рентгено-интерферометрическим способом проверяется рентгено-оптическая анизотропия исследуемого образца, а также оценивается разность показателей преломления ($n_o - n_e$) в области рентгеновских частот. В этом случае наблюдаемое смещение муаровых полос зависит от взаимного расположения вектора σ -поляризации и оптической оси исследуемого образца. Если оптическая ось исследуемого образца перпендикулярна плоскости дифракции и нормали к волновому фронту $\mathbf{K}$ рентгеновской волны, проходящей через образец, то вектор поляризации σ -поляризованной волны будет параллелен оптической оси и волна будет себя вести как необыкновенная волна с показателем преломления n_e (рис.2а). Если образец повернуть на 90° относительно нормали к волновому фронту волны, то оптическая ось образца будет находиться в плоскости дифракции и будет перпендикулярна нормали к волновому фронту, а вектор σ -поляризации будет перпендикулярен главному сечению (рис.2б). Волна будет вести себя как обыкновенная волна с показателем преломления n_o . Следовательно, этим двум случаям будут соответствовать разные смещения муаровых полос по отношению к муару, полученному без образца. По разности этих смещений можно наблюдать рентгено-оптическую анизотропию данного образца и оценивать разность ($n_o - n_e$).

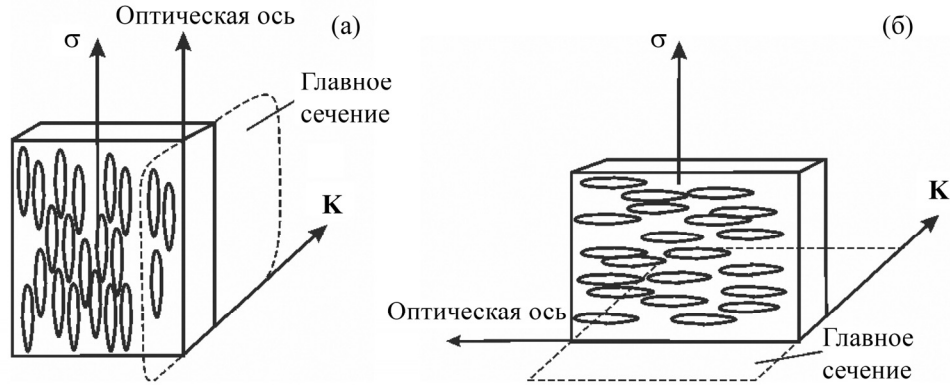


Рис.2. (а) Ось анизотропии перпендикулярна плоскости дифракции, (б) ось анизотропии лежит в плоскости дифракции.

Рассмотрим случай начального ротационного муара. Пусть ось OY перпендикулярна плоскости дифракции. В этом случае после третьего блока выражение для интенсивности I в каждом из пучков будет:

$$I = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \cos(ay + b), \quad (1)$$

где a и b – постоянные, y – значение координаты вдоль оси OY , I_1, I_2 – интенсивности интерферирующих пучков после третьего блока интерферометра. Для периода муара из уравнения (1) можно получить

$$\Lambda = 2\pi/\alpha. \quad (2)$$

Если теперь после второго блока на пути одного из интерферирующих пучков поставить однородный плоскопараллельный образец с показателем преломления $n = 1 - \delta$ (для рентгеновских частот значения декрементов $\delta > 0$), то в формуле (1) $\cos(ay + b)$ заменится на $\cos(ay + b - k\delta t)$, где $k = 2\pi/\lambda$, λ – длина волны рентгеновского излучения и t – толщина образца. Возникающая разность фаз $\Delta\Phi = -k\delta t$, обусловленная присутствием образца, приведет к смещению муаровых полос на величину

$$y_i - y_{ip} = -(\Delta\Phi / 2\pi)\Lambda, \quad (3)$$

где y_{ip} – координата i -го максимума без образца, а y_i – с образцом. Если образец рентгено-оптически анизотропный и оптическая ось перпендикулярна плоскости дифракции, то

$$\Delta\Phi_e = -k\delta_e t \quad (4)$$

с соответствующим смещением

$$y_{ie} - y_{ip} = -(\Delta\Phi_e / 2\pi)\Lambda. \quad (5)$$

Волна в образце в этом случае ведет себя как аномальная. Если оптическая ось

лежит в плоскости дифракции, оставаясь перпендикулярной к нормали волнового фронта, то волна в образце является нормальной, и для возникающей дополнительной разности фаз имеем

$$\Delta\Phi_o = -k\delta_o t, \quad (6)$$

$$y_{io} - y_{ip} = -(\Delta\Phi_o / 2\pi)\Lambda. \quad (7)$$

Сравнивая полученные муары в перечисленных трех вариантах (без образца и с образцом для двух случаев ориентации его оптической оси), можно определить, является ли образец рентгено-оптически анизотропным или нет. Если образец рентгено-оптически анизотропен, то смещения максимумов муаровых полос при разной ориентации предполагаемой оптической оси будут различными. Измеряя смещение максимумов муаровых полос для двух разных ориентаций оптической оси по отношению к максимумам муаровой картины без образца, можно определить значения показателей преломления n_o и n_e , а также их разность $n_o - n_e$. Используя этот подход, авторы работы [10] исследовали рентгено-оптическую анизотропию целлофана.

3. Результаты эксперимента

В качестве исследуемого образца мы использовали НЖК типа 5CB, который в области оптических частот является одноосной анизотропной средой. Для проведения эксперимента был изготовлен планарный капилляр, состоящий из двух стеклянных прозрачных пластин (подложек) толщиной 150 мкм, расстояние между которыми, с учетом прокладок, составляло 40 мкм. Затем это пространство заполнялось НЖК типа 5CB. Поверхности стеклянных подложек заранее

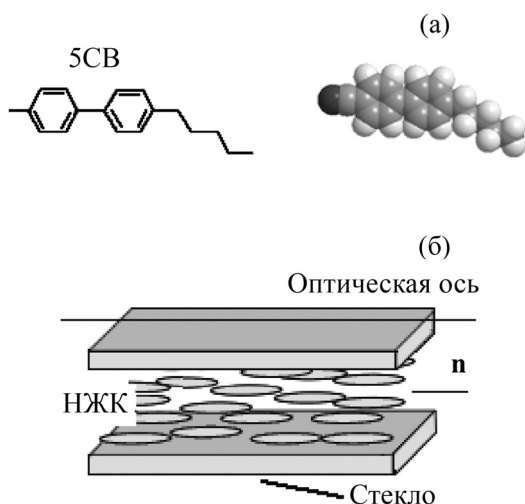


Рис.3. (а) Молекулы НЖК, имеющие форму стержня длиной 20 Å и шириной 5 Å и (б) схема образца.

очищали и обрабатывали методом натирки, что обеспечивало равномерную планарную ориентацию молекул НЖК. Длинная ось молекул параллельна поверхности подложек, то есть направление директора $\mathbf{n}$ совпадало с оптической осью (рис.3).

В эксперименте использовался рентгеновский трехблочный LLL интерферометр, изготовленный из бездислокационного кристалла кремния с отражающими плоскостями (110) для MoK_α излучения, с помощью которого получены муаровые полосы с образцом и без образца.

Сначала от интерферометра получены муары с планарным капилляром без жидкого кристалла (рис.4б), далее – с исследуемым образцом (жидким кристаллом) при двух различных ориентациях оптических осей: перпендикулярной (рис.4а) и параллельной (рис.4в) главному сечению. Сопоставляя полученные муары, наблюдаем смещение муаровых полос.

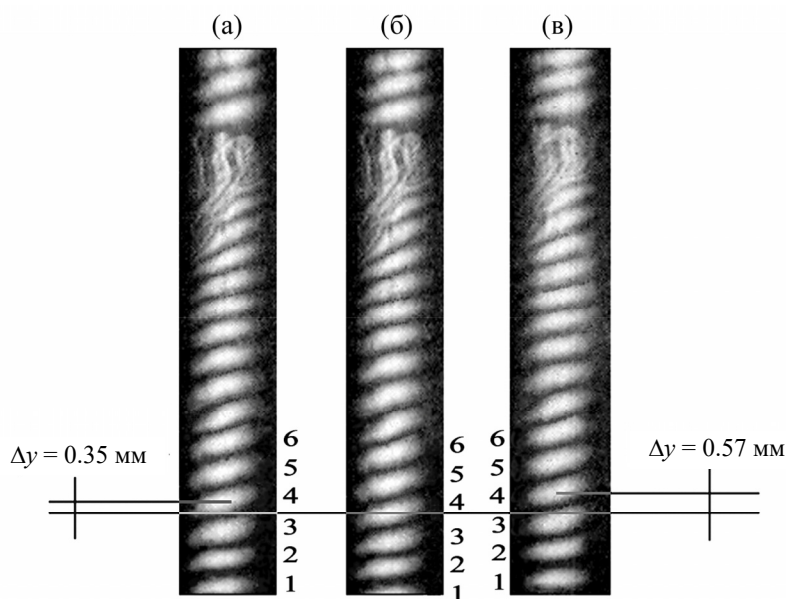


Рис.4. Муаровые картины: (а) ось анизотропии перпендикулярна плоскости дифракции, показатель преломления n_e , (б) в отсутствие образца, (в) ось анизотропии лежит в плоскости дифракции, показатель преломления n_o .

Для оценки анизотропии жидкого кристалла были получены муаровые картины для трех случаев – без образца (рис.4б) и с образцом для двух ориентаций его оптической оси (рис.4а и 4в). Сравнивая относительное смещение максимумов на каждой из муаровых картин, можно утверждать, что жидкий кристалл является рентгено-оптически анизотропной средой.

Левая картина (рис.4а) содержит муар от образца с оптической осью, перпендикулярной плоскости дифракции (муар необыкновенной волны с показателем преломления n_e). Правая картина (рис.4в) содержит муаровые полосы обыкновенной волны (оптическая ось жидкого кристалла лежит в плоскости дифракции, показатель преломления n_o).

Среднее значение периода муаровых полос равно 750 мкм. Периоды муаровых полос после внесения образцов почти не изменялись, что свидетельствует об однородности используемых образцов. Средняя толщина образца $t = 40$ мкм. Видно, что муаровые полосы на рис.4а и рис.4в сместились относительно муаровых полос на рис.4б (без образца) вверх на разные величины (например, линия 4). Это означает, что НЖК типа 5СВ оптически анизотропен в области рентгеновских частот. На рис.4б линия 1 почти не видна, а на рис.4а муаровые полосы сместились вверх и линия 1 стала просматриваться. На рис.4в муаровые полосы также сместились вверх и в результате линия 1 видна еще лучше. По фотометрическим кривым были измерены расстояния между максимумами с точностью до 10 мкм.

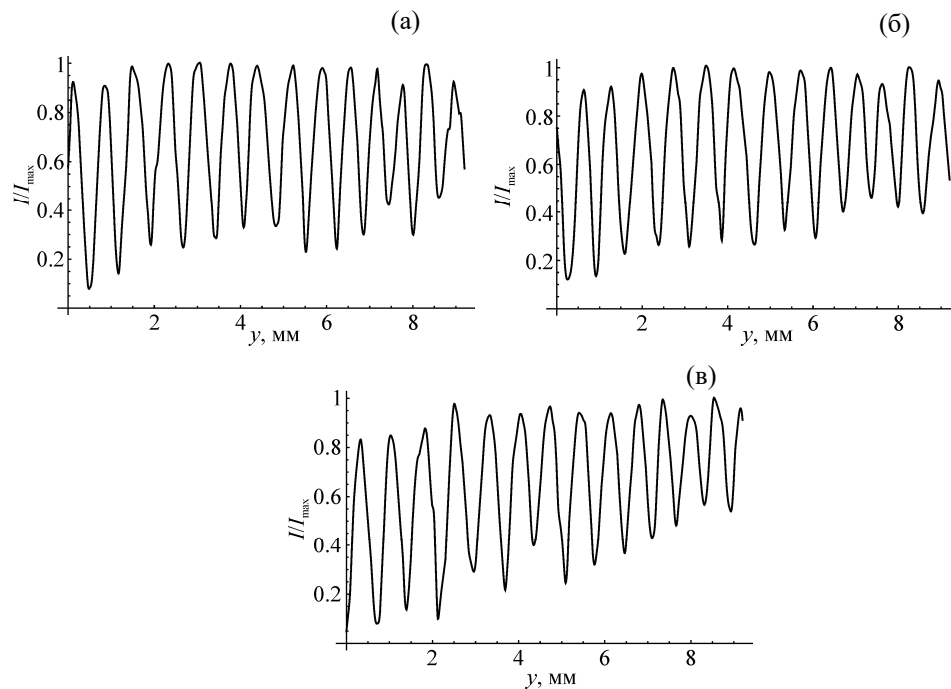


Рис.5. Компьютерные фотометрические кривые муаровых полос, полученные от фотопленок, приведенных на рис.4: (а) муар, полученный от образца, оптическая ось которого перпендикулярна плоскости дифракции (показатель преломления n_e); (б) муар без образца; (в) муар, полученный от образца, оптическая ось которого лежит в плоскости дифракции (показатель преломления n_o). В каждой картинке за единицу интенсивности принято максимальное значение интенсивности $I_{\max}$ на фотометрической кривой данной картины.

Для муаровых полос, полученных от образца с оптической осью, перпендикулярной плоскости дифракции (фотометрическая кривая на рис.5а), смещение максимумов относительно исходных муаровых полос (фотометрическая кривая на рис.5в) составляло 0.35 мм. Для муаровых полос, соответствующих снимку с оптической осью, лежащей в плоскости дифракции (фотометрическая кривая на рис.5б), смещение составляло 0.57 мм.

С помощью формул (5) и (7) вычислены фазовые смещения $\Delta\Phi_e$ и $\Delta\Phi_o$, равные 2.93 и 4.77, соответственно. Используя формулы (4) и (6), можно определить средние значения декрементов $\bar{\delta}_e = 8.16 \times 10^{-7}$ и $\bar{\delta}_o = 1.33 \times 10^{-6}$. Таким образом, $\bar{\delta}_o - \bar{\delta}_e = 5.14 \times 10^{-7}$, а разность средних значений показателей преломления $\bar{n}_o - \bar{n}_e = -5.14 \times 10^{-7}$. Следовательно, НЖК типа 5СВ является рентгено-оптически положительной одноосной анизотропной средой.

4. Заключение

Таким образом, в основе рентгено-интерферометрического способа изучения рентгено-оптических анизотропных свойств материалов лежит определение показателя преломления исследуемого образца, установленного на пути интерферирующих в интерферометре пучков, при различных ориентациях его оптической оси. В зависимости от ориентации оптической оси смещения муаровых полос по отношению к положению этих полос без исследуемого образца различны. Следовательно, измеряя смещение полос для данной ориентации оптической оси образца, можно определить соответствующие показатели преломления n_o и n_e . Измерение значений показателей преломления n_o и n_e по полученной муаровой картине для НЖК типа 5СВ в области рентгеновских частот (излучение MoK_α) показало, что $n_o - n_e < 0$, т.е. жидкий кристалл является рентгено-оптически одноосной положительной анизотропной средой.

ЛИТЕРАТУРА

1. М. Борн, Э. Вольф. Основы Оптики. Москва, Наука, 1970.
2. Ш. Чжан. Многоволновая дифракция рентгеновских лучей в кристаллах. Москва, Мир, 1984.
3. V.E. Dmitrienko. Acta Cryst., **A40**, 89 (1984).
4. V.E. Dmitrienko, K. Ishida, A. Kirfel, E.N. Ovchinnikova. Acta Cryst., **A61**, 481 (2005).
5. Л.Г. Гаспарян, В.П. Мкртчян, М.К. Балян, А.Г. Григорян. Известия НАН РА, Физика, **41**, 374 (2006).
6. Л.Г. Гаспарян, В.П. Мкртчян, М.К. Балян, А.С. Мелконян. Известия НАН РА, Физика, **42**, 242 (2007).
7. U. Bonse, M. Hart. Z. Physik, **190**, 455 (1966).
8. З.Г. Пинскер. Рентгеновская кристаллооптика. Москва, Наука, 1982.
9. А. Momose. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., **A352**, 622 (1995).
10. В.П. Мкртчян, Л.Г. Гаспарян, М.К. Балян. Заводская лаборатория. Диагностика материалов. **76(11)**, 27 (2010).

ՆԵՄԱՏԻԿ ՀԵՂՈՒԿ ԲՅՈՒՐԵՂՆԵՐԻ ԱՆԻՉՈՏՐՈՊԻԹՅԱՆ
ՈՒՍՈՒՄՆԱՍԻՐՈՒԹՅՈՒՆԸ ՌԵՆՏԳԵՆՅԱՆ
ՀԱՃԱԽՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ՏԻՐՈՒՅԹՈՒՄ
Լ.Գ. ԳԱՍՊԱՐՅԱՆ, Վ.Պ. ՄԿՐՏՅԱՆ

Ռենտգենախնտերֆերաչափական եղանակով հետազոտված է 5CB տիպի նեմատիկ հեղուկ բյուրեղների անիզոտրոպությունը: Որոշված են n_o և n_e բեկման ցուցիչները: Հաստատված է, որ 5CB տիպի նեմատիկ հեղուկ բյուրեղը ռենտգենաօպտիկական անիզոտրոպ դրական միջավայր է:

INVESTIGATION OF NEMATIC LIQUID CRYSTALS ANISOTROPY
IN X-RAY FREQUENCY RANGE
L.G. GASPARYAN, V.P. MKRTCHYAN

The anisotropy of 5CB type liquid crystals has been investigated by the X-ray interferometry method. The n_o and n_e refractive indices for this specimen were measured. It was found that 5CB type nematic liquid crystal is X-ray optical anisotropic positive medium.

УДК 548.732

РЕНТГЕНОВСКАЯ КРИСТАЛЛ-ДИФРАКЦИОННАЯ ФУРЬЕ-ГОЛОГРАФИЯ

М.К. БАЛЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

e-mail: mbalyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 8 декабря 2014 г.)

Предложен и теоретически исследован рентгеновский динамический рентгенодифракционный аналог Фурье-голографии. Показано, что при определенных условиях полученная на выходной поверхности кристалла интерференционная картина симметричной двухволновой лауэвской дифракции при записи есть рентгенодифракционная Фурье-голограмма исследуемого объекта. Восстановление осуществляется светом видимого диапазона либо с помощью численных методов. В качестве примера рассмотрена запись голограммы амплитудной косинусоидальной решетки и восстановление с помощью видимого света. Эксперимент можно осуществить с помощью синхротронных источников рентгеновского излучения, и метод может быть применен в рентгеновской микроскопии.

1. Введение

Исторически голография берет свое начало как двухступенчатый процесс записи с помощью рентгеновских или электронных волн с последующим восстановлением изображения видимым светом. В дальнейшем, из-за трудностей с рентгеновской и электронной оптикой, этот метод развивался как метод оптической голографии [1–2]. В оптической голографии существуют несколько основных способов записи и восстановления изображения: голография Френеля – методы осевой голографии (Габора) и внеосевой голографии, голография Фраунгофера, голография Фурье, интерферометрическая голография. В работе [3] отмечалось, что рентгеновскую голографию можно развивать на основе рентгенодифракционной оптики. Почти одновременно в работе [4] был предложен метод рентгенодифракционной интерферометрической голографии. В дальнейшем он был развит в работах [5–6]. Близким можно считать также метод Момоза [7]. Суть его состоит в использовании рентгеновского лауэвского трехблочного [4,5,7] или четырехблочного [6] интерферометра для записи рентгеновской голограммы. Предполагается, что объект находится в одном плече интерферометра, а волна, прошедшая через другое плечо, служит опорной волной. В пучках, вышедших из третьего или четвертого блока интерферометра, формируется интер-

ференционная картина объектной и опорной волн, запись которой является голограммой объекта. Воспроизведение изображения должно осуществляться видимым светом [4–6] или численным методом [7]. В работе [8] был предложен метод восстановления точечного источника рентгеновских волн, находящегося на близком расстоянии от кристалла. Предполагается, что в плоскопараллельной пластине совершенного кристалла осуществляется лауэвская симметричная дифракция от точечного источника рентгеновских волн. На выходной поверхности кристалла возникает дифракционная картина, обусловленная интерференцией двух ветвей дисперсионной поверхности. Показано, что освещение видимым светом полученной дифракционной картины, записанной на фотопластинке, восстанавливает изображение точечного источника на некотором расстоянии от нее. В работах [9–11] предложена и теоретически исследована динамическая рентгенодифракционная голография Фраунгофера.

В настоящее время из-за появления синхротронных источников рентгеновских волн развиты методы рентгеновской голографии, аналогичные методам оптической голографии, без привлечения рентгенодифракционной оптики: метод осевой голографии (Габо́ра) [12–17] и метод Фурье-голографии [16–18]. В работах [16–18] для получения виртуального точечного источника рентгеновских волн или же для получения изображения применяются рентгеновские зонные пластинки. В работе [18] метод рентгеновской Фурье-голографии используется для получения изображений наноразмерных объектов, амплитуда рассеяния которых мала. Чтобы устранить эту трудность, авторы используют матрицу таких объектов, каждый из которых имеет свою опорную волну.

В работе [19] показано, что в случае двухволновой лауэвской дифракции рентгеновских волн на двух щелях на выходной поверхности кристалла формируется интерференционная картина, аналогичная полосам Юнга в видимом диапазоне света. Отмечено, что динамическая двухволновая лауэвская дифракция на двух щелях может стать основой для рентгенодифракционной Фурье-голографии.

Таким образом, рентгеновскую голографию можно развивать как без привлечения кристалл-дифракционной оптики [12–18], так и с использованием кристалл-дифракционной оптики [8–11]. Сравнивая эти методы, можно сказать, что без привлечения кристалл-дифракционной оптики можно получить изображения с более высокой разрешающей способностью, тогда как использование кристалл-дифракционной оптики понижает разрешающую способность. С другой стороны, при использовании кристалл-дифракционной оптики можно без труда получить голограммы больших размеров (порядка миллиметра и более), так как и опорная и объектная волна при дифракции в кристалле образуют треугольник Бормана с углом в вершине порядка несколько десятков градусов, тогда как при использовании дифракции в вакууме необходимы несколько десятков и сотен метров, чтобы получить голограммы размером несколько сотен микрон. Таким

образом оба эти метода могут иметь свою область применения, так как представляют интерес как объекты с неоднородностями порядка и менее микрона (применение голографии без привлечения кристалл-дифракционной оптики), так и объекты с неоднородностями порядка нескольких микрон и более (применение голографии с привлечением кристалл-дифракционной оптики).

В настоящей работе теоретически исследован рентгенодифракционный аналог Фурье-голографии. Показано, что при определенных условиях сформированная на выходной поверхности кристалла интерференционная картина аналогична соответствующему распределению интенсивности в Фурье-голографии, и что запись этого распределения интенсивности на фотопластинке есть рентгенодифракционная Фурье-голограмма исследуемого объекта. Дальнейшее освещение голограммы видимым светом восстанавливает сопряженное и действительное изображения объекта. Восстановление изображения может быть произведено также численным методом.

2. Запись рентгенодифракционной Фурье-голограммы

Схема записи рентгенодифракционной Фурье-голограммы показана на рис.1. Рассматривается двухволновая симметричная лауэвская дифракция. Перед

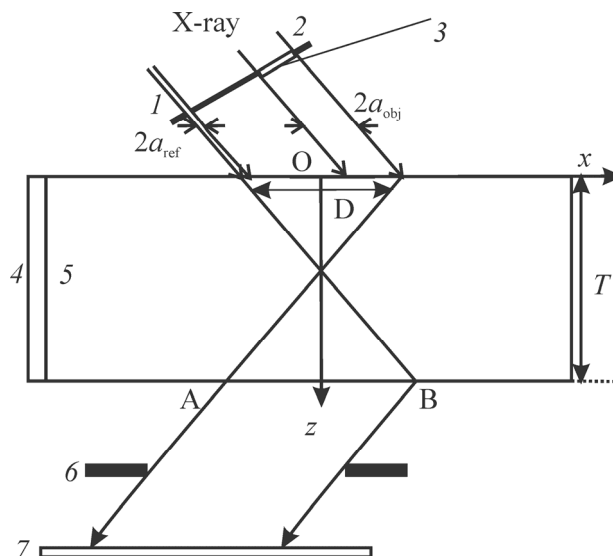


Рис.1. Схема записи динамической рентгенодифракционной Фурье-голограммы: 1 – узкая щель (точечный источник), 2 – щель, в которой помещается объект, 3 – объект, 4 – кристаллическая пластина, 5 – отражающая плоскость, 6 – щель, 7 – рентгенодифракционная Фурье-голограмма. Показана координатная плоскость xz , в которой лежит плоскость дифракции, ось y перпендикулярна к плоскости дифракции.

совершенным кристаллом ставится система двух щелей. Одна из щелей достаточно узкая, а во вторую щель устанавливается некоторый объект. Плоскопараллельный рентгеновский пучок с единичной амплитудой падает на кристалл. Прошедшие через щели волны формируют интерференционную картину на выходной поверхности кристалла. Волна, прошедшая через узкую щель (точечный источник), есть опорная волна, а волна, прошедшая через другую щель и через объект, есть объектная волна. Обозначая амплитуды дифрагированных волн через $E_{h\text{ref}}$ и $E_{h\text{obj}}$, амплитуду дифрагированной волны можно представить в виде

$$E_h = E_{h\text{ref}} + E_{h\text{obj}}. \quad (1)$$

Согласно (1), интенсивность дифрагированной волны на выходной поверхности кристалла составит

$$I_h = |E_{h\text{ref}}|^2 + E_{h\text{ref}} E_{h\text{obj}}^* + E_{h\text{ref}}^* E_{h\text{obj}} + |E_{h\text{obj}}|^2. \quad (2)$$

Мы рассматриваем случай $T/\Lambda \gg 1$ и $\mu T \gg 1$, где T – толщина кристалла, Λ – экстинкционная длина, μ – линейный коэффициент поглощения кристалла. Тогда можно рассматривать только слабопоглощаемую моду σ -поляризации.

Для вычисления (2) используем гриновский формализм динамической теории дифракции рентгеновских лучей [20,21]. Согласно этой теории, амплитуду дифрагированной волны можно представить в виде свертки функции точечного источника и амплитуды падающей волны вдоль входной поверхности кристалла. Для вычисления свертки применим приближения из статьи [19]. В рамках принятых условий суть приближений заключается в том, что функция точечного источника динамической задачи дифракции заменяется соответствующей асимптотикой, причем в асимптотическом представлении оставляется только слабопоглощаемая мода σ -поляризации. Амплитуда объектной волны получается интегрированием по области щели, где находится объект, а амплитуда опорной волны – по области узкой щели. Аргумент функции точечного источника разлагается в ряд Тейлора около координат центров объекта $x = x_{\text{obj}}$ и узкой щели $x = x_{\text{ref}}$, соответственно. В области объекта оставляются линейные члены по $x' - x_{\text{obj}}$ включительно (x' – переменная интегрирования свертки), а в области узкой щели применяется приближение точечного источника (т.е. отбрасываются также линейные члены $x' - x_{\text{ref}}$). Учитывается комплексность коэффициентов поляризуемости кристалла и тот факт, что в области рентгеновских частот мнимые части этих коэффициентов намного меньше, чем их действительные части. Согласно этому, в соответствующих членах разложения, содержащих мнимые части поляризуемостей, при интегрировании отбрасываются линейные члены как в области объекта ($x' - x_{\text{obj}}$), так и в области узкой щели ($x' - x_{\text{ref}}$). Таким путем находим

$$E_{h\text{ref}} = 2a_{\text{ref}} Q \exp[i\Phi_{\text{ref}}(x) + \Psi_{\text{ref}}(x)], \quad (3)$$

$$E_{h\text{obj}} = Q \exp[i\Phi_{\text{obj}}(x) + \Psi_{\text{obj}}(x)] \tilde{f}(x, y), \quad (4)$$

$$\tilde{t}(x, y) = \int_{-a_{\text{obj}}}^{a_{\text{obj}}} t(x' + x_{\text{obj}}, y) \exp[ik_0(x - x_{\text{obj}})x' / F] \exp(ik \cos \theta \Delta \theta x') dx', \quad (5)$$

где $2a_{\text{ref}}$ – размер узкой щели, $2a_{\text{obj}}$ – размер объекта, $Q = -[1/(8T\Lambda)]^{1/2} \tan \theta \times \exp[i\Phi_0 - \mu_d T / (2 \cos \theta)]$, Φ_0 – постоянная фаза, $\mu_d = \mu (1 - \chi_{hi}/\chi_{oi})$, $\chi_{hi} > 0$ и $\chi_{oi} > 0$ – коэффициенты Фурье мнимой части поляризуемости кристалла, соответствующие отражениям с векторами дифракции $\mathbf{h}$ и 0 , соответственно, θ – угол Брэгга, $\Delta \theta$ – отклонение от угла Брэгга,

$$\Phi_{\text{ref,obj}}(x) = k_0 [xx_{\text{ref,obj}} / F - x_{\text{ref,obj}}^2 / (2F)] + k \cos \theta \Delta \theta x_{\text{ref,obj}}, \quad (6)$$

$$\Psi_{\text{ref,obj}}(x) = -k_0 \eta (x - x_{\text{ref,obj}})^2 / (2F). \quad (7)$$

Здесь $\eta = \chi_{hi} / |\chi_{hr}| \ll 1$, χ_{hr} – коэффициент Фурье действительной части поляризуемости кристалла для вектора дифракции $\mathbf{h}$, $k_0 = 2\pi/\lambda_0$ – волновое число и λ_0 – длина волны видимого света, которая будет использована в дальнейшем при восстановлении изображения, $F = T\Lambda \tan^2 \theta k_0 / \pi$ (F/k_0 в формулах (5)–(7) не зависит от k_0 , k_0 используется лишь для удобства дальнейших вычислений восстановления), $k = 2\pi/\lambda$ – волновое число и λ – длина волны рентгеновских лучей, $t(x, y)$ – комплексный коэффициент амплитудного пропускания объекта; центр координатной системы находится в центре всей двухщелевой системы. При выводе формул (3)–(7) и в дальнейшем рассматривается случай centrosимметричного кристалла.

Главное заключение, которое можно сделать из выражения (5), то же, что и в оптике видимого света [1,2] – амплитуда объектной волны пропорциональна Фурье-коэффициенту комплексной амплитудной пропускаемости объекта. Процесс восстановления совершает обратное Фурье-преобразование и восстанавливает комплексный коэффициент амплитудного пропускания объекта. Записывая интенсивность (2), получаем так называемую голограмму объекта. Область AB записи голограммы показана на рис.1.

Мы рассмотрели случай монохроматической падающей волны и пренебрегли размером источника в плоскости дифракции. Реальные источники имеют конечный размер и реальные волны обладают некоторой степенью некогерентности. Вкратце обсудим требования к пространственной (поперечной, связанной с размером источника в плоскости дифракции) и временной (продольной, связанной с полихроматичностью пучка) когерентности падающей рентгеновской волны. Соответствующие оценки можно сделать методом, описанным в [22]. В итоге получим следующие условия, при выполнении которых размер источника в плоскости дифракции и некогерентность не будут влиять на профиль распределения интенсивности голограммы: для пространственной когерентности – $D \cos \theta l \ll \lambda L_s$ и для временной когерентности – $D \cos \theta \tan \theta \ll \lambda^2 / (2\Delta \lambda) = l_c$. Здесь D – общий размер двухщелевой системы вдоль оси x (рис.1),

l – размер источника в плоскости дифракции перпендикулярно к направлению распространения падающего пучка, L_s – среднее расстояние от источника до кристалла, $2\Delta\lambda$ – область длин волн рентгеновского пучка около средней длины волны, l_c – продольная длина когерентности.

3. Восстановление с помощью видимого света

Для восстановления голограммы она помещается на пути волны видимого света. Предполагается, что перпендикулярно к поверхности голограммы падает плоско-параллельный пучок света с единичной амплитудой. Распространение поля после прохождения голограммы описывается с помощью соответствующей функции Грина в параболическом приближении с помощью пропагатора Кирхгофа $P(x, y, z)$ [14]

$$P(x, y, z) = -\frac{ik_0}{2\pi z} \exp\left[ik_0 \frac{x^2 + y^2}{2z}\right]. \quad (8)$$

Координатные оси параллельны соответствующим координатным осям, использованным при описании дифракции в кристалле, но координата z теперь отсчитывается от плоскости голограммы. Для одномерного $t(x)$ и двумерного $t(x, y)$ случаев необходимо различать две разные схемы восстановления.

3.1. Одномерный случай

Голограмма помещается непосредственно перед или после цилиндрической линзы с фокусным расстоянием f_x (рис.2). Ось цилиндра перпендикулярна к плоскости xz .

Согласно принципу Гюйгенса–Френеля, амплитуда света после прохождения голограммы и линзы на расстоянии $z = f_x$ (на фокальной плоскости линзы) определяется с помощью свертки

$$E_{\text{rec}} = \int_{-\infty}^{+\infty} P(x - x', y - y', f_x) \exp\left(-ik_0 \frac{x'^2}{2f_x}\right) I_h(x') dx' dy', \quad (9)$$

где интегрирование производится по плоскости голограммы. В фокальной плоскости линзы осуществляется обратное Фурье-преобразование и восстанавливается $t(x)$. Подставляя (2) в (9) и выполняя интегрирование, получаем следующие выражения восстановленных амплитуд

$$E_{\text{rec1}} = A_1 \exp[ik_0 (x - x_{\text{ref}})^2 / (2f_x)] \exp[-k_0 x^2 F / (4f_x^2 \eta)], \quad (10)$$

где

$$A_1 = 4a_{\text{ref}}^2 [k_0 / (16\pi)] \sqrt{2 / (Ff_x \eta)} \exp(-\mu_d T / \cos \theta) \exp[-ik_0 x_{\text{ref}}^2 / (2f_x)], \quad (11)$$

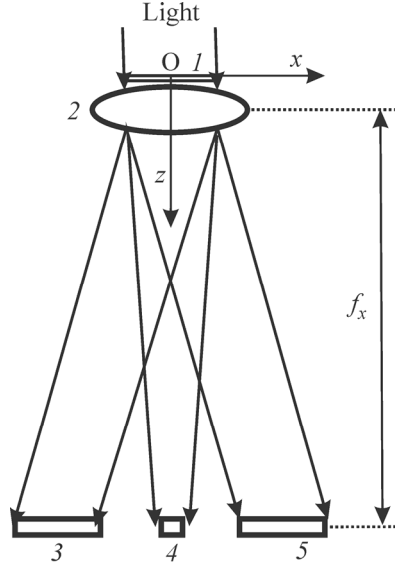


Рис.2. Схема восстановления изображения для одномерного объекта: l – рентгенодифракционная Фурье-голограмма, 2 – цилиндрическая линза с фокусным расстоянием f_x в плоскости xz , 3, 4, 5 – сопряженное изображение, прямой пучок и гало, действительное изображение, соответственно.

$$E_{\text{rec2}} = A_2 \exp\left[ik_0(x - x_{\text{obj}})^2 / (2f_x)\right] \exp(ik \cos \theta \Delta \theta x F / f_x) t^*(x_{\text{ref}} - xF / f_x). \quad (12)$$

Здесь

$$A_2 = 2a_{\text{ref}} \exp[-\mu_d T / (\cos \theta) - k_0 \eta x_{\text{ro}}^2 / (4F)] \frac{e^{-i\pi/4}}{4} \sqrt{\frac{k_0}{2\pi f_x}} \times \exp\{-ik_0[x_{\text{obj}}^2 / (2f_x) + x_{\text{ro}}^2 / (2F)] - k_0[k \cos \theta \Delta \theta / k_0 + x_{\text{ro}} / (2F)]^2 \eta F\}, \quad (13)$$

а $x_{\text{ro}} = x_{\text{ro}} - x_{\text{obj}}$,

$$E_{\text{rec3}} = A_3 \exp[ik_0(x - x_{\text{obj}})^2 / (2f_x)] \exp(ik \cos \theta \Delta \theta x F / f_x) t(x_{\text{ref}} + xF / f_x), \quad (14)$$

где $A_3 = A_2 \exp(ik_0 x_{\text{ro}}^2 / F)$,

$$E_{\text{rec4}} = A_4 \exp[ik_0(x - x_{\text{obj}})^2 / (2f_x)] \exp(ik \cos \theta \Delta \theta x F / f_x) \times \int_{-\infty}^{+\infty} t(x' + x_{\text{obj}} + xF / f_x) t^*(x' + x_{\text{obj}}) dx'. \quad (15)$$

При этом

$$A_4 = \exp[-\mu_d T / (\cos \theta)] \frac{e^{-i\pi/4}}{4} \sqrt{\frac{k_0}{2\pi f_x}} \times \exp\{-ik_0[x_{\text{obj}}^2 / (2f_x)] - k_0(k \cos \theta \Delta \theta / k_0 - x_{\text{obj}} / F)^2 \eta F\}. \quad (16)$$

Каждая из амплитуд (10)–(16) соответствует определенному члену в распределении интенсивности (2) на голограмме. E_{rec1} соответствует восстановленной опорной волне и сконцентрировано около $x = 0$. Амплитуда E_{rec4} формирует гало вокруг этой точки [2]. E_{rec2} и E_{rec3} соответствуют сопряженному и действительному изображениям объекта. Сопряженное изображение перевернуто на 180° , увеличено фактором

$$M = f_x / F \quad (17)$$

и смещено вдоль оси x на величину $x_{\text{ref}}f_x/F$. Действительное изображение увеличено с тем же фактором (17) и смещено вдоль x на величину $-x_{\text{ref}}f_x/F$. Таким образом, выбирая соответствующее x_{ref} , сопряженное и действительное изображения можно отделить друг от друга. Действительное и сопряженное изображения находятся на противоположных сторонах прямого пучка. Отметим также, что поскольку гало имеет такие же размеры, что и увеличенное изображение, то для того, чтобы гало не перекрывало изображения, необходимо $|x_{\text{ref}}|$ выбрать так, чтобы смещение изображения $|x_{\text{ref}}|f_x/F > Ma_{\text{obj}}$, т.е. $|x_{\text{ref}}| > a_{\text{obj}}$.

В ходе вычислений для разрешающей способности Δ_{res} в приближении бесконечных размеров голограммы получается следующая оценка: $\Delta_{\text{res}} \sim 4(\eta F/k_0)^{1/2}$. Это означает, что на изображении можно различить два таких точечных объекта, минимальное расстояние между которыми вдоль оси x порядка Δ_{res} .

3.2. Двумерный случай

В двумерном случае, когда комплексный коэффициент амплитудного пропускания объекта зависит как от x , так и от y координаты, необходимо провести предварительное Фурье-преобразование по y . Для этого случая на рис.3 показана одна из возможных схем восстановления. Голограмма помещается непосредственно до или после линзы, которая имеет фокусное расстояние f_x в плоскости xz и фокусное расстояние f_{y1} в плоскости yz (вместо этого можно использовать две скрещенные цилиндрические линзы с соответствующими фокусными расстояниями f_x и f_{y1}). Освещение голограммы видимым светом совершает Фурье-преобразование по y в фокальной плоскости $z = f_{y1}$. В этой же фокальной плоскости помещается цилиндрическая линза с фокусным расстоянием f_{y2} в плоскости yz (ось линзы лежит в плоскости xz). На расстоянии L , отсчитываемом от плоскости этой линзы, получается обратное Фурье-преобразование по y . Расстояние L удовлетворяет соотношению

$$\frac{1}{L} + \frac{1}{f_{y1}} = \frac{1}{f_{y2}}. \quad (18)$$

В той же плоскости должно быть получено обратное преобразование по x . Следовательно, фокусное расстояние f_x должно удовлетворять соотношению

$$L + f_{y1} = f_x. \quad (19)$$

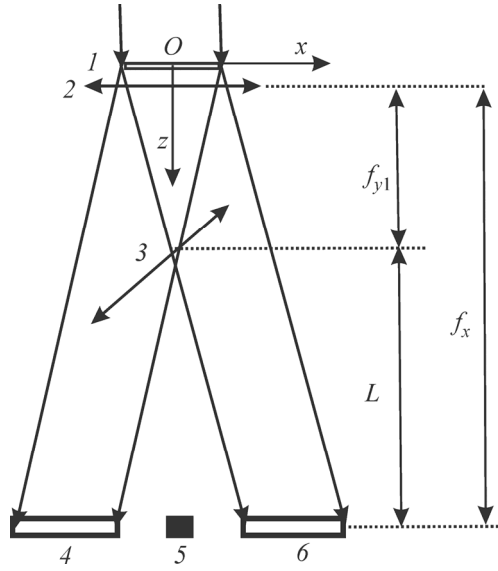


Рис.3. Схема восстановления изображения для двумерного объекта: 1 – рентгенодифракционная Фурье-голограмма, 2 – линза с фокусным расстоянием f_x в плоскости xz и фокусным расстоянием f_{y1} в плоскости yz , 3 – цилиндрическая линза с фокусным расстоянием f_{y2} в плоскости yz , 4, 5, 6 – сопряженное изображение, прямой пучок и гало, действительное изображение, соответственно.

В этом случае формула (9) (принцип Гюйгенса–Френеля) должна быть применена в два этапа. На первом этапе от плоскости голограммы к плоскости $z = f_{y1}$ и на втором этапе от этой плоскости к плоскости $z = f_x$. В первом случае в (9) вместо $\exp[-ik_0x^2/(2f_x)]$ должно быть взято $\exp[-ik_0x^2/(2f_x) - ik_0y^2/(2f_{y1})]$. Во втором – вместо $\exp[-ik_0x^2/(2f_x)]$ должно быть взято $\exp[-ik_0y^2/(2f_{y2})]$, а вместо $I_h(x')$ должна быть взята соответствующая амплитуда волны на плоскости $z = f_{y1}$. Выполняя необходимое интегрирование, приходим почти к таким же выражениям, что и в одномерном случае, причем амплитуды могут быть получены из формул (10)–(16) с соответствующей заменой коэффициентов A_i , $i = 1, \dots, 4$ на коэффициенты A'_i , $i = 1, \dots, 4$, а $t(x)$ и $t^*(x)$ заменяются соответственно на $t(x, -yf_{y1}/L)$ и $t^*(x, -yf_{y1}/L)$ для тех же самых значений x . Связь новых коэффициентов для $i = 1, 2, 3$ со старыми дается соотношениями

$$A'_1 = -A_1 e^{i\pi/4} \sqrt{f_{y1}/f_{y2} - 1} \exp[ik_0 y^2 / (2L)], \quad (20)$$

$$A'_{2,3} = -A_{2,3} e^{i\pi/2} \sqrt{f_{y1}/f_{y2} - 1} \exp[ik_0 y^2 / (2L)], \quad (21)$$

$$A'_4 = -\exp[-\mu_d T / (\cos \theta)] \frac{e^{i\pi/4}}{4} \sqrt{\frac{k_0}{2\pi f_x} (f_{y1}/f_{y2} - 1)} \times \exp\{-ik_0[x_{\text{obj}}^2 / (2f_x)] - k_0(k \cos \theta \Delta \theta / k_0)^2 \eta F\} \exp[ik_0 y^2 / (2L)]. \quad (22)$$

Как следует из формул (10)–(16) и (20)–(22), основные выводы те же, что и в одномерном случае; в двумерном случае оба изображения перевернуты по y . Увеличение по y определяется из соотношения

$$M_1 = L / f_{y1}. \quad (23)$$

Соотношения (18) и (19) достаточны для определения параметров используемых линз. Вместе с тем параметры линз можно выбрать так, чтобы удовлетворялось условие $M = M_1$. Комбинируя (17)–(19) и (23) и условие $M = M_1$, можно получить следующие параметры, удовлетворяющие условию равных увеличений,

$$F > f_{y2}, f_{y1} = \sqrt{Ff_{y2}}, f_x = f_{y1} / (1 - f_{y2} / f_{y1}), L = f_{y2}f_x / f_{y1}. \quad (24)$$

Например, если взять $F = 20$ мм и $f_{y2} = 10$ мм. Из (25) следует $f_{y1} = 14$ мм, тогда из (24) следует $f_x = 49$ мм, $L = 35$ мм, и увеличение соответствующее этим параметрам $M = M_1 = 2.5$.

4. Пример

Одним из классических объектов является одномерная косинусоидальная амплитудная дифракционная решетка [1], для которой

$$t(x) = t_0 + t_1 \cos(2\pi x / q + \varphi_0), \quad (25)$$

где t_0, t_1, q, φ_0 – некоторые постоянные. Возьмем $t_0 = t_1 = 0.5$, $q = 25$ мкм, $\varphi_0 = 3.2\pi$. Рассматривается случай Si(220) отражения, $\lambda = 0.71$ Å (17.46 кэВ), $T = 5$ мм, $2a_{\text{ref}} = 10$, $x_{\text{ref}} = -170$, $x_{\text{obj}} = 125$ мкм. Размер объекта в плоскости дифракции $2a_{\text{obj}} = 100$ мкм. Размер D всей двухщелевой системы в плоскости дифракции – 350 мкм. На рис.4 показан график функции $t^2(x)$.

На рис.5 показано численно полученное на основе гриновского формализма динамической теории дифракции [20,21] распределение интенсивности (2)

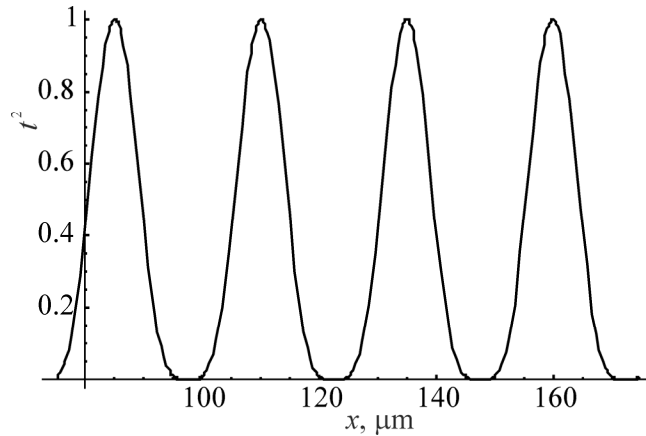


Рис.4. График квадрата амплитудного пропускания объекта.

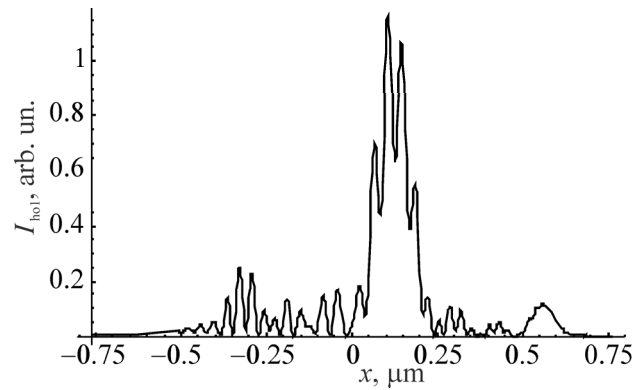


Рис.5. Распределение интенсивности на динамической рентгенодифракционной Фурье-голограмме.

на голограмме. Контраст голограммы, в случае необходимости, можно улучшить, применяя ослабитель (поглотитель) надлежащей толщины перед падающим на кристалл объектным пучком.

На рис.6 представлено численно полученное распределение интенсивности (9) восстановленного поля в плоскости $z = f_x = 100$ мм. Как видно из рис.6, в центральной части находятся распределения, соответствующие прямо проходящей волне (10) и гало (15). Сопряженное изображение получено слева от прямого пучка (отрицательные x), а действительное изображение получено справа от прямого пучка (положительные x). Так как в этом случае $F = 20$ мм, то $M = 5$. Разрешение в данном примере для голограммы бесконечных размеров составляет $\Delta_{\text{res}} \sim 4(\eta F/k_0)^{1/2} \approx 16\text{--}17$ мкм. Для оценки качества изображения при сравнении с коэффициентом пропускания объекта (рис.4) на рис.7 представлено распределение интенсивности в области восстановленного изображения.

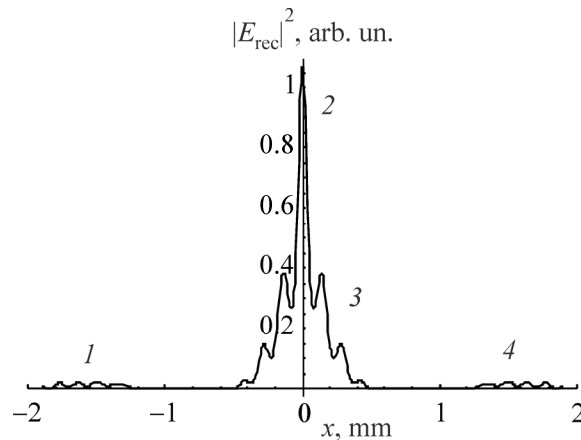


Рис.6. Распределение интенсивности восстановленного поля на плоскости изображения $z = f_x$: 1, 2, 3 и 4 – сопряженное изображение, прямой пучок, гало и действительное изображение, соответственно.

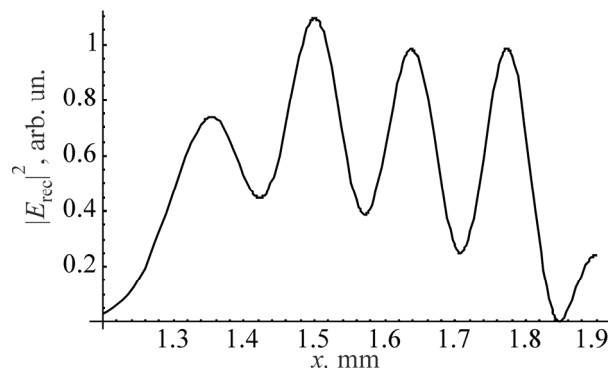


Рис.7. Распределение интенсивности в области изображения.

Согласно рис.4–7, численно полученные результаты совпадают с теоретическими предсказаниями разделов 2 и 3. Значения увеличения и смещения изображений, вращение сопряженного изображения соответствуют теоретически предсказанным. Необходимые значения Фурье-коэффициентов поляризуемости взяты из [21].

5. Заключение

В настоящей работе предложен и теоретически исследован динамический рентгенодифракционный аналог Фурье-голографии. Показано, что при определенных условиях полученная на выходной поверхности кристалла интерференционная картина двухволновой симметричной лауэвской дифракции при записи есть рентгенодифракционная Фурье-голограмма исследуемого объекта. Дальнейшее восстановление изображения осуществляется светом видимого диапазона либо его можно осуществить также с помощью численных методов. В качестве примера рассмотрена запись голограммы амплитудной косинусоидальной решетки с последующим восстановлением с помощью видимого света. Численный расчет подтверждает правильность выводов теоретического исследования. Этот метод экспериментально можно осуществить с помощью синхротронных источников рентгеновского излучения. Он может быть применен в рентгеновской микроскопии.

ЛИТЕРАТУРА

1. Р. Кольер, К. Беркхарт, Л. Лин. Оптическая голография. Москва, Мир, 1973.
2. Р. Hariharan. Basics of Holography. New York, Cambridge University Press, 2002.
3. V.V. Aristov, G.A. Ivanova. J. Appl. Cryst., **12**, 19 (1979).
4. А.М. Егиазарян, П.А. Безирганян. Изв. АН Арм ССР, Физика, **15**, 35 (1980).
5. А.М. Егиазарян. Письма в ЖТФ, **24**, 55 (1998).
6. А.М. Егиазарян, К.Г. Труни, А.Р. Мкртчян. Письма в ЖЭТФ, **68**, 681 (1998).
7. A. Momose. Nucl. Instr. Meth., **A352**, 622 (1995).

8. **К.Т. Габриелян.** Письма в ЖТФ, **16**, 5 (1990).
9. **М.К. Balyan.** J. Sync. Rad., **20**, 749 (2013).
10. **М.К. Balyan.** J. Sync. Rad., **21**, 449 (2014).
11. **М.К. Balyan.** J. Sync. Rad., **21**, 127 (2014).
12. **A. Snigirev, I. Snigireva, V. Kohn, S. Kuznetsov, I. Schelokov.,** Rev. Sci. Instrum., **66**, 5486 (1995).
13. **K.A. Nugent, T.E. Gureyev, D.F. Cookson, D. Paganin, Z. Barnea.** Phys. Rev. Letters, **77**, 2961 (1996).
14. **D.M. Paganin.** Coherent X-Ray Optics. Oxford, Oxford University Press, 2006.
15. **N. Watanabe, H. Yokosuka, T. Ohgashi, H. Takano, A. Takeuchi, Y. Suzuki, S. Aoki.** J. Phys. IV France, **104**, 551 (2003).
16. **В.В. Аристов, А.В. Куюмчян, А.Ю. Суворов, Т. Ишикава, А.А. Исоян, К.Г. Труни, Е. Саркисян.** Микросистемная техника, **11**, 26 (2004).
17. **W. Leitenberger, A. Snigirev.** J. Appl. Phys., **90**, 538 (2001).
18. **H. Iwamoto, N. Yagi.** J. Sync. Rad., **18**, 564 (2011).
19. **М.К. Balyan.** Acta Cryst., **A66**, 660 (2010).
20. **A. Authier.** Dynamical Theory of X-Ray Diffraction. Oxford, Oxford University Press, 2001.
21. **З.Г. Пинскер.** Рентгеновская кристаллооптика. Москва, Наука, 1982.
22. **V. Mocella, Y. Epelboin, J.P. Guigay.** Acta Cryst., **A56**, 308 (2000).

ՌԵՆՏԳԵՆՆԱՆ ԲՅՈՒՐԵՂԱԴԻՖՐԱԿՏԱԿԱՆ ՖՈՒՐԻԵ-ՀՈԼՈԳՐԱՖԻԱ

Մ.Կ. ԲԱԼՅԱՆ

Առաջարկված և տեսականորեն ուսումնասիրված է Ֆուրիե-հոլոգրաֆիայի դինամիկական ռենտգենադիֆրակտական անալոգը: Ցույց է տրված, որ որոշակի պայմաններում սիմետրիկ Լաուեի երկալիքային դիֆրակցիայի դեպքում բյուրեղի ելքի մակերևույթին ստացված ինտերֆերենցային պատկերը գրանցումից հետո ուսումնասիրվող օբեկտի Ֆուրիե հոլոգրամ է: Պատկերի վերականգնումն իրականացվում է տեսանելի տիրույթի լույսով կամ թվային եղանակով: Որպես օրինակ դիտարկված է ամպլիտուդային կոսինուսոիդային ցանցի հոլոգրամի գրանցումն և պատկերի վերականգնումը տեսանելի տիրույթի լույսով: Փորձնականորեն կարելի է իրականացնել ռենտգենյան սինքրոտրոնային աղբյուրներով: Մեթոդը կարող է օգտագործվել ռենտգենյան մանրադիտակային եղանակում:

X-RAY CRYSTAL-DIFFRACTION FOURIER HOLOGRAPHY

M.K. BALYAN

The X-ray dynamical diffraction analogue of the Fourier holography is proposed and theoretically investigated. It is shown, that the record of the Laue symmetrical two-wave dynamical diffraction interference pattern on the exit surface of the crystal under certain conditions is the Fourier hologram of the investigated object. The reconstruction is performed either by means of visible light or by numerical methods. As an example the recording of the hologram of the amplitude cosine grating and the reconstruction by means of visible light is considered. Experiment can be performed using the synchrotron sources of X-ray radiation, and the method can be used in X-ray microscopy.

ВЛАДИМИР МИХАЙЛОВИЧ АРУТЮНЯН

(к 75-летию со дня рождения)



30 августа исполняется 75 лет со дня рождения видного армянского физика, признанного специалиста по физике и технике полупроводников, радиофизике и электронике, методам преобразования солнечной энергии, полупроводниковым сенсорам, лауреата Премии Президента РА, заслуженного деятеля науки РА, академика Владимира Михайловича Арутюняна.

В.М. Арутюнян родился в 1940 году в Ереване. С отличием окончил факультет радиоэлектроники Киевского политехнического института по специальности «Полупроводники и диэлектрики» (1964 г.) и начал работать в Институте радиофизики и электроники Академии наук Армении. Кандидатскую диссертацию защитил в 1970 году, а докторскую – в 1977. В 1981 году утвержден в ученом звании профессора. В 1990 году избран член-корреспондентом, а в 1996 – академиком НАН РА по специальности «Радиофизика и электроника». В.М. Арутюнян избран также действительным членом Инженерной Академии РА и Международной Инженерной Академии, членом других академий и научных обществ. Являлся членом ряда ученых и экспертных советов в республике и научных советов СССР. Многие годы является членом специализированных советов в ЕГУ и ГИУА.

С 1965 года работал в Институте радиофизики и электроники НАН Армении, в том числе 14 лет со дня основания в качестве заведующего Лабораторией физики полупроводниковых приборов. В декабре 1977 года приглашен на работу

в ЕГУ на должность заведующего кафедрой «Физика полупроводников и диэлектриков» и научного руководителя НИЛ физики полупроводниковых материалов и приборов Радиофизического факультета. Позже кафедра была переименована в кафедру «Физика полупроводников и микроэлектроника», а на базе НИЛ был создан Научный центр полупроводниковых приборов и нанотехнологий.

Круг научных интересов академика В.М. Арутюняна весьма широк. Его работам свойственно сочетание фундаментальных исследований с приборными разработками. Сегодня в центре внимания В.М. Арутюняна и его соавторов находятся различные эффекты, наблюдаемые на границах раздела полупроводников с электролитом, газом или жидким кристаллом, явления в различных полупроводниковых гетероструктурах, в том числе содержащих квантовые ямы, точки и т.д. Весомый вклад внесен в развитие таких исключительно важных для прикладной науки разделов, как химические и газовые сенсоры, фотоприемники ИК- и УФ-диапазонов спектра, полупроводниковые приборы радиофизики СВЧ-диапазона. Крупный вклад внесен В.М. Арутюняном в решение проблемы преобразования солнечной энергии в химическую или электрическую энергии. В.М. Арутюняном решены сложные задачи статистической радиофизики в области теории шумов в полупроводниках. Практическим выходом проведенных В.М. Арутюняном с сотрудниками фундаментальных исследований явилось создание новых приборов, установок, технологий и методов измерений, многие из которых защищены 38 авторскими свидетельствами СССР, Армении и РФ, 1 патентом США, 2 патентами Франции. Эти разработки по своим параметрам превышают характеристики зарубежных аналогов. Внедрение ряда разработок осуществлено в Армении, Москве, Санкт-Петербурге. До распада СССР В.М. Арутюнян возглавлял созданную им в ПО «Позистор» совместную с ЕГУ отраслевую лабораторию, что способствовало внедрению многих результатов научных изысканий и изобретений в производство, повышению выхода продукции.

По всем вышеперечисленным направлениям В.М. Арутюняном опубликованы 3 монографии, 12 книг, нескольких учебных пособий, 17 обзорных статей, более 400 статей и докладов в ведущих научных журналах и на международных конференциях. Многие работы получили высокую оценку научной общественности и ведущих ученых мира. Об этом свидетельствует около 2500 ссылок на его работы, в том числе в монографиях и книгах, изданных за рубежом. В.М. Арутюнян в настоящее время привлечен к работе в различных экспертных советах и в редакциях 2 международных журналов и журнала «Армянская армия». С 1992 года является главным редактором журнала «Известия НАН РА. Физика», полностью издаваемого Издательством Шпрингер (Германия) в переводе с русского языка на английский под названием «Journal of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences)». Восьмой год издается под его редакцией электронный журнал «Armenian Journal of Physics», в котором публикуются не только работы армянских авторов, но и научные работы физиков из более чем двадцати стран.

Наряду с интенсивной научной деятельностью всегда в центре внимания Владимира Михайловича были воспитание и подготовка кадров. За время работы в ЕГУ в разные годы им прочитаны лекции по физике полупроводников и полупроводниковых приборов, оптоэлектронике, полупроводниковой СВЧ-электронике, микроэлектронике, сенсорам, нанотехнологиям, преобразователям солнечной энергии. Им опубликованы учебные пособия на армянском и русском языках.

Научная и научно-организационная деятельность В.М. Арутюняна во многом способствовала подготовке в Армении высококвалифицированных кадров. На кафедре и в Центре, возглавляемыми В.М. Арутюняном, царит творческая обстановка. Им лично подготовлены 6 докторов наук и более 30 кандидатов наук. Он был членом первой в Армении ВАК. Только в Армении В.М. Арутюняном с сотрудниками организовано 6 всесоюзных и 12 республиканских конференций. Научные работы возглавляемого им коллектива дважды удостоены Премий Президента РА. Среди его учеников и коллег заслуженный деятель науки РА, иностранный член НАН РА, 7 лауреатов Премии Президента РА. Большое внимание уделяется академиком В.М. Арутюняном международному сотрудничеству. Им опубликовано около 70 статей и докладов совместно с учеными США, Франции, России, Швеции, Германии и Италии. Многократно выезжал в научные командировки в США, Францию, Германию, Италию, Великобританию и другие страны, принимал участие в работе научных конференций (в том числе с приглашенными докладами). На кафедре и в Центре ЕГУ выполнены совместные работы, в том числе в рамках 18 зарубежных грантов. В.М. Арутюнян член международных научных обществ по солнечной энергии и материаловедению, награжден медалью «За вклад в мировую науку» (2006, Россия), Золотой медалью 2009 года для Армении (США), медалью «ArmTech'09» (США), золотыми медалями Министерства образования и науки, Инженерной Академии РА, ЕГУ. За успехи в науке и подготовке кадров академику В.М. Арутюняну присуждена правительственная награда – медаль Анания Ширакаци. Его деятельность в 2009 году отмечена благодарностью Премьер-министра РА.

Для становления творческого коллектива, научной школы, формирования международных связей, наряду с высоким научным уровнем и актуальностью проводимых работ, большое значение имеют его личные качества. Это, прежде всего, глубокие знания, интуиция, трудолюбие, сильно развитое чувство ответственности, целеустремленность, неиссякаемая энергия в работе, принципиальность, сочетающаяся с отзывчивостью и доброжелательностью, коммуникабельность в общении с людьми на всех уровнях.

Поздравляя Владимира Михайловича Арутюняна с 75-летним юбилеем, желаем ему крепкого здоровья, счастья и благополучия в личной жизни, успехов в работе и во всех начинаниях на благо развития науки Армении!

Редколлегия

В журнале печатаются оригинальные статьи и краткие сообщения авторов по всем разделам современной физики на русском языке. Редакция просит авторов при направлении статей придерживаться следующих правил.

1. Статьи, поступающие в редакцию, должны иметь направление от учреждения, в котором выполнена работа, а также акт экспертизы. Название учреждения приводится перед текстом статьи после фамилий авторов.

2. После названия учреждения следует привести адрес электронной почты автора-корреспондента.

3. Работы необходимо представлять в двух экземплярах, отпечатанных на принтере через 2 интервала. При наборе статьи следует использовать редактор MS Word, размер шрифта 11 pt.

4. Тексту каждой статьи предшествует индекс УДК, проставленный в левом верхнем углу. Непосредственно перед текстом статьи помещается краткая аннотация. К работам, представленным на русском языке, должны быть приложены резюме на армянском и английском языках.

5. Следует ограничиваться минимальным количеством рисунков и фотографий.

6. Все формулы следует набирать, нумеровать и оформлять ссылки на них в тексте программой MathType.

7. В тексте статьи и на рисунках латинские символы следует приводить курсивом, а греческие – прямо. Векторы обозначаются жирным шрифтом, прямо, без стрелок. В индексах символов необходимо использовать английские обозначения.

8. Цитируемая литература должна даваться общим списком в конце статьи. В тексте ссылка приводится в прямых скобках в порядке упоминания в статье. В списке литературы необходимо указать: для книг – инициалы и фамилии авторов, название книги, место издания, издательство и год издания; для периодических изданий – инициалы и фамилии авторов, название журнала, том, номер выпуска, первую страницу и год издания.

9. Статья должна быть подписана всеми авторами, необходимо также приложить точный адрес, фамилию, имя, отчество автора, его телефон и адрес учреждения, где выполнена работа.

10. Редакция посылает автору одну корректуру. Корректурa с подписью и датой ее подписания должна быть выслана в редакцию в течение суток с момента ее получения.

11. Автор передает редакции журнала "Известия НАН Армении, Физика" исключительное право на воспроизведение и распространения статьи в периодической печати, а также на ее перевод на английский язык для переиздания в журнале "Journal of Contemporary Physics" (Armenian Academy of Sciences).

Статьи, в которых не соблюдены указанные правила, к рассмотрению приниматься не будут.

Адрес редакции "Известий НАН Армении, Физика": Республика Армения, 0019, Ереван, пр. Маршала Баграмяна, 24г. Тел.56-80-67.

Веб-страница журнала: <http://jcp.sci.am/>

ԲՈՎԱՆԴԱԿՈՒԹՅՈՒՆ

Վ.Ս. Ժամկոչյան. Λ - և Ω -հիպերոնների ծնման մասին միջուկ-միջուկային բախումներում	403
Ե.Ս. Ղանդիլյան. Բազմամասնիկային ելքով լրիվ էքսկյուզիվ ռեակցիաների նույնականացումը, հիմնված դեպքերի տոպոլոգիայի և կինեմատիկայի վրա.....	410
Կ.Բ. Հովհաննիսյան. Կանալացված պոզիտրոնները որպես զամմա ճառագայթման աղբյուր	422
Ա.Դ. Սարգսյան, Հ.Թ. Հախումյան, Ա.Հ. Ամիրյան, Կ. Լեռուա, Հ.Ս. Սարկիսյան, Դ.Հ. Սարգսյան. Cs-ի D_2 գծի ատոմական անցումները ուժեղ լայնական մագնիսական դաշտերում.....	428
Հ.Ս. Ղարազուլյան. $YAG:Ce^{3+}$ բյուրեղում $d-f$ անցումների գծերի ուժի որոշումը	441
Վ.Ս. Հարությունյան. Ֆունկցիոնալիզացված ածխածնային նանոխողովակային գազային սենսորներ.....	448
Ա.Ա. Հախումյան, Գ.Դ. Հովհաննիսյան. Ոչ գծային օպտիկական փուլային կորեկյատոր միջին ԻԿ տիրույթում ենթապիկովայրկյանային լազերային իմպուլսի փուլի որոշման համար	476
Ս.Տ. Փաշայան, Ն.Վ. Տարասենկո, Ա.Վ. Բուցեն, Ա.Ս. Կուզանյան. Մետաղական թաղանթով պատված CuO միաբյուրեղների հատկությունների լազերային ձևափոխումը	492
Շ.Ա. Տոնոյան, Ա.Վ. Ասատրյան, Ս. Միրտավուսի, Ե.Շ. Մամասախլիսով, Վ.Ֆ. Մորոզով. Պոլիպեպտիդային շղթայի ընդհանրացվա մոդելը երկկոմպոնենտային լուծիչում պարույր-կծիկ անցման համար.....	503
Պ.Հ. Վարդեվանյան, Ա.Պ. Անտոնյան, Մ.Ա. Փարսադանյան, Մ.Վ. Մինասյանց. Էթիդիումի բրոմիդի հետ պոլինուկլեոտիդների կոմպլեքսների կլանման և ֆլուորեսցենցիայի սպեկտրները	511
Լ.Գ. Գասպարյան, Վ.Պ. Մկրտչյան. Նեմատիկ հեղուկ բյուրեղների անիզոտրոպության ուսումնասիրությունը ռենտգենյան հաճախությունների տիրույթում	520
Մ.Կ. Բալյան. Ռենտգենյան բյուրեղադիֆրակտական Ֆուրիե-հոլոգրաֆիա.....	529
Վ.Ս. Հարությունյանի ծննդյան 75-ամյակին.....	542

CONTENTS

V.M. Zhamkochyan. On the Production of Λ - and Ω -Hyperons in Nucleus–Nucleus Collisions	403
E.S. Ghandilyan. Identification of Multiparticle Final States in Fully Exclusive Reactions Based on Event Topology and Kinematics.....	410
K.B. Oganessian. Channeled Positrons as a Source of Gamma Radiation.....	422
A.D. Sargsyan, G.T. Hakhumyan, A.H. Amiryan, C. Leroy, H.S. Sarkisyan, D.H. Sarkisyan. Atomic Transitions of Cs D ₂ Line in Strong Transverse Magnetic Fields.....	428
D.G. Zargaryan. Determination of Line Strength of d – f Transitions in YAG:Ce ³⁺ Crystal	441
V.M. Aroutiounian. Functionalized Carbon Nanotubes Gas Sensors	448
A.A. Hakhounian, G.D. Hovhannisyan. Nonlinear Optical Phase Correlator For Determination of the Phase of Subpicosecond Laser Pulses in the Mid-IR Wavelength Range	476
S.T. Pashayan, N.V. Tarasenko, A.V. Butsen, A.S. Kuzanyan. Laser Induced Modification of the Properties of CuO Single Crystals, Coated by Metal Film.	492
Sh.A. Tonoyan, A.V. Asatryan, S. Mirtavusi, Y.Sh. Mamasakhlisov, V.F. Morozov. Generalized Model of Polypeptide Chain for Helix–Coil Transition in Two-Component Solvent.....	503
P.O. Vardevanyan, A.P. Antonyan, M.A. Parsadanyan, M.V. Minasyants. Absorption and Fluorescence Spectra of Polynucleotide Complexes with Ethidium Bromide	511
L.G. Gasparyan, V.P. Mkrtchyan. Investigation of Nematic Liquid Crystals Anisotropy in X-Ray Frequency Range	520
M.K. Balyan. X-Ray Crystal-Diffraction Fourier Holography	529
On the 75-th Birth Day Anniversary of V.M. Aroutiounian	542

СОДЕРЖАНИЕ

В.М. Жамкочян. О рождении Λ - и Ω -гиперонов в ядро–ядерных соударениях	403
Е.С. Гандилян. Идентификация многочастичных конечных состояний в полностью эксклюзивных реакциях на основе топологии событий и кинематики	410
К.Б. Оганесян. Канализованные позитроны как источник гамма излучения..	422
А.Д. Саргсян, Г.Т. Ахумян, А.О. Амирян, К. Леруа, А.С. Саркисян, Д.Г. Саркисян. Атомные переходы D_2 линии цезия в сильных поперечных магнитных полях	428
Д.Г. Заргарян. Определение силы линий $d-f$ переходов в кристалле $YAG:Ce^{3+}$	441
В.М. Арутюнян. Газовые сенсоры на основе декорированных углеродных нанотрубок	448
А.А. Ахумян, Г.Д. Оганесян. Нелинейно-оптический фазовый коррелятор для определения фазы субпикосекундного лазерного импульса в среднем ИК диапазоне длин волн.....	476
С.Т. Пашаян, Н.В. Тарасенко, А.В. Буцень, А.С. Кузанын. Лазерно-индуцированная модификация свойств монокристаллов CuO , покрытых металлической пленкой	492
Ш.А. Тоноян, А.В. Асатрян, С. Миртавуси, Е.Ш. Мамасахлисов, В.Ф. Морозов. Обобщенная модель полипептидной цепи для перехода спираль–клубок в двухкомпонентном растворителе	503
П.О. Вардеванян, А.П. Антонян, М.А. Парсаданян, М.В. Минасянц. Спектры поглощения и флуоресценции комплексов полинуклеотидов с бромистым этидием	511
Л.Г. Гаспарян, В.П. Мкртчян. Исследование анизотропии нематических жидких кристаллов в области рентгеновских частот	520
М.К. Балян. Рентгеновская кристалл-дифракционная Фурье-голография	529
Владимир Михайлович Арутюнян (к 75-летию со дня рождения).....	542

Заказ № 613

Тираж 150. Сдано в набор 22.09.2015.

Подписано к печати 29.09.2015. Печ. л. 9.25.

Бумага офсетная. Цена договорная.

Типография НАН РА. Ереван, пр. Маршала Баграмяна, 24.