

ՀԱՅԱՍՏԱՆԻ ՀԱՆՐԱՊԵՏՈՒԹՅԱՆ ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ԱԶԳԱՅԻՆ ԱԿԱԴԵՄԻԱ

НАЦИОНАЛЬНАЯ АКАДЕМИЯ НАУК РЕСПУБЛИКИ АРМЕНИЯ

ՏԵՇԿԱԳԻՐ Ի ՀԵտագործության
ՖԻԶԻԿԱ

ՀԱՏՈՂ ՏՈՄ

58

№ 4

ՀՀ ԳԱԱ "ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆ" ՀՐԱՏԱՐԱԿՉՈՒԹՅՈՒՆ

ИЗДАТЕЛЬСТВО "ГИТУТЮН" НАН РА

ԵՐԵՎԱՆ ԵՐԵՎԱՆ

2023

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

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

Карен М. Гамбaryan, главный редактор
Арам В. Папоян, зам главного редактора
Нателла Р. Агамалян, ответственный секретарь

А.А. Ахумян, Э.М. Казарян, Р.Б. Костанян, Х.В. Неркараян, Е.Ш. Мамасахлисов,
А.О. Меликян, А.Г. Мкртчян, Д.Г. Саркисян, А.А. Саркисян, А.А. Саарян, Г. Пихлер
(Хорватия), С.Г. Казарян (Великобритания), Д.В. Рошупкин (Россия), М. Аузинш
(Латвия), Д. Будкер (Германия, США), Т.А. Вартанян (Россия)

ԽՄԲԱԳՐԱԿԱՆ ԿՈԼԵԳԻԱ

Կարեն Մ. Ղամբարյան, գլխավոր խմբագիր
Արամ Վ. Պապոյան, գլխավոր խմբագրի տեղակալ
Նատելլա Ռ. Աղամալյան, պատասխանատու քարտուղար

Ա.Ա. Հախումյան, Է.Մ. Ղազարյան, Ռ.Բ. Կոստանյան, Խ.Վ. Ներկարարյան,
Ե.Շ. Մամասահլիսով, Ա.Օ. Մելիքյան, Ա.Հ. Մկրտչյան, Դ.Հ. Սարգսյան,
Հ.Ա. Սարգսյան, Ա.Ա. Սահարյան, Գ. Պիխլեր (Խորվատիա), Ս.Գ. Կազարյան
(Մեծ Բրիտանիա), Դ.Վ. Ռօշչուպկին (Ռուսաստան), Մ. Այզինշ (Լատվիա),
Դ. Բուդկեր (Գերմանիա, ԱՄՆ), Տ.Ա. Վարտանյան (Ռուսաստան)

EDITORIAL BOARD

Karen M. Gambarian, editor-in-chief
Aram V. Papoyan, associate editor
Natella R. Aghamalyan, executive secretary

A.A. Hakhumyan, E.M. Ghazaryan, R.B. Kostanyan, K.V. Nerkararyan,
E.Sh. Mamasakhlisov. A.H. Melikyan, A.H. Mkrtchyan, D.H. Sarkisyan,
H.A. Sarkisyan, A.A. Saharyan, G. Pichler (Croatia), S.G. Kazarian (UK),
D.V. Roschupkin (Russia), M. Auzinsh (Latvia), D. Budker (Germany, USA),
T.A. Vartanyan (Russia)

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.

e-mail: izvestiya-fizika@sci.am

ԲՈՎԱՆԴԱԿՈՒԹՅՈՒՆ

<p>Ա.Ռ. Բալաբեկյան, Գ.Հ. Հովհաննիսյան, Ս.Վ. Գագինյան, Գ.Ս. Այվազյան, Հ.Գ. Զոհրաբյան, Վ.Հ. Խաչատրյան, Հ.Ս. Վարդանյան, Ս.Տ. Մարգարյան. Ալֆա մասնիկների և բաժանման քեկորների գրանցման համար LPMWPC և SSD գրանցիչների հիման վար փորձարարական սարքավորում.....</p>	503
Ա.Յու. Աղեքսանյան, Ս.Մ. Ամիրխանյան, Ա.Ժ. Ապերյան, Հ.Ռ. Գուլքանյան, Տ.Վ. Քոթանջյան, Ս.Ա. Լևոնյան, Վ.Ս. Պողոսյան, Լ.Ա. Պողոսյան, Ա.Ս. Սահակով, Ա.Ա. Շահինյան. Երկրաբանական նմուշների գամմա ակտիվացման վերլուծության և նեյտրոնային ակտիվացման վերլուծության արդյունքների համեմատությունը	509
Լ.Ռ. Վահրամյան. ԱԱԳԼ (ԵՐՖԻ) -ի ԼՌԻԷ-75 գծային արագացուցչի արդիականացման մասին	518
Ա.Ա. Սահարյան, Դ.Հ. Միմոնյան, Հ.Հ. Միքայելյան, Ա.Ա. Վանցյան. Քվանտային սկայար դաշտի պարուրային վակուումային հոսանքները ոչ տրիվիալ տոպոլոգիայով տարածությունում	529
Մ.Վ. Բայյան. Վեկտորական ոչ ստացիոնար էլեկտրամագնիսական դիֆրակտային դաշտերը և լիցքերի դաշտերը միջավայրերում	539
Ա.Ժ. Մուրադյան. Կլանման ատոմային ինտերֆերոմետր	547
Յու.Հ. Ավետիսյան, Ա.Հ. Մակարյան. Նեղշերտ տերահերց իմպուլսների գեներացումը լիթիում նիոբատ բյուրեղում փուլային դիմակի օգտագործմամբ	555
Վ.Ս. Առաքելյան. Սուտակի բյուրեղում ցանցի լուսամակածված տեղային տատանումների ²71 վիճակի օպտիկական գրգռման պայմաններում	564
Ա.Վ. Եզանյան, Ն.Է. Կոկանյան, Է.Պ. Կոկանյան. Հիպերձայնային ալիքների կլանումը լեզիրված լիթիումի նիոբատի միարյութեղներում	572
Տ.Ի. Բուտակվա, Վ.Լ. Հովհաննիսյան, Ա.Վ. Եզանյան. Ce³⁺ իոնների յումինեսցենցիոն շերտերի կազմավորումը YAG:Ce բյուրեղներում.....	576
Գ.Հ. Շահիսարունի. Նանոկառուցվածքային Fe₂O₃:ZnO սենսորի հետողուու- թյունը իմպեդանսային սպեկտրասկոպիայի եղանակով	585
Ս.Ա. Մկրտչյան, Ե.Շ. Մամասախիսով, Հ.Ա. Մարգարյան. Զույգ փոխազդող ծանր խոռոչային գազը խիստ ձգված էլիպսարդային քվանտային կետում. թերմոդինամիկական հատկություններ.....	593
Ա.Ա. Մարգարյան, Ռ.Ա. Մնացականյան, Տ.Վ. Գրիգորյան, Ա.Ա. Ղազարյան, Ա.Ա. Պետրոսյան, Վ.Վ. Հարությունյան, Ա.Հ. Բաղդայան, Ն.Ռ. Աղամալյան,	

Վ.Վ. Բաղրամյան. Միջուկ-պատյան կառուցվածքով SiO ₂ /ZnO ֆոտոկատալիզատորի միկրոալիքային սինթեզ	601
Յ.Ա. Էլիովիչ, Վ.Ռ. Քոչարյան, Ա.Է. Բլագով, Ա.Վ. Տարգմանյան, Վ.Ա. Կորժով, Ա.Ե. Սովոսյան, Ա.Վ. Շահվերդյան, Ա.Հ. Մկրտչյան, Մ.Վ. Կովալյով, Ս.Ն. Նորեյան. Բիֆտալատների ընտանիքի բյուրեղներից ակուստիկ ունտգենյան էլեմենտների ստեղծման հնարավորությունները հաստության տատանումների առկայության դեպքում	612
Գ.Ե. Այվազյան. Սիլիցիումային հարթակների հիերարխիական հակաանդրադանող մակերեվույթ տանդեմային արևային էլեմենտների համար	619
Ա.Ա. Կուգանյան, Վ.Ռ. Նիկողոսյան, Ա.Ա. Կուգանյան. Զերմակեկտրիկ միաֆուտոն դետեկտորի պլատին պարունակող դետեկտոր տարր	626
Մ.Վ. Մարկոսյան, Վ.Հ. Ավետիսյան, Ա.Կ. Ահարոնյան, Հ.Գ. Մարտիրոսյան, Է.Ա. Հարությունյան, Գ.Զ. Սուլյան, Ռ.Ա. Դավթյան. Դրոնի կիրառումը ուլտրակարճ մետրային ալիքների տիրույթի ռադարների շրջադիր եղանակով անտենային չափումներում	635
Մ.Ա. Փարանդանյան, Մ.Ա. Շահինյան, Ա.Վ. Գրիգորյան, Մ.Ս. Միքաելյան Գ.Հ. Պողոսյան, Վ.Պ. Քալանթարյան, Պ.Հ. Վարդսանյան. Էրիթրոզին Բ-ի հետ շիճուկային ալբումինի փոխազդեցությունը միլիմետրային տիրույթի էլեկտրամագնիսական ալիքների ազդեցության ներքո	643
Լ.Ա. Հարությունյան. Երկրորդ բյուրեղական համակարգերից կազմված դիֆրակտային ոսպնյակով ձևավորված ունտգենյան պատկերների որակի բարձրացումը	652
Ա.Ա. Մանուկյան. Վակուումային պատուհան IBA C18 twin ցիկլոտրոնի փնջատարի համար	660

CONTENTS

A.R. Balabekyan, G.H. Hovhannisyan, S.V. Gaginyan, G.M. Ayvazyan, H.G. Zohrabyan, V.H. Khachatryan, H.S. Vardanyan, A.T. Margaryan. Experimental Installation Based on LPMWPC and SSD Detectors for Registration and Identification of Alpha Particles and Fission Fragments	503
A.Y. Aleksanyan, S.M. Amirkhanyan, A.G. Aperyan, H.R. Gulkanyan, T.V. Kotanjyan, M.A. Levonyan, V.S. Pogosov, L.A. Poghosyan, A.S. Saakov, A.A. Shahinyan. Comparison of Gamma Activation Analysis and Instrumental Neutron Activation Analysis of Geological Samples.....	509
L.R. Vahradyan. On Modernization of the LUE-75 Linear Electron Accelerator of the AANL (YerPhI).....	518
A.A. Saharian, D.H. Simonyan, H.H. Mikayelyan, A.A. Vantsyan. Helical Vacuum Currents for a Scalar Field in Models with Nontrivial Spatial Topology	529
M.K. Balyan. Vector Non-Stationary Electromagnetic Diffraction Fields and Fields of Charges in Media.....	539
A.Zh. Muradyan. Absorptive Atom Interferometer	547
Y.H. Avetisyan, A.H. Makaryan. Narrow-Band Terahertz Pulse Generation in Lithium Niobate Crystal Using Phase Mask	555
V.S. Arakelyan. Photoinduced Local Lattice Vibrations in a Ruby Crystal under Optical Pumping of the 2T_1 State.....	564
A.V. Yeganyan, N.E. Kokanyan, E.P. Kokanyan. Absorption of Hipersonic Waves in Doped Lithium Niobate Single Crystals.....	572
T.I. Butaeva, K.L. Hovhannesyan, A.V. Yeganyan. Formation of Luminescence Bands of Ce ³⁺ Ions in YAG:Ce Crystals.....	576
G.H. Shahkhatuni. Investigation of Nanostructured Fe ₂ O ₃ :ZnO Sensor by Impedance Spectroscopy	585
M.A. Mkrtchyan, Y.S. Mamasakhlisov, H.A. Sarkisyan. Pair-Interacting Heavy Holes Gas in a Strongly Prolate Ellipsoidal Quantum Dot: Thermodynamic Properties	593
A.A. Sargsyan, R.A. Mnatsakanyan, T.V. Grigoryan, A.A. Kazaryan, A.A. Petrosyan, V.V. Harutyunyan, A.O. Badalyan, N.R. Aghamalyan, V.V. Baghramyan. Microwave-Assisted Synthesis of SiO ₂ /ZnO Photocatalyst with Core-Shell Structure ..	601
Ya.A. Eliovich, V.R. Kocharyan, A.E. Blagov, A.V. Targonsky, V.A. Korzhov, A.E. Movsisyan, A.V. Shahverdyan, A.G. Mkrtchyan, M.V. Kovalchuk, S.N. Noreyan. Possibilities of Creating X-Ray Acoustic Elements from Biphthalate Family Crystals with Thickness Vibrations.....	612
G.Y. Ayvazyan. Hierarchical Antireflective Surface of Silicon Substrates for Tandem Solar Cells.....	619
A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, A.S. Kuzanyan. Platinum-Containing Detection Pixel of a Thermoelectric Single-Photon Detector	626
M.V. Markosyan, A.H. Avetisyan, A.K. Aharonyan, H.G. Martirosyan, E.A. Harutyunyan, G.Z. Sughray, R.A. Davtyan. Application of a Drone in the On-Site Antenna Measurements of the Radar of an Ultrashort Meter Waveband	635
M.A. Parsadanyan, M.A. Shahinyan, S.V. Grigoryan, M.S. Mikaelyan, G.H. Poghosyan, V.P. Kalantaryan, P.O. Varedevanyan. Interaction of Serum Albumin with Erythrosine B under the Effect of Millimeter Range Electromagnetic Waves	643
L.A. Haroutunyan. Improving the Quality of X-Ray Images Formed by a Diffraction Lens from a Two-Block Crystalline System	652
A.A. Manukyan. Vacuum Window for IBA C18 Twin Cyclotron's Beamline	660

СОДЕРЖАНИЕ

А.Р. Балабекян, Г.О. Оганесян, С.В. Гагинян, Г. М. Айвазян, Г.Г. Зограбян, В.О. Хачатрян, Г.С. Вартанян, А. Т. Маргарян. Экспериментальная установка на основе LPMWPC и SSD детекторов для регистрации и идентификации альфа-частиц и осколков деления.....	503
А.Ю. Алексанян, С.М. Амирханян, А.Ж. Аперян, Г.Р. Гулканян, Т.В. Котанджян, М.А. Левонян, В.С. Погосов, Л.А. Погосян, А.С. Сааков, А.А. Шагинян. Сравнение результатов гамма-активационного анализа и инструментального нейтронного активационного анализа геологических образцов	509
Л.Р. Ваградян. К вопросу модернизации линейного ускорителя электронов ЛУЭ-75 НИЛА (ЕрФИ).....	518
А.А. Саарян, Д.А. Симонян, А.Г. Микаелян, А.А. Ванциян. Спиральные вакуумные токи квантового скалярного поля в моделях с нетривиальной топологией пространства....	529
М.К. Балин. Векторные нестационарные электромагнитные дифракционные поля и поля зарядов в средах.....	539
А.Ж. Мурадян. Абсорбционный атомный интерферометр	547
Ю.О. Аветисян, А.О. Макарян. Генерация узкополосного терагерцового импульса в кристалле ниобата лития с помощью фазовой маски	555
В.С. Аракелян. Фотоиндукционные локальные колебания решетки в кристалле рубина при оптической накачке состояния 2T_1	564
А.В. Еганин, Н.Э. Коканян, Э.П. Коканян. Поглощение гиперзвуковых волн в легированных монокристаллах ниобата лития.....	572
Т.И. Бугаева, К.Л. Ованесян, А.В. Еганин. Формирование полос люминесценции ионов Ce^{3+} в кристаллах YAG:Ce	576
Г.А. Шахатуни. Исследованиеnanoструктурного сенсора $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ методом импедансной спектроскопии	585
М.А. Мкртчян, Е.Ш. Мамасахлисов, А.А. Саркисян. Парно-взаимодействующий газ тяжелых дырок в сильно-вытянутой эллипсоидальной квантовой точке: термодинамические свойства	593
А.А. Саргсян, Р.А. Мнацаканян, Т.В. Григорян, А.А. Казарян, А.А. Петросян, В.В. Арутюнян, А.О. Бадалян, Н.Р. Агамалиян, В.В. Баграмян. Микроволновый синтез фотокатализатора SiO_2/ZnO со структурой ядро-оболочка	601
Я.А. Элиович, В.Р. Kocharyan, A.E. Blagov, A.B. Tarhonskii, V.A. Korzhov, A.E. Movsisyan, A.B. Shahverdyan, S.N. Norayn, A.G. Mkrtychyan, M.V. Kovальчук. Возможности создания рентгеноакустических элементов из кристаллов семейства бифталатов с толщинными колебаниями	612
Г.Е. Айвазян. Иерархическая антиотражающая поверхность кремниевых подложек для tandemных солнечных элементов.....	619
А.А. Кузанян, В.Р. Никогосян, А.С. Кузанян. Платиносодержащий детектирующий элемент термоэлектрического однофотонного детектора.....	626
М.В. Маркосян, В.Г. Аветисян, А.К. Агаронян, А.Г. Martirosyan, Э.А. Арутюнян, Г.З. Суян, Р.А. Давтян. Применение дрона в облетном методе антенных измерений радаров ультракоротких волн метрового диапазона.....	635
М.А. Парсадянян, М.А. Шагинян, С.В. Григорян, М.С. Микаелян Г.А. Погосян, В.П. Калантарян, П.О. Варdevanyan. Взаимодействие сывороточного альбумина с эритрозином В под воздействием электромагнитных волн миллиметрового диапазона....	643
Л.А. Арутюнян. Повышение качества рентгеновских изображений, формируемых дифракционной линзой из двухблочной кристаллической системы.....	652
А.А. Манукян. Вакуумное окно для пучков провода циклотрона IBA C18 twin	660

Заказ № 1286

Тираж 150. Цена договорная.

Подписано к печати 10.01.2024. Печ. л. 10.5

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

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.503–508 (2023)

УДК 539.1.075

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-503

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА НА ОСНОВЕ LPMWPC И SSD ДЕТЕКТОРОВ ДЛЯ РЕГИСТРАЦИИ И ИДЕНТИФИКАЦИИ АЛЬФА-ЧАСТИЦ И ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ

А.Р. БАЛАБЕКЯН^{1*}, Г.О. ОГАНЕСЯН¹, С.В. ГАГИНЯН¹, Г. М. АЙВАЗЯН²,
Г.Г. ЗОГРАБЯН², В.О. ХАЧАТРЯН², Г.С. ВАРТАНЯН², А. Т. МАРГАРЯН²

¹Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

²Национальная научная лаборатория им. А.И. Алиханяна, Ереван, Армения

*e-mail: balabekyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 1 ноября 2023 г.)

В статье описана экспериментальная установка, представляющая собой камеру, наполненную гексаном под давлением 3 Торр, и содержащую многопроволочные пропорциональные камеры (LPMWPC) и кремниевый полупроводниковый детектор (SSD) для исследования редких процессов тройного деления тяжелых ядер. С помощью этой установки зарегистрированы альфа-частицы, испускаемые при распаде радиоактивного изотопа ^{226}Ra . Экспериментальная установка имеет энергетическое разрешение $\leq 5\%$ и позволяет регистрировать энергетические потери альфа-частиц.

1. Введение

На основе жидкокапельной модели Present в 1941 г. предсказал [1], что для тяжелых радиоактивных ядер разделение на три заряженных сегмента становится динамически возможным. Позднее было показано, что расщепление на четыре и более фрагментов энергетически более выгодно, чем двойное расщепление. Экспериментальные наблюдения показали возможность реализации схем тройного/четвертного деления, которые можно сгруппировать как [2]: тройное деление, при котором третий фрагмент представляет собой дальнопроявленную альфа-частицу; тройное деление, третий фрагмент которого представляет собой заряженную частицу малой массы; распад на три заряженных фрагмента примерно одинаковой массы; многократное деление, при котором испускаются четыре и более заряженных частицы.

Когда радиоактивное ядро распадается на три и более фрагментов, выделяется больше энергии, но соотношение вероятностей тройного деления к двойному очень мало. Тройное деление ядра определяется как деление ядра на три осколка, массовый диапазон которых с одной стороны ограничен двойным делением ядра, при котором нейтрон выступает в роли третьего частицы, а с другой стороны, рождением осколков одинаковой массы. Последний процесс, который изучен теоретически, но еще не зафиксирован экспериментально, называется истинным тройным делением. Между этими двумя предельными случаями лежит

тройное деление, при котором в виде осколка образуется заряженная легкая частица ЗЛЧ (α -частица). Это крайне асимметричное тройное деление является конкурентным процессом бинарного деления и наблюдается при спонтанном и вынужденном тройном делении. Описанные процессы объясняются в рамках различных теоретических моделей, таких как феноменологическая [3, 4], динамическая и статистическая [5, 6], трехфрагментная (кластерная) модель [7, 8].

Феноменологическая модель качественно объясняет квазимолекулярную стадию процесса деления легких частиц. Эта модель выведена из модели жидкой капли в предположении, что выровненная конфигурация с вылетающей частицей между легким и тяжелым фрагментом получается путем непрерывного увеличения расстояния разделения, в то время как радиусы тяжелого фрагмента и легкой частицы сохраняются постоянными. В динамической и статистической модели легкая частица генерируется статистически в результате внезапного разрыва шейки. Статистически генерируемые частицы, находящиеся между основными фрагментами и на достаточном расстоянии от оси разрыва, могут не быть реабсорбированы ни одним из втягивающихся участков шейки, а могут оказаться за пределами кулоновского барьера постразрывной конфигурации и ускоряться прочь друг от друга после разрыва. Трехкластерная модель основана на динамической или квантово-механической теории фрагментации.

Регистрация энергетических спектров α -частиц, образующих в процессе тройного деления, позволит проверить теоретические модели. Энергетические спектры α -частиц, испускаемых при тройном делении разных ядер-мишеней, варьируются от 6 до 40 МэВ [2]. Энергия большинства таких частиц составляет 16 МэВ [2]. Экспериментальные результаты показывают, что фрагменты тройного расщепления обусловлены сферическими или деформированными замкнутыми оболочками, поэтому изучение этого экзотического режима распада также даст информацию о структуре ядра.

Целью настоящей работы является проверка характеристик экспериментальной установки на основе многопроволочной пропорциональной камеры и полупроводникового детектора. Эту установку планируется использовать для регистрации α -частиц и тяжелых фрагментов, образованных при двойном и тройном делении ядер.

2. Экспериментальная установка

Экспериментальная установка состоит из многопроволочных пропорциональных камер (LPMWPC) и кремниевого полупроводникового детектора (SSD), которые установлены в объеме, заполненном газообразным гексаном (C_6H_{14}) под низким давлением. Многопроволочные пропорциональные камеры позволяют регистрировать как α -частицы, так и продукты деления тяжелых ядер. На рис.1 приведена схема экспериментальной установки.

На расстоянии 25 см друг от друга расположены две многопроволочные пропорциональные камеры (LPMWPC1 и LPMWPC2), кремниевый полупроводниковый детектор (SSD) расположен за второй LPMWPC2 камерой. Выбор LPMWPC обусловлен тем, что эти камеры имеют как хорошее временное разрешение (~200 пс для осколков деления и меньше 1 нс для α -частиц), так и малую пролетную толщину (малое количество вещества на пути частиц).

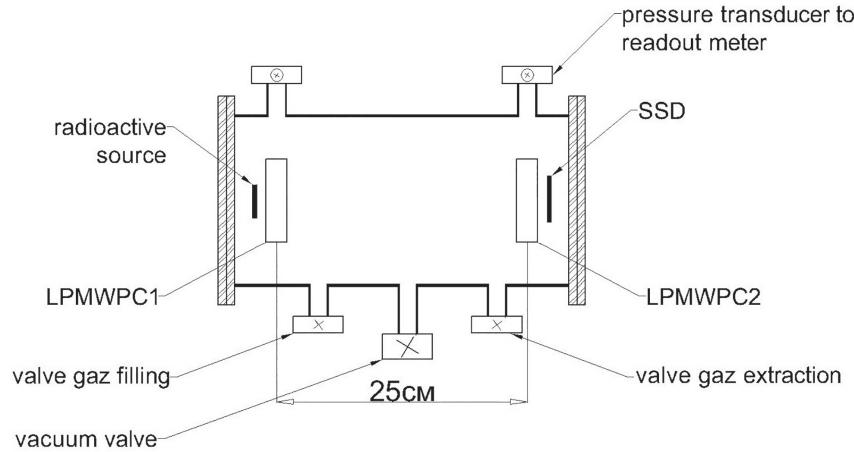


Рис.1. Схема экспериментальной установки.

Полупроводниковый детектор используется для определения полной энергии частиц и имеет энергетическое разрешение порядка 1.5%. Разъемы Lemo, закрепленные на стенках вакуумной камеры, обеспечивают доступ к электронике вне вакуумной камеры. Быстрые сверхмалошумящие усилители для усиления наносекундных сигналов с анодных проводов и твердотельных накопителей установлены вне вакуумной камеры. Газ гексана служит ионизирующей средой при работе LPMWPC. При измерениях давление составляло 3 Торр. На рис.2 приведены схематический и общий вид многопроволочного пропорционального детектора LPMWPC. Типичные потенциалы для LPMWPC: напряжение анода равно +300 В, катода 0, и напряжение защитного слоя равно -300 В, что соответствует двухступенчатым режимам работы [9]. В этом режиме LPMWPC детектирует одновременно осколки деления и альфа-частицы [10].

На рис.3 приведена форма сигнала от осциллографа, полученная от многопроволочной пропорциональной камеры.

На рис.4 приведена блок-схема электроники и сбора данных. Сбор данных проводилась при помощи систем КАМАК GPIB-ADC (General Purpose Interface Bus) [11].

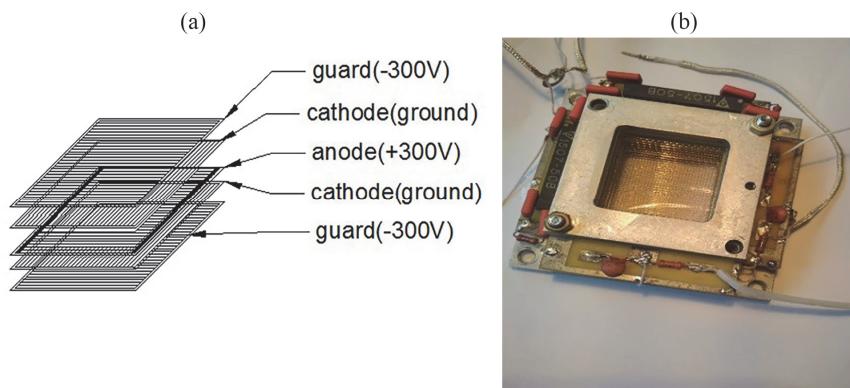


Рис.2. Схематический вид многопроволочной пропорциональной камеры (LPMWPC) (а) и ее общий вид (б).

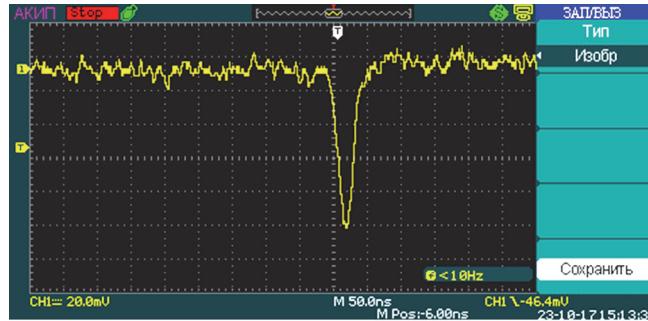


Рис.3. Форма сигнала от LPMWPC.

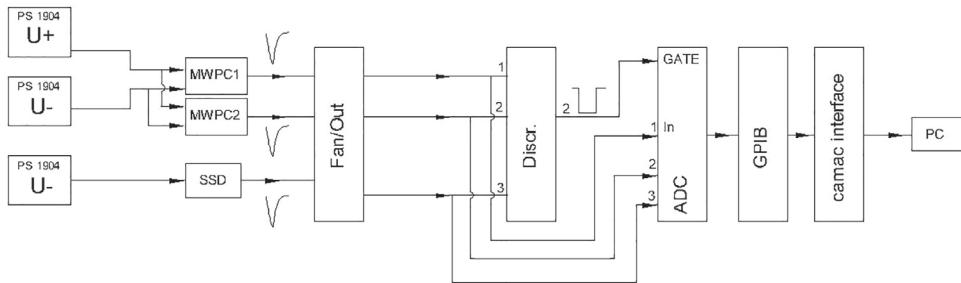


Рис.4. Блок-схема электроники и сбора данных.

3. Результаты и обсуждение

Активный источник ^{226}Ra был помещен внутри камеры. В результате распадов изотопа ^{226}Ra и его дочерних ядер $^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{222}\text{Rn} \rightarrow ^{218}\text{Po} \rightarrow ^{214}\text{Pb}$ испускаются α -частицы с четырьмя различными энергиями $E_\alpha = 4.78; 5.4; 6.02 и 7.68 МэВ. Результаты измерения энергетического спектра при помощи SSD приведены на рис.5а. Как можно заметить, энергии альфа-частиц $E_\alpha = 4.78; 5.4; 6.02 и 7.68 МэВ хорошо разделяются и аппроксимируются функцией Гаусса. Энергетическое разрешение SSD в этих условиях составляет $\leq 5\%$. Линейность зависимости энергии от номера канала анализатора сохраняется и можно представить формулой $E = 1.3521 + 0.0079 \cdot N_{\text{chanell}}$ (рис.5б и табл.1). Таким образом, экспериментальная установка при использовании газа (C_6H_{14}) с давлением 3 Торр существенно не искажает энергетическое разрешение зарегистрированных с помощью SSD альфа-частиц.$$

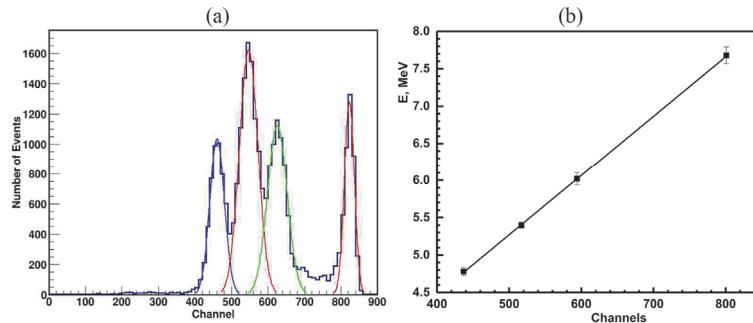


Рис.5. (а) Энергетический спектр α -частиц. (б) Зависимость энергии α -частиц от канала анализатора, где точки – экспериментальные значения, сплошная кривая – линейная аппроксимация.

Табл.1. Цифровые значения энергетического спектра α -частиц ^{226}Ra

Канал	Счет	Энергия, МэВ
436.914 ± 0.708	1209.651	4.78 ± 0.06
517.055 ± 1.091	1841.233	5.4 ± 0.04
594.024 ± 1.111	1393.164	6.02 ± 0.08
800.968 ± 1.370	1492.428	7.68 ± 0.11

На основе измерений построена зависимость удельных потерь энергии (dE/dx) от начальной энергии α -частиц (рис.6) в LPMWPC1. Зависимость (dE/dx) от начальной энергии альфа-частиц также рассчитана теоретически с использованием кода SRIM (The Stopping and Range of Ions in Matter) [11]. Результаты расчетов SRIM вместе с экспериментальными данными представлены на рис.6. Значения dE/dx для энергии 7.68 МэВ принято за единицу, а остальные значения рассчитаны относительно указанного. Как видно из рисунка, экспериментальные значения лежат ниже расчетных значений. Это связано с тем, что при регистрации энергии α -частиц происходит потеря энергий из-за образования дельта электронов большой энергии, которые вылетают из чувствительного объема LPMWPC.

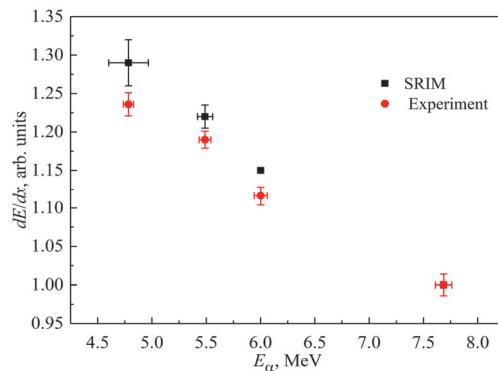


Рис.6. Зависимость (dE/dx) от начальной энергии α -частицы. Точки – экспериментальные данные, квадраты – рассчитанные по коду SRIM данные.

Согласно модельным представлениям [2], энергетический спектр α -частиц, образованных в процессе деления, варьирует от 7 до 40 МэВ, максимум распределения приходится на 16 МэВ. Как известно, при α -распаде изотопов излучаются частицы с определенной дискретной энергией (от 4 до 9 МэВ). Разделение по энергиям позволит отличить α -частицы спонтанного распада от α -частиц, образованных в процессе тройного деления.

4. Заключение

При помощи новой экспериментальной установки, состоящей из многопропорциональных пропорциональных камер и полупроводникового детектора, зарегистрированы α -частицы, испускаемые радиоактивным изотопом ^{226}Ra и продуктами его распада ($E_\alpha = 4.78; 5.4; 6.02$ и 7.68 МэВ). Хорошее энергетическое разрешение установки ($\leq 5\%$) позволит отличить α -частицы спонтанного распада от α -частиц, образованных в процессе тройного деления. Эта установка также

дает возможность регистрировать тяжелые фрагменты деления. Таким образом, состоящая из LPMWPC и SSD установка является хорошим инструментом для изучения как двойного, так и тройного деления, при котором третий фрагмент представляет собой альфа-частицу с высокой энергией.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по науке РА в рамках научного проекта № 21Т-1С164.

ЛИТЕРАТУРА

1. **R.D. Present.** Phys. Rev., **59**, 466 (1941).
2. **M. Balasubramaniam.** Ternary Fission J. Chennai Academy of Sciences, **1**, 29 (2019).
3. **D.N. Poenaru, B. Dobrescu, W. Greiner, J.H. Hamilton, A.V. Ramayya.** J. Phys. G: Nucl. Part. Phys., **26**, L97 (2000).
4. **A. Florescu, A. Sandulescu, D.S. Delion, J.H. Hamilton, A.V. Ramayya, W. Greiner.** Phys. Rev. C, **61**, 051602(R) (2000).
5. **M. Balasubramaniam, C. Karthikraj, N. Arunachalam, S. Selvaraj.** Phys. Rev. C, **90**, 054611 (2014).
6. **K.R. Vijayaraghavan, M. Balasubramaniam, W. von Oertzen.** Phys. Rev. C, **91**, 044616 (2015).
7. **R.K. Gupta.** Proceedings of the Vth International Conference on Nuclear Reaction Mechanisms, Varenna, Italy, 1988, p. 416; **S.S. Malik, R.K. Gupta.** Phys. Rev. C, **39**, 1992 (1989).
8. **R.K. Gupta.** Heavy Elements and Related New Phenomena, W. Greiner, R.K. Gupta (Eds), World Scientific, Singapore, vol. II, p. 730 (1999).
9. **A. Breskin, G. Charpak, S. Majewski.** Nucl. Instr. and Meth., **220**, 349 (1984).
10. **A. Margaryan, J.O. Adler, J. Brudvik, N. Grigoryan, K. Fissum, K. Hansen, L. Isaksen, S. Knyazyan, M. Lundin, G. Marikyan, B. Nilsson, L. Parlakyan, B. Schroder, H. Vardanyan, S. Zhamkochyan.** Armenian Journal of Physics, **3**, 282 (2010).
11. **F.J. Naivar.** CAMAC to GPIB Interface, in IEEE Transactions on Nuclear Science, **25**, 515 (1978).
12. **J.F. Ziegler, M.D. Ziegler, J.P. Biersack.** NIM B, **268**, 11; 1818 (2010).

EXPERIMENTAL INSTALLATION BASED ON LPMWPC AND SSD DETECTORS FOR REGISTRATION AND IDENTIFICATION OF ALPHA PARTICLES AND FISSION FRAGMENTS

A.R. BALABEKYAN, G.H. HOVHANNISYAN, S.V. GAGINYAN, G.M. AYVAZYAN,
H.G. ZOHRABYAN, V.H. KHACHATRYAN, H.S. VARDANYAN, A.T. MARGARYAN

The article describes a new detector, which is a volume filled with hexane at low pressure (3 Torr), and containing multi-wire proportional chambers and a silicon semiconductor detector. Using this setup, alpha particles emitted during the decay of the radioactive isotope ^{226}Ra were detected. The device has an energy resolution $\leq 5\%$ and allows measuring the ionization energy losses of alpha particles as well. Thus, the LPMWPC and SSD based experimental setup is a good tool for studying both binary and ternary fission of heavy nuclei, in which the third fragment is a high-energy alpha particle.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.509–517 (2023)

УДК 539.172

DOI: 10.54503/0002-3035-2023-58.4-509

СРАВНЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ГАММА-АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА И ИНСТРУМЕНТАЛЬНОГО НЕЙТРОННОГО АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА ГЕОЛОГИЧЕСКИХ ОБРАЗЦОВ

А.Ю. АЛЕКСАНЯН^{1*}, С.М. АМИРХАНЯН¹, А.Ж. АПЕРЯН²,
Г.Р. ГУЛКАНЯН¹, Т.В. КОТАНДЖЯН¹, М.А. ЛЕВОНЯН¹,
В.С. ПОГОСОВ¹, Л.А. ПОГОСЯН¹, А.С. СААКОВ², А.А. ШАГИНЯН¹

¹Национальная научная лаборатория им. А.И. Алиханяна, Ереван, Армения

²Институт геологических наук Национальной академии наук Армении,
Ереван, Армения

*e-mail: andramik@mail.yerphi.am

(Поступила в редакцию 16 октября 2023 г.)

На линейном ускорителе электронов Национальной научной лаборатории им. Алиханяна впервые в Армении осуществлен гамма-активационный анализ геологических образцов обсидиана с использованием пучков тормозных фотонов. Показано, что результаты анализа по определению содержания ряда химических элементов в образце обсидиана сопоставимы с результатами инструментального нейтронного активационного анализа (ИНАА) того же образца, проведенного в Центре Ареометрии Майнхайма, Германия, после облучения нейтронами в специализированном ядерном реакторе TRIGA в Институте ядерной химии Университета Майнца. Показано также, что гамма-активационный анализ позволяет определить содержание ряда элементов, для которых применение ИНАА невозможно или затруднено.

1. Введение

Одним из наиболее распространенных методов определения содержания химических элементов в различных геологических образцах является метод инструментального нейтронного активационного анализа (ИНАА) с использованием пучков нейтронов из ядерных реакторов. При облучении нейтронами специально изготовленных мишней из исследуемого образца в результате реакции радиационного захвата (n, γ) на присутствующих в мишени изотопах искомого элемента образуются дочерние изотопы данного элемента. Если среди последних присутствуют радиоизотопы с подходящим (не слишком коротким и не слишком длинным) временем полураспада $T_{1/2}$, то их можно надежно идентифицировать путем регистрации характерного γ -излучения, сопровождающего их распад и обладающего достаточной интенсивностью. Если заранее известен поток нейтронов и взвешенное по их энергетическому спектру сечение σ_w реакции (n, γ), то по измеренной наведенной активности характерного γ -излучения можно определить количество присутствующих в мишени ядер родительского изотопа и тем самым – зная относительную распространенность данного изотопа – количество присутствующих в мишени ядер искомого химического элемента. В тех

случаях, когда поток нейтронов и усредненное сечение σ_w не известны с достаточной точностью, применяются ряд реперных мишеней (с заранее известным содержанием искомого элемента), которые облучаются одновременно с основной мишенью на том же пучке нейтронов. Из сравнения наведенных активностей основной и реперных мишеней определяется содержание искомого элемента в основной мишини.

Важно отметить, что для ряда химических элементов метод ИНАА неприменим в силу того, что не удовлетворяются упомянутые выше требования относительно периода полураспада и/или интенсивности характерного γ -излучения дочернего радиоизотопа. В таких случаях полезным может оказаться другой способ активационного анализа – гамма-активационный анализ (ГАА) с использованием пучков гамма-лучей вместо нейтронных пучков. Такую возможность предоставляет действующий в ННЛА (ЕрФИ) линейный ускоритель электронов (ЛУЭ-75) на энергию до 75 МэВ [1].

Целью настоящей работы является практическое тестирование метода ГАА с использованием тормозного излучения ускоренных на ЛУЭ-75 электронов. Для тестирования использовался образец обсидиана (с условным названием «A2»), отобранный из местности Артени в Арагацском вулканическом регионе Армении, который задолго до выполненного в настоящей работе ГАА был подвергнут ИНАА [2, 3] (результаты которого оставались для авторов данной работы закрытыми вплоть до ее завершения). Как будет показано ниже, результаты обоих методов в целом сопоставимы, а для некоторых элементов дополняют друг друга.

2. Экспериментальная процедура

2.1. Мишенная система и ее облучение

Для ГАА использовались тормозные фотоны, образованные ускоренными на ЛУЭ-75 электронами со средней энергией $E_e = 20.8$ МэВ и разбросом по энергии примерно 2.5%. Выведенный из ускорителя пучок электронов отклонялся магнитом и, проходя через стальной коллиматор с внутренним диаметром 14 и длиной 32 мм, направлялся на мишенную систему. Последняя представляла собой стопку, составленную из вольфрамового радиатора для генерации тормозных фотонов, следующих за ним алюминиевого поглотителя пучка электронов и ряда мишеней, которые подвергаются облучению тормозными фотонами. Продолжительность облучения составила полтора часа. Вольфрамовый радиатор имел квадратный профиль с поперечными размерами 20×20 мм² и толщиной 2 мм, алюминиевый поглотитель – цилиндрическую форму с диаметром 20 и толщиной 30 мм. Помимо изучаемого образца обсидиана (с массой $M_{\text{obs}} = 0.72$ г, дискообразной формы с диаметром 12 и толщиной 3 мм), в стопку входили также тонкие реперные миши (с массой до нескольких десятков мг) с известным содержанием данного химического элемента (в том числе – цинк, ниобий, молибден, свинец), а также вперемежку с ними тонкие мониторные миши из естественной меди (с толщиной 25 мкм). Содержание примесей в реперных и мониторных мишиях не превышает 1–2%.

Измерение выхода Y_m мониторной реакции $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ осуществлялось при помощи γ -линии $E_\gamma = 1345.77$ кэВ, сопровождающей электронный захват

дочерним ядром ^{64}Cu . Для функции возбуждения $\sigma_m(E_\gamma)$ мониторной реакции $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$ имеются экспериментальные данные практически во всей области энергий E_γ , где $\sigma_m(E_\gamma)$ достаточно значимо [4, 5]. Измеренное значение выхода Y_m (в данной работе определяемое как количество ядер ^{64}Cu , образовавшихся за секунду облучения мишени) позволяет определить средний ток I_e первичного пучка электронов за время облучения, воспользовавшись соотношением [6]

$$Y_m = I_e v_m \sigma_{m,W}, \quad (1)$$

в котором $\sigma_{m,W}$ – сечение, взвешенное по спектру $W_m(E_\gamma, E_e)$ падающих на мониторную мишень тормозных фотонов:

$$\sigma_{m,W} = \int \sigma_m(E_\gamma) W_m(E_\gamma, E_e) dE_\gamma. \quad (2)$$

Здесь интегрирование ведется от пороговой энергии E_{th} данной (γ, n) реакции до максимального значения энергии тормозных фотонов; v_m – количество ядер ^{65}Cu на единичную площадь медной мишени:

$$v_m = \frac{f_m M_m N_A}{S_m A_m}, \quad (3)$$

где S_m – площадь облучаемой поверхности мишени, M_m – ее масса, A_m – атомный вес меди, f_m – доля изотопа ^{65}Cu в меди и N_A – число Авогадро.

Спектр тормозных фотонов вычислялся с использованием программного пакета GEANT4 (версия 10.4) [7]. Кроме основного вклада в спектр от вольфрамового радиатора учитывался также небольшой вклад от тормозных фотонов, образованных в коллиматоре и алюминиевом поглотителе (см. подробности в работах [6, 8]). В расчетах учитывался энергетический разброс пучка электронов. На рис.1 приведен результирующий спектр на одной из медных мишеней, расположенной в стопке мишеней на расстоянии 3 мм перед обсидиановым образцом. Аналогичным образом рассчитывались спектры тормозных фотонов, падающих на другие мишени.

2.2. Гамма-спектроскопические измерения

Примерно через полусуток после облучения мишени переносились в низкофоновую подземную лабораторию НИЛА [6, 9], расположенную в Аванском соляном руднике на глубине 650 метров водного эквивалента. Гамма-

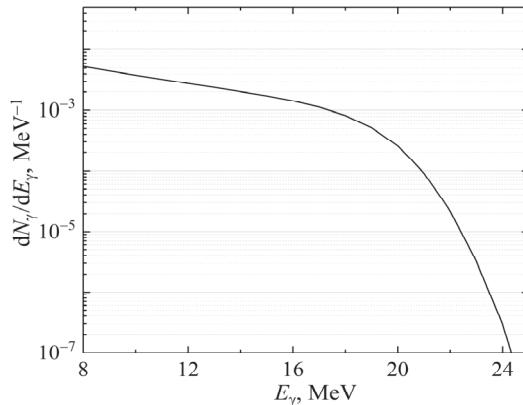


Рис.1. Спектр тормозных фотонов (на один первичный электрон) на одной из медных мишеней.

спектроскопические измерения проводились с помощью экспериментальной установки на основе германиевого детектора HPGe GCD-20180. Чувствительный объём кристалла германия составляет 101.2 см^3 . Разрешение детектора при 1.33 МэВ равно 1.8 кэВ. Детектор окружен защитой из радиационно-чистых свинца и меди для подавления влияния внешнего фона. Для предотвращения попадания радона в установку она окружена полиэтиленовым мешком, который продувается азотом. Подробное описание германиевого детектора и методики его калибровки можно найти в работе [6].

На рис.2 в качестве примера приведен фрагмент измеренного спектра γ -квантов от обсидиановой мишени. Как видно, хорошо выделяются характерные γ -линии от распада дочерних радиоизотопов ^{22}Na , ^{47}Ca , ^{54}Mn , ^{84}Rb , ^{88}Y , ^{89}Zr , ^{92m}Nb и ^{132}Cs , а также содержащегося в обсидиане и в конструктивных материалах самого гамма-спектрометра долгоживущего радиоизотопа ^{40}K (с периодом полу-распада $T_{1/2} = 1.277 \times 10^9$ лет).

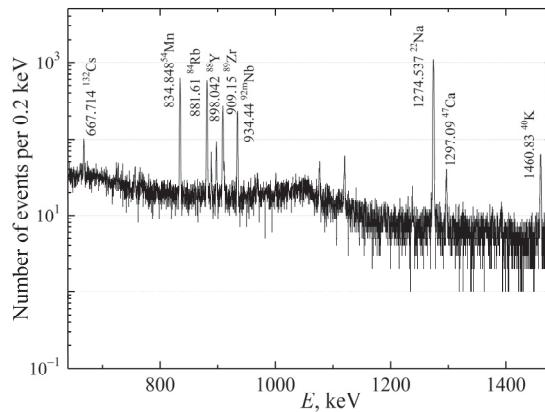


Рис.2. γ -спектр от обсидиановой мишени в интервале энергий от $E_\gamma = 640$ до $E_\gamma = 1480$ кэВ.

В табл.1 приведен перечень радиоизотопов, обнаруженных в гамма-спектроподобном анализе обсидиановой мишени, их материнских изотопов, а также некоторые характеризующие их ядерные данные. Достоверность идентификации радиоизотопов проверялась путем кратных измерений и оценки их периодов полураспада $T_{1/2}$, которые в пределах ошибок оказались сопоставимыми с приведенными в табл.1 значениями. При определении выхода Y радиоизотопа бралось усредненное по кратным измерениям значение.

В табл.1 включены только одонуклонные реакции (γ, n) и (γ, p) . Вклад возможных двухнуклонных реакций (γ, pn) и (γ, nn) в образование перечисленных в табл.1 дочерних радионуклидов ничтожно мал, так как при максимальной энергии тормозных фотонов $E_\gamma^{\max} = E_e = 20.8$ МэВ взвешенные сечения σ_W этих реакций очень малы [10] из-за их высоких энергетических порогов E_{th} (от 15 до 22 МэВ). Вклад возможных (n, γ) реакций, вызванных фоновыми нейтронами, в условиях нашего эксперимента также ожидается незначительным, так как в гамма-спектроподобном анализе обсидиановой мишени не было обнаружено значимых сигналов от дочерних радионуклидов (как, например, ^{76}As , ^{95}Zr , ^{131}Ba , ^{181}Hf , ^{182}Ta , ^{239}Np), которые могли бы образоваться при радиационном захвате нейтрона, но не могут образоваться в фотонейтронной реакции (γ, n) .

Табл.1. Ядерные данные для обнаруженных элементов в образце обсидиана «А2»

Материнский изотоп и его относительная распространенность	Дочерний радиоизотоп и его период полураспада $T_{1/2}$	Энергия измеренных γ -квантов, кэВ
^{23}Na (100%)	^{22}Na (2.602 лет)	1274.5
^{48}Ca (0.187%)	^{47}Ca (4.536 дней)	1297.1
^{45}Sc (100%)	^{44}Sc (58.61 дней)	271.2
^{47}Ti (7.44%)	^{46}Sc (83.79 дней)	889.3
^{52}Cr (83.79%)	^{51}Cr (27.7 дней)	320.1
^{55}Mn (100%)	^{54}Mn (312.2 дней)	834.8
^{59}Co (100%)	^{58}Co (70.86 дней)	810.8
^{66}Zn (27.9%)	^{65}Zn (243.9 дней)	1115.5
^{75}As (100%)	^{74}As (17.77 дней)	595.8
^{85}Rb (72.2%)	^{84}Rb (32.82 дней)	881.6
^{88}Sr (27.8%)	^{87m}Sr (2.815 часов)	388.5
^{89}Y (100%)	^{88}Y (106.6 дней)	898.0
^{90}Zr (51.5%)	^{89}Zr (78.41 часов)	909.2
^{93}Nb (100%)	^{92m}Nb (10.15 дней)	934.4
^{100}Mo (9.63%)	^{99}Mo (65.98 часов)	140.5
^{123}Sb (42.8%)	^{122}Sb (2.72 дней)	564.2
^{133}Cs (100%)	^{132}Cs (6.479 дней)	667.7
^{134}Ba (2.42%)	^{133m}Ba (38.93 часов)	375.9
^{136}Ba (7.85%)	^{135m}Ba (28.7 часов)	268.2
^{142}Ce (11.114%)	^{141}Ce (32.5 дней)	145.4
^{204}Pb (1.4%)	^{203}Pb (51.92 часов)	279.2
^{232}Th (100%)	^{231}Th (25.57 часов)	84.2
^{238}U (99.27%)	^{237}U (6.75 дней)	208.0

3. Результаты и обсуждение

При определении элементного содержания образца обсидиана мы условно разделили представленные в табл.1 элементы на две группы. В первую группу входят элементы Zn, Nb, Mo и Pb, которые в облучаемой стопке представлены отдельными реперными мишениями. Воспользовавшись выражениями, аналогичными (1)–(3), можно получить следующее соотношение между искомой массой M данного элемента в обсидиане и заранее известной массой M_R соответствующего элемента в реперной мишени:

$$\frac{M}{M_R} = \frac{YS\sigma_{R,W}}{Y_R S_R \sigma_W}, \quad (4)$$

где Y и Y_R – измеренные выходы искомого дочернего радиоизотопа, соответственно, из обсидиановой и реперной мишени, S и S_R – площади облученной поверхности этих мишеней, σ_W и $\sigma_{R,W}$ – сечения, взвешенные, соответственно, по спектру $W(E_\gamma, E_e)$ и $W_R(E_\gamma, E_e)$ тормозных фотонов, падающих на обсидиановую и реперную мишени. В выражении (4) отношение $\sigma_{R,W}/\sigma_W$ может быть практически заменено на отношение

$$\frac{\sigma_{R,W}}{\sigma_W} \approx \frac{\int W_R(E_\gamma, E_e) dE_\gamma}{\int W(E_\gamma, E_e) dE_\gamma}, \quad (5)$$

где интеграл по спектру (рассчитываемый при помощи программного пакета GEANT4) есть не что иное, как приходящееся на один первичный электрон количество тормозных фотонов (с энергией $E_\gamma > E_{th}$), падающих на данную мишень.

Во вторую группу входят остальные элементы табл.1, по которым в облучаемой стопке отсутствуют соответствующие реперные мишени. Воспользовавшись выражениями, аналогичными (1)–(3), можно получить следующее соотношение между измеренным выходом Y искомого дочернего радиоизотопа и массой M соответствующего элемента в обсидиане:

$$M = \frac{Y}{I_e \sigma_W} \frac{S A}{f N_A}, \quad (6)$$

где взвешенное сечение σ_W вычисляется на основе имеющихся экспериментальных данных [10] по функции возбуждения $\sigma(E_\gamma)$ соответствующей (γ, n) или (γ, p) реакции.

Средний ток электронов I_e , как отмечалось выше, определяется при помощи мониторной реакции на меди; в данном эксперименте он равен $I_e = (3.81 \pm 0.23) \times 10^{12}$ сек $^{-1}$, где приведенная ошибка в основном обусловлена погрешностью в эффективности детектора HPGe. Обозначения остальных входящих в (6) величин разъяснены выше. Оцененные при помощи выражений (4)–(6) массы M искомых элементов, нормированные на массу M_{obs} обсидиановой мишени, M/M_{obs} , представлены в табл.2 (вторая колонка).

В табл.2 наши результаты по относительному содержанию элементов сравниваются с данными, полученными методом ИНAA на нейтронном реакторе. В представленных данных учтена поправка, связанная с вкладом фотоделения содержащихся в образце обсидиана ядер ^{238}U и ^{232}Th с образованием радионуклидов ^{99}Mo и ^{141}Ce , обладающих, согласно экспериментальным данным [11, 12], сравнительно высоким кумулятивным выходом η на акт деления, соответственно: $\eta_{\text{U}}(^{99}\text{Mo}) = 5.6 \times 10^{-2}$, $\eta_{\text{Th}}(^{99}\text{Mo}) = 2.1 \times 10^{-2}$, $\eta_{\text{U}}(^{141}\text{Ce}) = 4.4 \times 10^{-2}$ и $\eta_{\text{Th}}(^{141}\text{Ce}) = 7.5 \times 10^{-2}$. Используя указанные значения η и вычисленные на основе имеющихся данных [13, 14] взвешенные сечения фотоделения ядер ^{238}U и ^{232}Th , соответственно, $\sigma_W(^{238}\text{U}) = 2.6$ мб и $\sigma_W(^{232}\text{Th}) = 0.9$ мб, а также представленные в табл. 2 данные по урану и торию, можно оценить искомую поправку, которая оказалась равной, соответственно, 31% для молибдена и 7% для церия.

Отметим, что в дополнение к элементам табл.1, в табл.2 включены данные для калия, полученные без привлечения метода ГАА, используя естественную

Табл.2. Сравнение результатов ГАА и ИНАА образца обсидиана «А2». Данные для калия получены путем измерения естественной гамма-активности долгоживущего радиоизотопа ^{40}K .

Элемент	Относительное содержание элемента (мкг/г или %), измеренное методом ГАА (за исключением калия)	Относительное содержание элемента (мкг/г или %), измеренное методом ИНАА
Na (%)	2.52±0.33	3.22
K (%)	3.79±0.35	3.40
Ca (%)	0.445±0.043	Нет данных
Sc	3.2 ±0.6	2.50
Ti (%)	0.070±0.004	Нет данных
Cr	3.5 ±2.7	6.00
Mn	404±29	Нет данных
Fe (%)	0.58±0.06	0.61
Co	1.59±0.60	1.09
Zn	47.8±15.5	40.0
As	2.53 ±0.36	5.10
Rb	128±8	135
Sr	32.3±2.7	Нет данных
Y	26.3±1.9	Нет данных
Zr	72.2±5.1	73
Nb	32.7±2.1	Нет данных
Mo	6.1±1.0	Нет данных
Sb	1.0±0.3	0.16
Cs	3.57±0.24	3.64
Ba	405±48	388
La	Нет данных	24.0
Ce	48.6±6.6	40.4
Nd	Нет данных	17.0
Sm	Нет данных	3.42
Eu	Нет данных	0.369
Tb	Нет данных	0.57
Yb	Нет данных	2.44
Lu	Нет данных	0.480
Hf	Нет данных	3.45
Ta	Нет данных	1.97
Pb	16.1±2.8	Нет данных
Th	20.4±2.4	16.3
U	5.74±0.45	6.20

гамма-активность долгоживущего радиоизотопа ^{40}K , а также данные для железа, полученные в специальном эксперименте (выполненный при энергии электронов $E_e = 40$ МэВ), в котором наряду с обсидианом облучалась также и реперная мишень из естественного железа с последующим измерением гамма-активности радиоизотопа ^{52}Fe , образованного в двухнейтронной реакции $^{54}\text{Fe}(\gamma, nn)^{52}\text{Fe}$.

Как видно, результаты, полученные независимо друг от друга двумя различными методами, в целом неплохо согласуются. Исключение составляют, в основном, элементы со сравнительно низким содержанием в обсидиане, включая

мышьяк, сурьму, а также не обнаруженные методом ГАА почти все лантаноиды (от неодима до лютесция). По-видимому, необходимы дополнительные исследования для выяснения причин указанных разногласий. Выбор соответствующих режимов облучения и измерений в предстоящих исследованиях позволит нам расширить перечень анализируемых элементов. Важно подчеркнуть, что с помощью метода ГАА удается получить значимые данные по содержанию некоторых элементов (Ca, Ti, Mn, Sr, Y, Nb, Mo, Pb), относительно которых метод ИНАА оказался безрезультатным. Таким образом, методы ИНАА и ГАА в значительной степени являются взаимодополняющими.

4. Заключение

На линейном ускорителе электронов Национальной научной лаборатории им. Алиханяна впервые в Армении осуществлен гамма-активационный анализ геологических образцов, отобранных на территории Армении, с использованием пучков тормозных фотонов. Показано, что результаты анализа по определению содержания химических элементов в образце обсидиана сопоставимы с результатами нейтронного активационного анализа того же образца, проведенного на специализированном ядерном реакторе за рубежом. Показано также, что гамма-активационный анализ позволяет определить содержание ряда элементов (Ca, Ti, Mn, Sr, Y, Nb, Mo, Pb), относительно которых метод ИНАА оказался безрезультатным. Результаты настоящей работы позволяют утверждать, что действующее в настоящее время в Армении научное оборудование может обеспечить широкое применение метода активационного анализа в различных отраслях, включая геологию, горную промышленность, охрану окружающей среды, археологию, изучение культурного наследия.

Авторы выражают благодарность персоналу линейного ускорителя ННЛА (ЕрФИ) за обеспечение пучками электронов для облучения мишениной системы и Х.Б. Меликсетяну за предоставление образцы обсидиана для исследований и результатов ИНАА, выполненного в Германии.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по Науке РА в рамках научного проекта № 21APP-1E006.

ЛИТЕРАТУРА

1. A.S. Hakobyan, J. Contemp. Phys., **56**, 169 (2021).
2. M. Oddone, G. Bigazzi, Y. Keheyian, S. Meloni. J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry, **243**, 673 (2000).
3. N.R. Aghamalyan, Y.A. Kafadaryan, A.A. Manukyan, H.T. Gyulasaryan, H.A. Smbatyan, V. Szilágyi, I. Harsányi, K. Gmélings. J. Contemp. Phys., **56**, 13 (2021).
4. S.C. Fultz, R.L. Bramblett, J.T. Caldwell, R.R. Harvey. Phys. Rev., **133**, B1149 (1964).
5. V.V. Varlamov, A.I. Davydov, M.A. Makarov, V.N. Orlin, N.N. Peskov, Bulletin of the Russian Academy of Sciences. Physics, **80**, 317 (2016).
6. A.S. Hakobyan, A.Y. Aleksanyan, S.M. Amirkhanyan, H.R. Gulkanyan, T.V. Kotanjyan, V.S. Pogosov, L.A. Poghosyan. J. Contemp. Phys., **55**, 111 (2020).
7. J.Allison, K. Amako, J. Apostolakis, P. Arce, M. Asai, T. Aso, E. Bagli, A. Bagulya, S. Banerjee, G. Barrand et al. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, **835**, 186 (2016).

8. A. Aleksanyan, S.M. Amirkhanyan, H.R. Gulkanyan, T.V. Kotanjyan, V.S. Pogosov, L.A. Poghosyan. J. Contemp. Phys., **57**, 112 (2022).
9. A.A. Vasenko, I.V. Kirpichnikov, V.A. Kuznetsov, A.S. Starostin, A.G. Djanyan, V.S. Pogosov, S.P. Shachysisyan, A.G. Tamanyan. Mod. Phys. Lett., **A5**, 1299 (1990).
10. USA National Nuclear Data Center database “CSISRS and EXFOR Nuclear reaction experimental data”, <http://www.nndc.bnl.gov/exfor> (2014).
11. W. Wilke, U. Kneissl, Th. Weber, H. Stroher, L.S. Cardman, P.T. Debevec, S.D. Hoblit, R.T. Jones, A.M. Nathan. Phys. Rev. C, **42**, 2148 (1990).
12. J.T. Caldwell, E.J. Dowdy, B.L. Berman, R.A. Alvarez, P. Meyer. Phys. Rev. C, **21**, 1215 (1980).
13. H. Naik, F. Carrel, G.N. Kim, F. Laine, A. Sari, S. Normand, A. Goswami. The European Physical Journal A, **49**, 94 (2013).
14. H. Naik, G.N. Kim, R. Schwengner, K. Kim, R. John, R. Massarczyk, A. Junghans, A. Wagner, A. Goswami. The European Physical Journal A, **51**, 150 (2015).

COMPARISON OF GAMMA ACTIVATION ANALYSIS AND INSTRUMENTAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF GEOLOGICAL SAMPLES

A.Y. ALEKSANYAN, S.M. AMIRKHANYAN, A.G. APERYAN, H.R. GULKANYAN,
T.V. KOTANJYAN, M.A. LEVONYAN, V.S. POGOSOV, L.A. POGHOSYAN,
A.S. SAAKOV, A.A. SHAHINYAN

For the first time in Armenia, gamma activation analysis of geological samples of obsidian was carried out using beams of bremsstrahlung photons at the linear electron accelerator of the National Scientific Laboratory after Alikhanyan. It is shown that the results of the chemical composition of the obsidian sample are comparable with the results of instrumental neutron activation analysis (INAA) of the same sample, carried out at the Curt-Engelhom-Center for Archaeometry (Mannheim, Germany), after irradiation with neutrons in a specialized nuclear reactor TRIGA at the Institute of Nuclear Chemistry of the University Mainz. It is also shown that gamma activation analysis makes it possible to determine the content of a number of elements for which the use of INAA is impossible or difficult.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.518–528 (2023)

УДК 621.384

DOI: 10.54503/0002-3035-2023-58.4-518

К ВОПРОСУ МОДЕРНИЗАЦИИ ЛИНЕЙНОГО УСКОРИТЕЛЯ ЭЛЕКТРОНОВ ЛУЭ-75 НИЛА (ЕрФИ)

Л.Р. ВАГРАДЯН

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

e-mail: l.vahradyan@yerphi.am

(Поступила в редакцию 27 июня 2023 г.)

Кратко изложено научно-техническое состояние линейного ускорительного комплекса Национальной научной лаборатории им. А.И. Алиханяна ЛУЭ-75 после проведенных в последние годы реновационных работ. Обосновывается необходимость дальнейшей модернизации основных систем ускорителя для обеспечения его долгой научной жизни. Проведен анализ состояния отдельных систем ускорителя и приведены расчетные данные, на основании которых предлагается модернизация внедрением современной техники. Предлагается использование силовой электроники нового поколения, вакуумного оборудования с современным интерфейсом, системы термостабилизации.

1. Введение

Линейный ускоритель электронов ЛУЭ-75 Национальной научной лаборатории им. А.И. Алиханяна (НИЛА, Ереванский физический институт (ЕрФИ)) служил инжектором синхротрона АРУС. После остановки синхротрона он работает в автономном режиме и обеспечивает электронными пучками и вторичными излучениями для проведения экспериментов в области ядерной физики низких энергий.

Линейный ускоритель работает в диапазоне энергий электронов до 75 МэВ со средними токами пучка до 10 мкА. Ускоритель должен перманентно развиваться, чтобы удовлетворять растущим требованиям к параметрам пучка. Без внедрения новой техники ускоритель не может иметь долгую научную жизнь. Для улучшения качества проводимых исследований и повышения востребованности планируется модернизация линейной ускорительной установки с внедрением современной техники. Основное внимание уделяется жизненно важным системам: вакуумной технике, системам термостабилизации и охлаждения, модуляторам мощных усилительных кристаллов. Современная измерительная аппаратура позволит повысить точность и качество проводимых экспериментов.

В настоящей работе после краткого обзора научно-технического состояния линейного ускорителя электронов ЛУЭ-75 излагаются вопросы модернизации этой уникальной в Армении установки.

2. О линейном ускорителе ЛУЭ-75

Ускорительный комплекс состоит из линейного ускорителя электронов и тракта параллельной транспортировки пучка. Ускорительная структура содержит банчер (волноводный группирователь) и три идентичные ускоряющие секции, представляющие собой круглые диафрагмированные волноводы, работающие в

S-диапазоне на бегущей волне. Источником электронов служит термоэлектрический катод, помещенный в диодную пушку с оптикой Пирса. Энергия инжекции электронов в банчер 50 кэВ. В нем электроны группируются в сгустки и одновременно ускоряются до энергии 3 МэВ. Питание секций осуществляется от трех клистронных постов, построенных на базе мощных пролетных клистронов типа КИУ-12АМ. Первый клистрон работает в режиме самовозбуждения, снабжая остальные клистроны входной мощностью [1]. Часть мощности 1-го клистрона с помощью регулируемого направленного ответвителя поступает на вход волноводного группирователя. Питание ЛУЭ-75 осуществляется от 0.1%-ой стабильной трехфазной электрической сети.

ЛУЭ-75 обеспечивает ускорение электронов в диапазоне энергий 10–75 МэВ при токах в импульсе до 150–200 мА, что соответствует среднему току до 10 мкА (без коллимации) в зависимости от длительности макроимпульса и энергии; на номинальных энергиях ширина энергетического спектра (FWHM) порядка 2%. Отработанные режимы позволяют получать интенсивности от десятков до 5×10^{13} электронов в секунду.

На линейном ускорителе в последние годы были проведены некоторые работы, улучшающие его параметры. Отметим основные из них: бариево-никелевый катод был заменен металлокерамическим с относительно большим временем наработки, с большей эмиссией и менее подверженным окислению; с целью снижения уровня радиационного фона при выключенном синхротроне и влияния электрических наводок и радиопомех от работающих систем линейного ускорителя на измерительную аппаратуру в зале синхротрона был построен тракт транспортировки электронного пучка с параллельным переносом вдали от ЛУЭ; энергия пучка была доведена с 50 МэВ до проектного значения 75 МэВ [2]. Эти и другие работы расширили возможности ускорителя и, соответственно, спектр научных исследований, планируемых экспериментаторами.

Была разработана и в дальнейшем усовершенствована методика получения уникальных электронных пучков экстремально низкой интенсивности [3]. Совместно с научной группой из Лаборатории ядерных проблем Объединенного института ядерных исследований (Дубна, РФ) разработана и применена методика энергетического тестирования детекторов элементарных частиц пучками с экстремально низкой интенсивностью в несколько десятков электронов в секунду. Эта методика была использована при исследовании прототипа электромагнитного калориметра для планируемого в Фермилаб (FNAL, USA) эксперимента Mu2e. Низкоинтенсивные пучки могут быть также использованы для изучения отдельных событий, дифракционных задач, исследования излучения электронов в монокристаллах, изучения биологических эффектов ионизирующей радиации в малых дозах, исследования радиационной стойкости полупроводниковых материалов, в нанотехнологиях. Подробно параметры линейного ускорительного комплекса, включая тракт параллельного переноса, представлены в работах [2, 3].

3. Вопросы модернизации ЛУЭ-75

3.1. Модуляторы клистронов: силовая электроника

Модуляторы дают импульсы с амплитудой до 300 кВ и длительностью 2.2 мкс для питания мощных клистронов типа КИУ-12АМ. От формы

модулирующего импульса во многом зависит качество электронного пучка, в частности, ширина энергетического спектра (рис.1). В модуляторах использованы водородные импульсные тиратроны типа ТГИ1-2500/35, которые вышли из производства.

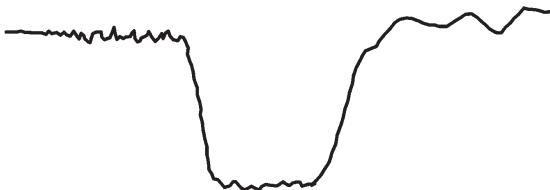


Рис.1. Типовая осциллограмма выходного импульса модулятора кластрона.

Возникла задача замены тиратронных коммутаторов на современные. При подборе типа коммутатора мы исходили из примерного соответствия технических характеристик, минимальных конструктивных и схемных изменений в модуляторах при замене, времени наработки, экономических соображений. Наиболее близкими по электрическим параметрам оказались тиратроны типа CX1525A фирмы «e2v Technologies» и тиратроны нового поколения ТГИ-типа предприятия ООО «Импульсные технологии» [4]. Установка тиратронов ТГИ-типа потребует минимальных изменений в схемах питания и охлаждения, их приобретение экономически более выгодно. Фирма предоставляет также переходники при замене ТГИ1-2500/35 на тиратроны нового поколения. При использовании новых тиратронов типа ТГИ1-5к/50 можно ограничиться двумя последовательно соединенными тиратронами в каждом модуляторе вместо трёх, используемых в настоящее время.

Металлокерамическое исполнение этих приборов более безопасно в использовании по сравнению с эксплуатируемыми ныне стеклянными тиратронами типа ТГИ1-2500/35: внутренний экран минимизирует уровень рентгеновского излучения из анодной области. В табл.1 приведены некоторые основные сравнительные характеристики тиратронов.

Табл.1. Параметры используемого тиратрона и тиратронов нового поколения

Наименование параметра	ТГИ1-2500/35	ТГИ1-5к/50	ТГИ2-3к/30
Напряжение накала, В	6.3	5.0/6.5	4.0/6.5
Ток накала, А	50–60	20–30	не более 25
Импульсный анодный ток, А	2500	2500	2500
Длительность импульса анодного тока, мкс	10	0.02–50	10
Частота импульсов анодного тока, Гц	250	200	300
Прямое и обратное напряжения, кВ	не более 35	не более 50/20	не более 30
Ресурс, час	500	не менее 3000	2000
Масса, кг	7	3.2	4

Ожидается, что использование тиаратронов нового поколения приведет к улучшению импульса: уменьшению длительности фронта, к увеличению плоской части импульса – рабочего участка, а значит, к улучшению стабильности пучка в течение импульса.

Отметим, что при применяемых на ускорителе больших напряжениях и токах замена газонаполненных тиаратронов твердотельными коммутаторами на основе IGBT транзисторов потребует серьезных конструктивных и схемотехнических изменений и более затратна из-за усложнения схемы. Имеются неясности касательно срока службы IGBT-модулей. На данном этапе их использование в качестве коммутаторов непрактично.

Имеющиеся в наличии в ННЛА мощные усилительные кlyстроны обеспечат функционирование линейного ускорителя на ближайшие годы. Однако при переходе в дальнейшем на кlyстроны нового поколения и замене модуляторов на более компактные модули, потребление электроэнергии удастся значительно снизить.

3.2. Система терmostатирования и охлаждения

Для устойчивого ускорения электронного пучка и стабильности его энергии и интенсивности требуется высокая стабильность собственной частоты ускоряющих секций, а также частоты и мощности генераторов СВЧ-колебаний с целью поддержания фазовых соотношений ускоряющих полей в диафрагмированных волноводах. Для обеспечения неизменности геометрии резонансных структур необходимо обеспечить температурную стабилизацию как ускоряющих секций, так и кlyстронных генераторов.

На ЛУЭ-75 действуют два независимых контура терmostатирования и охлаждения, построенные до 90-ых годов. Один из контуров служит для термостабилизации ускоряющих секций, другой – для кlyстронов с фокусирующими катушками и других узлов, требующих охлаждения.

Поддержание требуемой температуры в пределах $\pm 0.5^{\circ}\text{C}$ от выставленной осуществляется с помощью регулируемого нагрева подаваемой воды на входе каждой секции. Сигналы с платиновых датчиков, установленных на выходах секций, подаются на схемы управления (ШИМ-модуляция, тиристорные блоки), расположенные в пультовой комнате линейного ускорителя. С использованием программы LabView и модулей САМАС ведется мониторинг температур терmostатирующей воды ускоряющих секций и воды на входах и выходах кlyстронов. Система охлаждения мощных пролетных кlyстронов не содержит нагревательных блоков. Действующая система термостабилизации построена на элементах, снятых с производства, полупроводниковая электроника стареет, ухудшаются параметры. Требуется создание новой системы с использованием современной элементной базы, компактных высокоэффективных теплообменников.

Когда линейный ускоритель работал в качестве инжектора синхротрона, требовалось одно и то же значение энергии и тока. В настоящее время ускоритель работает в автономном режиме и выдает экспериментаторам пучки различной энергии и интенсивности в пределах, приведенных выше. При необходимости оперативной перестройки выходных параметров меняются СВЧ-мощности, поступающие в секции. Система термостабилизации обладает большой

инерционностью и физически устарела. Поэтому планируется разработать новую систему терmostатирования секций и охлаждения узлов ускорителя с применением ПИД-регулирования и модульной схемы, при которой термостабилизация каждой секции осуществляется своей автономной системой, что обеспечит автоматическое поддержание температуры секций в заданных пределах при длительных сеансах, а также оперативность и точность установления температур секций при изменении режимов линейного ускорителя.

Согласно паспортным техническим данным суммарный фазовый сдвиг на ускоряющую секцию равен 5.76 градусов. Этот сдвиг вызван систематической погрешностью в размерах ячеек секций. При изменении температуры размеры ускоряющего волновода меняются и возникает дополнительный фазовый сдвиг электронов относительно волны. В основных секциях сгустки при настройке помещаются на вершине волны, чтобы получить наибольшее ускорение. Если не стабилизировать температуру секций, то с течением времени это приведет к недобору энергии и увеличению энергетического разброса пучка электронов.

Величина уменьшения энергии при небольших изменениях фазы равна

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{(\Delta\phi)^2}{6}, \quad (1)$$

где $\Delta\phi$ – сдвиг фазы. Согласно справочнику по диафрагмированным волноводам [5],

$$\Delta\phi = -\frac{2\pi}{c\beta_{ph}} \left(1 - \frac{f}{\beta_{ph}} \frac{d\beta_{ph}}{df}\right) L \alpha_T f \Delta T, \quad (2)$$

где β_{ph} – относительная фазовая скорость волны; $f = 2.7972 \times 10^9$ Гц; $L = 4.15$ м – активная длина диафрагмированного волновода; при расчете изменения энергии пучка на выходе линейного ускорителя следует брать суммарную длину всех трех секций, $L = 3 \times 4.15$ м; α_T – температурный коэффициент линейного расширения материала волновода, для меди при 30°C (рабочая температура секции) $\alpha_T = 1.68 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$; Коэффициент дисперсности диафрагмированного волновода $f d\beta_{ph}/df$ найдем из выражения для групповой скорости β_{gr} [5]:

$$\beta_{gr} = \frac{\beta_{ph}^2}{\beta_{ph} - f \frac{d\beta_{ph}}{df}},$$

откуда

$$f \frac{d\beta_{ph}}{df} = \beta_{ph} \left(1 - \frac{\beta_{ph}}{\beta_{gr}}\right), \quad (3)$$

Подставляя в (3) данные для рассматриваемых секций $\beta_{ph} = 1$ и $\beta_{gr} = 0.033$, найдем коэффициент дисперсности $f d\beta_{ph}/df = -29.3$. Пользуясь выражениями (1) и (2), легко найти зависимость выходной энергии пучка от изменения температуры секций (рис.2).

В табл.2 приведены недоборы энергии в зависимости от изменения температуры секций при предварительной настройке ускорителя на 75 МэВ. При изменении температуры на 0.5°C средняя энергия уменьшается более чем на

Табл.2. Зависимость величины уменьшения средней энергии пучка электронов от изменения температуры при настройке на энергию 75 МэВ

$\Delta T, ^\circ\text{C}$	0	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8	0.9	1
$\Delta E, \text{МэВ}$	0	0.017	0.069	0.156	0.277	0.432	0.623	0.848	1.107	1.401	1.73

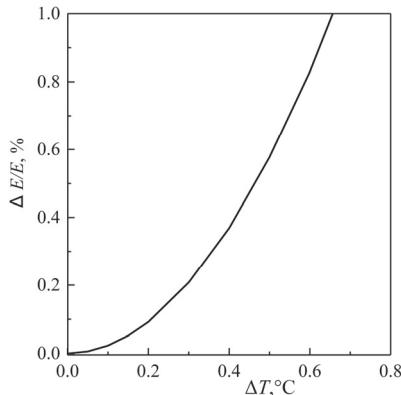


Рис.2. Зависимость относительного изменения выходной энергии пучка от изменения температуры ускоряющих секций.

0.4 МэВ, и для многих прецизионных экспериментов точность 0.5°C оказывается недостаточной. Из таблицы видно, что при стабильности температуры 0.2°C нестабильность энергии при 75 МэВ составляет около 70 кэВ или менее 0.1%. Такая точность поддержания температуры легко достижима при помощи ПИД-регулирования, которое успешно применяется на других ускорителях [6–8]. Готовые ПИД-регуляторы и управляемые тиристорные блоки различных мощностей выпускаются разными фирмами.

При выборе чиллеров, теплообменников и мощностей нагнетающих насосов требуется знание потока охлаждающей воды или разность температур на выходе и входе охлаждаемого объекта. Связь между потоком и разностью температур на концах секции определяется из выражения

$$\Delta T = \frac{\Delta P}{q\rho c}, \quad (4)$$

Здесь q , ρ , c – поток, плотность и теплоемкость воды, соответственно, ΔT – разность температур воды, ΔP – мощность СВЧ, теряемая на разогрев секции [5];

$$\Delta P = P_0[1 - \exp(-2\alpha L)], \quad (5)$$

где P_0 – мощность, поступающая на вход секции, α – коэффициент затухания высокочастотного поля, L – длина диафрагмированного волновода. Согласно паспортным данным ускоряющей секции, затухание ВЧ-мощности в секции, измеренное на рабочей частоте 2.7972 ГГц, равно 2.6 дБ (по техническим требованиям не более 3 дБ), т.е. $\alpha \approx 0.07 \text{ м}^{-1}$. Подставляя данные в формулу (5), получим, что мощность, выделяемая в стенках ускоряющего волновода равна $\Delta P = 0.45P_0$. С учетом того, что средняя мощность, подводимая ко входу секции, составляет в разных режимах от 1.5 до 2 кВт, $\Delta P = 0.7\text{--}0.9$ кВт. Согласно выражению (4), эта мощность приведет к увеличению средней температуры воды, проходящей через секцию, на величину $\Delta T = (1.67 - 2.14) \times 10^{-4}/q$ или $\Delta T = (10 - 12.9)/q$, если поток измерять в л/мин.

Измеренный поток воды, перекачиваемый через рубашку каждой секции линейного ускорителя, равен примерно 20 л/мин, что соответствует разности температур на концах секции (0.5–0.65)°С. Это превышение температуры надо устраниить с помощью системы терmostатирования.

Отметим, что приведенный расчет приближенный, не учитывает повышение

температуры помещения при включенном ускорителе, рассеяние тепла в подводящих трубах и др. Поэтому при проектировании приведенные величины должны учитываться с запасом и уточняться при испытательных работах.

В клистронах теряется больше энергии на тепло. Средняя мощность, поступающая от высоковольтного модулятора, порядка 6 кВт. КПД используемого клистрона (30–35)%, т.е. около 4 кВт превращается в тепло, выделяемое в коллекторе и в стенках резонаторного блока клистрона. Измеренный расход воды, охлаждающей клистрон, составляет $1.85 \times 10^{-4} \text{ м}^3/\text{с}$ (11 л/мин). Подставляя в формулу (4) данные, получим $\Delta T = 5.1^\circ\text{C}$. Эта температура должна быть компенсирована системой охлаждения. Согласно инструкциям на многие современные чиллеры и теплообменники, эффективное их функционирование обеспечивается при разности температур на входе и выходе охлаждаемого объекта не более $\Delta T \leq 4\text{--}5^\circ\text{C}$. Следовательно, при модернизации следует увеличить поток воды, охлаждающей клистроны, установив более мощный насос. Отметим также, что опыт работы с клистронами показывает, что для них достаточна стабильность температуры в пределах $\pm 0.5^\circ\text{C}$.

Для быстрого вхождения в тепловой режим при включении «холодного» ускорителя, а также при переводе системы из одного режима в другой будущая система терmostабилизации секций должна обеспечить быструю доводку температуры до выставленного значения. Выставленная температура воды на подачах в ускоряющие секции должна надежно поддерживаться с точностью $\pm 0.2^\circ\text{C}$ в течение многосуточного функционирования ускорителя. Уставка, регулировка и контроль температур подаваемой воды, должны быть обеспечены с ПК в пультовой комнате ЛУЭ-75.

3.3. Вакуумная система

На ЛУЭ-75, откачиваемыми объектами которой являются ускоряющие секции, действует трехступенчатая система откачки: низкий вакуум – форвакуумным насосом типа АВЗ-20Д, средний и высокий вакуум – турбомолекулярным насосом ТМН-200 и магниторазрядными насосами (МРН) типа НЭМ-300; обеспечивается рабочий вакуум не хуже 10^{-6} Торр. Трехступенчатая система позволяет после получения рабочего вакуума отключить все механические насосы за исключением МРН, которые поддерживают высокий вакуум не только во время экспериментов, но и в многодневных перерывах между пучковыми сеансами.

Величина натекания, согласно паспортным данным ускоряющей секции, составляет не более 5×10^{-4} Торр/час. На рис.3б приведен график изменения низкого вакуума в ускоряющей системе ЛУЭ-75 после отключения форвакуумного насоса. Измерения выполнялись с помощью термопарного манометрического преобразователя ПМТ-4М и вакуумметром ВИТ-1А. Используя градуировочную кривую преобразователя, переводящую показания в милливольтах (ось ординат на рис.3) в единицы давления в Торр, найдем, что за первые 10 дней после отключения (крутый участок графика рис.3б) натек составляет 2.6×10^{-4} Торр/час, что с учетом погрешностей измерения термопары согласуется по порядку с паспортным значением для секции. Время получения предварительного вакуума (рис.3а) в системе составляет не менее одного

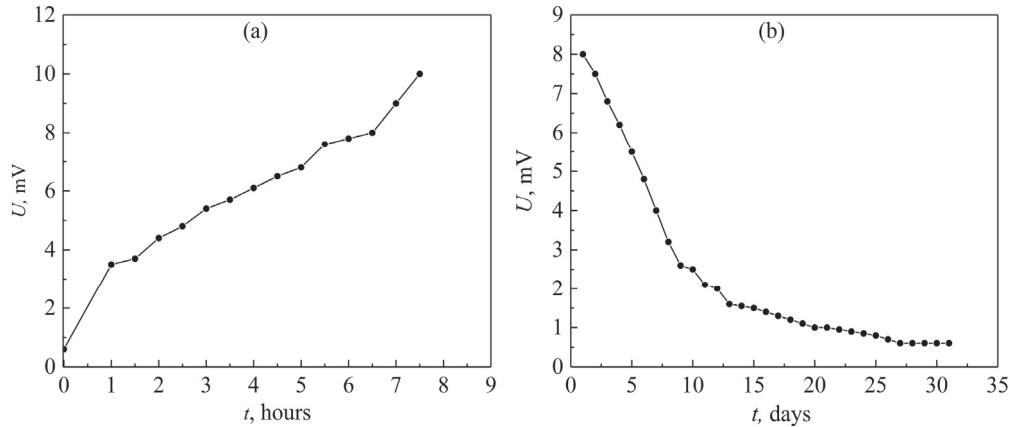


Рис.3. Изменение вакуума при (а) включении и (б) отключении форвакуумного насоса; U – показания измерителя давления ПМТ-4М.

рабочего дня. Это объясняется уменьшением производительности насосов из-за их физического износа.

Подобная ситуация наблюдается и в области высокого вакуума. На каждой секции ЛУЭ-75 установлено по одному МРН. Оценим необходимую производительность высоковакуумных насосов. Объемный поток откачиваемого газа

$$S = Q p, \quad (6)$$

где Q – производительность насоса (быстрота откачивания) и p – рабочее давление в секции. Для используемых МРН согласно техническим характеристикам $Q = 250$ л/с, рабочее давление на линейном ускорителе $p = 10^{-6}$ Торр. Подставляя данные в (6), получим $S = 2.5 \times 10^{-4}$ Торр л/с. Объемный поток натекающего газа с учетом вышеприведенного значения натекания и, приняв объем одной секции с различными отводами и камерами примерно равным 20 л, составляет менее 2×10^{-6} Торр л/с. Как видим, объемный поток откачиваемого газа во много раз больше натекания в секцию (либо извне, либо из-за десорбции с внутренних поверхностей секции), что является необходимым требованием для любой вакуумной установки. Таким образом, указанные производительности МРН насосов 250 л/с для каждой секции достаточны для откачки вакуумного объема ускоряющего тракта.

Технические характеристики МРН насосов в течение длительного периода использования ухудшились и производительность снизилась. При разборке насосов обнаруживается выход из строя части электродов (некоторые титановые пластины оказываются пробитыми по всей поверхности), что приводит к потере производительности, а со временем и к выходу из строя насоса. По мере эксплуатации времязатратность получения рабочего вакуума увеличивается, соответственно увеличивается и потребление электроэнергии. Используемые марки вакуумных насосов в настоящее время не производятся. Ввиду вышеизложенного, возникла необходимость модернизации вакуумной системы.

При модернизации необходимо произвести некоторые конструктивные изменения в цепях, содержащих вакуумную арматуру. Конфигурация вакуумной арматуры (соединительные трубы, вакуумные вентили и др.) была выполнена с учетом работы совместно с синхротроном. Поскольку в настоящее время

линейный ускоритель работает в автономном режиме, следует внести конструктивные изменения, к примеру, форвакуумный насос установить непосредственно в зале ускорителя. Основное уравнение вакуумной техники имеет вид [9, 10]

$$\frac{1}{Q_0} = \frac{1}{Q_p} + \frac{1}{U}, \quad (7)$$

где Q_0 – скорость откачки объема, Q_p – быстрота действия насоса, $U = 1/R$ – проводимость трубопровода, и R – гидравлическое сопротивление трубопровода. Из уравнения (7) следует, что скорость откачки зависит также и от гидравлического сопротивления трубопровода. Гидравлическое сопротивление в свою очередь зависит от длины и диаметра трубопровода. Все МНР и турбомолекулярные насосы подключены к системе короткими патрубками с диаметром, большим диаметра секций. Поэтому для них можно считать гидравлическое сопротивление малым и $Q_0 \approx Q_p$ и коэффициент использования этих насосов

$$K = \frac{Q_0}{Q_p} \approx 1.$$

Форвакуумный насос расположен вдали от ускоряющих секций – это масляный насос, установленный вне ускорительного зала, что значительно уменьшает коэффициент его использования, $K < 1$.

Планируется форвакуумный насос заменить на насос безмасляного типа для исключения попадания паров масла в ускоряющую систему и смонтировать его непосредственно в ускорительном зале.

При модернизации идеология трехступенчатой системы откачки сохранится. Вышедшие из производства насосы и соответствующая вакуумная измерительная аппаратура будут заменены на современные, оснащенные контроллерами, дающими возможность проводить компьютерный мониторинг и управление непосредственно из пультовой комнаты (рис.4). Это важно при работе в радиационной обстановке и для создания системы сбора данных (DAQ-системы). Повысится эффективность работы вакуумной системы, ее надежность, уменьшится времязатратность, а также потребляемая электроэнергия.

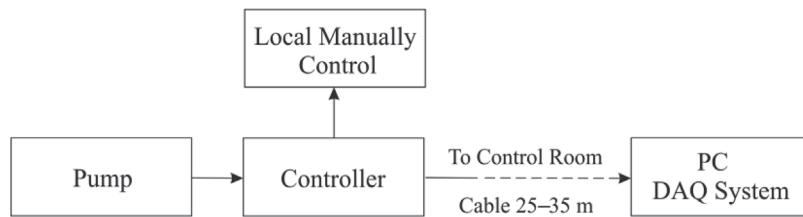


Рис.4. Схема управления вакуумным насосом.

4. Заключение

В результате планируемой модернизации ожидается: повышение устойчивости параметров пучка – долговременной стабильности энергии при длительных сеансах, а следовательно, и интенсивности; экономия потребляемой ускорителем электроэнергии; сокращение времени вхождения в тепловой и вакуумный режимы; станет возможным компьютерный мониторинг и создание

системы сбора данных, как необходимого начального этапа автоматизации, что уменьшит времязатратность при обнаружении и устраниении возможных неполадок.

Улучшение стабильности энергии пучка и его интенсивности позволит проведение прецизионных экспериментов, создаст возможность обнаружения и изучения редких процессов распада в ядерной физике низких энергий. Для примера укажем работу [11 и ссылки в ней], в которой на основе пучков ЛУЭ-75 сотрудниками НИЛА (ЕрФИ) осуществлен поиск околоворогового образования четырехнейтронной системы в фотоядерной реакции $^{209}\text{Bi} (\gamma, 4n)^{205}\text{Bi}$. Впервые были определены сечения реакции этого редкого процесса. Исследование по установлению факта существования гипотетического связанного состояния нейтронов (тетранейтрона) возможно продолжить, по утверждению авторов, лишь при улучшении стабильности энергии и интенсивности пучка.

Это важно также и в изотопной физике, в частности, при получении и исследовании тераностиических радиоизотопов, где надо получить данный изотоп, исключая образование других, близко отстоящих по порогу реакций.

Автор выражает благодарность А.С. Акопяну за ценные замечания и консультацию.

ЛИТЕРАТУРА

1. Г.Г. Оксузян, Э.М. Лазиев, В.Л. Серов, В.И. Белоглазов, И.А. Гришаев, Т.Ф. Никитина, Л.Н. Сдобнова. Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика высоких энергий и атомного ядра, 4, 67 (ХФТИ АН УССР) (1973).
2. A.S. Hakobyan. J. Contemp. Phys., **56**, 169 (2021).
3. A.S. Hakobyan, H.H. Marukyan, H.H. Hakobyan, A.Z. Babayan, L.R. Vahradyan, V. Baranov, Yu.I. Davydov, A. Krasnoperov, A. Simonenko, V. Tereshchenko, H.T. Torosyan, H.G. Zohrabyan, G.M. Ayvazyan, H.S. Vardanyan, A.K. Paryan. J. Contemp. Phys., **57**, 12 (2022).
4. V.D. Bochkov, D.V. Bochkov, I.A. Salynov, V.N. Nikolaev, A.S. Krestianinov, S.Yu. Sokovnin, M.E. Balezin, A.P. Ponizovsky. Particles and Nuclei, Letters, **15**, 894 (2018).
5. О.А. Вальднер, Н.П. Собенин, Б.В. Зверев, И.С. Щедрин. Диафрагмированные волноводы. Москва, Энергоатомиздат, 1991.
6. K.V. Gubin, V.D. Hambikov, A.G. Igolkin, P.V. Martyshkin. Thermostabilization System of VEPP-5 Preinjector. Proceedings of the 1999 Particle Accelerator Conference, New York, pp. 1456–1458 (1999).
7. S. Tunyan, G. Amatuni, B. Grigoryan. Temperature Regulation of the Accelerating Section in Candle Linac, Proceedings of the 2005 Particle Accelerator Conference, Knoxville, TN, USA, pp. 1416–1418 (2005).
8. V.N. Zamriy, A.P. Sumbaev. Precision Thermostatic Control for LUE-200 Accelerator Section, Proceedings of RUPAC, pp. 629–631 (2012).
9. В.И. Иванов. Вакуумная техника. СПб, Университет ИТМО, 2016.
10. Е.С. Фролов, В.Е. Минайчев, А.Т. Александрова, И.В. Автономова, К.Е. Демихов, Г.Ф. Ивановский, В.И. Куприянов, Н.К. Никулин, Ю.М. Пустовойт, И.В. Творогов, А.Б. Цейтлин. Вакуумные технологии. Справочник. Москва, Машиностроение, 1992.

11. T.V. Kotanjyan, A.Y. Aleksanyan, A.O. Kechechyan, S.M. Amirkhanyan, H.R. Gulkanyan, V.S. Pogosov, L.A. Poghosyan. J. Contemp. Phys., **58**, 6 (2023).

ԱԱԳԼ (ԵՐՖԻ) -Ի ԼՈՒԷ-75 ԳԾԱՅԻՆ ԱՐՄԱԳԱՅՈՒՅԹԻ
ԱՐԴԻԱԿԱՆԱՅՄԱՆ ՄԱՍԻՆ

Լ.Ռ. ՎԱՀՐԱԴՅԱՆ

Համառոտ նկարագրված է Ա.Ի. Ալիխանյանի անվան ազգային գիտական լաբորատորիայի ԼՈՒԷ-75 գծային արագացուցչային համակրի գիտատեխնիկական վիճակը վերջին տարիներին կատարված վերանորոգման աշխատանքներից հետո: Հիմնավորված է հիմնական համակարգերի հետագա արդիականացման անհրաժեշտությունը արագացուցչի երկար գիտական կյանքն ապահովելու համար: Կատարվել է արագացուցչի առանձին հանգույցների և համակարգերի վիճակի վերլուծությունը, բերված են հաշվարկային տվյալներ, որոնց հիման վրա առաջարկվում է արդիականացնել ժամանակակից տեխնիկայի ներդրմանը: Առաջարկվում է օգտագործել նոր սերնդի ուժային էլեկտրոնիկա, ժամանակակից ինտերֆեյսով օժտված վակուումային սարքավորումներ, նոր ջերմակայունացման համակարգ:

ON MODERNIZATION OF THE LUE-75 LINEAR ELECTRON
ACCELERATOR OF THE AANL (YERPHI)

L.R. VAHRADYAN

Briefly presented the scientific and technical state of the linear accelerator complex of the National Scientific Laboratory. A. Alikhanyan LUE-75 after renovation work carried out in recent years. The need for further modernization of the accelerator's main systems to ensure its long scientific life is substantiated. An analysis of the state of individual nodes and systems of the accelerator and calculations have been carried out, on the basis of which modernization is proposed by the introduction of modern technology. The use of new generation power electronics, vacuum equipment with a modern interface and thermostabilization system is offered.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.529–538 (2023)

УДК 530.145

DOI: 10.54503/0002-3035-2023-58.4-529

СПИРАЛЬНЫЕ ВАКУУМНЫЕ ТОКИ КВАНТОВОГО СКАЛЯРНОГО ПОЛЯ В МОДЕЛЯХ С НЕТРИВИАЛЬНОЙ ТОПОЛОГИЕЙ ПРОСТРАНСТВА

А.А. СААРЯН^{1*}, Д.А. СИМОНЯН¹, А.Г. МИКАЕЛЯН¹, А.А. ВАНЦЯН²

¹Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

²Институт механики НАН Республики Армения, Ереван, Армения

*e-mail: saharian@ysu.am

(Поступила в редакцию 13 декабря 2023 г.)

Исследовано вакуумное среднее плотности тока массивного скалярного поля в $(D+1)$ -мерном плоском пространстве-времени с компактным измерением. Вдоль компактного измерения оператор поля удовлетворяет спиральному условию квазипериодичности с постоянной фазой. В частном случае нулевого параметра спиральности получаются результаты, ранее исследованные в литературе. В отличие от этого случая, вакуумный ток, наряду с компонентой вдоль компактного измерения, имеет ненулевую компоненту по направлению некомпактного измерения, вдоль которого смещается оператор поля. Получено простое соотношение между этими компонентами. Они являются нечетными периодическими функциями магнитного потока, пронизывающего компактное измерение с периодом, равным кванту магнитного потока. При заданном ненулевом значении параметра спиральности компонента вакуумного тока вдоль компактного измерения стремится к нулю в пределе, когда длина этого измерения стремится к нулю. В рассмотренной ранее проблеме с обычным квазипериодическим условием в этом пределе вакуумный ток расходится.

1. Введение

В квантовой теории поля, граничные условия или условия периодичности, наложенные на оператор поля, изменяют спектр вакуумных флуктуаций. Это приводит к изменению средних значений физических величин, характеризующих вакуумное состояние. Подобная задача для электромагнитного поля в геометрии плоскопараллельных проводящих границ впервые была рассмотрена Казимиром в 1948 году. В дальнейшем эффект Казимира рассматривался для различных полей, различных граничных условий, а также на фоне различных геометрий пространства-времени (см. [1–4] и приведенные там ссылки). В большинстве работ в качестве физической характеристики вакуумного состояния рассматривается энергия вакуума. В моделях с достаточно высокой симметрией энергия вакуума определяет вакуумные силы, действующие на границы, ограничивающие объем квантования. Более подробной характеристикой является вакуумное среднее тензора энергии-импульса, определяющего распределение плотности энергии и вакуумные напряжения. Важность тензора энергии-импульса заключается и в том, что он является источником гравитационного поля в

уравнениях Эйнштейна.

Для заряженных квантовых полей другой важной характеристикой вакуумного состояния является среднее значение плотности тока. Оно выступает в качестве источника электромагнитного поля в уравнениях Максвелла в полуклассической теории, где электромагнитное поле описывается классически. Вакуумные средние плотности тока для скалярных и фермионных полей в плоском пространстве-времени с торOIDально компактными пространственными измерениями рассматривались в работах [5, 6]. Дополнительные эффекты, обусловленные наличием плоских границ исследовались в [7, 8]. В этих работах накладывались квазипериодические условия на оператор поля вдоль компактных измерений и вакуумные токи имеют ненулевые компоненты только вдоль этих измерений.

В настоящей работе рассмотрено вакуумное среднее плотности тока для скалярного поля в простой модели с одним компактным измерением для более общего спирального условия квазипериодичности. Эффекты подобных условий (с нулевой фазой) в моделях Калуцы–Клейна с большими дополнительными измерениями рассматривались в работах [9, 10]. Топологический эффект Казимира в моделях с компактными измерениями и со спиральными периодическими условиями исследовался в [11–17]. В качестве физической характеристики в этих работах рассматривалась энергия вакуума.

Статья построена следующим образом. В следующем разделе приведена постановка задачи и представлена полная система решений классического уравнения поля, удовлетворяющих спиральному условию квазипериодичности. В разделе 3 эти решения использованы для вывода перенормированного вакуумного значения плотности тока. Регуляризация и перенормировка проведены методом обобщенной дзета функции. Свойства компонент плотности тока рассмотрены в разделе 4. В статье использована система единиц $c = 1$ и $\hbar = 1$.

2. Формулировка задачи и моды скалярного поля

Рассмотрим скалярное поле $\phi(x)$ в $(D+1)$ -мерном плоском пространстве-времени с топологией $R^{D-1} \times S^1$. В декартовых пространственных координатах соответствующий интервал имеет вид $ds^2 = dt^2 - \sum_{i=1}^D (dx^i)^2$, где $-\infty < x^i < \infty$, $i = 2, \dots, D$, а координата x^1 компактифицирована на окружность длины a : $0 \leq x^1 \leq a$. При наличии классического калибровочного векторного поля A_μ уравнение скалярного поля имеет вид

$$(D_\mu D^\mu + m^2)\phi(x) = 0, \quad (1)$$

где $D_\mu = \partial_\mu + ieA_\mu$ – ковариантная производная, а e – постоянная связи между скалярным и векторным полями (заряд кванта поля), m – масса поля. Фоновая геометрия имеет нетривиальную топологию и наряду с уравнением поля следует задать также условие периодичности вдоль компактного измерения. Здесь мы рассмотрим спиральное квазипериодическое условие

$$\phi(t, x^1 + a, x^2, \mathbf{x}_\perp) = e^{ia} \phi(t, x^1, x^2 + h, \mathbf{x}_\perp), \quad (2)$$

с постоянной фазой α и с постоянным смещением h (параметр спиральности).

Здесь и далее введено обозначение $\mathbf{x}_\perp = (x^3, \dots, x^D)$. В частном случае $h = 0$ условие (2) сводится к обычному условию квазипериодичности, исследованном в работах [7, 8].

В данной работе мы рассмотрим простейшую конфигурацию векторного поля с постоянным векторным потенциалом $A_\mu = \text{const}$. В этом случае векторное поле можно исключить из уравнения для скалярного поля калибровочным преобразованием $(A_\mu, \phi) \rightarrow (A'_\mu, \phi')$ с функцией $\omega = A_\mu x^\mu$:

$$A_\mu = A'_\mu + \partial_\mu \omega, \quad \phi(x) = e^{-ie\omega} \phi'(x). \quad (3)$$

В новой калибровке $A'_\mu = 0$ и $D'_\mu = \partial_\mu$, а условие квазипериодичности для нового скалярного поля примет вид

$$\phi'(t, x^1 + a, x^2, \mathbf{x}_\perp) = e^{i\tilde{\alpha}} \phi'(t, x^1, x^2 + h, \mathbf{x}_\perp), \quad (4)$$

где

$$\tilde{\alpha} = \alpha + eA_1 a - eA_2 h. \quad (5)$$

Ниже будет показано, что вакуумный ток зависит от фазы α и компонент A_1 и A_2 векторного потенциала через комбинацию (5). Несмотря на то, что тензор поля $F_{\mu\nu} = \partial_\mu A_\nu - \partial_\nu A_\mu$ равен нулю для рассматриваемой конфигурации калибровочного поля, постоянные компоненты A_1 и A_2 имеют физические последствия. Это связано с нетривиальной топологией пространства и является эффектом типа Ааронова-Бома. Заметим, что условие (4) можно переписать в виде

$$\phi'(t, x^1, x^2 + h, \mathbf{x}_\perp) = e^{-i\tilde{\alpha}} \phi'(t, x^1 + a, x^2, \mathbf{x}_\perp). \quad (6)$$

Это условие можно интерпретировать как условие спиральной квазипериодичности в модели с компактным измерением x^2 с длиной h , с параметром спиральности a и с фазой $-\tilde{\alpha}$. Дальнейшее изложение статьи проведено в терминах калибровочно преобразованного поля $\phi'(x)$ опуская штрихи.

Для вычисления вакуумного среднего плотности тока понадобится полная система положительно и отрицательно частотных решений уравнения поля, удовлетворяющих условию квазипериодичности. В качестве такой системы будет использован набор $\phi_k^{(\pm)}(x)$, описывающий состояния с определенным значением импульса $\mathbf{k} = (k_1, k_2, \mathbf{k}_\perp)$, где $\mathbf{k}_\perp = (k_3, \dots, k_D)$ и $-\infty < k_i < +\infty$, $i = 2, \dots, D$. Соответствующие модовые функции с энергией $E_k = \sqrt{k_1^2 + k_2^2 + \mathbf{k}_\perp^2 + m^2}$ имеют вид

$$\phi_k^{(\pm)}(x) = N_k e^{ik_1 x^1 + ik_2 x^2 + i\mathbf{k}_\perp \mathbf{x}_\perp \mp iE_k t}. \quad (7)$$

Собственные значения компоненты импульса k_1 определяются из условия (4):

$$k_1 = \frac{2\pi n + \tilde{\alpha}}{a} + k_2 \frac{h}{a}, \quad n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (8)$$

Из условия ортонормировки

$$\int d^D x \phi_k^*(x) \phi_{k'}(x) = \frac{\delta_{nn'}}{2E_k} \delta(k_2 - k'_2) \delta(\mathbf{k}_\perp - \mathbf{k}'_\perp), \quad (9)$$

для коэффициента нормировки находим

$$|N_{\mathbf{k}}|^2 = \frac{(2\pi)^{1-D}}{2aE_{\mathbf{k}}}. \quad (10)$$

В следующем параграфе моды (7) использованы для вычисления вакуумного среднего плотности тока.

3. Вакуумное среднее плотности тока

Оператор плотности тока заряженного скалярного поля определяется выражением

$$j_{\mu}(x) = -ie[\varphi^+(x)D_{\mu}\varphi(x) - (D_{\mu}\varphi^+(x))\varphi(x)], \quad (11)$$

где в рассматриваемой калибровке $D_{\mu}\varphi = \partial_{\mu}\varphi$. Подставим сюда разложение оператора поля

$$\varphi(x) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \int dk_2 \int d\mathbf{k}_{\perp} \left[\hat{a}_{\mathbf{k}} \varphi_{\mathbf{k}}^{(+)}(x) + \hat{b}_{\mathbf{k}}^+ \varphi_{\mathbf{k}}^{(-)}(x) \right], \quad (12)$$

где $\hat{a}_{\mathbf{k}}$ и $\hat{b}_{\mathbf{k}}$ операторы рождения и уничтожения квантов поля. Для вакуумного состояния $|0\rangle$ имеют место соотношения $\hat{a}_{\mathbf{k}}|0\rangle = 0$ и $\langle 0 | \hat{b}_{\mathbf{k}}^+ = 0$. С помощью этих соотношений нетрудно показать, что вакуумное среднее $\langle j_{\mu}(x) \rangle = \langle 0 | j_{\mu}(x) | 0 \rangle$ представится в виде

$$\langle j_{\mu} \rangle = -\frac{e}{(2\pi)^{D-1} a} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \int dk_2 \int d\mathbf{k}_{\perp} \frac{k_{\mu}}{E_{\mathbf{k}}}. \quad (13)$$

Отсюда следует, что $\langle j_{\mu} \rangle = 0$ для компонент $\mu = 3, \dots, D$.

Для вычисления перенормированных значений вакуумных средних $\langle j_l \rangle$, $l = 1, 2$, необходима регуляризация соответствующих выражений (13). Здесь мы воспользуемся методом обобщенной дзета функции (см., например, [18, 19]). Введем функцию

$$F_l(s) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \int dk_2 \int d\mathbf{k}_{\perp} \frac{k_l}{E_{\mathbf{k}}}, \quad l = 1, 2, \quad (14)$$

комплексной переменной s , где энергия дается выражением

$$E_{\mathbf{k}} = \left[\left(\frac{2\pi n + \tilde{\alpha}}{a} + k_2 \frac{h}{a} \right)^2 + k_2^2 + \mathbf{k}_{\perp}^2 + m^2 \right]^{1/2}. \quad (15)$$

Выражение в правой части (14) является конечным в области $\text{Res} > D+1$ комплексной плоскости s . Интегрирование по \mathbf{k}_{\perp} проводится с помощью формулы, приведенной в [20]:

$$F_l(s) = \pi^{\frac{D}{2}-1} \frac{\Gamma\left(\frac{s-D}{2}+1\right)}{\Gamma(s/2)} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \int dk_2 \frac{k_l}{\left(k_1^2 + k_2^2 + m^2\right)^{\frac{s-D+1}{2}}}. \quad (16)$$

Интегрирование по k_2 проводится введением новой переменной интегрирования

$$u = k_2 + ahk_{(n)} / (a^2 + h^2), \quad (17)$$

где $k_{(n)} = (2\pi n + \tilde{\alpha}) / a$. В результате получим следующее выражение для функции $F_1(s)$:

$$F_1(s) = \pi^{\frac{D-1}{2}} \frac{\Gamma\left(\frac{s+1-D}{2}\right)}{\Gamma(s/2)} \left(1 + \frac{h^2}{a^2}\right)^{\frac{s-D-1}{2}} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \frac{k_{(n)}}{\left[k_{(n)}^2 + (1 + h^2/a^2)m^2\right]^{\frac{s-D+1}{2}}}. \quad (18)$$

Функция $F_2(s)$ выражается через функцию $F_1(s)$:

$$F_2(s) = -\frac{h}{a} F_1(s). \quad (19)$$

Таким образом, вычисление перенормированной плотности тока сводится к аналитическому продолжению выражения в правой части (18).

Для дальнейшего преобразования представим выражение (18) в виде

$$F_1(s) = -\frac{\pi^{\frac{D-1}{2}} \Gamma\left(\frac{s-1-D}{2}\right) a^2}{2\Gamma(s/2)(a^2 + h^2)^{\frac{D-s+1}{2}}} \frac{\partial}{\partial \tilde{\alpha}} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \left[(2\pi n + \tilde{\alpha})^2 + (a^2 + h^2)m^2 \right]^{\frac{D-s+1}{2}}. \quad (20)$$

Заметим, что ряд в правой части (20) соответствует дзета функции для плотности энергии вакуума. Плотность энергии и натяжения вакуума в эффекте Казимира при наличии компактных измерений рассматривались в работах [21, 22]. Для аналитического продолжения ряда формулы (20) в физическую точку $s = 1$ воспользуемся формулой Чоула-Селберга (см., например, [23, 24])

$$\sum_{n=-\infty}^{+\infty} \left[(n+b)^2 + c \right]^{-p} = \frac{\pi^{\frac{1}{2}}}{\Gamma(p)c^{\frac{p-1}{2}}} \left[\Gamma\left(p - \frac{1}{2}\right) + 2^{\frac{5}{2}-p} \sum_{n=1}^{\infty} \cos(2\pi nb) f_{\frac{1}{2}-p}(2\pi n\sqrt{c}) \right], \quad (21)$$

с параметрами $b = \tilde{\alpha} / 2\pi$, $c = (a^2 + h^2)(m / 2\pi)^2$ и $p = (s - D - 1)/2$. В (21) введено обозначение

$$f_{\mu}(x) = x^{-\mu} K_{\mu}(x), \quad (22)$$

с функцией Макдональда $K_{\mu}(x)$. Для функции (20) получим следующее представление

$$F_1(s) = -\frac{a^2 m^{D+2-s}}{4\pi^{1-\frac{D}{2}} \Gamma(s/2)} \frac{\partial}{\partial \tilde{\alpha}} \left[\Gamma\left(\frac{s-D}{2} - 1\right) + 2^{3+\frac{D-s}{2}} \sum_{n=1}^{\infty} \cos(n\tilde{\alpha}) f_{\frac{D-s+1}{2}}(nm\sqrt{a^2 + h^2}) \right]. \quad (23)$$

Расходимость в точке $s = 1$ (для нечетных значений D) содержится только в первом слагаемом в выражении в квадратных скобках (23). Это слагаемое не зависит от $\tilde{\alpha}$ и обращается в нуль после дифференцирования по $\tilde{\alpha}$. Таким образом, для значения функции $F_1(s)$ в физической точке $s = 1$ получим

$$F_1(1) = 4(2\pi)^{\frac{D-3}{2}} a^2 m^{D+1} \sum_{n=1}^{\infty} n \sin(n\tilde{\alpha}) f_{\frac{D+1}{2}}(nm\sqrt{a^2 + h^2}). \quad (24)$$

Выражение для вакуумного среднего контравариантной компоненты тока вдоль компактного измерения примет вид

$$\langle j^1 \rangle = \frac{4eam^{\frac{D+1}{2}}}{(2\pi)^{\frac{D+1}{2}}} \sum_{n=1}^{\infty} n \sin(n\tilde{\alpha}) f_{\frac{D+1}{2}}(nm\sqrt{a^2 + h^2}). \quad (25)$$

Контравариантная компонента $\langle j^2 \rangle$ получается из соотношения (19):

$$\langle j^2 \rangle = -\frac{h}{a} \langle j^1 \rangle. \quad (26)$$

В частном случае $h = 0$ компонента вдоль некомпактного измерения обращается в нуль, $\langle j^2 \rangle = 0$, а выражение (25) сводится к формуле полученной в работе [5]. Соотношение (26) между компонентами вакуумного тока следовало бы ожидать на основе указанной выше симметрии между рассмотренной задачей и задачей с длиной компактного измерения h , с параметром спиральности a и с фазой $-\tilde{\alpha}$.

4. Свойства вакуумного тока и численный анализ

Плотность вакуумного тока является нечетной функцией магнитного потока, пронизывающего компактное измерение, с периодом, равным кванту магнитного потока. В случае безмассового поля, с помощью асимптотического выражения $f_\mu(x) \approx 2^{\mu-1} \Gamma(\mu) x^{-2\mu}$, $x \ll 1$, формула для плотности тока представится в виде

$$\langle j^1 \rangle = \frac{2eaA_D(\tilde{\alpha})}{(a^2 + h^2)^{\frac{D+1}{2}}}, \quad (27)$$

где введено обозначение

$$A_D(\tilde{\alpha}) = \frac{2\Gamma\left(\frac{D+1}{2}\right)}{\pi^{\frac{D+1}{2}}} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\sin(n\tilde{\alpha})}{n^D}. \quad (28)$$

Для нечетных значений D сумма ряда выражается через полиномы Бернулли $B_n(x)$ и для коэффициента в (27) получим

$$A_D(\tilde{\alpha}) = \frac{(-1)^{\frac{D+1}{2}} \pi^{\frac{D}{2}}}{\Gamma(D/2+1)} B_D\left(\frac{\tilde{\alpha}}{2\pi}\right), \quad (29)$$

где $0 \leq \tilde{\alpha} \leq 2\pi$. В частности, при $D = 3, 5, 7$ имеем

$$\begin{aligned} A_3(\tilde{\alpha}) &= \frac{4\pi}{3} y(y-1)\left(y - \frac{1}{2}\right), A_5(\tilde{\alpha}) = -\frac{2\pi}{5} A_3(\tilde{\alpha})\left(y^2 - y - \frac{1}{3}\right), \\ A_7(\tilde{\alpha}) &= \frac{4\pi^2}{35} A_3(\tilde{\alpha})\left(y^4 - 2y^3 + y + \frac{1}{3}\right), y = \frac{\tilde{\alpha}}{2\pi}. \end{aligned} \quad (30)$$

На рис.1 изображена зависимость функции $A_D(\tilde{\alpha})$ от $y = \tilde{\alpha}/2\pi$ для различных значений D (числа возле кривых). Зависимость от D при дальнейшем увеличении D слаба.

В пределе $m\sqrt{a^2 + h^2} \gg 1$ основной вклад в (25) обусловлен слагаемым $n = 1$. С помощью асимптотического выражения для функции Макдональда при

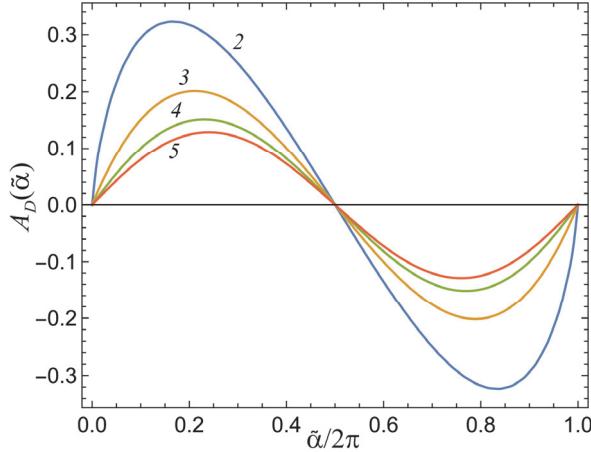


Рис.1. Функция $A_D(\tilde{\alpha})$ в выражении для плотности тока безмассового скалярного поля для различных значений размерности пространства (числа возле кривых).

больших значений аргумента (см., например, [25]) находим

$$\langle j^1 \rangle \approx \frac{2eam^{D/2}e^{-m\sqrt{a^2+h^2}} \sin \tilde{\alpha}}{(2\pi)^{\frac{D}{2}} (a^2 + h^2)^{\frac{D+2}{4}}}. \quad (31)$$

В этом приближении плотность вакуумного тока экспоненциально мала. При заданном значении массы формула (31) описывает поведение плотности тока при больших значениях длины $\sqrt{a^2 + h^2}$. В отличие от случая безмассового поля, где плотность тока стремится к нулю по степенному закону, для массивного поля имеет место экспоненциальное подавление. При $h \ll a$ главные члены асимптотических разложений компонент плотности тока имеют вид

$$\langle j^1 \rangle \approx \frac{4eam^{D+1}}{(2\pi)^{(D+1)/2}} \sum_{n=1}^{\infty} n \sin(n\tilde{\alpha}) f_{(D+1)/2}(nma), \quad \langle j^2 \rangle = -\frac{h}{a} \langle j^1 \rangle, \quad (32)$$

и $|\langle j^2 \rangle| \ll |\langle j^1 \rangle|$. В обратном пределе, $a \ll h$, имеют место оценки

$$\langle j^1 \rangle = -\frac{a}{h} \langle j^2 \rangle, \quad \langle j^2 \rangle \approx -\frac{4ehm^{D+1}}{(2\pi)^{(D+1)/2}} \sum_{n=1}^{\infty} n \sin(n\tilde{\alpha}) f_{(D+1)/2}(nmh), \quad (33)$$

и $|\langle j^1 \rangle| \ll |\langle j^2 \rangle|$.

Зависимость компоненты $\langle j^1 \rangle$ вакуумной плотности тока от параметров a и h приведена на рис.2 для массивного поля в 2-мерном пространстве ($D = 2$). Для параметра в условии квазипериодичности выбрано значение $\tilde{\alpha} = 2\pi / 5$. При заданном h и в пределе $a \rightarrow 0$ эта компонента стремится к нулю. Качественное поведение для других значений размерности пространства аналогично изображенному на рис.2. Графики для компоненты $\langle j^2 \rangle$ получаются из результатов на рисунке 2 изменением мест осей mh и ma и изменением знака функции.

Зависимость безразмерной величины $a^D \langle j^1 \rangle / e$ от массы при заданных $\tilde{\alpha} = 2\pi / 5$ и $h/a = 1$ приведена на рис.3 для различных значений размерности пространства. Для больших значений массы плотность тока экспоненциально мала.

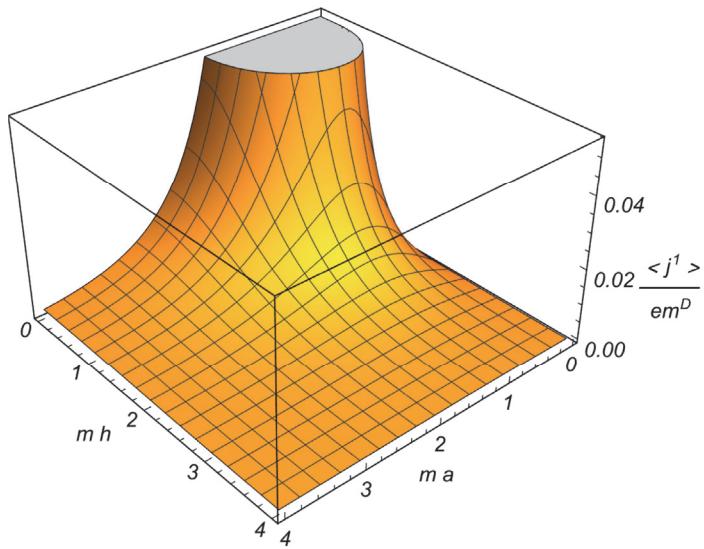


Рис.2. Плотность тока вдоль компактного измерения в зависимости от параметров a и h (измеренных в единицах $1/m$) для массивного поля в модели с $D = 2$ и $\tilde{\alpha} = 2\pi/5$.

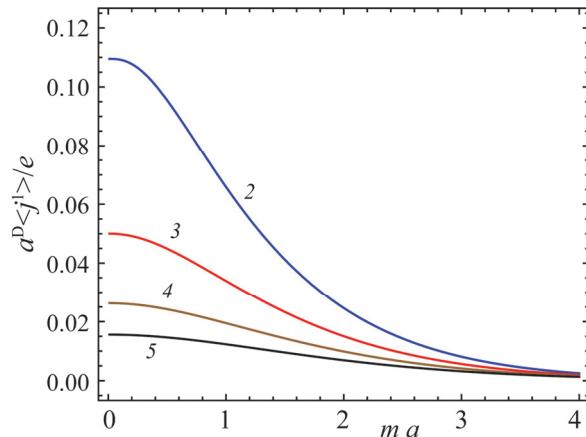


Рис.3. Зависимость плотности тока от массы поля (в единицах $1/a$) при $\tilde{\alpha} = 2\pi/5$ и $h/a = 1$. Числа возле кривых соответствуют значению размерности пространства.

5. Заключение

Исследовано вакуумное среднее плотности тока для массивного скалярного поля в плоском пространстве-времени с компактным измерением и со спиральными квазипериодическим условием (2) с параметром спиральности h , а также при наличии постоянного калибровочного поля. Вакуумный ток зависит от фазы в условии квазипериодичности и компонент калибровочного поля через комбинацию (5). Регуляризация выражения суммы по модам для вакуумного среднего

плотности тока проведена методом дзета функции с использованием формулы Чоула-Селберга. Отличными от нуля являются компоненты вдоль компактного измерения и вдоль измерения спирального смещения. Первая компонента дается формулой (25) и связана со второй компонентой простым соотношением (26). В частном случае нулевого параметра спиральности, рассмотренном ранее в литературе, вакуумный ток направлен вдоль компактного измерения. Таким образом, появление ненулевой компоненты поля вдоль некомпактного измерения является следствием спирального условия квазипериодичности.

Для безмассового поля выражение для плотности тока вдоль компактного измерения имеет вид (27). Зависимость от параметра $\tilde{\alpha}$ входит через функцию $A_D(\tilde{\alpha})$, определяемой формулой (28). Для нечетных значений размерности пространства эта функция выражается через полиномы Бернулли (см. (29)). При больших значениях длины $\sqrt{a^2 + h^2}$ вакуумный ток безмассового поля стремится к нулю по степенному закону. Для массивного поля подавление тока для больших длин экспоненциально. В пределе малых длин компактного измерения, когда $a \rightarrow 0$, компонента тока вдоль этого направления стремится к нулю по линейному закону. Такое поведение сильно отличается от поведения тока в задаче с обычным условием квазипериодичности, где плотность тока стремится к бесконечности.

Работа выполнена в научно-исследовательской лаборатории теоретической физики Института физики ЕГУ, финансируемой Комитетом по высшему образованию и науке Министерства образования, науки, культуры и спорта Республики Армения. Работа А.А. Сааряна и Д.А. Симоняна выполнена в рамках программы 21AG-1C047 Комитета по высшему образованию и науке и в рамках гранта ANSEF 23AN:PS-hepth-2889.

Авторы не имеют конфликт интересов.

Авторы в равной степени внесли свой вклад в данную работу в концептуализации исследования, математических выводах и написании рукописи. Все авторы прочитали и согласились с опубликованной версией рукописи.

ЛИТЕРАТУРА

1. **V.M. Mostepanenko, N.N. Trunov.** The Casimir Effect and its Applications: Clarendon, Oxford, 1997.
2. **K.A. Milton.** The Casimir Effect: Physical Manifestation of Zero-Point Energy: World Scientific, Singapore, 2002.
3. **M. Bordag, G.L. Klimchitskaya, U. Mohideen, V.M. Mostepanenko.** Advances in the Casimir Effect: New York, Oxford University Press, 2009.
4. **D. Dalvit, P. Milonni, D. Roberts, F. da Rosa.** Casimir Physics, Lecture Notes in Physics Vol. 834, Berlin, Springer-Verlag, 2011.
5. **E.R. Bezerra de Mello, A.A. Saharian.** Phys. Rev. D, **87**, 045015 (2013).
6. **S. Bellucci, A.A. Saharian.** Phys. Rev. D, **82**, 065011 (2010).
7. **S. Bellucci, A. A. Saharian.** Phys. Rev. D, **87**, 025005 (2013).
8. **S. Bellucci, A. A. Saharian, N. A. Saharyan,** Eur. Phys. J. C, **75**, 378 (2015).
9. **K.R. Dienes.** Phys. Rev. Lett., **88**, 011601 (2001).

10. **K. R. Dienes, A. Mafi.** Phys. Rev. Lett., **88**, 111602 (2002).
11. **C.-J. Feng, X.-Z. Li.** Phys. Lett. B, **691**, 167 (2010).
12. **X.-H. Zhai, X.-Z. Li, C.-J. Feng.** Mod. Phys. Lett. A, **26**, 669 (2011).
13. **X.-H. Zhai, X.-Z. Li, C.-J. Feng.** Mod. Phys. Lett. A, **26**, 1953 (2011).
14. **V.K. Oikonomou.** Commun. Theor. Phys., **55**, 101 (2011).
15. **X.-H. Zhai, X.-Z. Li, C.-J. Feng.** Eur. Phys. J. C, **71**, 1654 (2011).
16. **G. Aleixo, H.F. Santana Mota.** Phys. Rev. D, **104**, 045012 (2021).
17. **A.J.D. Farias Junior, H.F. Santana Mota.** Int. J. Mod. Phys. D, **31**, 2250126 (2022).
18. **E. Elizalde, S.D. Odintsov, A. Romeo, A.A. Bytsenko, S. Zerbini.** Zeta Regularization Techniques with Applications: World Scientific: Singapore, 1994.
19. **K. Kirsten.** Spectral Functions in Mathematics and Physics: Chapman and Hall/CRC: Boca Raton, 2002.
20. **A.P. Prudnikov, Yu.A. Brychkov, O.I. Marichev.** Integrals and Series: Gordon and Breach, New York, 1986, vol. 1.
21. **T.Sh. Navasardyan, A.A. Saharian.** J. Contemp. Phys., **49**, 243 (2014).
22. **T.Sh. Navasardyan, A.A. Saharian.** J. Contemp. Phys., **52** 348 (2017).
23. **E. Elizalde.** Commun. Math. Phys., **198**, 83 (1998).
24. **E. Elizalde.** J. Phys. A, **34**, 3025 (2001).
25. **M. Abramowitz, I. A. Stegun.** Handbook of Mathematical Functions: Dover, New York, 1972.

HELICAL VACUUM CURRENTS FOR A SCALAR FIELD IN MODELS WITH NONTRIVIAL SPATIAL TOPOLOGY

A.A. SAHARIAN, D.H. SIMONYAN, H.H. MIKAYELYAN, A.A. VANTSYAN

The vacuum expectation value of the current density is investigated for a massive scalar field in a (D+1)-dimensional flat space-time with compact dimension. Along a compact dimension, the field operator obeys the helical quasiperiodicity condition with a constant phase. In the special case of a zero helicity parameter, the results previously studied in the literature are obtained. In contrast to that case, the vacuum current, in addition to the component along the compact dimension, has a non-zero component in the direction of the non-compact dimension along which the field operator is shifted. A simple relation between those components is obtained. They are odd periodic functions of magnetic flux threading the compact dimension, with the period equal to the flux quantum. For a given non-zero value of the helicity parameter, the component of the vacuum current along the compact dimension tends to zero in the limit when the length of that dimension tends to zero. In the problem considered earlier with the usual quasiperiodic condition, the vacuum current diverges in that limit.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.539–546 (2023)

УДК 548.732

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-539

ВЕКТОРНЫЕ НЕСТАЦИОНАРНЫЕ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫЕ ДИФРАКЦИОННЫЕ ПОЛЯ И ПОЛЯ ЗАРЯДОВ В СРЕДАХ

М.К. БАЛЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

e-mail: mbalyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 6 октября 2023 г.)

Рассмотрены векторные нестационарные дифракционные электромагнитные поля и поля зарядов в произвольным образом выбранном объеме как в однородных, так и в неоднородных средах. Эти формулы представлены в двух формах, каждая из которых имеет свои преимущества в применениях. Непосредственно получены также обобщения векторных формул Кирхгофа–Котлера для прерывных полей в нестационарном случае.

1. Введение

В предыдущих работах [1–4] были найдены векторные формулы для электромагнитного поля в произвольно выбранном объеме при наличии в объеме движущихся зарядов. Получены также векторные формулы для электромагнитного поля в средах в гармоническом случае. Был применен метод векторных функций Грина. Для последней найдены выражения как в свободном пространстве [1], так и в средах [4]. Учитываются как дифракционные поля, так и поля зарядов, движущихся внутри выбранного объема. Вследствие применения векторной функции Грина формулы Кирхгофа–Котлера получены непосредственно [4], без обычно применяемых предположений.

В этой работе исследована векторная теория дифракции и полей заряженных частиц в средах в нестационарном случае. Рассмотрены случаи однородных и неоднородных сред.

2. Уравнения нестационарного электромагнитного поля в неоднородных средах

Чтобы получить нестационарные векторные уравнения для электромагнитного поля (\mathbf{E}, \mathbf{B}) в неоднородных изотропных средах в произвольным образом выбранном объеме V с поверхностью S (рис.1), выпишем формулы для проекций полей на произвольный постоянный вектор \mathbf{f} [1]:

$$\begin{aligned} \mathbf{f}\mathbf{E}(\mathbf{r}_p, t_p) = & \mathbf{f} \left(\frac{1}{4\pi c} \frac{\partial}{\partial t_p} \oint_S (\mathbf{n} \times \mathbf{B}) \frac{1}{R} dS + \frac{1}{4\pi} \text{rot}_p \oint_S \frac{[(\mathbf{E} \times \mathbf{n})]}{R} dS \right. \\ & \left. + \frac{1}{4\pi} \nabla_p \oint_S \frac{[\mathbf{E}\mathbf{n}]}{R} dS - \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t_p} \int_V \frac{[\mathbf{j}]}{R} dV - \text{grad}_p \int_V \frac{[\rho]}{R} dV \right) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{c}{4\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \oint_S \text{rot} \left(\text{div} \left(\frac{\mathbf{f}}{R} (t_p - t - R/c) \theta(t_p - t - R/c) \right) \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \right) d\mathbf{S} dt, \\
\mathbf{f}\mathbf{B}(\mathbf{r}_p, t_p) = & \mathbf{f} \left(-\frac{1}{4\pi} \text{rot}_p \oint_S \frac{[(\mathbf{n} \times \mathbf{B})]}{R} dS + \frac{1}{4\pi c} \frac{\partial}{\partial t_p} \oint_S \frac{[(\mathbf{E} \times \mathbf{n})]}{R} dS + \frac{1}{4\pi} \text{grad}_p \oint_S \frac{[\mathbf{B}\mathbf{n}]}{R} dS \right. \\
& \left. + \frac{1}{c} \text{rot}_p \int_V \frac{[\mathbf{j}]}{R} dV \right) - \frac{c}{4\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \oint_S \text{rot} \left(\text{div} \left(\frac{\mathbf{f}}{R} (t_p - t - R/c) \theta(t_p - t - R/c) \right) \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \right) d\mathbf{S} dt. \quad (1)
\end{aligned}$$

Здесь \mathbf{r}_p – радиус-вектор точки наблюдения p , t_p – время наблюдения. Дифракционные поля, выраженные через поверхностные интегралы, обусловлены внешними зарядами. Объемные интегралы выражают поля зарядов, движущихся внутри объема. Производные, имеющие индекс p означают дифференцирование по координатам точки наблюдения, \mathbf{r} – радиус-вектор точки интегрирования, $R = |\mathbf{r}_p - \mathbf{r}|$, а скобка $[\cdot]$ означает, что значение функции внутри скобки берется в запаздывающий момент $t_p - R/c$. Последние члены в (1) – поверхностные интегралы, содержащие полный ротор, равны нулю для непрерывных полей и их непрерывных первых производных. Они не равны нулю для прерывных полей. Интегрирование по частям по времени показывает, что Фурье-образы этих членов совпадают с членами, введенными Котлером для гармонических, прерывных на поверхности, полей. Этими членами, при использовании разрывных граничных условий Кирхгофа [4–6] в гармоническом случае, обусловлены добавочные члены в формуле Кирхгофа. Следовательно, поверхностные интегралы, содержащие полный ротор, являются обобщением на нестационарный случай членов, введенных Котлером для гармонических полей.

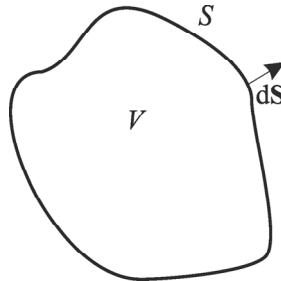


Рис.1. Объем V и поверхность интегрирования S . Показан элемент поверхности интегрирования $d\mathbf{S}$.

2.1. Нестационарный случай непрерывных полей в среде

В случае непрерывных полей в (1) поверхностные интегралы по замкнутой поверхности, содержащие полные роторы, равны нулю. Плотности заряда и тока – $\rho = \rho_1 + \rho_2$ и $\mathbf{j} = \mathbf{j}_1 + \mathbf{j}_2$, где индекс 1 относится к зарядам, совершающим заданное движение, а индекс 2 – к индуцированным зарядам. Для индуцированных зарядов в немагнитной неоднородной среде имеем $\rho_2 = -\text{div} \mathbf{P}$ и $\mathbf{j}_2 = \partial \mathbf{P} / \partial t$, где \mathbf{P} – вектор поляризации [7]. Учитывая также, что \mathbf{f} – произвольный вектор, из (1) получим

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}(\mathbf{r}_p, t_p) = & \frac{1}{4\pi c} \frac{\partial}{\partial t_p} \oint_S [(\mathbf{n} \times \mathbf{B})] \frac{1}{R} dS + \frac{1}{4\pi} \text{rot}_p \oint_S \frac{[(\mathbf{E} \times \mathbf{n})]}{R} dS + \frac{1}{4\pi} \nabla_p \oint_S \frac{[\mathbf{E} \mathbf{n}]}{R} dS \\
& - \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t_p} \int_V \frac{[\mathbf{j}_1]}{R} dV - \text{grad}_p \int_V \frac{[\rho_1]}{R} dV - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t_p^2} \int_V \frac{[\mathbf{P}]}{R} dV + \text{grad}_p \text{div}_p \int_V \frac{[\mathbf{P}]}{R} dV, \\
\mathbf{B}(\mathbf{r}_p, t_p) = & -\frac{1}{4\pi} \text{rot}_p \oint_S \frac{[(\mathbf{n} \times \mathbf{B})]}{R} dS + \frac{1}{4\pi c} \frac{\partial}{\partial t_p} \oint_S \frac{[(\mathbf{E} \times \mathbf{n})]}{R} dS \\
& + \frac{1}{4\pi} \text{grad}_p \oint_S \frac{[\mathbf{B} \mathbf{n}]}{R} dS + \frac{1}{c} \text{rot}_p \int_V \frac{[\mathbf{j}_1]}{R} dV + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t_p} \text{rot}_p \int_V \frac{[\mathbf{P}]}{R} dV.
\end{aligned} \tag{2}$$

Связь между поляризацией и полем при линейном отклике среды в нестационарном случае дается через функцию отклика κ [8]:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \kappa(\mathbf{r}, t - t') \mathbf{E}(\mathbf{r}, t') dt' = \int_{-\infty}^t \kappa(\mathbf{r}, t - t') \mathbf{E}(\mathbf{r}, t') dt'. \tag{3}$$

Функция $\kappa(\mathbf{r}, t - t')$, согласно принципу причинности, равна нулю при $t < t'$. Фурье-образом функции отклика является поляризуемость среды:

$$\chi(\mathbf{r}, \omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \kappa(\mathbf{r}, t) e^{i\omega t} dt = \int_0^{+\infty} \kappa(\mathbf{r}, t) e^{i\omega t} dt. \tag{3a}$$

Диэлектрическая проницаемость для некоторой частоты равна

$$\epsilon(\mathbf{r}, \omega) = 1 + 4\pi\chi(\mathbf{r}, \omega). \tag{3b}$$

Подставляя (3) в (2), мы получим интегродифференциальные уравнения для определения поля в неоднородной среде в нестационарном случае. Если возможно рассматривать поле во всем пространстве, то из (2) для определения поля в неоднородной среде также можно написать:

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}(\mathbf{r}_p, t_p) = & \mathbf{E}_{\text{out}}(\mathbf{r}_p, t_p) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t_p} \int_V \frac{[\mathbf{j}_1]}{R} dV \\
& - \text{grad}_p \int_V \frac{[\rho_1]}{R} dV - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t_p^2} \int_V \frac{[\mathbf{P}]}{R} dV + \text{grad}_p \text{div}_p \int_V \frac{[\mathbf{P}]}{R} dV, \\
\mathbf{B}(\mathbf{r}_p, t_p) = & \mathbf{B}_{\text{out}}(\mathbf{r}_p, t_p) + \frac{1}{c} \text{rot}_p \int_V \frac{[\mathbf{j}_1]}{R} dV + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t_p} \text{rot}_p \int_V \frac{[\mathbf{P}]}{R} dV.
\end{aligned} \tag{4}$$

Здесь индекс «out» обозначает поля внешних относительно среды зарядов. Если в выражении поляризации (3) использовать эти внешние поля и подставить в (4), то получим искомые поля в так называемом первом борновском приближении.

В работе [2] были получены формулы для полей в произвольным образом выбранном объеме, используя вторую форму векторной функции Грина. Другую формулу для полей в неоднородной немагнитной среде мы получим, используя эту вторую форму векторной функции Грина. Не приводя вывода, представим лишь результат:

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}_p, t_p) = \mathbf{E}(\mathbf{r}_p, t_p) + 4\pi\mathbf{P}(\mathbf{r}_p, t_p) = -\frac{c}{4\pi} \text{rot}_p \text{rot}_p \int_{-\infty}^{+\infty} \oint_S \frac{\mathbf{n} \times \mathbf{B} \theta(t_p - t - R/c)}{R} dS dt$$

$$\begin{aligned}
& -\frac{1}{4\pi} \text{rot}_p \oint_S \frac{[\mathbf{n} \times \mathbf{E}]}{R} dS + \text{rot}_p \text{rot}_p \mathbf{Z}_1 - 4\pi \int_{-\infty}^{+\infty} \theta(t_p - t) \mathbf{j}_l(\mathbf{r}_p, t) dt + \text{rot}_p \text{rot}_p \mathbf{Z}_2, \\
& \mathbf{B}(\mathbf{r}_p, t_p) = -\frac{1}{4\pi} \text{rot}_p \oint_S \frac{[\mathbf{n} \times \mathbf{B}]}{R} dS + \frac{c}{4\pi} \text{rot}_p \text{rot}_p \int_{-\infty}^{+\infty} \oint_S \frac{(\mathbf{n} \times \mathbf{E})}{R} \theta(t_p - t - R/c) dS dt \\
& + \frac{1}{c} \text{rot}_p \frac{\partial \mathbf{Z}_1}{\partial t_p} + \frac{1}{c} \text{rot}_p \frac{\partial \mathbf{Z}_2}{\partial t_p}.
\end{aligned} \tag{5}$$

Здесь

$$\mathbf{Z}_1 = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_V \frac{\mathbf{j}_l \theta(t_p - t - R/c)}{R} dV dt, \tag{6}$$

$$\mathbf{Z}_2 = \int_V \frac{[\mathbf{P}]}{R} dV. \tag{7}$$

Формулы (6) и (7) – обобщенные на нестационарный случай векторы Герца для зарядов, совершающих заданное движение, и индуцированных зарядов, соответственно [2]. Вектор поляризации связан с полем по формуле (3). Поверхностные интегралы обусловлены внешними относительно объема зарядами. Если рассматривать все пространство, то (5) можно написать в виде

$$\begin{aligned}
& \mathbf{D}(\mathbf{r}_p, t_p) = \mathbf{E}_{\text{out}} + \text{rot}_p \text{rot}_p \mathbf{Z}_1 - 4\pi \int_{-\infty}^{+\infty} \theta(t_p - t) \mathbf{j}_l(\mathbf{r}_p, t) dt + \text{rot}_p \text{rot}_p \mathbf{Z}_2, \\
& \mathbf{B}(\mathbf{r}_p, t_p) = \mathbf{B}_{\text{out}} + \frac{1}{c} \text{rot}_p \frac{\partial \mathbf{Z}_1}{\partial t_p} + \frac{1}{c} \text{rot}_p \frac{\partial \mathbf{Z}_2}{\partial t_p},
\end{aligned} \tag{8}$$

где \mathbf{E}_{out} и \mathbf{B}_{out} – поля внешних зарядов. При выводе были использованы известные формулы векторного анализа [9–11] и свойства дельта-функции Дирака [12].

2.2. Нестационарный случай прерывных полей

В случае прерывных полей область интегрирования по поверхности в (1) в интегралах, содержащих полные роторы, делится на две части (или несколько). В каждой из этих частей поля непрерывны, но претерпевают разрыв на границе этих областей [5] (рис.2). Такая ситуация возникает, например, при применении граничных условий Кирхгофа в задаче дифракции на непрозрачном экране с отверстием. Будем предполагать, как обычно, что заряды находятся в полупространстве до экрана, требуется найти поле в полупространстве за экраном. В каждом из полупространств нет вещества. Граничные условия Кирхгофа предполагают, что поля в отверстии имеют те же значения, как при отсутствии экрана, а непосредственно под экраном равны нулю. При таких граничных условиях поля претерпевают разрыв на границе отверстия. Тогда интегралы по замкнутой по-

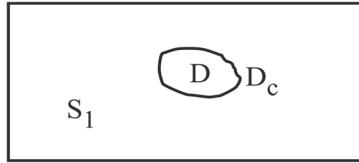


Рис.2. Поверхность интегрирования в случае прерывных полей. Показаны части поверхности интегрирования S_1 и D , на границе D_c которых поля прерывны.

верхности превращаются в интегралы по области D отверстия. Поэтому интегралы по поверхности, содержащие полные роторы, не равны нулю. Согласно теореме Стокса, эти интегралы выражаются через интегралы по контуру D_c отверстия. Тогда, из (1), для полей получим:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}_p, t_p) &= \frac{1}{4\pi c} \frac{\partial}{\partial t_p} \int_D [(\mathbf{n} \times \mathbf{B}^i)] \frac{1}{R} dS + \frac{1}{4\pi} \text{rot}_p \int_D \frac{[(\mathbf{E}^i \times \mathbf{n})]}{R} dS + \frac{1}{4\pi} \text{grad}_p \int_D \frac{[\mathbf{E}^i \cdot \mathbf{n}]}{R} dS \\ &- \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t_p} \int_V \frac{[\mathbf{j}]}{R} dV - \text{grad}_p \int_V \frac{[\rho]}{R} dV - \frac{c}{4\pi} \text{grad}_p \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{D_c} \frac{\theta(t_p - t - R/c)}{R} \mathbf{B}^i d\mathbf{l} dt, \\ \mathbf{B}(\mathbf{r}_p, t_p) &= -\frac{1}{4\pi} \text{rot}_p \oint_S \frac{[(\mathbf{n} \times \mathbf{B}^i)]}{R} dS + \frac{1}{4\pi c} \frac{\partial}{\partial t_p} \oint_S \frac{[(\mathbf{E}^i \times \mathbf{n})]}{R} dS + \frac{1}{4\pi} \text{grad}_p \oint_S \frac{[\mathbf{B}^i \cdot \mathbf{n}]}{R} dS \\ &+ \frac{1}{c} \text{rot}_p \int_V \frac{[\mathbf{j}]}{R} dV + \frac{c}{4\pi} \text{grad}_p \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{D_c} \frac{\theta(t_p - t - R/c)}{R} \mathbf{E}^i d\mathbf{l} dt. \end{aligned} \quad (9)$$

Здесь верхний индекс « i » у полей обозначает значение полей в отсутствие экрана. Последние члены в выражениях для электрического и магнитного полей, содержащих контурные интегралы, являются обобщением на нестационарный случай добавочных членов, введенных Котлером в случае гармонических полей. Как известно, в случае гармонически зависящих от времени прерывных полей Котлер предложил добавить к векторным уравнениям дифракции Кирхгофа члены, которые обеспечивают удовлетворение полей уравнениям Максвелла [5, 6, 13]. Формулы (9), как нам известно, получены впервые и непосредственно с применением векторной функции Грина, без дополнительных предположений, которые являлись бы обобщением предположений Котлера для нестационарного случая.

3. Уравнения нестационарного электромагнитного поля в однородных средах

Полученные формулы (2), (4), (5) и (8) применимы также в случае однородных изотропных сред, в которых диэлектрическая и магнитная проницаемости не зависят от координат. В работе [4] на основе соответствующей векторной функции Грина однородной среды с временной дисперсией получены формулы для поля в гармоническом случае (формулы (22) в [4]). Беря Фурье-интегралы этих формул (22) из [4] по частоте, получим формулы именно для однородных сред в нестационарном случае. Не приводя вывода, здесь показываем лишь результат для немагнитных сред ($\mu = 1$):

$$\begin{aligned} \mathbf{D}(\mathbf{r}_p, t_p) &= -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial}{\partial t_p} \int_V \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t_p - t' - t'') \tilde{\epsilon}(t') \mathbf{j}_i(\mathbf{r}, t'') dt' dt'' dV \\ &- 4\pi \text{grad}_p \int_V \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t_p - t') \rho_1(\mathbf{r}, t') dt' dV - \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t_p} \oint_S \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t_p - t' - t'') \tilde{\epsilon}(t') \mathbf{B}(\mathbf{r}, t'') \times d\mathbf{S} dt' dt'' \\ &- \text{rot}_p \oint_S \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t_p - t') \mathbf{D}(\mathbf{r}, t') \times d\mathbf{S} dt' + \text{grad}_p \oint_S \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t_p - t') \mathbf{D}(\mathbf{r}, t') d\mathbf{S} dt', \\ \mathbf{B}(\mathbf{r}_p, t_p) &= \frac{4\pi}{c} \text{rot}_p \int_V \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t_p - t') \mathbf{j}_i(\mathbf{r}, t') dt' dV + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t_p} \oint_S \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t_p - t') \mathbf{D}(\mathbf{r}, t') \times d\mathbf{S} dt' \\ &+ \text{rot}_p \oint_S \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t_p - t') \mathbf{B}(\mathbf{r}, t') \times d\mathbf{S} dt' + \text{grad}_p \oint_S \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t_p - t') \mathbf{B}(\mathbf{r}, t') d\mathbf{S} dt'. \end{aligned} \quad (10)$$

Здесь

$$\tilde{\epsilon}(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \epsilon(\omega) e^{-i\omega t} d\omega = \delta(t) + 4\pi\kappa(t), \quad (11)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{D}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + 4\pi\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{\epsilon}(\mathbf{r}, t-t') \mathbf{E}(\mathbf{r}, t') dt', \\ \tilde{G}_s(R, t) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} G_s(R, \omega) e^{-i\omega t} d\omega, \\ G_s(R, \omega) &= e^{i\omega R \sqrt{\epsilon(\omega)/c}} / (4\pi R). \end{aligned} \quad (12)$$

Дальнейшее исследование возможно, если задавать зависимость диэлектрической проницаемости от частоты. В самом простом случае диэлектрическая проницаемость не зависит от частоты. В таком случае $\tilde{\epsilon}(t) = \epsilon\delta(t)$, $\tilde{G}_s(R, t) = \delta(t - R\sqrt{\epsilon}/c) / (4\pi R)$, $\mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = \epsilon\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ и из (10) для полей имеем:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}_p, t_p) &= -\frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t_p} \oint_V \frac{[\mathbf{j}_l]}{R} dV - \frac{1}{\epsilon} \text{grad}_p \oint_V \frac{[\rho_l]}{R} dV - \frac{1}{4\pi c} \frac{\partial}{\partial t_p} \oint_S \frac{[(\mathbf{B} \times d\mathbf{S})]}{R} \\ &\quad - \frac{1}{4\pi} \text{rot}_p \oint_S \frac{[(\mathbf{E} \times d\mathbf{S})]}{R} + \frac{1}{4\pi} \text{grad}_p \oint_S \frac{[(\mathbf{E} d\mathbf{S})]}{R}, \\ \mathbf{B}(\mathbf{r}_p, t_p) &= \frac{1}{c} \text{rot}_p \oint_V \frac{[\mathbf{j}_l]}{R} dV + \frac{\epsilon}{c} \frac{\partial}{\partial t_p} \oint_S \frac{[(\mathbf{E} \times d\mathbf{S})]}{R} + \frac{1}{4\pi} \text{rot}_p \oint_S \frac{[(\mathbf{B} \times d\mathbf{S})]}{R} + \frac{1}{4\pi} \text{grad}_p \oint_S \frac{[(\mathbf{B} d\mathbf{S})]}{R}, \end{aligned} \quad (13)$$

здесь $[\cdot]$ показывает значение функции в скобках в момент времени $t_p - R\sqrt{\epsilon}/c$.

В среде скорость распространения равна $c/\sqrt{\epsilon}$.

$$\begin{aligned} \mathbf{D}(\mathbf{r}_p, t_p) &= 4\pi \text{rot}_p \text{rot}_p \int_V \int_{-\infty}^{t_p} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{\epsilon}(t' - t'' - t''') \tilde{G}_s(R, t'') \mathbf{j}_l(t''') dt''' dt'' dt' dV - 4\pi \int_{-\infty}^{t_p} \mathbf{j}_l(\mathbf{r}_p, t') dt' \\ &\quad + \text{rot}_p \oint_S \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t_p - t') \mathbf{D}(\mathbf{r}, t') \times d\mathbf{S} dt' + c \text{rot}_p \text{rot}_p \oint_S \int_{-\infty}^{t_p} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t' - t'') \mathbf{B}(\mathbf{r}, t'') \times d\mathbf{S} dt'' dt', \\ \mathbf{B}(\mathbf{r}_p, t_p) &= \frac{4\pi}{c} \text{rot}_p \int_V \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t_p - t') \mathbf{j}_l(\mathbf{r}, t') dt' dV + \text{rot}_p \oint_S \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t_p - t') \mathbf{B}(\mathbf{r}, t') \times d\mathbf{S} dt' \\ &\quad - c \text{rot}_p \text{rot}_p \oint_S \int_{-\infty}^{t_p} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{G}_s(R, t' - t'') \mathbf{E}(\mathbf{r}, t'') \times d\mathbf{S} dt'' dt'. \end{aligned} \quad (14)$$

В случае, когда диэлектрическая проницаемость не зависит от частоты, из (14) получим

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}_p, t_p) &= \text{rot}_p \text{rot}_p \int_V \int_{-\infty}^{t_p} \frac{[\mathbf{j}_l]'}{R} dt' dV - \frac{4\pi}{\epsilon} \int_{-\infty}^{t_p} \mathbf{j}_l(\mathbf{r}_p, t') dt' \\ &\quad + \frac{1}{4\pi} \text{rot}_p \oint_S \frac{[(\mathbf{E} \times d\mathbf{S})]}{R} + \frac{c}{4\pi\epsilon} \text{rot}_p \text{rot}_p \oint_S \int_{-\infty}^{t_p} \frac{[(\mathbf{B} \times d\mathbf{S})]'}{R} dt', \\ \mathbf{B}(\mathbf{r}_p, t_p) &= \frac{1}{c} \text{rot}_p \int_V \frac{[\mathbf{j}_l]}{R} dV + \frac{1}{4\pi} \text{rot}_p \oint_S \frac{[(\mathbf{B} \times d\mathbf{S})]}{R} - \frac{c}{4\pi} \text{rot}_p \text{rot}_p \oint_S \int_{-\infty}^{t_p} \frac{[(\mathbf{E} \times d\mathbf{S})]'}{R} dt', \end{aligned} \quad (15)$$

где $[\cdot]'$ означает, что значение функции внутри скобки берется в момент времени в момент времени $t' - R\sqrt{\varepsilon} / c$.

Полученные формулы могут быть применены в задачах дифракционного излучения, эффекта Смита–Парселя и т.д. [14–21].

4. Заключение

В этой работе, являющейся продолжением работ [1–4], исследуется векторная теория дифракции и полей заряженных частиц в электродинамике. Рассмотрены нестационарные поля как в однородных, так и в неоднородных средах. В нестационарном случае получены формулы для полей в произвольным образом выбранном объеме с применением Фурье-преобразования формул, полученных на основе векторной функции Грина в гармоническом случае в работе [4]. Приведены две формы для полей в нестационарном случае. Применение полученных формул к задаче дифракции на отверстии в непрозрачном экране позволило непосредственно получить обобщение векторной формулы Кирхгофа–Котлера на нестационарный случай.

ЛИТЕРАТУРА

1. **M.K. Balyan.** J. Contemp. Phys. (Armenian Ac. Sci.), **57**, 331 (2022).
2. **M.K. Balyan.** J. Contemp. Phys. (Armenian Ac. Sci.), **58**, 92 (2023).
3. **M.K. Balyan.** J. Contemp. Phys. (Armenian Ac. Sci.), **58**, 188 (2023).
4. **M.K. Balyan.** J. Contemp. Phys. (Armenian Ac. Sci.), **58**, (2023) (accepted for publication).
5. **J.A. Stratton.** Electromagnetic Theory. New York, McGraw-Hill, 1941.
6. **F. Kottler.** Ann. Phys. (Leipzig), **71**, 457 (1923).
7. **M. Born, E. Wolf.** Principles of Optics. Oxford: Pergamon Press, 1980.
8. **R. Boyd.** Nonlinear Optics. New York, Academic, 2003.
9. **G.A. Korn, T.M. Korn.** Mathematical Handbook for Scientists and Engineers. New York: McGraw Hill, 1968.
10. **B.G. Levich.** Theoretical Physics. An Advanced Text, vol. 1, Theory of the Electromagnetic Field. Theory of Relativity. Amsterdam, London: North-Holland Publishing Company, 1970.
11. **J.D. Jackson.** Classical Electrodynamics. New York, Wiley, 1998.
12. **A.A. Sokolov, I. M. Ternov.** Radiation from Relativistic Electrons. New York: American Institute of Physics, 1986.
13. **S. Solimeno, B. Crosignani, P. DiPorto.** Guiding, Diffraction and Confinement of Optical Radiation. New York: Academic Press, 1986.
14. **М.Л. Тер-Микаелян, Б.В. Хачатрян.** Докл. Акад. Наук Арм ССР, Физ., **40**, 13 (1965).
15. **Б.В. Хачатрян.** Изв. Акад. Наук Арм ССР, Физ.-Мат. Науки, **18**, 133 (1965).
16. **B.M. Bolotovskii, G.V. Voskresenskii.** Sov. Phys. Usp. **9**, 73 (1966).
17. **B.M. Bolotovskii, E. A. Galst'yan.** Phys. Usp., **43**, 755 (2000).
18. **Y. Shibata, Sh. Hasebe, K. Ishi, T. Takahashi, T. Ohsaka, M. Ikezawa, T. Nakazato,**

- M. Oyamada, Sh. Urasawa, T. Yamakawa, Y. Kondo.** Phys. Rev., **E52**, 6787 (1995).
19. **A.P. Potylitsyn.** Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, **145**, 60 (1998).
20. **A.R. Mkrtchyan, L.A. Gevorgian, L.Sh. Grigorian, B.V. Khachatryan, A.A. Saharian.** Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, **145**, 67 (1998).
21. **A.P. Potylitsyn.** Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, **145**, 169 (1998).

**ՎԵԿՏՈՐԱԿԱՆ ՈՉ ՍՍԱՑԻՈՆԱՐ ԷԼԵԿՏՐԱՄԱԳՆԻՍԱԿԱՆ ԴԻՖՐԱԿՏԱՅԻՆ
ԴԱՇՏԵՐԸ ԵՎ ԼԻՑՔԵՐԻ ԴԱՇՏԵՐԸ ՄԻՋԱՎԱՅՐԵՐՈՒՄ**

Մ.Կ. ԲԱԼՅԱՆ

Դիտարկված են ոչ ստացիոնար էլեկտրամագնիսական դաշտերը և լիցքերի դաշտերը կամայականորեն ընտրված ծավալում ինչպես համասեռ, այնպես էլ անհամասեռ միջավայրերում: Այդ բանաձևերը ներկայացված են երկու տեսքով, որոնցից յուրաքանչյուրն ունի իր կիրառական առավելությունները: Անմիջականորեն ստացված են նաև Կիրխոֆ–Կոտլերի վեկտորական բանաձևերի ընդհանրացումները խզվող ոչ ստացիոնար դաշտերի համար:

**VECTOR NON-STATIONARY ELECTROMAGNETIC DIFFRACTION FIELDS
AND FIELDS OF CHARGES IN MEDIA**

M.K. BALYAN

Vector non-stationary diffraction electromagnetic fields and fields of charges in an arbitrarily chosen volume in both homogeneous and inhomogeneous media are considered. These formulas are presented in two forms, each of which has its own advantages in applications. Directly the generalization of the Kirchhoff–Kottler vector formulas for discontinuous fields in the non-stationary case are also obtained.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.547–554 (2023)

УДК 539.1

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-547

АБСОРБЦИОННЫЙ АТОМНЫЙ ИНТЕРФЕРОМЕТР

А.Ж. МУРАДЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

e-mail: muradyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 16 октября 2023 г.)

Теоретически представлен новый тип атомного интерферометра, в котором регистрация осуществляется методом абсорбционной спектроскопии зондирующего излучения. Для расщепления входного атомного пучка используется взаимодействие со встречными резонансными волнами. Помимо этого, атом приобретает также равные населенности на внутренних энергетических уровнях. Взаимодействие с последующей бегущей волной приводит к интерференции между соседними импульсными состояниями атома, и распределение становится периодически меняющимся, с сильной асимметрией относительно входного значения импульса. На этапе измерения результат интерференции волн материи воспроизводится спектральным распределением зондирующей электромагнитной волны.

1. Введение

Атомный интерферометр [1–3] представляет собой передовую технологию в квантовой метрологии и квантовом зондировании [4–7]. Падающий волновой пакет разделяется на два пути, которые затем зеркально отражаются и рекомбинируются. При рекомбинации накопленная разность фаз между путями на выходных портах отображается как интерференционная картина для населеностей атомных уровней. Это наиболее прямой способ регистрации результата интерференции с учетом принципа квантового измерения, но не единственный.

В настоящей статье предлагается новый тип атомного интерферометра, в котором на этапе регистрации используется метод абсорбционной спектроскопии. Это своего рода многоимпульсный интерферометр, где основная стадия интерференции волн материи осуществляется оптическими переходами между основным и возбужденным состояниями атома. Генерация импульсных состояний происходит путем дифракции атома на резонансных встречных волнах, которые одновременно одинаково заселяют его основное и возбужденное внутренние состояния. В этом случае известное приближение Рамана–Ната обобщается и распространяется на более длительные времена взаимодействия. За стадией дифракции следует свободное распространение атома. Последующее взаимодействие с резонансной бегущей волной реализует интерференцию атомных волн материи. При этом населенности внутренних энергетических уровней атома остаются практически равными, но в них формируются сильные и периодически осциллирующие асимметрии импульсных распределений. В завершение, метод спектроскопии поглощения проектирует спектр импульсного распределения атома на частотный спектр поглощения зондирующего электромагнитного излучения.

2. Генерация и интерференция импульсных состояний атома

2.1. Атом в резонансном поле встречных волн в расширенном приближении Рамана–Ната

Рассмотрим двухуровневый атом с массой M и частотой оптического перехода ω_0 , взаимодействующий со встречными волнами той же резонансной частоты $\omega = \omega_0$ и одинаковой напряженности E электрического поля. Динамические уравнения этой системы хорошо известны и могут быть записаны в виде:

$$\left(i \frac{\partial}{\partial t} + \frac{\hbar}{2M} \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) g(z, t) = -2\zeta \cos kz e(z, t), \quad (1a)$$

$$\left(i \frac{\partial}{\partial t} + \frac{\hbar}{2M} \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) e(z, t) = -2\zeta \cos kz g(z, t), \quad (1b)$$

где $g(z, t)$ и $e(z, t)$ – волновые функции в полном атомном состоянии

$$\psi(z, t) = g(z, t)\phi_g e^{-iE_g t} + e(z, t)\phi_e e^{-iE_e t},$$

соответствующие основному и возбужденному внутренним состояниям, соответственно, $\zeta = dE / \hbar$ – частота Раби бегущей волны, d – матричный элемент dipольного перехода, $k = \omega / c$.

Предполагается, что атом перед взаимодействием либо покоялся, либо, если он имел распределение по импульсу, то оно было дискретным с шагом $\hbar k$:

$$g(z, 0) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} f_n e^{inkz}, \quad e(z, 0) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \bar{f}_n e^{inkz}. \quad (2)$$

Тогда общие решения уравнений (1a, b) можно искать в виде

$$g(z, t) = \sum_{m,n=-\infty}^{\infty} i^m g_m(n, t) e^{i(m+n)kz - i(m+n)^2 \omega_r t}, \quad e(z, t) = \sum_{m,n=-\infty}^{\infty} i^m e_m(n, t) e^{i(m+n)kz - i(m+n)^2 \omega_r t}, \quad (3)$$

где m – число импульсов отдачи $\hbar k$, приобретаемых атомом за счет поглощения (испускания) фотона в поле встречных волн и $\omega_r = \hbar k^2 / 2M$ – частота отдачи.

Уравнение Шредингера для коэффициентов-функций $g_m(n, t)$ и $e_m(n, t)$ дает следующие рекуррентные дифференциальные уравнения:

$$\frac{dg_m(n, t)}{dt} = \zeta e_{m-1}(n, t) e^{i(2m+2n-1)\omega_r t} - \zeta e_{m+1}(n, t) e^{i(2m+2n+1)\omega_r t}, \quad (4a)$$

$$\frac{de_m(n, t)}{dt} = \zeta g_{m-1}(n, t) e^{i(2m+2n-1)\omega_r t} - \zeta g_{m+1}(n, t) e^{i(2m+2n+1)\omega_r t}. \quad (4b)$$

Видно, что замена $t \rightarrow t + 2\pi / \omega_r$ не меняет уравнения и поэтому решения периодические с периодом $T = 2\pi / \omega_r$.

Система (4a,b) не имеет точных аналитических решений. Известное приближение Рамана–Ната соответствует замене экспоненциальных членов на единицу, т.е. когда $(2m+2n\pm 1)\omega_r t \ll 1$. Иногда это называют приближением короткого времени взаимодействия. Заменим его более слабым требованием $\omega_r t \ll 1$. Тогда, считая атом до взаимодействия находящимся в основном состоянии, можно

получить решения уравнения (6а,б) в виде

$$g_m(n, t) = f_n \frac{1 + (-1)^m}{2} e^{i 2(m+n)\omega_r t} J_m \left(\frac{\zeta}{\omega_r(m+n)} \sin(2\omega_r(m+n)t) \right), \quad (5a)$$

$$e_m(n, t) = f_n \frac{1 - (-1)^m}{2} e^{i 2(m+n)\omega_r t} J_m \left(\frac{\zeta}{\omega_r(m+n)} \sin(2\omega_r(m+n)t) \right), \quad (5b)$$

где $J_m(x)$ – функция Бесселя. Решения (5а,б) сохранили указанную периодичность периода $T = 2\pi/\omega_r$, и если в качестве показателя корректности формул (5а,б) принять условие нормировки $\sum_{m,n=-\infty}^{\infty} (|g_m(n, t)|^2 + |e_m(n, t)|^2) = 1$, то они демонстрируют погрешность менее одного процента в пределах неравенства $\zeta t \leq 27$.

Теперь целесообразно переписать выражения (3) в виде

$$g(z, t) = \sum_{l=-\infty}^{\infty} g_l(t) e^{i lkz - i l^2 \omega_r t}, \quad e(z, t) = \sum_{l=-\infty}^{\infty} e_l(t) e^{i lkz - i l^2 \omega_r t}, \quad (6)$$

$$g_l(t) = e^{i 2 l \omega_r t} \sum_{s=-\infty}^{\infty} i^{\frac{l-s}{2}} f_{\frac{l+s}{2}} \frac{1 + (-1)^{\frac{l-s}{2}}}{2} J_{\frac{l-s}{2}} \left(\frac{\zeta}{\omega_r l} \sin(2\omega_r l t) \right), \quad (7a)$$

$$e_l(t) = e^{i 2 l \omega_r t} \sum_{s=-\infty}^{\infty} i^{\frac{l-s}{2}} f_{\frac{l+s}{2}} \frac{1 - (-1)^{\frac{l-s}{2}}}{2} J_{\frac{l-s}{2}} \left(\frac{\zeta}{\omega_r l} \sin(2\omega_r l t) \right) \quad (7b)$$

– амплитуды вероятности l -фотонного импульса отдачи для основного и возбужденного внутренних уровней соответственно. Их характерный вид показан на рис.1 (при $\zeta = 1.8 \times 10^9$ Гц и $t = 10$ нс). В частности, количество состояний импульса и характер его распределения более чем достаточны для определения оптимальных условий для последующего обнаружения интерференции волн

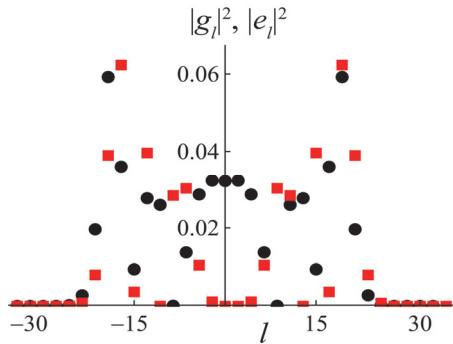


Рис.1. Характерный вид распределения вероятностей импульсов для основного (круги) и возбужденных (квадраты) внутренних состояний атома, генерируемых полем встречных резонансных волн.

атомной материи.

2.2. Эволюция импульсного распределения атома в поле бегущей волны

После генерации спектра импульса с (почти) равными заселенностями основного и возбужденных внутренних энергетических уровней интерферометр

предполагает дальнейшее взаимодействие с одной из бегущих оптических волн. Правда, этому может предшествовать некоторое время свободное распространение атома, т.е.

$$g(z,t) = \sum_{l=-\infty}^{\infty} g_l(t_1) e^{ilkz - il^2 \omega_r t}, \quad e(z,t) = \sum_{l=-\infty}^{\infty} e_l(t_1) e^{ilkz - il^2 \omega_r t}, \quad (8)$$

где t_1 – момент завершения встречных волн.

По истечении времени свободного распространения t_1 атом начинает взаимодействие с резонансной бегущей волной, при котором происходит наложение основного и возбужденного состояний атома, различающихся импульсом отдачи $\hbar k$, и тем самым реализуется их интерференция. В результате выражения (10) преобразуются в следующие:

$$g(z,t) = \sum_{l=-\infty}^{\infty} g_l(t) e^{ilkz}, \quad e(z,t) = \sum_{l=-\infty}^{\infty} e_l(t) e^{ilkz}, \quad (9)$$

где

$$g_l(t) = c_{l,1} e^{-i\lambda_{l,1}\omega_r(t-t_2)} + c_{l,2} e^{-i\lambda_{l,2}\omega_r(t-t_2)}, \quad e_l(t) = d_{l,1} e^{-i\mu_{l,1}\omega_r(t-t_2)} + d_{l,2} e^{-i\mu_{l,2}\omega_r(t-t_2)}, \quad (10)$$

$$c_{l,1} = -\frac{\xi^* e_{l+1}(t_2) + (\lambda_{l,2} - l^2) g_l(t_2)}{\lambda_{l,1} - \lambda_{l,2}}, \quad c_{l,2} = \frac{\xi^* e_{l+1}(t_2) + (\lambda_{l,1} - l^2) g_l(t_2)}{\lambda_{l,1} - \lambda_{l,2}}, \quad (11)$$

$$d_{l,1} = -\frac{\xi g_{l-1}(t_2) + (\mu_{l,2} - l^2) e_l(t_2)}{\mu_{l,1} - \mu_{l,2}}, \quad d_{l,2} = \frac{\xi g_{l-1}(t_2) + (\mu_{l,1} - l^2) e_l(t_2)}{\mu_{l,1} - \mu_{l,2}},$$

$$\lambda_{l,1(2)} = \frac{1}{2} + l + l^2 \mp \sqrt{\frac{1}{4} + l + l^2 + |\xi|^2}, \quad \mu_{l,1(2)} = \frac{1}{2} - l + l^2 \mp \sqrt{\frac{1}{4} + l + l^2 + |\xi|^2},$$

$$g_l(t_2) = e^{i2l\omega_r t_1 - il^2 \omega_r t_2} \sum_{s=-\infty}^{\infty} i^{\frac{l-s}{2}} f_{\frac{l+s}{2}} \frac{1 + (-1)^{\frac{l-s}{2}}}{2} J_{\frac{l-s}{2}} \left(\frac{\xi}{l} \sin(2\omega_r l t_1) \right),$$

$$g_l(t_2) = e^{i2l\omega_r t_1 - il^2 \omega_r t_2} \sum_{s=-\infty}^{\infty} i^{\frac{l-s}{2}} f_{\frac{l+s}{2}} \frac{1 - (-1)^{\frac{l-s}{2}}}{2} J_{\frac{l-s}{2}} \left(\frac{\xi}{l} \sin(2\omega_r l t_1) \right),$$

и $\xi = \zeta / \omega_r$.

Формула (9) с обозначениями (10), (11) и далее завершает описание генерации и интерференции волн атомарного вещества в интерферометре. Здесь существуют два типа интерференции. Первый из них, уже упомянутый выше и считающийся основным для интерферометрических целей, суммирует импульсные состояния основного и возбужденного состояний атома и представляется двумя слагаемыми в знаменателях выражений (11). Второй представляет собой хорошо известную суперпозицию импульсных состояний на этапе их генерации в поле встречных волн и задается суммами в пространственно-временной волновой функции (9).

3. Зондирование спектрально-поглощающим методом

Для измерения состояния (9), запутанного между поступательной и внутренней степенями свободы, в интерферометре используется спектрально-поглощающий метод. Здесь ограничимся изложением основной идеи применения и

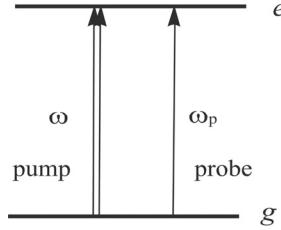


Рис.2. Схема двухуровневого атома в накачивающем и пробном полях. Поле накачки создает дискретные распределения импульса на основном и возбужденном внутренних уровнях энергии и тем самым создает перепутывание между внутренними и внешними степенями свободы атома. Взаимодействие с пробным полем, являясь процессом измерения, преобразует спектр импульсного распределения атома в соответствующий спектр поглощения (усиления) пробы.

рассмотрим простую схему поглощения–усиления пробного поля (рис.2). Использование этого метода предполагает наличие не одного атома (случай одного атома, как и случай бозе-эйнштейновского конденсата, будет рассмотрен позже, в отдельной публикации), а облака лазерно-охлаждаемых атомов. Благодаря эффекту Доплера различные импульсные состояния атома поглощают (усиливают) разные частоты пробного излучения, перенося закономерности распределения импульсов атома на частотный спектр зондирующего излучения, проходящего через атомную среду.

Математика расчета амплитуды пробного поля хорошо известна [8], поэтому перейдем к полученному выражению:

$$E_p(z, t) = E_p(0, t) \left[-iq \sum_{l=-\infty}^{\infty} \left(\frac{|g_l(t_3)|^2}{\Delta_p - (l+1/2)k_p v_r + i\gamma} + \frac{|e_l(t_3)|^2}{-\Delta_p - (l-1/2)k_p v_r + i\gamma} \right) z \right], \quad (12)$$

где $q = \pi N |d|^2 \omega_p / \hbar c$, N и d – плотность атомов и матричный элемент оптического перехода, $\Delta_p = \omega_p - \omega_0$, $v_r = \hbar k / M$ – однофотонная скорость отдачи, t_3 – момент выключения бегущей волны накачки, а $g_l(t_3)$ и $e_l(t_3)$ определяются выражениями (10) при $t = t_3$.

Имея общее решение (12), отметим, что существует ряд параметров, таких как частоты Раби и длительности встречных и бегущих волн, а также свободного распространения, которые можно варьировать с целью оптимизации информации, получаемой выходным сигналом. Для этого лучше всего исходить из той закономерности, что бегущая волна накачки раскачивает распределение, а тем самым и средний импульс на каждом уровне энергии, в противоположные стороны [9]. Одна из таких ситуаций проиллюстрирована на рис.3. При подборе параметров время свободного распространения не предполагается: $\tau_2 = \tau_1 = 2.8 \times 10^{-3}$ и $\xi = 3.5 \times 10^3$. Импульсы группируются на противоположных сторонах практически одновременно.

Амплитуды этих колебаний должны быть максимальными. Заметим, что средние импульсы противоположных колебаний легко могут достигать нескольких десятков однофотонных импульсов отдачи, создавая своеобразного кота Шредингера.

Распределения атомных импульсов в момент их максимальной асимметрии

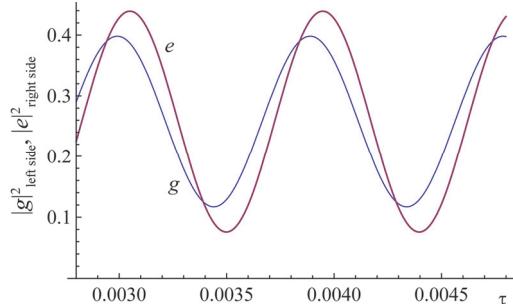


Рис.3. Временное поведение населения импульсных состояний на основном (график g) и на возбужденном (график e) внутренних уровнях энергии атома. На оси времени $\tau \equiv \omega_r(t - t_2)$.

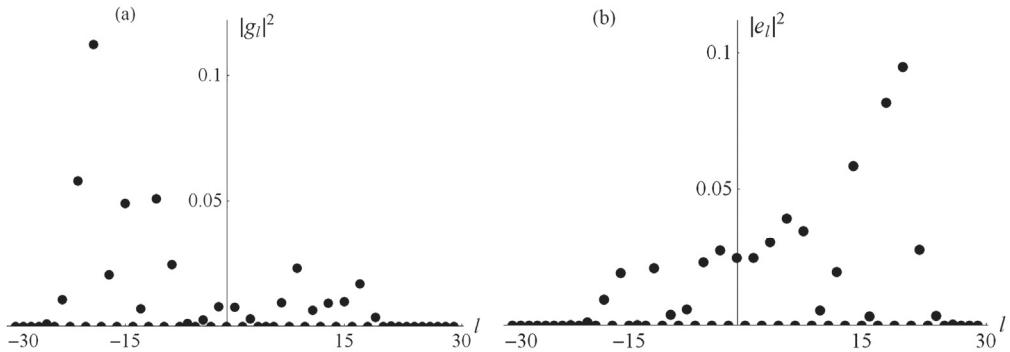


Рис.4. Сильная асимметрия в распределении импульсов атома в (а) основном и (б) возбужденном внутренних состояниях, образованных бегущей волной после воздействия стоячей волны. Длительность бегущей волны соответствует первому максимуму графиков из рис.3. В физических единицах в случае атома натрия она составляет около 30 нс.

показаны на рис.4а,б соответственно для основного и возбужденного внутренних состояний.

Эта выраженная асимметрия, образующаяся в результате интерференции волн атомарного вещества на этапе взаимодействия с бегущей волной, на следующем этапе измерения методом абсорбционной спектроскопии, основанном на эффекте Доплера, трансформируется в аналогичную асимметрию в спектре слабого пробного поля. При этом населенности импульсных состояний основного состояния атома будут выглядеть как линии поглощения, а заселенности возбужденного состояния – как линии усиления. Такой спектр, соответствующий условиям рис.4, показан на рис.5а. Следующий спектр на рис.5б построен для момента первого минимума графиков рис.3, когда асимметрия противоположна случаю на рис.4, т.е. когда импульсные состояния основного внутреннего состояния максимально сконцентрированы в правой части распределения, а состояния возбужденного внутреннего состояния сосредоточены в левой части распределения. Видно, что имеется обширная информация о расположении и интенсивностях линий поглощения и усиления, которая при

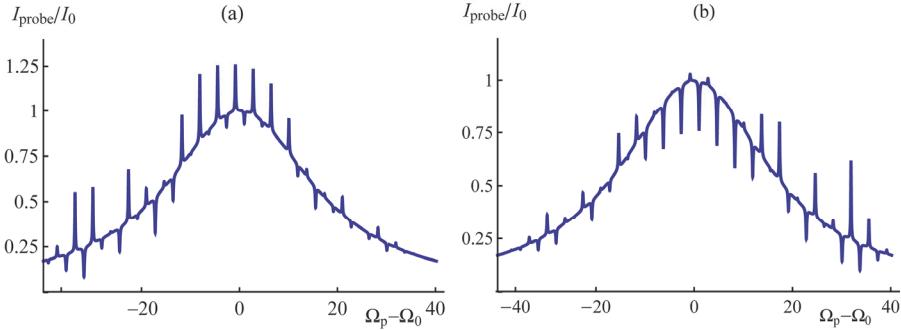


Рис.5. Частотный спектр пробного поля, прошедшего тонкую атомарную среду, подготовленную в запутанном состоянии внутренних и внешних степеней свободы [10–14] резонансным полем встречных волн и последующей бегущей волной. По оси абсцисс частоты представлены в единицах частоты отдачи Ω_r , которая для атома натрия, например, составляет около 10^5 Гц.

тщательном математическом моделировании даст необходимую информацию об интерференции волн атомной материи.

4. Заключение

Предложен тип многоимпульсного атомного интерферометра, в котором на этапе измерения регистрация атома на основном/возбужденном энергетическом уровне заменяется спектром атомного поглощения.

Атомное многоимпульсное состояние получается путем рассеяния на резонансных встречных волнах, одновременно поднимающих половину исходной населенности с основного энергетического уровня на возбужденный уровень. Интерференция импульсных волн материи – основной объект измерения – возникает вследствие последующего взаимодействия атома с одной из бегущих волн. В последнем случае распределение импульсов, первоначально симметричное, преобразуется в новую форму с колеблющейся сильной асимметрией. Разница между этими распределениями, до и после, являющаяся следствием исключительно интерференции атомарных волн материи, посредством абсорбционной спектроскопии преобразуется в частотный спектр зондирующего электромагнитного излучения.

В изложенном виде интерферометр предполагает одновременное наличие не одного рабочего атома, а облака, например, лазерно-охлажденных атомов. Этот кажущийся недостаток более чем компенсируется тем, что полная информация об интерференции волн материи получается не за счет статистического сбора информации из большого числа измерений, как в действующих ныне интерферометрах, а из одного измерения.

Работа выполнена при финансовой поддержке Комитета науки МОНКС РА в рамках Лаборатории исследования и моделирования квантовых явлений ЕГУ.

ЛИТЕРАТУРА

1. Atom Interferometry. P.R. Berman (Ed.), USA, CA, Academic Press, San Diego, 1997.
2. M. Kasevich, C. Chu. Phys. Rev. Lett., **67**, 181 (1991).
3. A.D. Cronin, J. Schmiedmayer, D.E. Pritchard. Rev. Mod. Phys., **81**, 1051 (2009).

4. **C.L. Degen, F. Reinhard, P. Cappellaro.** Rev. Mod. Phys., **89**, 035002 (2017).
5. **D. Schlippert, J. Hartwig, H. Albers, L. Richardson, C. Schubert, A. Roura, W. Schleich, W. Ertmer, E. Rasel.** Phys. Rev. Lett., **112**, 203002 (2014).
6. **M. Abe, P. Adamson, M. Borcean, D. Bortoletto, K. Bridges, S.P. Carman, S. Chattopadhyay, J. Coleman, N.M. Curfman, K. DeRose, et al.** Quantum Sci. Technol., **6**, 044003 (2021).
7. **B.K. Malia, Y. Wu, J. Martínez-Rincón, M.A. Kasevich.** Nature, **612**, 661 (2022).
8. **W. Demtroder.** Basic Concepts and Instrumentation, Germany, Berlin, Heidelberg, Springer, 1996, § 10.3.
9. **A.Zh. Muradyan, H.L. Haroutyunyan.** Phys. Rev. A, **62**, 013401 (2000).
10. **A. Khalique, F. Saif.** Phys. Letters, **314**, 37 (2003).
11. **M. Roghani, H. Helm, H.-P. Breuer.** Phys. Scr., **T140**, 014034 (2010).
12. **G.A. Abovyan, G.Yu. Kryuchkyan.** J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., **44**, 045502 (2011).
13. **J. Mizrahi, C. Senko, B. Neyenhuis, K.G. Johnson, W.C. Campbell, C.W.S. Conover, C. Monroe.** Phys. Rev. Lett., **110**, 203001 (2013).
14. **C.E. Maximo, R. Bachelard, G.D. de Moraes Neto, M.H.Y. Moussa.** JOSA B, **34**, 2452 (2017).

ԿԼԱՆՄԱՆ ԱՏՈՄԱՅԻՆ ԻՆՏԵՐՖԵՐՈՄԵՏՐ

Ա.Ժ. ՄՈՒՐԱԴՅԱՆ

Տեսականորեն ներկայացված է ատոմային ինտերֆերոմետրի նոր տեսակ, որում գրանցումն իրականացվում է զոնդող ձառագայթման կլանման սպեկտրոսկոպիայի միջոցով: Սուտքային ատոմային ձառագայթը տրոհելու համար օգտագործվում է փոխազդեցություն հանդիպակաց տարածվող ռեզոնանսային ալիքների հետ: Միաժամանակ, ատոմը ձեռք է բերում նաև հավասար բնակեցվածություններ ներքին էներգիական մակարդակներում: Հետագա վազող ալիքի հետ փոխազդեցությունը հանգեցնում է ատոմի հարևան իմպուլսային վիճակների միջև ինտերֆերենցիայի, և բաշխումը դարձնում է պարբերաբար փոփոխվող՝ մուտքային իմպուլսի արժեքի նկատմամբ ուժեղ անհամաչափությամբ: Չափման փուլում մատերիայի ալիքների ինտերֆերենցիայի արդյունքը վերարտադրվում է զոնդային էլեկտրամագնիսական ալիքի սպեկտրալ բաշխումով:

ABSORPTIVE ATOM INTERFEROMETER

A.Zh. MURADYAN

A new type of atomic interferometer is theoretically presented, in which registration is carried out by absorption spectroscopy of probing radiation. To split the input atomic beam, interaction with counterpropagating resonant waves is used. In addition, the atom also acquires equal populations at internal energy levels. The interaction with the subsequent traveling wave leads to interference between neighboring momentum states of the atom and the distribution becomes periodically varying with a strong asymmetry relative to the input momentum value. At the measurement stage, the result of the interference of matter waves is reproduced by the spectral distribution of the probing electromagnetic wave.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.555–563 (2023)

УДК 621.314.263

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-555

ГЕНЕРАЦИЯ УЗКОПОЛОСНОГО ТЕРАГЕРЦОВОГО ИМПУЛЬСА В КРИСТАЛЛЕ НИОБАТА ЛИТИЯ С ПОМОЩЬЮ ФАЗОВОЙ МАСКИ

Ю.О. АВЕТИСЯН*, А.О. МАКАРЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: yuriav@ysu.am

(Поступила в редакцию 29 июня 2023 г.)

В работе теоретически исследуется генерация узкополосного терагерцового (ТГц) излучения путем оптического выпрямления в искусственном периодически поляризованном кристалле ниобата лития (LN) с широкой апертурой. Последний формируется путем размещения многощелевой фазовой маски перед обычным (однодоменным) LN кристаллом. Показано, что ширину полосы ТГц генерации можно изменять в широких пределах, меняя линейный размер пучка накачки в кристалле. Также имеется возможность перестройки частоты генерации в диапазоне 0.4–0.8 ТГц путем построения изображения маски в кристалле с разными увеличениями. Согласно оценкам, энергия ТГц импульсов на частоте 0.5 ТГц в стехиометрическом LN кристалле при температуре 100 К составляет 265 мкДж при энергии импульса накачки 220 мДж.

1. Введение

Электромагнитное излучение в терагерцовом (ТГц) диапазоне частот от 1 до 10 ТГц представляет большой интерес как для фундаментальных исследований, так и для многих практических приложений [1–4]. В этой связи, разработка новых и усовершенствование существующих схем ТГц генерации является одной из актуальных задач физики. Оптическое выпрямление фемтосекундных лазерных импульсов в кристаллах периодически поляризованного ниобата лития (PPLN) является одним из наиболее распространенных способов генерации узкополосного ТГц излучения [5–10]. Благодаря пространственно-периодической модуляции знака нелинейной восприимчивости в PPLN, генерация ТГц излучения происходит в условиях квазифазового согласования, что содействует получению высокой выходной мощности. Однако, как правило, PPLN кристаллы формируются методом переполяризации доменов кристалла ниобата лития (LN) внешним электрическим полем. Вследствие этого размеры коммерчески доступных PPLN кристаллов в направлении спонтанной поляризации доменов (направление оптической оси кристалла Z), обычно, не превосходят 1 мм [11]. Ввиду этого ограничения допустимая мощность лазерного излучения в PPLN кристалле невелика, что приводит к сравнительно низкой энергии импульса ТГц излучения.

Недавно широкоапертурный образец PPLN кристалла был выполнен в виде стопы кристаллических LN пластин (диаметром 50 мм), каждая из которых была

поворнута на угол 180° относительно соседней [10]. В результате была получена генерация узкополосных ТГц импульсов на частоте 0.16 ТГц с рекордной энергией 1.3 мДж при энергии фемтосекундного импульса накачки 910 мДж. Однако этот метод не обеспечивает хорошую воспроизводимость получаемых образцов и, кроме того, для генерации на более высоких частотах необходимо оперирование со сверхтонкими пластинами. Интересный способ получения искусственных PPLN кристаллов с большой входной апертурой связан с расположением многощелевой фазовой маски перед обычным (монодоменным) LN кристаллом. В экспериментальном исследовании с использованием такого кристалла энергия генерации ТГц импульса была невысокой и составляла несколько десятков нДж [12]. Это вызвано как с невысокой мощностью импульса накачки, так и использованием конгруэнтного LN кристалла в форме треугольной призмы. Ввиду высокого ТГц-поглощения в кристалле, эффективная генерация происходит в узком слое вблизи выходной поверхности призмы, которая наклонена под углом 63° во избежание полного внутреннего отражения на границе кристалла. В результате значительная часть нелинейного кристалла лишь передает лазерный импульс накачки с входа в область эффективной ТГц генерации.

Для уменьшения действий этих ограничений мы предлагаем использовать стехиометрический LiNbO_3 (SLN) кристалл (обладающим низким ТГц поглощением при криогенных температурах) и трапециевидную форму образца кристалла с относительно небольшим углом 27.5° наклоненной поверхности. Для извлечения ТГц волны в свободное пространство используется клиновидная Si-призма, установленная на боковой поверхности кристалла.

В настоящей работе теоретически исследуется ТГц генерация в широкоапертурном искусственном PPLN кристалле выполненному на основе SLN кристалла, имеющим форму прямоугольной трапецидальной призмы.

2. Схема генерации и теоретическая модель

Схема генерации ТГц импульса в искусственном PPLN кристалле представлена на рис.1а. Фазовой маской служит прозрачная диэлектрическая пластина с периодически повторяющимися прямоугольными щелями. Ввиду разницы в скоростях распространения через диэлектрические и воздушные участки маски, обеспечивается пространственно-периодическая задержка $\tau = d(n_m - 1)/c$, где d –

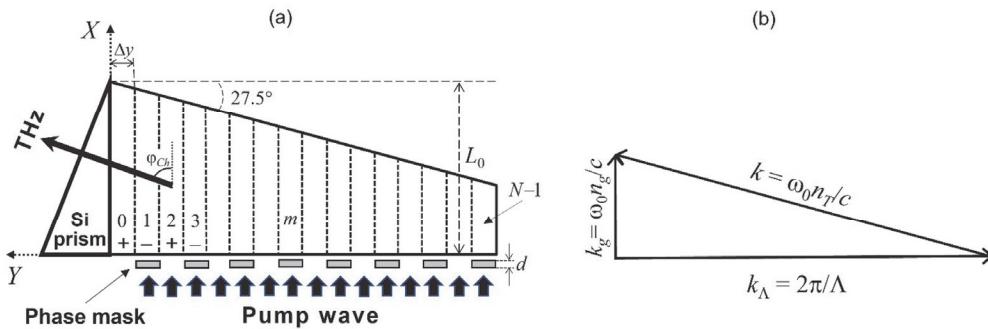


Рис.1. (а) Схема генерации ТГц излучения в трапециевидном кристалле стехиометрического ниобата лития с фазовой маской на входе кристалла. (б) Соответствующая диаграмма волновых векторов.

толщина пластины, n_m – показатель преломления, c – скорость света. В результате, спектральная составляющая нелинейной поляризации среды на частоте $\omega_0 = \pi/\tau$ меняет свой знак на противоположный в соседних участках кристалла. Это позволяет использовать модель искусственного PPLN кристалла и ввести вектор обратной решётки $K_\Lambda = 2\pi/\Lambda$ (где $\Lambda = 2\Delta y$ пространственный период маски, Δy – ширина щели) в диаграмму волновых векторов взаимодействующих волн (рис.1б). Как следует из рис.1б, частота ТГц генерации ω_0 определяется соотношением

$$\omega_0 = \frac{2\pi c}{\Lambda \sqrt{n_l^2 - n_g^2}}, \quad (1)$$

В случае стехиометрического LN (SLN) кристалла показатели преломления на частоте генерации $f_0 = \omega_0/2\pi = 0.5$ ТГц и на длине волны оптической накачки 0.8 мкм составляют $n_T = 4.9$ и $n_g = 2.25$, соответственно [13, 14]. Пользуясь этим, из выражения (1) получаем, что период фазовой маски должен составлять $\Lambda = 138$ мкм для генерации на частоте 0.5 ТГц. Рассчитанное значение периода Λ свидетельствует о возможности изготовления такой маски путем вырезания щелей дисковой пилой [12].

Для расчета поля ТГц излучения кристалл рассматривается как совокупность отдельных m -слоев материала ($m = 0, 1, 2 \dots N - 1$) с одинаковой толщиной $\Delta y = \Lambda/2$ и уложенных в направлении оси Y (рис.1а). Время задержки импульса накачки в этих слоях принимает поочередно значения 0 и τ в соответствии с профилем фазовой маски. Расчет поля ТГц волны, испускаемой отдельным m -слоем, проводится на основе модели излучающей антенны [15] с рядом упрощающих допущений. Предполагается, что нелинейный кристалл окружен линейной средой с одинаковым показателем преломления и пренебрегается ослабление мощности оптической накачки в процессе ТГц генерации. Кроме того, предполагается, что пучок накачки имеет равномерное распределение интенсивности в пределах кристалла. Следует отметить, что в большинстве высокомощных лазерных систем оптические пучки имеют почти плоскую поперечную форму после заключительного этапа усиления.

Таким образом, для спектральной составляющей ТГц волны, испускаемой m -слоем, получаем

$$E_m(\omega, \varphi, \theta, \sigma) = \frac{A}{R} G(\omega) F(\omega, \sigma) \Phi_m(\omega) L_m \operatorname{sinc}\left(\frac{\omega \Delta n_\varphi L_m}{2c}\right) \operatorname{sinc}\left(\frac{k Z_0 \cos \theta}{2}\right) \exp[-ik(m \Delta y \sin \varphi + R)], \quad (2)$$

где $A = \mu_0 d_{33} Z_0 / \pi n_p n_T \sin \varphi$, R – расстояние от геометрического центра слоя с $m = 0$ (непосредственно контактирующего с Si-призмой) до точки наблюдения поля, μ_0 – магнитная проницаемость вакуума, $\mathbf{R} \equiv (R, \theta, \varphi)$ – координата точки наблюдения поля, $k_z = k \cos \theta$, $k_x = k \sin \theta \cos \varphi$, $k_y = k \sin \theta \sin \varphi$ – проекции волнового вектора ТГц поля, $k = \omega n_T / c$ – волновое число, $k_g = \omega n_g / c$ – волновое число соответствующее распространению импульса оптической накачки, $\Delta n_\varphi = n_T \cos \varphi - n_g$, φ и θ – углы распространения ТГц волны относительно X - и Z -осей кристалла, соответственно $L_m = L_0 - (m \Delta y / \tan \varphi_{ch})$, L_0 и Z_0 – длина и толщина нелинейного кристалла, $\Phi_m(\omega) = \exp[-(i\pi\omega/\omega_0)|\sin(m\pi/2)|]$ – коэффициент связанный с изменением фазы нелинейной поляризации в соседних слоях кристалла, n_p – оптический

показатель преломления, d_{33} – нелинейный коэффициент стехиометрического LN кристалла, $G(\omega) = \sin(\pi\omega/2\omega_0)$, $F(\omega, \sigma) = \omega I(\omega, \sigma)$, $I(\omega, \sigma) = (I_0\sigma/2\pi^{1/2})\exp[-(\omega\sigma/2)^2]$ – Фурье-образ интенсивности накачки на входе кристалла $x = 0$, I_0 – пиковая интенсивность, σ – длительность импульса, связанная с полной шириной на полувысоте соотношением $\sigma_{FWHM} = 2(\ln 2)^{1/2}\sigma \approx 1.66\sigma$.

Очевидно, что полное поле ТГц генерации E_N представляет собой сумму полей $E_m(\omega, \phi, \theta, \sigma)$, где индекс m изменяется от 0 до $N - 1$, N – целая часть отношения $2Y_0/\Lambda$ и Y_0 – размер пучка накачки в направлении Y -оси кристалла. Однако, уже сейчас можно сделать ряд выводов относительно результирующего поля E_N , поскольку в уравнении (2) есть ряд множителей, не зависящих от индекса суммирования m . Так образом, несложно получить, что максимум ТГц излучения в меридиональной плоскости ориентирован под углом $\theta_{max} = \pi/2$ и его угловая ширина на уровне 3 дБ определяется соотношением $\Delta\theta \approx 0.886(c/nT_0f)$ или $\Delta\theta \approx 0.31^\circ$ на частоте $f_0 = 0.5$ ТГц и $Z_0 = 20$ мм. В азимутальной плоскости ТГц поле достигает максимума в направлении угла Черенковского излучения $\phi_{Ch} = \arccos(n_g/n_T) \approx 62.5^\circ$ вне зависимости от частоты ω . Зависимость ТГц поля от длительности импульса накачки σ определяется множителем $F(\omega, \sigma)$, который принимает максимальное значение $F_{max} \approx 0.24I_0$ при $\sigma \approx 1.41/\omega$ или $\sigma_0 \approx 0.45$ ps на частоте генерации $f_0 = \omega_0/2\pi = 0.5$ THz. Пользуясь этим, полное поле ТГц генерации E_N в направлении максимума излучения ($\theta = \theta_{max}$, $\phi = \phi_{Ch}$) при оптимальной длительности импульса накачки σ_0 можно представить в виде

$$E_N(\omega) = \frac{Ae^{-ikR}}{R} G(\omega) \omega I(\omega, \sigma_0) \sum_{m=0}^{N-1} L_m \exp\left[-i\omega \frac{T_0}{2}(m + \delta_m)\right], \quad (3)$$

где $T_0 = 2\pi/\omega_0$ – период колебаний, $\delta_m = |\sin(m\pi/2)|$, $G(\omega) = \sin(\omega T_0/4)$.

3. Результаты и обсуждение

Для иллюстрации временной формы ТГц импульса излучения проведем обратное Фурье преобразование в уравнении (3). Множитель $G(\omega)$ указывает, что поле $E_N(t)$ определяется разностью одинаковых электрических полей, со сдвигом во времени на отрезок $T_0/2$. В силу фактора $\omega I(\omega, \sigma_0)$ временная форма этих полей определяется производной от интенсивности импульса накачки $I(t, \sigma_0)$. Экспоненциальные множители под знаком суммы в уравнении (3) ответственны за сдвиг во времени на величину кратную периоду колебаний T_0 . Временные формы ТГц волн, испускаемых одним, двумя и $N = 80$ количеством слоев кристалла представлены на рис.2. Видно, что подобно случаю обычного PPLN кристалла [5, 6], количество циклов ТГц колебаний равно количеству слоев $N/2$ с одинаковым знаком нелинейной поляризации. Однако в искусственной PPLN структуре, число N можно легко менять путем изменения размера пучка накачки $Y_0 = N\Lambda/2$. Такая способность управления полосой излучения ТГц-источника очень важна для многих применений [16].

Из рис.2 видно, что амплитуда ТГц поля убывает со временем ввиду укорочения длины отдельного m -слоя кристалла согласно зависимости $L_m = L_0 - (m\Lambda_0/2\tan\phi_{Ch})$. Если пренебречь этим обстоятельством, можно приблизительно

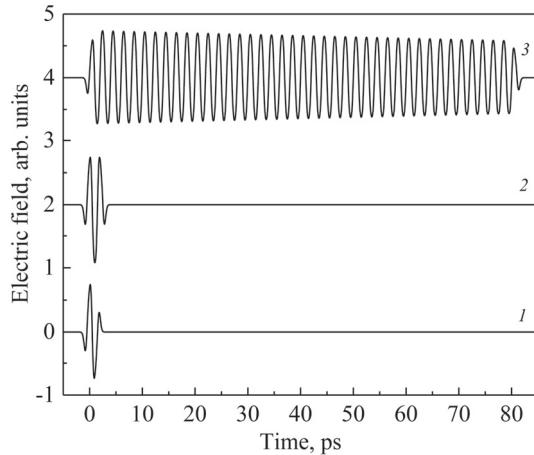


Рис.2. Временные формы ТГц импульсов, испускаемых одним (кривая 1), двумя (кривая 2) и $N = 80$ (кривая 3), количеством слоев кристалла. Осциллографмы смещены по оси ординат для ясности.

оценить ширину спектра (на уровне 3 дБ от максимума) пользуясь известной формулой $\Delta f = 1.772f_0/N$ или $\Delta f = 3.54$ ГГц при $N = 250$.

Основным параметром импульсного ТГц-источника является энергия импульса генерации ε_T . Наиболее удобно расчет ε_T выполнять в частотной области пользуясь теоремой Парсеваля. Принимая спектральную плотность энергии равной ее максимальному значению в полосе пропускания $\Delta\omega$ и в телесном угле $\Delta\Omega = \Delta\varphi_{Ch}\Delta\theta$ для энергии ТГц импульса имеем

$$\varepsilon_T = \frac{n_T}{2W_0} 2\pi |E_N(\omega_0, \varphi_{Ch})|^2 R^2 \Delta\omega \Delta\Omega, \quad (4)$$

где $W_0 = 120$ Ом – импеданс свободного пространства и $E_N(\omega_0, \varphi_{Ch})$ – значение нижеприведенной функции в точке $\omega = \omega_0$ и $\varphi = \varphi_{Ch}$

$$E_N(\omega, \varphi) = B(\omega) \sum_{m=0}^{N-1} L_m \Gamma_m(\alpha, \varphi) \text{sinc}\left(\frac{\omega \Delta n_\varphi L_m}{2c}\right) \exp\left[-i\pi \frac{\omega}{\omega_0} \left(\frac{m \sin \varphi}{\sin \varphi_{Ch}} + \delta_m\right)\right]. \quad (5)$$

Здесь $B(\omega) = A(e^{-ikR}/R)G(\omega)\sigma_0$ и введен множитель $\Gamma_m(\alpha, \varphi) = \exp(-\alpha m \Delta y / 2 \sin \varphi)$ для учета затухания ТГц волн в нелинейном кристалле. Зависимость коэффициента поглощения α от температуры кристалла T аппроксимируется эмпирической формулой, приведенной в работе [13].

Уравнение (5) показывает, что вклад в ТГц поле от отдельного m -слоя убывает с ростом числа m . Это связано как с уменьшением длины слоя $L_m = L_0 - (m \Delta y / \tan \varphi_{Ch})$, так и с увеличением длины пути распространения ТГц волны в поглощающем кристалле. Зависимости спектральной плотности $|E_N(\omega_0, \varphi_{Ch})|^2$ от числа слоев N для SLN кристалла, находящегося при температурах $T_1 = 300$ К и $T_2 = 100$ К представлены на рис.3. Поскольку эти зависимости выходят на участок насыщения при больших N , оптимальное количество слоев выбирается из условия достижения спектральной плотности уровня 90% от максимума.

Как видно из рис.3, из-за высокого ТГц поглощения кристалла спектральная плотность излучения при комнатной температуре приблизительно в 3.7 раза меньше, чем для кристалла, находящегося при температуре $T_2 = 100$ К. По этой

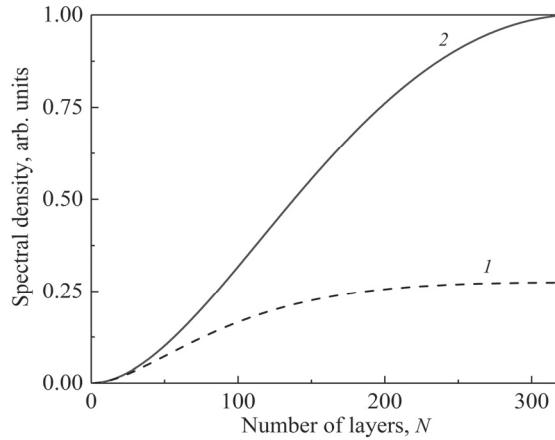


Рис.3. Зависимость спектральной плотности от числа слоев кристалла N при температурах $T_1 = 300$ К (кривая 1) и $T_2 = 100$ К (кривая 2).

причине мы ограничиваем дальнейшее рассмотрение случаем $T_2 = 100$ К и выбираем оптимальное число слоев равным $N = 250$. Последнее соответствует линейному размеру лазерного пучка накачки $Y_0 = N\Lambda/2 \approx 17.3$ мм.

Для оценки угловой ширины ТГц излучения $\Delta\varphi_{Ch}$ рассчитывается зависимость спектральной плотности $|E_N(\omega_0, \varphi)|^2$ от угла φ (рис.4). Из рис.4 следует, что полная ширина на полувысоте максимума составляет $\Delta\varphi_{Ch} \approx 0.72^\circ$.

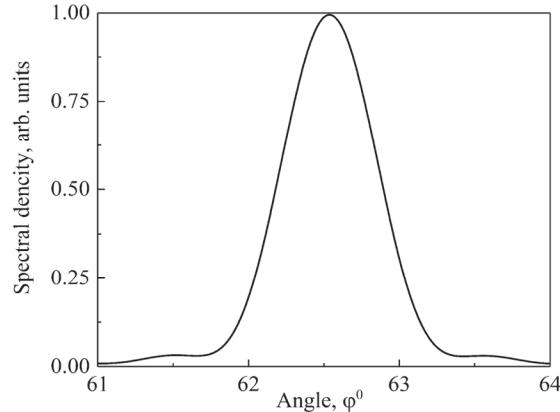


Рис.4. Диаграмма направленности ТГц излучения на частоте $f_0 = 0.5$ ТГц. Максимум излучения соответствует углу $\varphi = \varphi_{Ch}$.

Из анализа зависимости $|E_N(\omega, \varphi_{Ch})|^2$ несложно рассчитать также спектральную ширину излучения Δf . В результате получаем $\Delta f = 3.94$ ГГц, что близко к приблизительной оценке полосы 3.54 ГГц, полученной ранее из временной картины импульса ТГц излучения.

Теперь перейдем к оценке энергии генерируемого ТГц импульса, поскольку все величины входящие в уравнение (4) уже известны. Результаты расчета энергии ТГц импульса ε_T и соответствующего коэффициента эффективности преобразования оптического излучения $\eta = \varepsilon_T/\varepsilon_P$ (где ε_P – энергия импульса накачки) в зависимости от пиковой интенсивности накачки приведены на рис.5. Как и ожидалось, в рамках модели не источения мощности накачки, зависимость энергии

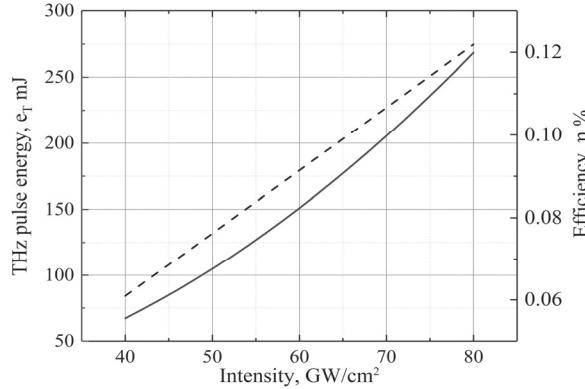


Рис.5. Зависимость энергии ТГц импульса ε_T (сплошная кривая) и эффективности преобразования лазерного излучения $\eta = \varepsilon_T/\varepsilon_P$ (пунктирная прямая) от пиковой интенсивности лазерной накачки.

ТГц импульса от интенсивности лазерного излучения имеет квадратичный характер. Наибольшая энергия ТГц импульса в кристалле составляет $\varepsilon_T = 265$ мДж при пиковой интенсивности импульса накачки $I_0 = 80$ ГВт/см², что соответствует энергии накачки $\varepsilon_P \approx 220$ мДж. Эффективность процесса преобразования оптического излучения в ТГц диапазон составляет $\eta \approx 0.12\%$, что близко к пределу $\eta_{\max} = \omega_0/\omega_p$ (где ω_p – частота оптической накачки), следующему из соотношений Мэнли–Роу. По этой причине, в рамках используемой теоретической модели, дальнейшее увеличение энергии ТГц импульса за счет роста энергии накачки ε_P не представляется возможным. Однако, указанный предел можно преодолеть за счет процесса каскадного преобразования частоты с последовательным понижением частоты [17]. Другой возможностью является распределения энергии импульса накачки в последовательность нескольких N_p импульсов с частотой повторения, равной ω_0 [18]. Расчет оптимального числа импульсов N_p для рассмотренной схемы ТГц генерации есть предмет наших отдельных исследований.

Отличительным достоинством ТГц генерации с использованием фазовой маски является возможность изменения частоты генерации путем построений изображений маски в кристалле с разными уменьшениями D . На рис.6 представлены спектры ТГц излучений, соответствующие различным уменьшениям $D = 0.8, 1.0, 1.2, 1.4, 1.6$.

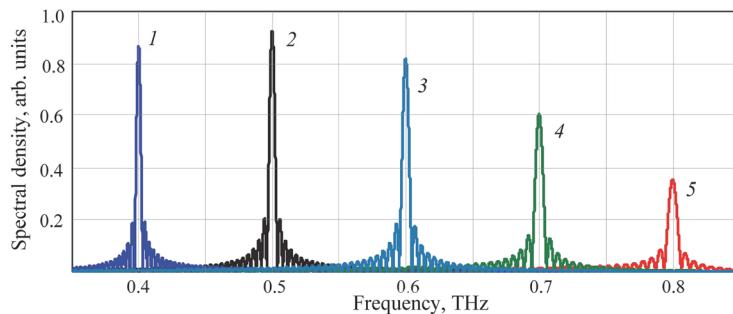


Рис.6. Зависимость спектральной плотности от частоты при различных уменьшениях изображения маски в кристалле, $D = 0.8$ (кривая 1), $D = 1.0$ (кривая 2), $D = 1.2$ (кривая 3), $D = 1.4$ (кривая 4), и $D = 1.6$ (кривая 5).

Видно, что частоту генерации возможно изменять в пределах одной октавы от 0.4 до 0.8 ТГц. Уменьшение спектральной плотности на частотах, отличных от $f_0 = 0.5$ ТГц, связано с увеличением ТГц поглощения на более высоких частотах и отклонением фазового сдвига в соседних слоях от π . Последнее является основной причиной снижения спектральной плотности на частоте 0.4 ТГц.

4. Заключение

В заключение показано, что генерация высокоэнергетических ТГц импульсов осуществима путем использования многощелевой фазовой маски на входной поверхности трапециевидного образца SLN кристалла. Показана возможность перестройки частоты генерации в пределах одной октавы посредством построения изображения фазовой маски в кристалле с различными уменьшениями. Число осцилляций ТГц поля можно варьировать (от почти одного до свыше сотни) путем изменения линейного размера пучка накачки в кристалле. Разработана теоретическая модель, согласно которой энергия ТГц импульсов на частоте 0.5 ТГц в криогенно охлажденном SLN кристалле оценивается 265 мкДж при энергии импульса накачки 220 мДж. Соответствующая эффективность преобразования лазерной накачки в ТГц диапазон составляет около 0.12%, что близко к пределу, следующему из соотношений Мэнли–Роу. Эти результаты могут быть дополнитель но улучшены за счет распределения энергии импульса накачки в последовательность нескольких лазерных импульсов с частотой повторения импульсов равной частоте генерации.

ЛИТЕРАТУРА

1. A. Leitenstorfer, et al. J. Phys. D: Appl. Phys., **56**, 223001 (2023).
2. Y. Zhang, K. Li, H. Zhao. Front. Optoelectron., **14**, 4 (2021).
3. X. Zhang, A. Shkurinov, Y. Zhang. Nat. Photonics, **11**, 16 (2017).
4. M. Hoffmann, J. Fulop. J. Phys. D: Appl. Phys., **44**, 083001 (2011).
5. Y. Lee, T. Meade, T. Norris, A. Galvanauskas. Appl. Phys. Lett., **77**, 1244 (2000).
6. C. Weiss, G. Torosyan, Y. Avetisyan, R. Beigang. Opt. Lett., **26**, 563 (2001).
7. S. Jolly, N. Matlis, F. Ahr, et al. Nat. Commun., **10**, 2591 (2019).
8. S.-C. Zhong, Y. Zhu, L-H. Du, Z-H. Zhai, J. Li, J.-H. Zhao, Z.-R. Li, L.-G. Zhu. Opt. Express, **25**, 17066 (2017).
9. Y. Avetisyan. J. Opt. Soc. Am. B, **38**, 1084 (2021).
10. F. Lemery, T. Vinatier, F. Mayet, et al. Commun. Phys., **3**, 150 (2020).
11. F. Wang, D. Sun, Q. Liu, et al. Opt. Mater., **125**, 112058 (2022).
12. C. Zhang, Y. Avetisyan, G. Abgaryan, I. Kawayama, H. Murakami, M. Tonouchi. Opt. Lett., **38**, 953 (2013).
13. A. Buzady, R. Galos, G. Makkai. Opt. Mater. Express, **10**, 998 (2020).
14. O. Gayer, Z. Sacks, E. Galun, A. Arie. Appl. Phys. B, **91**, 343 (2008).
15. J. L'huillier, G. Torosyan, Y. Avetisyan, R. Beigang. Appl. Phys. B., **86**, 185 (2007).
16. A.V. Ovchinnikov, O.V. Chefonov, M.B. Agranat, V.E. Fortov, M. Jazbinsek, C.P. Hauri. Opt. Express, **28**, 33921 (2020).
17. K. Vodopyanov. Opt. Express, **14**, 2263 (2006).
18. K. Ravi, D. Schimpf, F. X. Kartner. Opt. Express, **24**, 25582 (2016).

ՆԵՐՆԵՐԸ ՏԵՐԱՀԵՐՑԻ ԻՄՊՈԽԼԱՆԵՐԻ ԳԵՆԵՐԱՑՈՒՄԸ ԼԻԹԻՈԽՄ ՆՀՈԲԱՏ
ԲՅՈՒՐԵԴՂՈՒՄ ՓՈԽԼԱՅԻՆ ԴԻՄԱԿԻ ՕԳՏԱԳՈՐԾՄԱՍՔ

ՅՈՒ. Հ. ԱՎԵՏԻՍԻՅԱՆ, Ա. Հ. ՄԱԿԱՐՅԱՆ

Աշխատանքում մենք տեսականորեն ուսումնասիրում ենք նեղշերտ տերահերցային (ՏՀ) ձառագայթման գեներացումը օպտիկական ուղղման միջոցով՝ արհեստական պարբերական բնեռացված լիթիումի նիոբատի (ԼՆ) բյուրեղով՝ լայն բացվածքով։ Վերջինս ձևավորվում է առվորական (միադոմեն) ԼՆ բյուրեղի դիմաց բազմածեղը փուլային դիմակի տեղադրմամբ։ Ցույց է տրվում, որ ՏՀ ձարագայթման սպեկտրալ լայնքը կարող է փոփոխվել լայն տիրույթում՝ փոխելով օպտիկական մղման փնչի գծային չափը։ Բացի այդ, հնարավոր է կարգավարել գեներացման հաճախականությունը (0.4–0.8 ՏՀ միջակայքում)՝ բյուրեղի մեջ տարբեր խոշորացումներով, դիմակի պատկերը կառուցելով։ Ըստ հաշվարկների, 0.5 ՏՀ հաճախականությամբ ՏՀ ձառագայթման իմպուլսների էներգիան ստոյսիումետրիկ ԼՆ բյուրեղում 100 Կ շերմաստիճանի դեպքում կազմում է մոտ 265 մկՋ օպտիկական մղման իմպուլսի էներգիայի 220 մՋ համար։

NARROW-BAND TERAHERTZ PULSE GENERATION IN
LITHIUM NIOBATE CRYSTAL USING PHASE MASK

Y. H. AVETISYAN, A. H. MAKARYAN

In this paper, we theoretically study the generation of narrowband terahertz (THz) radiation by optical rectification in an artificial periodically poled lithium niobate (LN) crystal with a wide aperture. The latter is formed by placing a multi-slit phase mask in front of a conventional (single-domain) LN crystal. It is shown that the bandwidth of THz generation can be varied over a wide range by changing the linear size of the pump beam in the crystal. In addition, it is possible to tune the generation frequency (in the range of 0.4–0.8 THz) by building a mask image in the crystal with different magnifications. According to estimates, the energy of narrowband THz pulses at a frequency of 0.5 THz in a stoichiometric LN crystal at a temperature of 100 K is about 265 μJ for a pump pulse energy of 220 mJ.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.564–571 (2023)

УДК 535.37

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-564

ФОТОИНДУЦИРОВАННЫЕ ЛОКАЛЬНЫЕ КОЛЕБАНИЯ РЕШЕТКИ В КРИСТАЛЛЕ РУБИНА ПРИ ОПТИЧЕСКОЙ НАКАЧКЕ СОСТОЯНИЯ 2T_1

В.С. АРАКЕЛЯН

Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

e-mail: vladimirarakelyan05@gmail.com

(Поступила в редакцию 25 мая 2023 г.)

Методом рассеяния Мандельштама–Бриллюэна исследовано колебательное поведение тяжелой примеси замещения (Cr^{3+}) в Al_2O_3 . Колебания ионов хрома осуществляются фотовозбуждением. Впервые наблюдены дискретные смещения линий люминесценции рубина R_1 и R_2 при комнатной температуре в зависимости от поглощенной мощности лазерного излучения и при возбуждении состояния 2T_1 . Эти смещения обусловлены возбуждением квазилокальных колебаний ионов хрома. Частота квазилокальных колебаний составляет 22 ГГц, что соответствует поперечным акустическим колебаниям в кристалле рубина. Дано объяснение наблюданного явления на основе адиабатического приближения Борна–Оппенгеймера и функции Пекара.

1. Введение

Фононные повторения линии люминесценции и рассеяние падающей ультразвуковой волны на примеси в случае, когда имеет место резкий резонанс в сечении рассеяния ультразвуковой волны, подробно исследованы в работах [1–7]. Многофононное антистоксовое возбуждение в пределе слабой связи наблюдал Аузель [8]. Доказательства многомодового состояния Пекара приведены в работе [9]. Влияние структурных вакансий на колебания решетки рассматривалось в работе [10]. Сильное влияние колебаний решетки на электронные и магнитные свойства материалов изучалось в работе [11]. Целью настоящей работы является исследование колебаний тяжелой примеси Cr^{3+} в лазерном кристалле рубина, вызванных ее фотовозбуждением.

2. Методология

Известно, что монохроматичность лазерного излучения и селективный характер взаимодействия излучения с энергетическими уровнями иона обеспечивают сильно выраженную селективность возбуждения определенных квантовых состояний энергетических уровней, соответствующих резонансным условиям их взаимодействия с полем излучения. Электронно-колебательные взаимодействия играют определяющую роль в процессе безызлучательной релаксации энергии возбужденных электронных состояний, таких как уровни $\tilde{E}\text{a}$, $2\tilde{A}$ и $\tilde{E}\text{b}$ состояния 2T_1 . Результатом дезактивации электронного возбуждения иона является его

переход в электронное состояние с меньшей энергией (от 2T_1 до 2E) и превращение выделяемой энергии в колебательную энергию. Количество возбужденных электронно-колебательных уровней определяется шириной спектра и мощностью когерентного источника возбуждения. Чтобы колебательная мода могла поглощать, должны быть выполнены законы сохранения энергии и импульса и должен существовать механизм связи между материалом и падающим излучением. Механизм связи между падающим фотоном и фононом осуществляется изменением состояния электрического дипольного момента. Эти диполи могут поглощать энергию падающего излучения, достигая максимальной связи с излучением, когда его частота равна частоте колебательной моды диполя [12]. В зависимости от степени возбуждения колебаний диполь может излучать определенное количество одинаковых фононов с энергией $\hbar\Omega$ каждый. При больших энергиях электронного перехода возможны только многофононные переходы, когда один переход связан с испусканием нескольких фононов. Количество генерируемых оптическим путем фононов оказывается пропорциональным поглощенной энергии возбуждения [13].

При рассмотрении взаимодействия электронной подсистемы с квазилокальными колебаниями можно использовать гармоническое приближение, если частота локальной моды не меняется и в адиабатическом приближении отсутствует взаимодействие между локальными колебаниями и колебаниями основной решетки. Если при электронном переходе система переходит в другое колебательное состояние, то меняются конфигурационные координаты и частоты колебаний. Из-за разницы положений равновесия после электронного перехода центр находится в другом колебательном состоянии. Физическая основа модели конфигурационных координат для описания оптических свойств локализованных центров в твердых телах основана на адиабатическом приближении Борна–Оппенгеймера [14]. В модели конфигурационных координат положение равновесия ионов в основном электронном состоянии $Q = 0$ (рис.1). В возбужденном электронном состоянии положение равновесия находится при $Q = A$ и в целом, форма кривой потенциальной энергии отличается от формы кривой основного состояния. Наличие колебаний примесного иона приводит к смещению положения иона на ΔQ и появлению фононных повторений линии люминесценции.

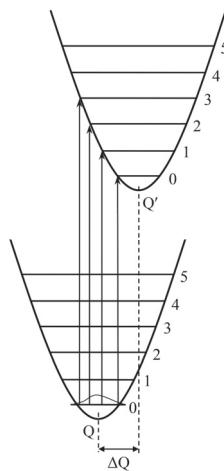


Рис.1. Сдвиг положения иона на ΔQ в конфигурационных координатах.

Вероятность перехода с участием n колебательных квантов при 0 К равна:

$$P_{n0} = e^{-S} S^n / n!. \quad (1)$$

Уравнение (1) определяет форму функции Пекара P_{n0} [15]. Здесь n – число фононов, S – фактор Хуанга–Риса, а

$$S = E_2/\hbar\omega = n\hbar\omega'/\hbar\omega, \quad (2)$$

где E_2 – поглощенная энергия, $\hbar\omega$ и $\hbar\omega'$ – колебательные энергии основного и возбужденного состояний, соответственно. Величина S пропорциональна n и в приближении $\hbar\omega' \approx \hbar\omega$ (что справедливо в случае чисто линейной связи с модой Q) равна числу фононов n). Из уравнения (1) и рис.2 видно, что функция Пекара существенно меняет форму и положение максимума огибающей в зависимости от фактора Хуанга–Риса S .

Фактор Хуанга–Риса S является мерой силы линейной электрон–фононной связи и характеризует среднее число фононов, сопровождающих конкретный электронный переход [15, 16]. Согласно принципу Франка–Кондона, когда квант света поглощается, происходят переходы из основного состояния в «поворотные точки» колебательных состояний возбужденного электронного состояния. Как видно из уравнения (1) и рис.2, при увеличении S вероятность безфононной линии уменьшается экспоненциально и наблюдается на практике только при $S \leq 6$. Если дисперсия фононов мала, взаимодействие фононов с электронами, связанными с примесными центрами, создают систему дискретных частот при низких температурах [17]. Квазилокальные колебания охватывают весь кристалл, но амплитуда примесных колебаний значительно превышает амплитуду колебаний ионов решетки.

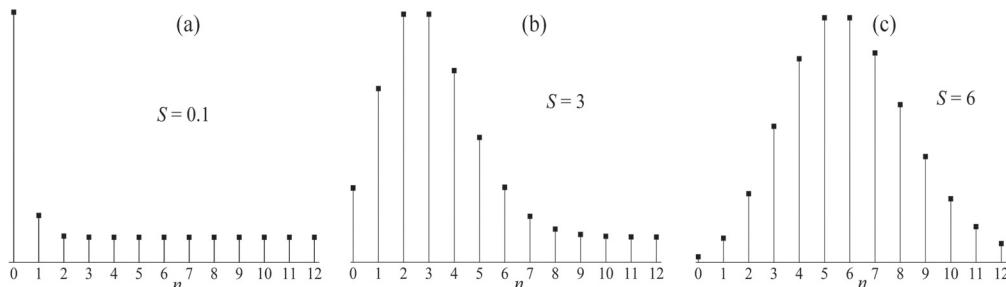


Рис.2. Форма функции Пекара для $S = 0.1$, $S = 3$ и $S = 6$, $n = 0$ – положение бесфононной линии.

Наличие колебаний иона тяжелой примеси приводит к смещению положения тяжелого иона, частота колебаний которого попадает в низкочастотную часть акустического диапазона частот [17]. Спектральная плотность колебаний имеет узкий резонансный пик на квазилокальной частоте [16, 18]. Эти колебания можно интерпретировать как принадлежащие связанным состояниям фонона с примесным центром или как своеобразные локальные моды [19].

Если примесь намного тяжелее замещаемого ею иона или если эффективные силовые константы, описывающие взаимодействие примеси с ее соседями малы по сравнению с константами решетки–хозяина, сильный резонанс в сечении рассения падающего ультразвука от примеси может возникать для частот, малых по сравнению с дебаевской частотой [1, 19–22]. При взаимодействии

электронного перехода с квазилокальными колебаниями в оптическом спектре появляются колебательные повторения безфононной линии, расположенные эквидистантно $\hbar\omega \pm n\hbar\Omega_{\text{qloc}}$. Здесь ω – частота безфононной линии и Ω_{qloc} – частота квазилокальных колебаний.

Локализованные колебания решетки исследуются в основном методом комбинационного рассеяния (сдвиг линии люминесценции $\geq 100 \text{ см}^{-1}$) [2, 8, 9, 23]. При комнатной температуре линии люминесценции уширены и невозможнофиксировать низкочастотные колебательные повторения линии люминесценции. Можно наблюдать лишь смещение пиков люминесценции за счет изменения формы функции Пекара и, соответственно, изменения положения пиков огибающих люминесценции (рис.2).

3. Аппаратура и методы исследования

Люминесценцию рубинового лазерного кристалла с концентрацией хрома 0.05 мас% и длиной 12 см исследовали при возбуждении галогенной лампой и лазерным диодом (LD). Оптическое возбуждение ионов Cr^{3+} из основного состояния 4A_2 в состояние 2T_1 (уровни $\tilde{\text{E}}\text{a}$, $2\tilde{\text{A}}$) осуществляли с помощью LD-лазера. Сканирование состояния 2T_1 реализовывалось в диапазоне длин волн 658.5–662.1 нм или в волновых числах $15186\text{--}15102.5 \text{ см}^{-1}$. Возбуждение и регистрация люминесценции осуществлялись под прямым углом друг к другу. Спектры люминесценции регистрировали на спектрометре ДФС-24 с разрешением 0.5 \AA на длине волны 550 нм. Люминесценция R-линий наблюдалась в направлении, перпендикулярном направлению возбуждения, через кварцевый световод. Излучение LD-лазера фокусировалось в кристалл рубина линзой с фокусным расстоянием $\sim 5 \text{ мм}$, установленной на корпусе лазера. Исследовалось поведение линий люминесценции R_1 и R_2 в зависимости от интенсивности и волнового числа LD-лазера.

Интенсивность и частота LD-лазера изменялись током источника питания. Все измерения проводились при комнатной температуре. Линии люминесценции R_1 и R_2 возбуждались опосредованно через промежуточное электронное состояние 2T_1 , уровни $2\tilde{\text{A}}$ и $\tilde{\text{E}}\text{a}$ которого перекрываются при комнатной температуре.

4. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Исследована зависимость мощности LD-лазера от волнового числа излучения. Как показано на рис.3, эта зависимость близка к линейной. На рис.4 и рис.5 показано положение пиков люминесценции линий R_1 и R_2 , соответственно, в зависимости от волнового числа излучения при различной мощности LD-лазера. При возбуждении уровней $\tilde{\text{E}}\text{a}$ и $2\tilde{\text{A}}$ состояния 2T_1 волновое число излучения LD-лазера изменялось от 15186.12 см^{-1} до 15102.6 см^{-1} . При этом мощность лазера также изменялась от 39 до 219 мВт. В ходе эксперимента наблюдалось дискретное смещение положения максимумов линий люминесценции (рис.4,5) при изменении мощности и волнового числа возбуждающего лазера. Смещение пиков интенсивности люминесценции линий R_1 и $R_2 \approx n$ раза 0.52 см^{-1} , где n — целое число и 0.52 см^{-1} соответствует частотному сдвигу максимумов люминесценции $\Delta\nu_i \approx 15.6 \text{ ГГц}$.

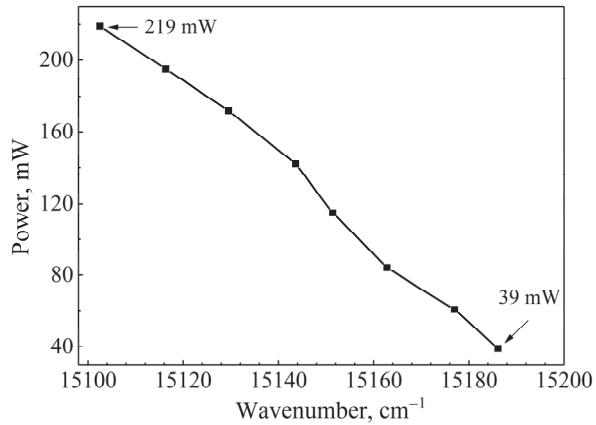


Рис.3. Зависимость мощности LD-лазера от волнового числа излучения.

Положение пика люминесценции линии R_1 при возбуждении галогенной лампой соответствует значению 14404.2 см^{-1} . При облучении кристалла рубина LD-лазером (при мощности излучения лазера 39 мВт и волновом числе 15186.1 см^{-1}) наблюдаемое значение волнового числа для пика люминесценции линии R_1 составило 14405.7 см^{-1} . Разница в расположении пиков люминесценции при возбуждении LD лазером или галогенной лампой составляет $\Delta R_1 \approx 1.55 \text{ см}^{-1}$ и $\Delta R_1/0.52 \approx 3$.

Положение пика люминесценции линии R_2 при возбуждении галогенной лампой соответствует значению 14434 см^{-1} . При облучении кристалла рубина LD-лазером (при мощности излучения 39 мВт и волновом числе 15186.1 см^{-1}) наблюдаемое значение волнового числа для пика люминесценции линии R_2 составило 14436 см^{-1} . Разница в расположении пиков люминесценции при возбуждении LD-лазером или галогенной лампой составляет $\Delta R_2 \approx 2 \text{ см}^{-1}$, $\Delta R_2/0.52 \approx 4$. Максимальное смещение пиков линий люминесценции R_1 и R_2 $\Delta_{\max} \approx 6$ раза 0.52 см^{-1} (рис.4 и 5).

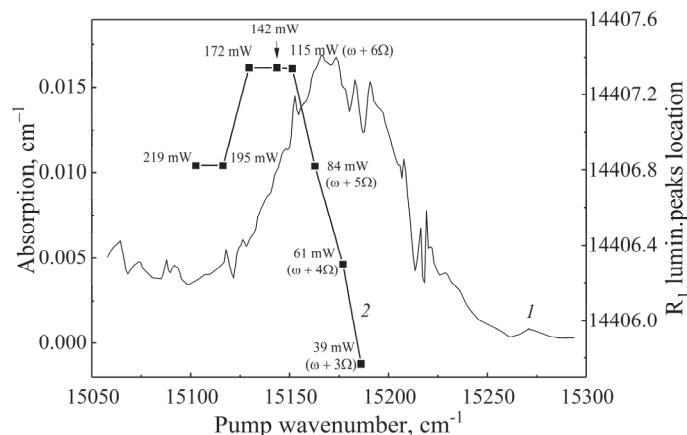


Рис.4. Спектр поглощения состояния 2T_1 (кривая 1) и положение пиков интенсивности линии люминесценции R_1 в зависимости от волнового числа излучения LD-лазера и его мощности (кривая 2), ω – частота безфононной линии и Ω – частота квазилокальных колебаний; $\Omega = 0.52 \text{ см}^{-1}$ (15.6 ГГц) при наблюдении люминесценции под углом $\theta = 90^\circ$.

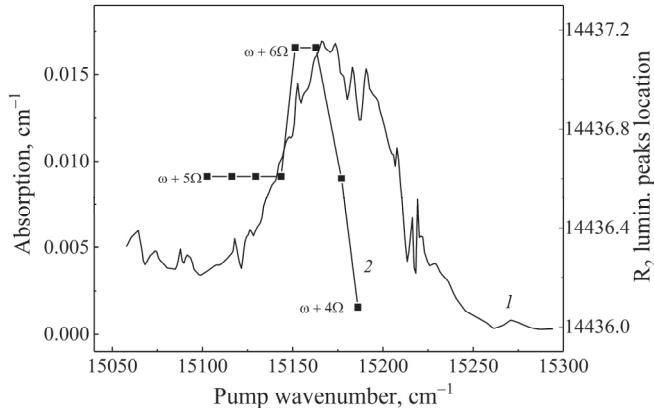


Рис.5. Спектр поглощения состояния 2T_1 (кривая 1) и положение пиков интенсивности линии люминесценции R_2 (кривая 2) в зависимости от волнового числа излучения лазера. Здесь ω – частота безфононной линии и Ω – частота квазилокальных колебаний. Мощность излучения лазера такая же, как на рис.4.

Сдвиг пиков люминесценции при возбуждении состояния 2T_1 при мощности излучения 39 мВт составляет 1.55 см^{-1} ($1.55/0.52 \approx 3$) для линии R_1 и 2 см^{-1} для линии R_2 ($2/0.52 \approx 4$ при той же мощности возбуждения). В работе [14] было показано, что при увеличении фактора Хуанга–Риса S вероятность безфононной линии уменьшается экспоненциально и наблюдается на практике только при $S \leq 6$. Таким образом, отсутствие смещения пиков люминесценции в верхней части рис.5 и рис.6 можно объяснить перераспределением интенсивностей люминесценции в зависимости от интенсивности возбуждения в соответствии с уравнением (1). Уменьшение смещения пиков люминесценции в левой части рис.4 и 5 можно объяснить уменьшением поглощаемой энергии.

Появление комбинационных частот и их количество зависят от поглощенной энергии, так как она определяет величину смещения возбужденного иона Cr^{3+} . Увеличение амплитуды колебаний ионов, вызванное увеличением поглощаемой энергии, приводит к увеличению параметра Хуанга–Риса S . Это увеличение приводит к изменению формы функции Пекара и смещению положения пика (рис.2 и 4). Представленные результаты согласуются с теорией [15–17].

5. Заключение

При комнатной температуре наблюдались дискретные смещения пиков линий люминесценции R_1 и R_2 рубина в зависимости от поглощенной мощности лазера при возбуждении состояния 2T_1 . Эти смещения обусловлены возбуждением квазилокальных колебаний иона хрома. Дискретное смещение линий люминесценции в кристалле рубина, вызванное квазилокальными колебаниями обнаружено впервые. Частота квазилокальных колебаний равна 22 ГГц. Судя по частоте бриллюэновского рассеяния, полученной в эксперименте, наблюдаемые колебания относятся к поперечным акустическим колебаниям. Сдвиг пиков люминесценции на 0.52 см^{-1} (сдвиг частоты 15.6 ГГц) обусловлен возбуждением квазипоперечной гиперзвуковой волны. Бриллюэновское рассеяние наблюдалось под углом $\theta = 90^\circ$. Измеренный сдвиг частоты $\Omega = 15.6 \text{ ГГц}$. По формуле Бриллюэна ($\Omega = 2\omega nv/c \sin \theta/2$) под углом наблюдения $\vartheta = 180^\circ$ этот сдвиг

соответствует смещению линии люминесценции – 0.735 см^{-1} (сдвиг частоты – 22 ГГц). Здесь ω – оптическая частота, n – показатель преломления, v и c – соответственно скорость распространения звуковой волны и скорость света. Указанный сдвиг люминесценции хорошо согласуется с расчетными данными для квазиперечной гиперзвуковой волны 0.74 см^{-1} для направления [100] при обратном рассеянии [24].

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по науке РА в рамках проекта N 1-6/23-I/PR.

Автор выражает благодарность сотрудникам института за полезные обсуждения и сотрудникам лаборатории за помощь при выполнении работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. **D.L. Mills.** J. de Physique, **28**, C1 (1967).
2. **V.I. Sokolov, E.A. Shirokov, A.N. Kislov, V.G. Mazurenko.** Phys. Stat. Sol. (b), **221**, 553 (2000).
3. **A.P. Saiko.** <https://arxiv.org/abs/physics/0412160>.
4. **D. Schmeltzer, R. Beserman.** J. Phys. C. Sol. Stat. Phys. **14**, 27 (1981).
5. **B. Canny, J.C. Chervin, D.C. Veronique, L. Jing-Quing.** SPIE, **74**, 1182 (1989).
6. **Y. Zhangt, J.S. Zheng, D.L. Mi, B.Z. Yan, B.X. Wu.** J. Phys., Condens. Matter, **2**, 5219 (1990).
7. **I.S. Altman, P.V. Pikhitsa, M. Choi, A.G. Nasibulin, E.I. Kauppinen.** Phys. Rev. B, **68**, 125324 (2003).
8. **F. Auzel.** Phys. Rev. B, **13**, 2809 (1976).
9. **M. Nazarova, M.G. Brike, D. Spasskyc, B. Tsukerblate, A. Paliib, N. Nazida, M.N. Ahmad-Fauzi.** Phys. Lett. A, **377**, 3170 (2013).
10. **T.-H. Dong, X.-D. Zhang, L.-M. Yang, F. Wang.** Chinese Phys. B, **31** 026101 (2022).
11. **B. Alling, F. Körmann, B. Grabowski, A. Glensk, I.A. Abrikosov, J. Neugebauer.** Phys. Rev. B, **93**, 224411 (2016).
12. **C. Kittel.** Introduction to Solid State Physics. Berkeley, JohnWiley & Sons, 2004.
13. **R.J. G.Goossens, J.I. Dijkhuis, H.W. de Wijn.** Phys. Rev. B, **32**, 5163 (1985).
14. **J.J. Markham.** Rev. Mod. Phys., **31**, 956 (1959).
15. **K. Huang, A. Rhys.** Proc. Roy. Soc., **204**, 406 (1950).
16. **A. Hughes.** Physique Colloquesm., **28**, 55 (1967).
17. **G. Leibfried.** Microscopic Theory of Mechanical and Thermal Properties of Crystals, in Handbuch der Physik, S. Fligge (Ed.), vol. 7, ch. 1, Berlin, Springer-Verlag, 1955.
18. **M. Born, H. Kun.** Dynamical Theory of Crystal Lattices, Oxford, Clarendon Press, 1988.
19. **E.I. Rashba, A.B. Zimin.** Sov. Phys. JETP, **39**, 1479 (1974).
20. **R. Brout, W. Visscher.** Phys. Rev. Lett, **9**, 54 (1962).
21. **A.J. Sievers, S. Takeno.** Phys. Rev. A, **140**, 1030 (1965).
22. **W. Visscher.** Phys. Rev., **28**, 1299 (1963).
23. **V.I. Sokolov, E.A. Shirokov, A.N. Kislov, V.G. Mazurenko.** J. Cryst. Growth, **214**, 304 (2000).
24. **G.V. Krivoshchekov, M.F. Stupak.** Sov. J. Quantum Electron., **5**, 1397 (1975).

**ՍՈՒԲԱԿԻ ԲՅՈՒՐԵՂՈՒՄ ՑԱՆՑԻ ԼՈՒՍԱՄԱԿԱԾՎԱԾ ՏԵՂԱՅԻՆ
ՏԱՏԱՆՈՒՄՆԵՐԻ ² ԴԻ ՎԻՃԱԿԻ ՕՊՏԻԿԱԿԱՆ ԳՐԳՈՒՄԱՆ ՊԱՅՄԱՆՆԵՐՈՒՄ**

Վ.Ս. ԱՌԱՔԵԼՅԱՆ

Բրիլյուենի ցրման եղանակով հետազոտվել է Al_2O_3 միարյուրեղում Cr^{3+} տեղակալող ծանր խառնուկի տատանողական վարքը: Քրոմի ինոնների տատանումներն իրագործվում են վերջիններիս լուսագրգուման միջոցով: Առաջին անգամ սենյակային շերմաստիճանում դիսոլել են սուտակի R_1 և R_2 լուսմինեսցենս գծերի ընդհատ (դիսկրետ) շեղումներ 2T_1 վիճակի գրգուման դեպքում՝ կախված լազերային մղման կլանված հզորությունից: Այդ շեղումները պայմանավորված են քրոմի ինոնների քվազիտեղային տատանումների գրգումով: Քվազիտեղային տատանումների հաճախությունը կազմում է 22 ԳՀց, որը համապատասխանում է սուտակում լայնական ակուստիկ (ձայնային) տատանումներին: Տրվել է դիտարկված երևույթի բացարձություն Բորն-Օպենհեյմերի աղյաբատիկ մոտարկման և Պեկարի ֆունկցիայի հիման վրա:

**PHOTOINDUCED LOCAL LATTICE VIBRATIONS IN A
RUBY CRYSTAL UNDER OPTICAL PUMPING OF THE 2T_1 STATE**

V.S. ARAKELYAN

The vibrational behavior of a heavy substitutional impurity (Cr^{3+}) in Al_2O_3 has been studied by the Brillouin scattering method. The vibrations of chromium ions are carried out by their photoexcitation. Discrete shifts of the ruby luminescence lines R_1 and R_2 at room temperature are observed depending on the absorbed laser pump power upon excitation of the 2T_1 state. These shifts are due to the excitation of quasi-local vibrations of chromium ions. The frequency of quasi-local oscillations is 22 GHz, which corresponds to transverse acoustic oscillations in ruby. An explanation of the observed phenomenon is given on the basis of the Born-Oppenheimer adiabatic approximation and the Pekar function.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.572–575 (2023)

УДК 534.2

DOI: 10.54503/0002-3035-2023-58.4-572

ПОГЛОЩЕНИЕ ГИПЕРЗВУКОВЫХ ВОЛН В ЛЕГИРОВАННЫХ МОНОКРИСТАЛЛАХ НИОБАТА ЛИТИЯ

А.В. ЕГАНЯН^{1,2*}, Н.Э. КОКАНЯН^{3,4}, Э.П. КОКАНЯН^{1,2}

¹Армянский государственный педагогический университет, Ереван, Армения

²Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

³Chaire Photonique, Laboratoire Matériaux Optiques, Photonique et Systèmes,
Centrale Supélec, Metz, France

⁴Université de Lorraine, Laboratoire Matériaux Optiques, Photonique et Systèmes,
Centrale Supélec, Metz, France

* e-mail: aveganyan@gmail.com

(Поступила в редакцию 26 июня 2023 г.)

В рамках изотопической модели дефекта получены новые выражения для быстрой оценки коэффициентов затухания продольных и поперечных гиперзвуковых волн в легированных монокристаллах ниобата лития в режиме Ахиезера. Показано, что введение в кристалл примесей приводит к изменению как величины коэффициента затухания звука, так и его температурной зависимости.

1. Введение

В настоящее время интенсивно развиваются исследования, направленные на изучение влияния примесей на поглощение акустических волн (в частности, гиперзвуковых волн, диапазон 10^9 – 10^{13} Гц) в акустооптических кристаллах, таких как ниобат лития [1–2] (LiNbO_3 , пространственная группа – R3c [3]). Причиной этому служит возможность уменьшения абсолютной величины коэффициента поглощения акустических волн путем внедрения примесей в кристаллическую решетку. Последнее тесно связано с так называемым акустооптическим качеством, являющимся важным критерием для применения материалов. Величина коэффициента акустооптического качества данного кристалла определяется выражением [4–6]:

$$M_2 = \frac{n^6 p^2}{\rho V^3}, \quad (1)$$

где n – показатель преломления среды, p – эффективная фотоупругая постоянная, ρ – плотность материала, V – скорость звука в среде.

2. Оценка коэффициентов затухания продольных и поперечных гиперзвуковых волн в легированных кристаллах ниобата лития

В нашей предыдущей работе [7] было показано, что коэффициенты поглощения поперечных (α_L) и продольных (α_S) гиперзвуковых волн в режиме затухания Ахиезера (при $\omega t < 1$, где τ – время термической релаксации фононов,

$\omega = 2\pi f$, где f – частота звука) в чистых (без примесей) монокристаллах ниобата лития могут быть оценены с высокой точностью из следующих простых выражений:

$$\alpha_L \approx 1.32 \times 10^{-3} T f^2, \quad (2)$$

$$\alpha_S \approx 4.05 \times 10^{-3} T f^2, \quad (3)$$

где α измеряется в дБ/см, частота f измеряется в ГГц, а абсолютная температура T в К.

Внедрение примесей может существенно изменить как спектральные характеристики фононной системы, так и характеристики рассеяния квазичастиц. Это означает, что даже в рамках простейших моделей теория должна принимать во внимание большую группу факторов. Если при внедрении примесей изменение силовых постоянных незначительно, что оказывается применимым к целому ряду кристаллов, можно рассматривать примесь как изотопическую модель дефекта (понимается просто дефект массы) [8–9]. В рамках указанной модели, в режиме Ахиезера при температурах ниже температуры Дебая ($T < T_D$) коэффициент поглощения звука в чистом кристалле ($\alpha_{L,S}$) больше того же от примесного кристалла ($\alpha'_{L,S}$) в отношении [8, 10]:

$$\frac{\alpha_{L,S}}{\alpha'_{L,S}} = \left[\frac{kT}{MV^2 \varepsilon^2 c(1-c)} \right]^{2/3}, \quad (4)$$

где $\varepsilon = |\Delta M|/M$ – безразмерный параметр, характеризующий возмущение, создаваемое примесным атомом (ионом), ΔM – разность масс атома (иона), находящегося в данном узле кристаллической решетки, и замещающего его атома (иона) примеси, c – относительная концентрация примеси, k – постоянная Больцмана.

Отметим, что M удобнее считать молярной массой матрицы без примесей, а ΔM – разностью молярных масс данного соединения в случае легирования. Выражение (4) выполняется до $\varepsilon \approx 1$ и $c = 1/2$ [8].

Учитывая указанное выше, в режиме Ахиезера при ($T < T_D$) в легированных монокристаллах ниобата лития (когда ион примеси замещается преимущественно в одном кристаллографическом положении) коэффициенты поглощения продольных и поперечных гиперзвуковых волн исходя из формул (2)–(4) можно оценить из следующих выражений:

$$\alpha'_L \approx 1.32 \times 10^{-3} T^{1/3} f^2 \left(\frac{\Delta M^2 V_L^2 c(1-c)}{Mk} \right)^{2/3}, \quad (5)$$

$$\alpha'_S \approx 4.05 \times 10^{-3} T^{1/3} f^2 \left(\frac{\Delta M^2 V_S^2 c(1-c)}{Mk} \right)^{2/3}, \quad (6)$$

где V_L и V_S – соответственно скорости продольной и поперечной акустических волн в среде.

Подставляя значения постоянной Больцмана и молярной массы ниобата лития ($M = 147.85$ г/моль) в (5) и (6), а также учитывая размерности величин (для счета f в ГГц), умножив указанные выражения на 10^{-18} , получим:

$$\alpha'_L \approx 8.23 \times 10^{-2} T^{1/3} f^2 \left[\Delta M^2 V_L^2 c(1-c) \right]^{2/3}, \quad (7)$$

$$\alpha'_S \approx 0.25 T^{1/3} f^2 \left[\Delta M^2 V_S^2 c(1-c) \right]^{2/3}. \quad (8)$$

3. Результаты и обсуждение

При комнатных температурах ($T = 300$ К) в легированных монокристаллах ниобата лития из (7) и (8) для нормированных коэффициентов затухания ($\Gamma = \alpha/f^2$, измеряется в дБ/смГГц² [11]) продольной и поперечной гиперзвуковых волн получаем выражения:

$$\Gamma'_L \cong 0.55 [\Delta M^2 V_L^2 c (1 - c)]^{2/3}, \quad (9)$$

$$\Gamma'_S \cong 1.67 [\Delta M^2 V_S^2 c (1 - c)]^{2/3}. \quad (10)$$

Из выражений (9) и (10) следует, что для оценки нормированных коэффициентов затухания продольной и поперечной гиперзвуковых волн в легированных монокристаллах ниобата лития при комнатных температурах необходимо знать скорости распространения акустических волн, которые отличаются в зависимости от кристаллографических направлений, а также необходимо выяснить концентрацию примеси в веществе. Если введение данной примеси не приводит к большому изменению указанных скоростей по сравнению с кристаллом без примеси, то можно применить их измеренные значения в чистой матрице. Например, при $[V_L(L[100])] = 6.57$ км/с, $[V_S(S[001])] = 3.59$ км/с [12], из (9) и (10) будем иметь:

$$\Gamma'_L \cong 1.93 [\Delta M^2 c (1 - c)]^{2/3}, \quad (11)$$

$$\Gamma'_S \cong 3.91 [\Delta M^2 c (1 - c)]^{2/3}. \quad (12)$$

Например, из выражений (11) и (12) следует, что при $T = 300$ К, $\epsilon \approx 1$ и $c = 1/2$ нормированные коэффициенты поглощения гиперзвуковых волн в легированном кристалле ниобата лития на порядок ниже по сравнению с кристаллом без примеси.

4. Заключение

На основе выражений для оценки затухания гиперзвуковых волн в монокристаллах ниобата лития, в рамках изотопической модели дефекта, получены новые выражения для оценки коэффициентов затухания продольных и поперечных гиперзвуковых волн в легированных монокристаллах ниобата лития в режиме Ахиезера при температурах ниже температуры Дебая.

Показано, что в режиме затухания Ахиезера в легированных кристаллах ниобата лития по сравнению с кристаллом без примеси изменяется температурная зависимость коэффициентов поглощения гиперзвука. На основе полученных выражений показано также, что введение в кристалл примесей может приводить к значительному изменению величин коэффициентов затухания гиперзвуковой волны.

ЛИТЕРАТУРА

1. D. Yudistira, A. Boes, B. Graczykowski, F. Alzina, L.Y. Yeo, C.M. S. Torres, A. Mitchell. Phys. Rev. B, **94**, 094304 (2016).
2. Y. Cang, Y. Jin, B. Djafari-Rouhani, G. Fytas. J. Phys. D: Appl. Phys., **55**, 193002 (2022).

3. N. Kokanyan, N. Mkhitaryan, G. Demirkhanyan, A. Kumar, M. Aillerie, D. Sardar, E. Kokanyan. Crystals, **11**, 50 (2021).
4. A. Korpel. Acousto-Optics, New York, Marcel Dekker, 1996.
5. П.А. Никитин. Изв. РАН, Серия Физическая, **81**, 93 (2017).
6. J. Streque, T. Aubert, N. Kokanyan, F. Bartoli, A. Taguett, V. Polewczyk, E. Kokanyan, S. Hage-Ali, P. Boulet, O. Elmazria. IEEE Sensors Letters, **3**, 2501204 (2019) doi:10.1109/LSENS.2019.2908691.
7. A.V. Yeganyan, N.E. Kokanyan, M. Aillerie, E.P. Kokanyan. J. Contemp. Phys., **58**, 81 (2023).
8. Г.М. Григорович, Ю.В. Илисавский, М.А. Рувинский, В.П. Щетинин. ФТТ, **25**, 3671 (1983).
9. Ю.В. Илисавский, В.М. Стернин. ФТТ, **27**, 385 (1985).
10. Л.Э. Гуревич, Б.И. Шкловский, ЖЭТФ, **53**, 1726 (1967).
11. V. Saleev, A. Shipilova. Mod. Phys. Lett. B, **32**, 1850063 (2018).
12. Y. Shuhua, L. Hong, H. Xiaobo. J. Alloys and Compounds, **455**, 501 (2008).

ՀԻՊԵՐՉԱՅՆԱՅԻՆ ԱԼԻՔՆԵՐԻ ԿԼԱՆՈՒՄԸ ԼԵԳԻՐՎԱԾ
 ԼԻԹԻՈՒՄԻ ՆԻՌԵՍԻ ՄԻԱԲՅՈՒՐԵՂՆԵՐՈՒՄ
 Ա.Վ. ԵԳԱՆՅԱՆ, Ն.Է. ԿՈԿԱՆՅԱՆ, Է.Պ. ԿՈԿԱՆՅԱՆ

Արատի իզոտոպական մոդելի շրջանակներում ստացվել են լեգիրված լիթիումի նիոբատի միաբյուրեղներում՝ Ախիեզերի ռեժիմում երկայնական և լայնական հիպերձայնային ալիքների կլանման գործակիցների արագ գնահատման համար նոր արտահայտություններ: Ցույց է տրված, որ բյուրեղում խառնուկների ներմուծումը բերում է ինչպես ձայնի մարման գործակցի մեծության, այնպես էլ դրա ջերմաստիճանային կախվածության փոփոխությանը:

ABSORPTION OF HIPERSONIC WAVES IN DOPED LITHIUM NIOBATE SINGLE CRYSTALS

A.V. YEGANYAN, N.E. KOKANYAN, E.P. KOKANYAN

Within the framework of the defect isotopic model, new expressions for the rapid estimation of the absorption coefficients of longitudinal and transverse hypersonic waves in the alloyed lithium niobate single crystals in the Akhiezer regime have been obtained. It is shown that the introduction of impurities in the crystal leads to a change in both the magnitude of the sound attenuation coefficient and its temperature dependence.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.576–584 (2023)

УДК 515; 543.2

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-576

ФОРМИРОВАНИЕ ПОЛОС ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ ИОНОВ Ce^{3+} В КРИСТАЛЛАХ YAG:Ce

Т.И. БУТАЕВА*, К.Л. ОВАНЕСЯН, А.В. ЕГАНЯН

Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

*e-mail: tbutaeva@gmail.com

(Поступила в редакцию 15 сентября 2023 г.)

Рассмотрены спектральные особенности и структурные факторы, влияющие на формирование полос люминесценции Ce^{3+} ионов в кристаллах YAG:Ce. Определены энергетические уровни $4f$ оболочки ионов Ce^{3+} , занимающих как додекаэдрические, так и октаэдрические узлы кристаллической решетки. Показано участие ионов Ce^{3+} и ионов Ce^{3+}Al в структуре полосы люминесценции и определена многоцентровая структура ионов Ce^{3+} в $4f \leftrightarrow 5d$ переходах активатора.

1. Введение

При необходимости использования быстродействующих сцинтилляторов при высоких температурах, либо при исследовании агрессивных сред, перспективны лёгкие кислородсодержащие кристаллы, в частности YAG:Ce. Механическая и химическая стойкость, высокий световой выход (20000–24000 ф/МэВ) и короткое время высовечивания (70 нс) [1–3] этих кристаллов позволяет использовать их в качестве сцинтилляторов во многих областях и, в частности, для регистрации гамма и рентгеновского излучения.

Сцинтилляция кристаллов YAG:Ce определяется структурой энергетических уровней ионов Ce^{3+} , обеспечивающей видимое излучение кристалла на интерконфигурационном $4f^0 5d^1 \rightarrow 4f^1 5d^0$ переходе активатора. $5d$ состояние иона Ce^{3+} , в кубическом кристаллическом поле YAG:Ce, расщепляется на пять уровней, обусловленных дуплетом $^5D_{3/2}$ и триплетом $^5D_{5/2}$. В настоящее время, к переходам с участием нижних возбуждённых уровней состояния $5d$ отнесены полосы поглощения на 459, 340, ~220 и ~205 нм [4–6]. В работе [6] предполагается, что пятый уровень иона Ce^{3+} находится в зоне проводимости кристалла.

Идеальная структура кристалла граната YAG:Ce подразумевает частичное замещение додекаэдрических ионов Y^{3+} ионами Ce^{3+} , а октаэдрические и тетраэдрические узлы заняты ионами Al^{3+} . Однако, реальная структура кристалла далека от совершенства, что связано с особенностями методов их выращивания и чистотой исходной шихты. И, чем сложнее состав кристалла, тем более разнообразны способы замещения ионами тех или иных узлов кристаллической решетки, что напрямую отражается на спектральном поведении активатора. Так, например, в процессе выращивания кристаллов YAG:Ce происходит существенное увеличение количества дефектов Y_{Al} , связанных с неэквивалентными замещени-

ями, которые приводят к увеличению параметра элементарной ячейки и вероятности вхождения ионов Ce^{3+} в кристалл. В кристаллах LuAG:Ce, основываясь на результатах ЭПР и спектрально-люминесцентного анализа [7–9] и в кристаллах YAG:Ce [10] были идентифицированы центры Ce^{3+} и Ce^{3+}Al и,искажённые ближайшим дефектом (d), центры $\text{Ce}^{3+}\text{Al}-d$. Наличие коротковолнового дуплета в области ~217–238 нм и длинноволнового триплета в области ~260–320 нм этих центров показало, что энергетическое положение полос возбуждения соответствует октаэдрическому окружению активатора.

Влияние γ -облучения на кристаллы YAG:Ce (0.1 и 0.2 ат%) [10], выращенные методом Бриджмена, показало, что в γ -наведённых спектрах кристаллов наблюдается почти в 10 раз более интенсивное поглощение центров Ce^{4+}Al на 300 нм, чем в не активированном кристалле. В выращенном кристалле с низким содержанием ионов Ce (0.1 ат%), весьма заметная доля от реальной концентрации активатора стабилизируется в состоянии Ce^{4+} , увеличивая количество дырочных ловушек в ближайшем окружении отмеченного иона. При этом часть этих ловушек (3–6 ат%) стабилизируется вблизи октаэдрических Ce^{4+}Al узлов кристалла. В кристалле YAG:Ce (0.2 ат%) лишь 0.75 % ионов Ce, т.е. 0.0015 ат% находится в состоянии Ce^{4+} , однако, при этом фиксировалось вдвое большее количество Ce^{4+}Al -дефектов. Повышенное содержание Ce^{4+}Al в выращенных кристаллах YAG:Ce (0.2 ат%) стабилизирует большее количество зарядовых ловушек вблизи этих дефектов и приводит к упорядочению ближайшего окружения додекаэдрического узла иона Ce^{3+} . В работе [12], с использованием EXAFS-спектроскопии, было показано, что собственные и примесные точечные дефекты в кристаллах YAG будут, прежде всего, адаптироваться за счет образования антицентров, а не вакансий или междуузлий в решетке.

Цель данного исследования – определение спектральных особенностей полосы люминесценции ионов Ce^{3+} в кристаллах YAG:Ce, обусловленной межконфигурационными переходами активатора $4f^15d^0 \rightarrow 4f^05d^1$.

2. Используемые материалы и методы исследования

Монокристаллы YAG:Ce были выращены методом вертикальной направленной кристаллизации (метод Бриджмена) [13] в молибденовых контейнерах диаметром 14 мм в инертно-восстановительной среде (Ar/H_2 10 об%) со скоростью 1–1.5 мм/час на затравки, ориентированные вдоль кристаллографической оси $<100>$. Выращивание кристаллов проводилось из стехиометрических расплавов с ионами высокочистых оксидов Y_2O_3 , CeO_2 (99.99%) и кристаллического Al_2O_3 (99.95%).

Абсорбционно-люминесцентные исследования проводились с использованием спектрофотометров SPECORD M40 ($54000\text{--}11000\text{ см}^{-1}$), SPECORD M80 ($2000\text{--}400\text{ см}^{-1}$) и спектрометра ДФС-24 (360–800 nm). Люминесценция возбуждалась галогенными лампами (“PHILIPS”, 100 Вт) с использованием оптических фильтров. Возбуждающее излучение фокусировалось собирающей линзой на плоской поверхности кристалла, перпендикулярной направлению регистрации полученного излучения, которое, посредством кварцевого световода, подавалось на входную щель спектрометра.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

Полосы люминесценции Ce^{3+} ионов в кристаллах со структурой граната, в первую очередь обусловлены энергетическим положением и структурой $4f$ уровней основного $^2F_{5/2}$ и возбужденного $^2F_{7/2}$ состояний, а также уровней оболочки $5d$. В этой связи были подробно рассмотрены как внутриконфигурационные ($4f \rightarrow 4f$), так и межконфигурационные переходы ($4f^1 5d^0 \leftrightarrow 4f^0 5d^1$), которые позволили определить особенности формирования полос люминесценции в том или ином кристалле.

3.1. Внутриконфигурационные переходы ($4f \rightarrow 4f$).

Часть полос поглощения кристалла YAG:Ce (0.66 ат%) находится на краю валентной зоны, которая заметно сдвинута в сторону высоких энергий, по сравнению с неактивированным кристаллом YAG (рис.1). Интенсивность внутриконфигурационных $4f \rightarrow 4f$ ($^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$) полос поглощения на ~2.7 порядка меньше, чем интенсивность поглощения полос межконфигурационных $4f \rightarrow 5d$ переходов. Рассматриваемые переходы относятся к запрещённым переходам и наблюдаются, в основном, в результате вынужденных электродипольных переходов [14], связанных с нецентросимметричными взаимодействиями примесного иона с кристаллическим окружением. Полуширина наиболее интенсивной полосы поглощения составляет ~29 см⁻¹. Непосредственно перед основным спектром $^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$ перехода иона Ce^{3+} в кристалле YAG:Ce также присутствует слабоинтенсивный и узкий дополнительный спектр, который ассоциируется с поглощением октаэдрических ионов $\text{Ce}^{3+}_{\text{Al}}$. Повышение концентрации Ce^{3+} ионов увеличивает количества как додекаэдрических узлов, где ион Ce^{3+} замещает ион Y^{3+} , так и октаэдрических, где ион Ce^{3+} замещает ион Al^{3+} , что способствует увеличению параметра элементарной ячейки кристалла (табл.1).

Табл.1. Координационные числа и ионные радиусы [15] элементов кристалла YAG:Ce, концентрация ионов Ce^{3+} и параметр элементарной ячейки (a_0) YAG:Ce

Ион	К. ч.	Радиус, Å	К. ч.	Радиус, Å	Кристалл		
					Состав	Концентрация ионов Ce^{3+} , ат%	a_0 , Å
Ce^{3+}	6	1.01	8	1.14			
Ce^{4+}	6	0.80	8	0.97			
Y^{3+}	6	0.9	8	1.019	YAG:Ce	0.11	12.005
Al^{3+}	6	0.53				0.66	12.012

Для подтверждения наличия в кристалле октаэдрических ионов Ce^{3+} было проведено сравнительное рассмотрение спектров кристаллов YAG:Ce (0.66 ат%) и GdScAG:Ce (2.5 ат% в расплаве), нормированных на величины первых, наиболее интенсивных полос (рис.2).

Как следует из спектров, представленных на рис.2, полосы поглощения ионов Ce^{3+} , занимающих додекаэдрические позиции рассматриваемых кристаллов, смещены друг относительно друга в зависимости от энергии связи иона Ce^{3+} в додекаэдрическом узле. По сравнению с кристаллом YAG:Ce, полосы поглощения ионов Ce^{3+} в кристалле GdScAG:Ce смещены в низкоэнергетическую область из-за сравнительно большего объёма отмеченного узла. В высокоэнергетической области наблюдаются спектры поглощения, которые могут быть отнесены к

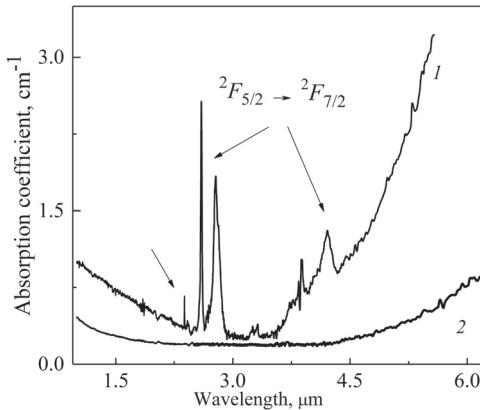


Рис.1. Спектры поглощения кристаллов: 1 –YAG:Ce (0.66 ат%) и 2 – YAG в области $4f \rightarrow 4f$ переходов ионов Ce³⁺. Положение полос октаэдрических ионов Ce³⁺ отмечено стрелкой в области 2.3–2.5 мкм. Двумя стрелками отмечено поглощение додекаэдрического узла.

спектрам ионов Ce³⁺, занимающих октаэдрические позиции (рис.2б, область спектров 1, 2 и 3). Максимальная интенсивность этих полос для центров 1 составляет $\approx 21\%$ от интенсивности нормированных на единицу основных полос поглощения. Неожиданным оказалось полное совпадение спектрального распределения октаэдрических центров 1 в обоих кристаллах (рис.2б). Подобное совпадение означает, что в кристаллах GdScAG:Ce обнаруживается такая же доля ионов Ce³⁺, занимающих октаэдрические позиции, как и в YAG:Ce и предполагает полное отсутствие в их ближайшем окружении как ионов Gd³⁺, так и Sc³⁺.

На основе анализа представленных на рис.2 спектров поглощения и данных по относительному распределению уровней состояния $^2F_{7/2}$ ионов Ce³⁺ в кристалле YAG:Ce, полученных при 13 К [11], определены схемы энергетических уровней $^2F_{5/2}$ и $^2F_{7/2}$ и идентифицированы переходы между ними при 300 К (табл.2) в кристалле YAG:Ce (0.66 ат%).

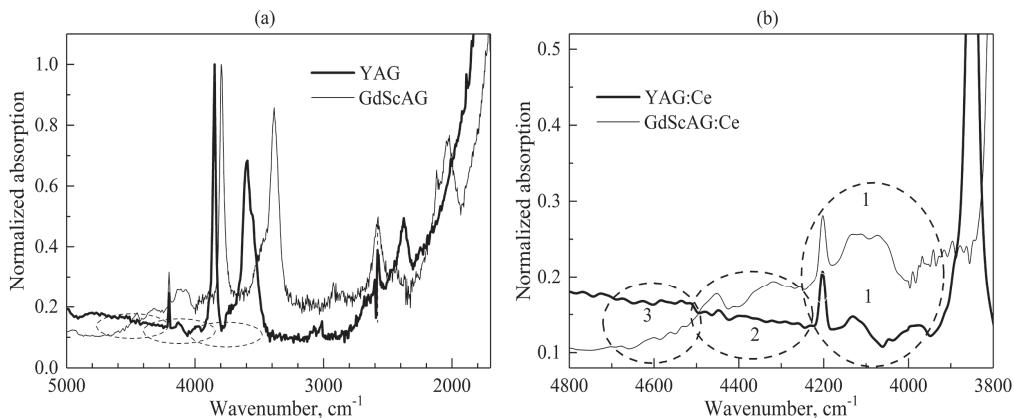


Рис.2. (а) Нормированные спектры поглощения кристаллов 1 – YAG:Ce (0.66 ат.%) и 2 – GdScAG:Ce (2.5 ат.% в расплаве) в области переходов $^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$ ионов Ce³⁺. (б) Фрагмент спектров, где отмечены области полос поглощения ионов Ce³⁺, занимающих октаэдрические позиции в кристаллах YAG:Ce (1) и в GdScAG:Ce (1–3).

Табл.2. Уровни энергии состояний $^2F_{5/2}$ и $^2F_{7/2}$ ионов Ce $^{3+}$ и переходы между ними в кристаллах YAG:Ce

Основное состояние $^2F_{5/2}$	№ уровня	$E, \text{см}^{-1}$	Переходы ионов Ce $^{3+}$ в кристалле YAG:Ce					
			Додекаэдрический узел иона Ce $^{3+}$					
			$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}
Состояние $^2F_{7/2}$	4	2094	$1 \rightarrow 4$	2094	$2 \rightarrow 4$	1844	$3 \rightarrow 4$	1798
	5	2250	$1 \rightarrow 5$	2250	$2 \rightarrow 5$	2000	$3 \rightarrow 5$	1954
	6	2375	$1 \rightarrow 6$	2375	$2 \rightarrow 6$	2125	$3 \rightarrow 6$	2079
	7	3848	$1 \rightarrow 7$	3848	$2 \rightarrow 7$	3597	$3 \rightarrow 7$	3552
Основное состояние $^2F_{5/2}$	1	0	Октаэдрический узел иона Ce $^{3+}$					
	2	75	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2F_{7/2}$	см^{-1}
	3	93						
Состояние $^2F_{7/2}$	4	4021	$1 \rightarrow 4$	4021	$2 \rightarrow 4$	3946	$3 \rightarrow 4$	3928
	5	4047	$1 \rightarrow 5$	4047	$2 \rightarrow 5$	3971	$3 \rightarrow 5$	3954
	6	4075	$1 \rightarrow 6$	4075	$2 \rightarrow 6$	4000	$3 \rightarrow 6$	3902
	7	4202	$1 \rightarrow 7$	4202	$2 \rightarrow 7$	4127	$3 \rightarrow 7$	4109

3.2. Межконфигурационные переходы ($4f^1 5d^0 \rightarrow 4f^0 5d^1$)

Следующая группа уровней, принимающая участие в процессах люминесценции ионов Ce $^{3+}$ принадлежит уровням 5d конфигурации и находится в области высокоэнергетического края прозрачности кристаллов (выше 52729 см^{-1}). Основная часть спектра поглощения межконфигурационного перехода $^2F_{5/2} \rightarrow ^2D_{3/2}$ ионов Ce $^{3+}$ в кристаллах YAG:Ce с различным содержанием активатора наблюдается в области 54000–12000 см^{-1} (рис.3а). С увеличением концентрации активатора интенсивность разрешенных полос на 22285 см^{-1} и 28798 см^{-1} возрастает. Полуширины полос поглощения при различных концентрациях активатора составляют ~1700 и ~1800 см^{-1} , соответственно. Для отмеченных полос не наблюдалось сколь-либо существенного спектрального сдвига при изменении концентрации активатора. Однако рассмотрение последовательных разностных спектров поглощения отмеченных кристаллов (рис.3б) позволило выявить структуру уровней основного состояния $^2F_{5/2}$ внутри полосы на 22350 см^{-1} (табл.3). Расстояния между пиками 1 и 2, а также между 1 и 3 соответствуют расстояниям между уровнями состояния $^2F_{5/2}$ (табл.2). Наличие двух смешённых друг относительно друга групп (1, 2 и 3), т. е двух смешённых центров иона Ce $^{3+}$ объясняется разницей параметров элементарных ячеек кристалла с концентрацией Ce $^{3+}$ 0.073 ат% (12.006 Å) и кристаллов с концентрацией 0.15 и 0.21 ат% (12.007 Å).

Табл.3. Уровни энергии ионов Ce $^{3+}$ в кристаллах YAG:Ce, участвующие в переходах $4f^1 5d^0 \rightarrow 4f^0 5d^1$

YAG:Ce					
Переход	Полоса	Энергия уровня, см^{-1}	Переход	Полоса	Энергия уровня, см^{-1}
$F_{5/2} \rightarrow ^2D_{3/2}$	1	≈ 22285	$^2F_{5/2} \rightarrow ^2D_{5/2}$	3	≈ 44060
	2	≈ 29986		4	≈ 45889
				5	≈ 48380

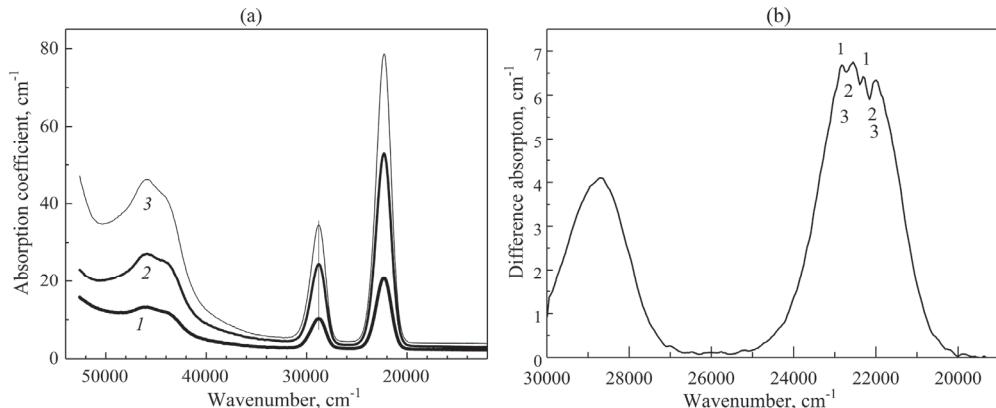


Рис.3. (а) Спектры поглощения ($F_{5/2} \rightarrow ^2D_{3/2}$) кристаллов YAG:Ce с различным содержанием активатора: 1 – 0.073 ат%, 2 – 0.15 ат%, 3 – 0.21 ат%. (б) Разностные спектры полос поглощения отмеченных кристаллов.

3.3. Люминесценция ионов Ce^{3+} в кристаллах YAG:Ce

Возбуждение спектров люминесценции ионов Ce^{3+} в кристаллах граната связано с необходимостью использования кристаллических образцов сравнительно крупного размера, спектр поглощения которых может быть чрезмерно интенсивным. На рис.4а приведены спектры поглощения и люминесценции ($4f^1 5d^0 \leftrightarrow 4f^0 5d^1$) кристаллов YAG:Ce с концентрацией активатора 0.11 и 0.66 ат% с толщиной пластиинок 0.195 см.

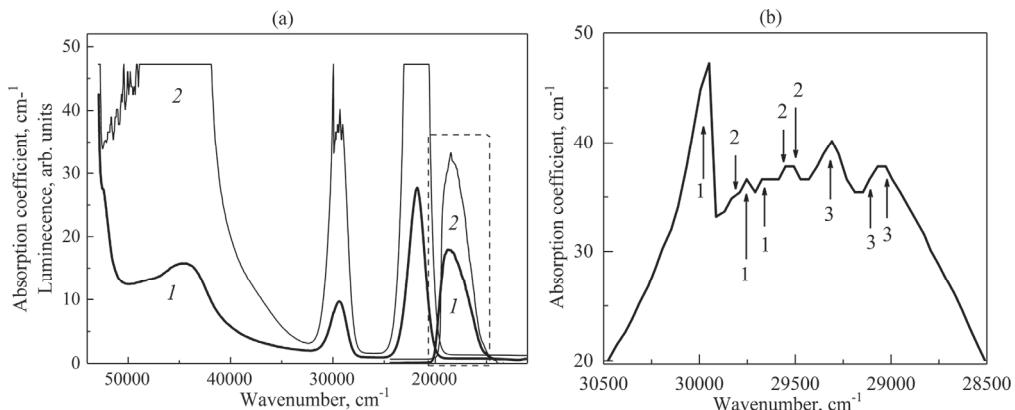


Рис.4. (а) Спектры поглощения кристаллов: 1 – YAG:Ce (0,11 ат%) и 2 – YAG:Ce (0,66 ат%) толщиной 0,195 см⁻¹; и увеличенные в 8 раз полосы люминесценции ионов Ce^{3+} , возбужденных галогенной лампой. Область излучения отмечена пунктирной линией. (б) Структура полосы поглощения на ≈ 29986 см⁻¹ кристалла YAG:Ce (0,66 ат%).

При одинаковых размерах образцов и условий возбуждения люминесценции для кристаллов с большей концентрацией активатора наблюдается увеличение интенсивности излучения ионов Ce^{3+} почти вдвое и сдвиг максимума излучения в низкоэнергетическую область. Кроме того, на вершине, единственной полностью видимой полосы поглощения на ≈ 29986 см⁻¹ (рис.4а,б), в кристалле

YAG:Ce (0.66 ат%) наблюдается структура полос, которая свидетельствует о наличии, как минимум, трех различных Ce^{3+} -центров, отмеченных стрелками на рис.4б. Расстояния между пиками внутри каждого из центров 1, 2 и 3 соответствуют величинам расщепления основного состояния $^2F_{5/2}$ (табл.2). Повышение концентрации активатора и объема кристалла увеличивает долю смешанных уровней активатора из-за наличия различных дефектов и изменения параметра ячейки. Многоцентровая структура полос переходов $^2F_{5/2} \rightarrow ^2D_{3/2,5/2}$ ионов Ce^{3+} (рис.3б и рис.4) не позволяет зафиксировать точное значение пика полос поглощения (в пределах 500 cm^{-1} и более).

Максимум полосы люминесценции кристалла YAG:Ce (0.11 ат%) представляет собой неравномерное плато (рис.5), образованное структурой нижнего возбужденного уровня состояния $^2D_{3/2}$. Как следует из рис.3б, низкоэнергетический уровень состояния $^2D_{3/2}$, в процессе возбуждения приобретает повторяющуюся структуру основного состояния $^2F_{5/2}$, где превалируют два центра, разных по интенсивности поглощения. Однако в спектрах поглощения кристалла YAG:Ce (0.66 ат%) идентифицируются три центра (рис.4б) и, соответственно, максимум излучения также образуется тремя (1, 2, 3) различными центрами (рис.5б и табл.4). Более того, те же самые максимумы излучения наблюдаются в объемном кристалле YAG:Ce (0.11 ат%) (рис.5).

В исследуемых кристаллах ширина уровней $^2D_{3/2}$ формируется совокупностью уровней ионов Ce^{3+} , занимающих несколько отличающихся додекаэдрических узлов. Высокоэнергетическое крыло полос люминесценции формируется переходами с полосы $\sim 22285 \text{ cm}^{-1}$ (5d) (табл.3) на уровни 5, 6 и 7 состояния $^2F_{7/2}$ оболочки 4f додекаэдрических узлов ионов Ce^{3+} (табл.2). Низкоэнергетическое крыло полосы излучения в YAG:Ce (0.11 ат% и 0.66 ат%) ($d = 0.19 \text{ см}$) частично

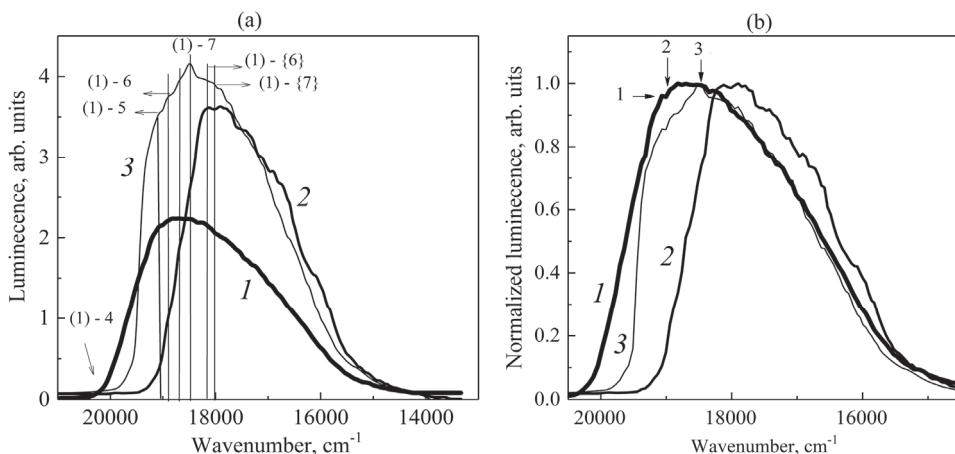


Рис.5. (а) Полосы люминесценции ионов Ce^{3+} в кристаллах YAG:Ce: 1 – Ce 0.11 ат% ($d = 0.19 \text{ см}$), 2 – Ce 0.11 ат% ($d = 0.90 \text{ см}$), 3 – Ce 0.66 ат% ($d = 0.07 \text{ см}$). Вертикальными линиями отмечена часть идентифицированных переходов, принимающих участие в формировании полос люминесценции. (1) – первый уровень состояния $^2D_{3/2}$ (табл.3), 4, 5, 6, 7 – уровни $^2F_{7/2}$ додекаэдрических или октаэдрических ({}}) узлов ионов Ce^{3+} (табл.2). (б) Нормированные полосы люминесценции кристаллов, где стрелками отмечены максимумы пиков излучения 3-х различных центров ионов Ce^{3+} (табл.4).

формируется переходами с той же $5d$ полосы, но на уровне $^2F_{7/2}$ ($4f$) октаэдрических узлов {} ионов Ce^{3+} (табл.2 и рис.5). Ниже $\sim 18000 \text{ см}^{-1}$, в кристалле YAG:Ce (0.11 ат%) ($d = 0.90 \text{ см}$), в спектре люминесценции усиливаются интенсивности добавочных центров ионов Ce^{3+} из-за увеличения объема кристалла (рис.5). Значительное сужение полосы люминесценции этого кристалла в высокогенеретической области обусловлено реабсорбцией излучения заметно уширенной полосы поглощения на $\sim 22285 \text{ см}^{-1}$.

4. Заключение

Интенсивность и форма полос люминесценции ионов Ce^{3+} в кристаллах YAG:Ce зависят от концентрации активатора, объема исследуемого образца и внутренних дефектов в структуре кристалла. Высокогенеретическое крыло полосы люминесценции формируется ионами Ce^{3+} додекаэдрических узлов кристалла, а низкогенеретическое – ионами октаэдрических узлов Ce_{AL} .

В кристаллах YAG:Ce (0.11 и 0.66 ат%) были обнаружены три различных центра ионов Ce^{3+} . Причиной образования многоцентровости кристаллов является величина коэффициента распределения иона активатора в растущем кристалле, который может быть либо больше, либо меньше единицы в зависимости от относительного размера активатора. Коэффициент распределения иона Ce^{3+} в YAG равен 0.1, что приводит к последовательному обогащению расплава ионами Ce^{3+} в процессе роста. Соответственно, увеличение концентрации ионов Ce^{3+} в растущем кристалле увеличивает и параметр элементарной ячейки. Этот эффект наглядно виден в высококонцентрированном кристалле (рис.4b), где градиент концентрации активатора приводит к смещению и уширению уровней энергии $4f^1 5d^0 \leftrightarrow 4f^0 5d^1$ переходов. Уровни состояний $4f$, энергия которых на порядок или на два порядка меньше, существенно не изменяются по сравнению с межконфигурационными переходами.

Наличие октаэдрических узлов активатора (Ce_{AL}) несколько расширяет область максимума излучения в кристалле с концентрацией 0.11 ат%, но при этом, изменяя свою валентность ($\text{Ce}^{3+}_{\text{Al}} \leftrightarrow \text{Ce}^{4+}_{\text{Al}}$), образует буферную зону вблизи активатора, отвлекая на себя часть электронных дыроковых ловушек [10]. Увеличение в 6 раз содержания ионов Ce^{3+} в кристалле YAG:Ce (0.66 ат%) проявляет максимум излучения и способствует более резкому увеличению интенсивности излучения. Соответственно уменьшается ширина полос излучения 3023 см^{-1} для кристалла YAG:Ce (0.11 ат%) и 2751 см^{-1} для кристалла YAG:Ce (0.66 ат%).

Многоцентровая структура полос поглощения и люминесценции ионов Ce^{3+} на переходах $4f \leftrightarrow 5d$ приводит к значительному разбросу экспериментальных данных [11] по определению энергии (или длины волны) как полос поглощения, так и люминесценции. Максимальная интенсивность того или иного центра будет определять максимальное положение полос поглощения и люминесценции ионов Ce^{3+} , а количество центров – ширину этих полос, что, в свою очередь, зависит от концентрации активатора и метода выращивания кристалла. Причиной многоцентровости могут быть также и различные дефекты в кристаллах: октаэдрические Ce^{3+} вблизи додекаэдрического иона Ce^{3+} , различные вакансии вблизи активатора и т.д.

Работа выполнена при поддержке Государственного Комитета по науке РА (Республики Армении) (проект 21AG-1C030).

ЛИТЕРАТУРА

1. **J. Ueda, S. Tanabe.** Optical Materials: X, **1**, 100018 (2019).
2. **M. Moszynski, M. Kapusta, M. Mayhugh, D. Wolski, S.O. Flyckt.** IEEE Trans. Nucl. Sci., **44**, 1052 (1997).
3. **J.A. Mares, M. Nikl, A. Bejtlerova, C.D'Ambrosio, F. de Notaristefani, K. Blazek, P. Maly, K. Nejezchleb.** Optical Materials, **24**, 281 (2003).
4. **J.F. Owen, P.B. Dorain, T. Kobayashi.** J. Appl. Phys. **52**, 12161223 (1981).
5. **W.J. Miniscalco, J.M. Pellegrino, W.M. Yen.** J. Appl. Phys., **49**, 6109 (1978).
6. **V. Mürk, N. Yaroshevich.** In: Proc. Intern. Conf. on Inorganic Scintillators and Their Applications (SCINT-95), p. 359 (1996, Delft University Press).
7. **V.V. Laguta, A.M. Slipenyuk, M.D. Glinchuk, I.P. Bykov, Y. Zorenko, M. Nikl, J. Rose, K. Nejezchleb.** Radiat. Meas., **42**, 835 (2007).
8. **V. Babin, V.V. Laguta, A. Makhov, K. Nejezchleb, M. Nikl, S. Zazubobovich.** IEEE Trans. Nuclear Science, **55**, 1156 (2008).
9. **C.R. Stanek, K.J. McClellan, M.R. Levy, C. Milanese, R.W. Grimes.** Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Research, **A579**, 27 (2007).
10. **T. Butaeva, I. Ghambaryan, M. Mkrtchyan.** Opt. Spectr., **118**, 247 (2015).
11. **H. Przybylinska, Ch.-G. Ma, M.G. Brik, A. Kaminska, P. Sybilska, A. Wittlin, M. Berkowski, Yu. Zorenko, V. Gorbenko, H. Wrzesinski, A. Suchocki.** Appl. Phys. Letters, **102**, 241112 (2013).
12. **M.M Kuklja.** Phys.: Condens. Matter, **12**, 295 (2000).
13. **Kh.S. Bagdasarov.** High-Temperature Crystallization from Melt. Yerevan, Edit Print, 2003.
14. **Д.Т. Свиридов, Р.К. Свиридова, Ю.Ф. Смирнов.** Оптические спектры ионов переходных металлов в кристаллах. Москва, Наука, 1975.
15. **R.D. Shannon.** Acta Cryst., **A32**, 751 (1976).

FORMATION OF LUMINESCENCE BANDS OF Ce^{3+} IONS IN YAG:Ce CRYSTALS

T.I. BUTAEVA, K.L. HOVHANNESYAN, A.V. YEGANYAN

The spectral features and structural factors influencing the formation of luminescence bands of Ce^{3+} ions in YAG:Ce crystals are considered. The energy levels of the $4f$ shell of Ce^{3+} ions occupying both dodecahedral and octahedral sites of the crystal lattice have been determined. The participation of Ce^{3+} ions and Ce^{3+}Al ions in the structure of the luminescence band was shown and the multicenter structure of Ce^{3+} ions in the $4f \leftrightarrow 5d$ transitions of the activator was determined.

Ce^{3+} ԻՌԱՆԵՐԻ ԼՅՈՒՄԻՆԵՍԵՆՑԻՈՆ ՇԵՐՏԵՐԻ
ԿԱԶՄԱՎՈՐՈՒՄ ՅԱԳ:Ce ԲՅՈՒՐԵԴՆԵՐՈՒՄ

Տ.Ի. ԲՈՒՏԱԵՎԱ, Կ.Լ. ՀՈՎՀԱՆՆԵՍՅԱՆ, Ա.Վ. ԵԳԱՆՅԱՆ

Ներկայացված աշխատանքում դիտարկված են YAG:Ce բյուրեղներում Ce^{3+} իոնների սպեկտրալ առանձնահատկությունները և կառուցվածքային գործնմերը, որոնք ազդում են ալտիվատորի լումինեսցենցիոն շերտերի կազմավորման վրա: Որոշված են Ce^{3+} իոնների $4f$ շերտի էլեկտրոնային մակարդակները, որոնք զբաղեցնում են բյուրեղական ցանցում ինչպես դոդեկաէդրիկ, այնպես էլ օկտաէդրիկ հանգույցները: Ցույց է տրված դոդեկաէդրիկ և օկտաէդրիկ հանգույցներում գտնվող ակտիվատորի մասնակցությունը լումինեսցենցիոն շերտի կառուցվածքում և սահմանվել են ակտիվատորի $4f \rightarrow 5d$ անցումների բազմակենտրոն կառուցվածքը:

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.585–592 (2023)

УДК 537.311.6

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-585

ИССЛЕДОВАНИЕ НАНОСТРУКТУРНОГО СЕНСОРА $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ МЕТОДОМ ИМПЕДАНСНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

Г.А. ШАХАТУНИ

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

e-mail: gevshahkhatuni@ysu.am

(Поступила в редакцию 18 августа 2023 г.)

Исследован чувствительный к парам перекиси водорода сенсор на основе наноразмерной пленки $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ (80:20 вес%). Проведены исследования $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ сенсора методом импедансной спектроскопии. На основе анализа частотных зависимостей реальной и мнимой частей комплексного импеданса предложена эквивалентная электрическая цепь для исследуемой сенсорной структуры, оценены параметры составляющих ее элементов и рассчитаны аппроксимирующие кривые. Изображения пленки $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$, полученные с помощью сканирующей электронной микроскопии (СЭМ), показали, что она имеет наночастичную структуру. Этот тип сенсоров можно использовать в детекторах, обнаруживающих пары перекиси водорода, с переменным сигналом, при этом сенсор должен быть настроен на достижение максимальной чувствительности выбором подходящего диапазона рабочих частот.

1. Введение

Перекись водорода (H_2O_2) – химическое вещество, широко используемое в промышленности и в медицине. Особенностями H_2O_2 являются обширный спектр антибактериальных свойств, низкая токсичность и экологическая чистота, так как при ее разложении образуются нейтральные продукты – вода и кислород. Перекись водорода широко применяется как окислительное, отбеливающее и антисептическое средство, что делает ее одним из важных веществ, используемых в фармацевтической, биохимической и пищевой промышленностях.

Несмотря на то, что перекись водорода сама по себе негорючая, она обладает сильными окислительными свойствами и может вызвать самовозгорание при контакте с органическими материалами. Из-за высокой реакционной способности H_2O_2 может стать опасным веществом, если ее концентрация превышает допустимые пределы. Поэтому разработка эффективных методов обнаружения перекиси водорода становится все более актуальной задачей [1–3].

Для обнаружения паров перекиси водорода и измерения их концентрации существует ряд методов и устройств таких, как инфракрасная спектрофотометрия, рамановская спектроскопия, оптические сенсоры, электрохимические сенсоры и др. Наибольший интерес сегодня представляют резистивные сенсоры на основе полупроводниковых металлооксидов, имеющие низкую стоимость, простую технологию изготовления, высокие чувствительность и селективность, хорошую временную стабильность параметров и т. д.

Одним из наиболее широко используемых в резистивных газовых сенсорах металлооксидных полупроводников является окись железа $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ (гематит), являющаяся недорогим, распространенным, экологически чистым и нетоксичным материалом с шириной запрещенной зоны ~ 2.2 эВ. Электрические, химические и газочувствительные свойства $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ могут быть улучшены функционализацией материала легированием или созданием твердых растворов, а также при использовании наночастиц благородных металлов для улучшения поверхностных свойств. В последние десятилетия в производстве резистивных газовых сенсоров стали широко использоваться также наноструктуры на основе ZnO , характеризующегося высокой чувствительностью, большой подвижностью электронов, широкой запрещенной зоной (~ 3.3 эВ). Проведенные исследования показывают, что нанокомпозитные структуры на основе многокомпонентных материалов показывают гораздо лучшие результаты по обнаружению газов, чем чистые материалы. В частности, сенсоры на основе наностержней $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$, декорированных ZnO , гетероструктур $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{ZnO}$ и $\text{Au}/\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{ZnO}$ демонстрируют лучшие отклики и газочувствительные характеристики по сравнению с чистыми оксидами [4–9].

Импедансная спектроскопия является эффективным инструментом изучения физических и химических процессов в материалах и системах, включая полупроводниковые газовые сенсоры. Это неразрушающий метод анализа, который дает возможность изучения материалов на микро- иnano-уровне. Импедансная спектроскопия предоставляет информацию о процессах, происходящих на поверхности сенсора, и позволяет выявить механизмы, которые лежат в основе чувствительности сенсора к конкретным газам [10–12].

В основе импедансной спектроскопии лежит измерение импеданса (или комплексного сопротивления) материала на разных частотах, результаты которого могут быть представлены, в частности, в виде частотных зависимостей реальной и мнимой компонент комплексного импеданса. Частотная зависимость импеданса определяется рядом факторов, включая как свойства исследуемого материала, механизмы проводимости, так и зависимость от температуры и взаимодействие с целевым газом.

Импедансная спектроскопия является сложной техникой, требующей специального оборудования и подготовки. Однако она дает возможность получить ценную информацию о свойствах полупроводниковых газовых сенсоров и механизмах их взаимодействия с газами, что делает ее важным инструментом в этой исследовательской области. Трудности в использовании этого метода связаны со сложностями при количественном анализе и неоднозначной интерпретацией полученных результатов. В связи с этим надо отметить, что существенное развитие в последнее десятилетие технологической базы для количественного анализа измеряемых частотных характеристик комплексного импеданса привело к значительному увеличению областей применения метода импедансной спектроскопии.

Целью данной работы являлось исследование методом импедансной спектроскопии изготовленного нами энергосберегающего сенсора $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ (80:20 вес%), чувствительного к парам перекиси водорода.

2. Методика эксперимента

2.1. Технология изготовления сенсора

Тонкие пленки $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ были получены методом магнетронного напыления на подложку из Al_2O_3 . Магнетронное напыление – это процесс осаждения тонких пленок материала на поверхность подложки с использованием плазмы и магнитного поля. Магнетронное напыление позволяет осуществлять нанесение покрытий из очень широкого спектра материалов, включая металлы, диэлектрики, керамику и т.д., и является передовой вакуумной техникой для полученияnanoструктурных тонких пленок [13]. Этот метод обеспечивает высокую степень контроля над толщиной и составом пленки, что делает его предпочтительным для создания газовых сенсоров.

На первом этапе методом твердофазной реакции была синтезирована керамическая мишень $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ для магнетронного напыления. Для этой цели использовались нанопорошки $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ (гематит) и ZnO (вюрцит) (нанопорошки, 20–40 нм, Alfa Aesar, Haverhill, MA, США) с чистотой 99.9%. Технологические этапы этой процедуры более подробно представлены в наших предыдущих работах [14,15]. Была изготовлена цилиндрическая мишень $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ диаметром 50 мм и толщиной 2 мм, содержащая 20 вес% ZnO .

Газочувствительные пленки для обнаружения паров перекиси водорода были получены методом высокочастотного магнетронного напыления с использованием системы VTC-600-2HD DC/RF Dual-Head High Vacuum Magnetron Plasma. Была использована синтезированная керамическая мишень $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ после соответствующей механической и химической обработки. В процессе напыления мишень бомбардируется энергичными ионами инертных газов, которые присутствуют в предварительно зажженной плазменной среде. Динамическое столкновение этих энергичных ионов охлаждаемой водой мишенью приводит к испусканию нанозерен материала мишени, которые конденсируются на подложке в виде тонкой пленки. Мы использовали высокочистый (99.99%) аргон (Ar) как наиболее предпочтительный «инертный» или «благородный» газ, который не является взрывоопасным при действии высокочастотного (13.56 МГц) магнитного поля (рис.1).

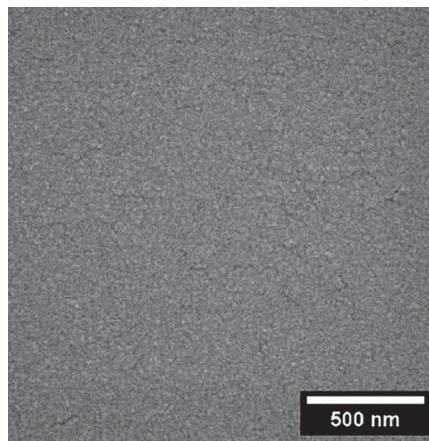


Рис.1. SEM-изображение пленки $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$.

В качестве подложки для сенсора нами использовались заводские Multi-Sensor-Platforms (TESLA BLATNÁ, Blatná, Чехия). Эта платформа содержит структуры встречно-штыревых электродов, нагреватель и датчик температуры (Pt 1000) на алюминиевой подложке. Чувствительная пленка $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ была нанесена на структуру встречно-штыревых электродов, в результате чего платформа превращается в сенсор. Затем на поверхность пленки $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ наносятся методом DC-напыления каталитические наночастицы палладия. В общем случае эти наночастицы создают зоны перелива вокруг себя на поверхностях газочувствительного слоя, где действуют механизмы химических и электрических чувствительностей. Молекулы целевого газа, прибывающие в такие зоны, легче диссоциируются, что приводит к улучшению чувствительности и времени отклика. Технологические режимы процессов напыления приведены в нашей предыдущей работе [14]. На финальном этапе изготовления сенсора платформа с пленкой $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ и наночастицами Pd отжигалась в течение 3 часов при 350°C для стабилизации ее рабочих параметров.

2.2. Методика измерений

Исследования характеристик изготовленного сенсора $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ проводились методом импедансной спектроскопии. Изготовленный сенсор помещался в герметически закрывающуюся камеру, в которой заранее созданы все необходимые соединения. Измерения частотных зависимостей комплексного импеданса исследуемой структуры проводились с помощью устройства Wonatech Zive SP1 и его программного пакета Smart Manager 6. Результаты этих исследований регистрировались с помощью программы Smart Manager 6 устройства Zive SP1. Измерения комплексного импеданса проводились в диапазоне частот $1\text{--}10^6$ Гц, при этом на сенсор подавалось напряжение смещения 1 В, на которое накладывался синусоидальный сигнал с амплитудой 300 мВ. Для нагрева сенсора на нагреватель подавалось соответствующее напряжение от источника питания KEITHLEY 2231A-30-3. После термостабилизации исследуемой структуры при заданной температуре в экспериментальную камеру вводилось определенное количество водного раствора перекиси водорода, которое выпаривалось на горячей (100°C) платформе, находящейся в камере.

Измерения импедансных характеристик были проведены в чистом воздухе и при наличии в окружающей атмосфере 100 ppm паров перекиси водорода при комнатной температуре, а также при нагреве газочувствительной пленки до температуры 200°C . Измерения импедансных характеристик исследуемого сенсора $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ при комнатной температуре были проведены при воздействии ультрафиолетовых лучей. Для этого в измерительной камере на расстоянии 1 см от исследуемого образца был расположен испускающий УФ лучи светодиод (LED) RC35E6-UVE-AR, интенсивно освещавший поверхность исследуемого образца УФ лучами с длиной волны 365 нм ($3 \text{ мВт}/\text{см}^2$).

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Проведенные нами ранее исследования сенсора, рабочим телом которого являлась пленка $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$, показали, что этот композитный материал проявляет хорошие обнаружительные свойства по отношению к парам перекиси водорода и даже при комнатной температуре чувствителен к их небольшим

концентрациям. Было установлено, что при воздействии на газочувствительную пленку ультрафиолетовыми лучами происходит уменьшение рабочей температуры сенсора до комнатной, а также снижение порога чувствительности к парам перекиси водорода и сокращение времен отклика и восстановления [14]. В настоящей работе исследования сенсора на основе тонкой пленки $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ продолжены методом импедансной спектроскопии.

На рис.2 приведены полученные типичные частотные зависимости реальной и мнимой частей комплексного импеданса исследуемой сенсорной структуры. Ход полученных характеристик (в частности, наличие одного пика на частотной зависимости мнимой компоненты) позволил предположить, что исследуемая сенсорная структура может быть описана эквивалентной электрической цепью, представленной на вставке рис.2. С помощью пакета программ ZMAN 2.3 были определены параметры элементов предложенной эквивалентной электрической цепи. Полученные результаты представлены в табл.1. Были рассчитаны аппроксимирующие зависимости действительной и мнимой компонент импеданса от частоты. На рис.2 для сравнения представлены экспериментальные и рассчитанные кривые. Очевидно, что наблюдаемое достаточно хорошее соответствие между экспериментальными и аппроксимирующими зависимостями доказывает правильность выбранной эквивалентной электрической цепи для описания процессов, протекающих в изготовленной сенсорной структуре.

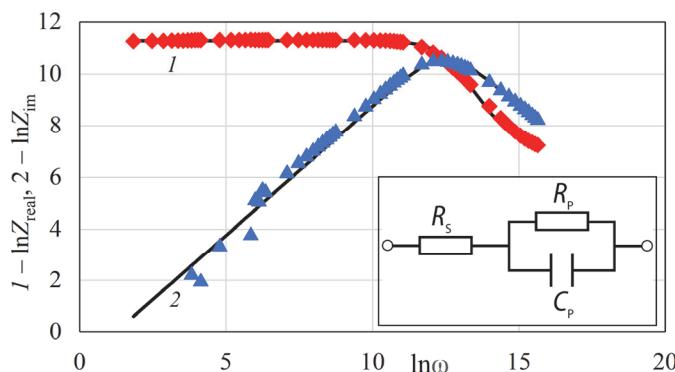


Рис.2. Экспериментальные (точки) и теоретически рассчитанные (линии) частотные зависимости реальной (1) и мнимой (2) компонент импеданса сенсора $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$, полученные на воздухе при 200°C . На вставке показана предлагаемая для исследуемой сенсорной структуры $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ эквивалентная электрическая цепь.

Исследовалось влияние воздействия 100 ppm паров перекиси водорода на импедансные характеристики исследуемого сенсора. Для наглядности результаты исследований импеданса, проведенных при температуре нагрева сенсора 200°C , представлены в виде полукруглов Найквиста (рис.3), а полученные при комнатной температуре при освещении сенсора УФ лучами импедансные характеристики представлены в виде частотных зависимостей реальной и мнимой компонент (рис.4).

Приведенные в табл.1 данные свидетельствуют о том, что основное изменение как при нагреве сенсора, так и при воздействии паров перекиси водорода

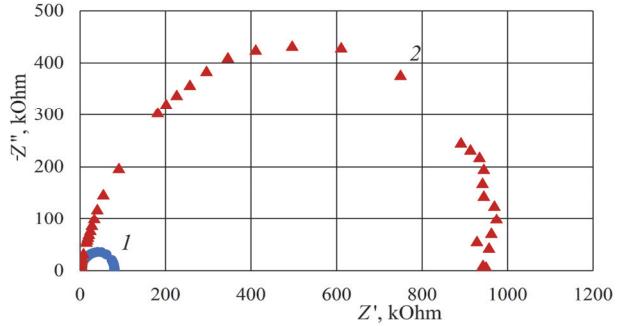


Рис.3. Полукруг Найквиста, полученный при 200°C без УФ излучения: 1 – на чистом воздухе и 2 – под воздействием 100 ppm паров перекиси водорода.

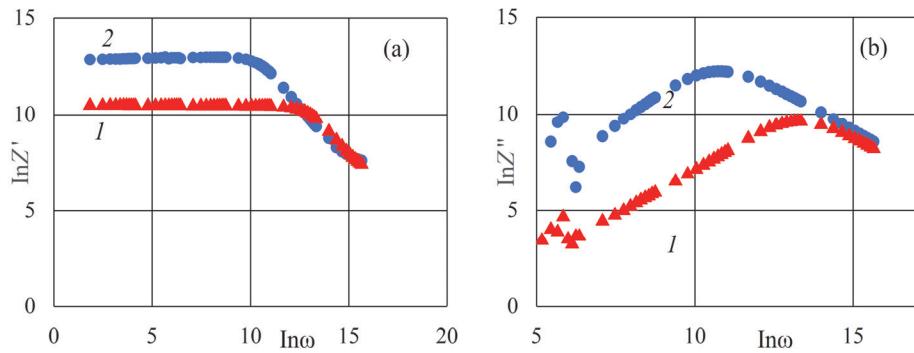


Рис.4. Импедансные характеристики сенсора $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$, полученные при комнатной температуре при освещении сенсора УФ лучами: 1 – до и 2 – после воздействия 100 ppm паров перекиси водорода для (а) реальных и (б) мнимых частей.

претерпевает активное сопротивление R_p , характеризующее, вероятно, газочувствительную пленку $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$. Отметим, что независящее ни от температуры, ни от воздействия газа сопротивление R_s было выявлено при измерении импеданса пустой подложки и, вероятно, оно связано с активным сопротивлением измерительных кабелей и электродов, а в емкость C_p основной вклад, вероятно, дает «паразитная» емкость подложки [16].

Чувствительность наноструктурного сенсора $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ определялась как отношение действительных составляющих комплексного импеданса, измеренных под действием целевого газа и на чистом воздухе. Определенная таким образом чувствительность исследуемого сенсора представлена на рис.5 как функция от частоты.

Табл.1. Значения параметров эквивалентной электрической цепи, моделирующей исследуемый сенсор $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$

	Комнатная температура, под действием УФ лучей		Температура 200 °C, без воздействия УФ лучей	
	воздух	100 ppm H_2O_2	воздух	100 ppm H_2O_2
R_s , Ом	1435	2293	1382	2328
R_p , Ом	33380	414422	77741	899702
C_p , Ф	4.59×10^{-11}	3.61×10^{-11}	4.77×10^{-11}	3.21×10^{-11}

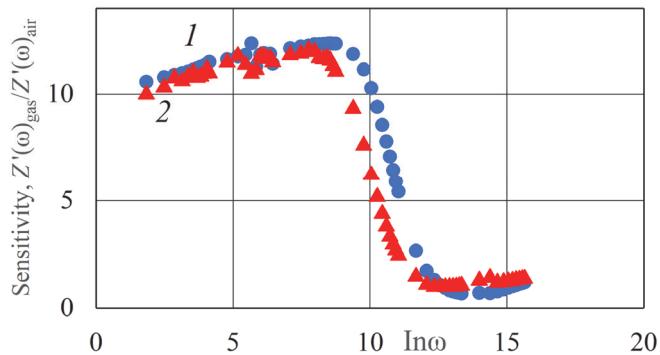


Рис.5. Зависимость чувствительности сенсора $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ от частоты: 1 – при комнатной температуре при освещении сенсора УФ лучами, 2 – при 200°C температуре без освещения сенсора УФ лучами.

Как видно, чувствительность исследуемого сенсора остается почти постоянной в диапазоне частот ниже 1000 Гц. Заметим, что и нагрев сенсора до 200°C, и воздействие УФ лучами при комнатной температуре позволяют зафиксировать одинаковое максимальное значение отклика сенсора $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ (~ 12) на воздействие 100 ppm паров перекиси водорода. Однако частота, на которой наблюдается максимальная чувствительность сенсора, сдвигается в сторону высоких частот при действии УФ лучей. Это говорит о том, что для регистрации максимальной чувствительности сенсора необходим правильный выбор подходящего диапазона рабочих частот.

4. Заключение

Проведены исследования импедансных характеристик резистивного газового сенсора, полученного методом высокочастотного магнетронного напыления пленки $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$, в частотном диапазоне от 1 до 10^6 Гц. На основе анализа частотных характеристик комплексного импеданса предложена эквивалентная электрическая цепь, состоящая из сопротивления R_S , последовательно соединенного с параллельно соединенными сопротивлением R_p и емкостью C_p , оценены величины параметров эквивалентной электрической цепи, рассчитаны аппроксимирующие импедансные кривые. Правильность выбранной эквивалентной электрической цепи подтверждается хорошим соответствием между экспериментальными точками и расчетными кривыми. Показано, что основное изменение как при нагреве сенсора, так и при воздействии паров перекиси водорода претерпевает активное сопротивление R_S , характеризующее, вероятно, процессы как в объеме, так и на поверхности газочувствительной пленки $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$. Показано, что чувствительность исследуемого сенсора остается почти постоянной в диапазоне частот ниже 1000 Гц. Воздействие УФ лучами позволяет сенсору $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ уже при комнатной температуре проявлять достаточную чувствительность карам перекиси водорода.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по науке РА в рамках научного проекта № 21Т–2J062.

Автор выражает свою благодарность М. Алексаняну и Г. Шахназарян за помощь при расчете и анализ экспериментальных данных.

ЛИТЕРАТУРА

1. **S. Chen, R. Yuan, Y. Chai, F. Hu.** Microchim. Acta, **180**, 15 (2013).
2. **W. Eul, A. Moeller, N. Steiner.** Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology, 2001.
3. **V. Aroutiounian, V. Arakelyan, M. Aleksanyan, G. Shahnazaryan, P. Kacer, P. Picha, J. Kovarik, J. Pekarek, B. Joost.** J. of Sens. and Sens. Systems, **7**, 281 (2018).
4. **Y. Li, L. Li Chen, F.X. Zhao.** Trans. Nonferr. Metals Society China, **28**, 137 (2018).
5. **X. Wang, Q. Li, C. Zhou, Z. Cao, R. Zhang.** J. Colloid. Interface Sci., **554**, 335 (2019).
6. **L. Zhu, W. Zeng.** Sensors and Actuators A: Phys., **267**, 242 (2017).
7. **X. Fu, B. Zhang, H. Liu, B. Zong, L. Huang, H. Bala, Z. Zhang.** Mater. Lett., **196**, 149 (2017).
8. **L.Y. Zhu, X.Y. Miao, L.X. Ou, L.W. Mao, K. Yuan, S. Sun, A. Devi, H.L. Lu.** Small, **18**, 2204828 (2022).
9. **L. Jeongseok, L. Se-Hyeong, B. So-Young, K. Yoojong, W. Kyoungwan, L. Sanghyun, L. Yooseong, Y. Moonsuk.** Sensors, **19**, 1903 (2019).
10. **F. Schipani, D.R. Miller, M.A. Ponce, C.M. Aldao, S.A. Akbar, P.A. Morris.** Rev. Advanc. Sci. Engineering, **5**, 86 (2016).
11. **E. Barsovukov, J.R. Macdonald.** Impedance Spectroscopy: Theory, Experiment, and Applications, 1 (2005).
12. **K. Dutta.** IEEE Sensors J., **21**, 22220 (2021).
13. **P.J. Kelly, R.D. Arnell.** Vacuum, **56**, 159 (2000).
14. **M. Aleksanyan, A. Sayunts, G. Shahkhatuni, Z. Simonyan, H. Kasparyan, D. Kopecký.** Nanomaterials, **13**, 120 (2022).
15. **M. Aleksanyan, A. Sayunts, V. Aroutiounian, G. Shahkhatuni, Z. Simonyan, G. Shahnazaryan.** Chemosensors, **10**, 245 (2022).
16. **G.E. Shahnazaryan, G.A. Shahkhatuni, M.S. Aleksanyan, Z.G. Simonyan, V.M. Aroutiounian, A.G. Sayunts.** J. Contemp. Phys., **57**, 254 (2022).

INVESTIGATION OF NANOSTRUCTURED $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ SENSOR BY IMPEDANCE SPECTROSCOPY

G.H. SHAHKHATUNI

A sensor sensitive to hydrogen peroxide vapor based on $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ (80:20 wt%) nanostructured film was studied. Investigation of the $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ sensor has been carried out by impedance spectroscopy. Based on the analysis of the frequency dependences of the real and imaginary parts of the complex impedance, the equivalent electrical circuit for the studied sensor structure was proposed, the parameters of its constituent elements were estimated, and approximating curves were calculated. Scanning electron microscopy (SEM) images of the $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{ZnO}$ film showed that it has a nanoparticle structure. This type of sensor can be used in alternating signal based detectors for sensing the hydrogen peroxide vapors, at the same time the sensor must be tuned to achieve maximum sensitivity by selecting an appropriate operating frequency range.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.593–600 (2023)

УДК 621.315

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-593

ПАРНО-ВЗАИМОДЕЙСТВУЮЩИЙ ГАЗ ТЯЖЕЛЫХ ДЫРОК В СИЛЬНО-ВЫтянутой ЭЛЛИПСОИДАЛЬНОЙ КВАНОВОЙ ТОЧКЕ: ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА

М.А. МКРТЧЯН, Е.Ш. МАМАСАХЛИСОВ, А.А. САРКИСЯН*

Российско–Армянский университет, Ереван, Армения

*e-mail: hayk.sarkisyan@rau.am

(Поступила в редакцию 4 октября 2023 г.)

В адиабатическом приближении исследован несколько частичный парно-взаимодействующий газ тяжелых дырок, локализованный в сильно-вытянутой эллипсоидальной квантовой точке Ge/Si. Потенциал межчастичного взаимодействия рассматривается в рамках одномерной модели атома Мошинского, когда взаимодействие зависит от квадрата расстояния между частицами. В рамках Больцмановского приближения аналитически вычислена статистическая сумма нескольких частичного дырочного газа. Исследованы основные термодинамические параметры системы, такие как средняя энергия, свободная энергия, энтропия и теплоемкость. Показано, что учет межчастичного взаимодействия приводит к упорядочиванию системы, что, в частности, отражается на энтропии газа.

1. Введение

Электронный (дырочный) газ, локализованный в квантовой точке (КТ), всегда был предметом широкого интереса теоретиков и экспериментаторов. Благодаря эффекту размерного квантования, наиболее ярко проявляющемуся в КТ, многочастичный спектр становится гибко управляемым, что отражается на всех характеристиках электронного газа: оптических, термодинамических, магнитных и т. д. [1–7]. Примером может служить обобщение теоремы Кона для несколькихчастичного газа, локализованного в параболической КТ, когда специфический вид ограничивающего потенциала КТ приводит к реализации одиночастичных переходов в многочастичной системе, под действием длинноволнового возмущения [8–10].

Наряду с оптическими характеристиками представляет интерес изучение термодинамических свойств электронного (дырочного) газа, локализованного в КТ различных геометрических форм и размеров. Статистическая сумма в КТ с относительно простой геометрией (сферической или цилиндрической) и слабым межчастичным взаимодействием, может быть вычислена аналитически точно [11–17]. В работе [12] авторы исследовали термодинамические и магнитные свойства слабовзаимодействующего электронного газа, локализованного в цилиндрическом нанослое в присутствии аксиального магнитного поля. В качестве радиального потенциала ограничения был выбран двумерный потенциала Винтерница–Смородинского. Было показано, что газ обладает диамагнитными свойствами, а намагниченность практически линейно зависит от магнитного

поля. Изучались зависимости энтропии, теплоемкости и средней энергии системы от магнитного поля. В частности, было показано, что энтропия системы увеличивается с увеличением магнитного поля.

Ясно, что для нетривиальных геометрий КТ расчет статистической суммы является более сложной задачей, и приходится прибегать к приближенным или численным методам [18–22]. В работе [19] были определены собственные состояния и уровни энергии носителей заряда, заключенных в квантовом кольце в однослоином графене под действием приложенного магнитного поля. Определены энтропия, теплоемкость и восприимчивость системы. Результаты показали, что термодинамические величины имеют периодическое поведение с увеличением внешнего магнитного поля. В частности, теплоемкость, демонстрировала эффект аномалии Шоттки.

Существенным образом повлиять на термодинамические свойства локализованного в КТ газа может учесть межчастичного взаимодействия [23–25]. В работе [24] было представлено теоретическое исследование влияния гармонического электрон-электрон взаимодействия на термодинамические свойства одномерной параболической КТ. Были рассчитаны средняя энергия, теплоемкость, свободная энергия Гельмгольца и энтропия системы, с использованием подхода канонического ансамбля. Авторы показали, что при малых температурах средняя энергия медленно растет с температурой, но при дальнейшем повышении температуры средняя энергия перестает зависеть от межчастичного взаимодействия и растет быстрее.

Между тем термодинамические свойства КТ с нетривиальной геометрией и учетом межчастичного взаимодействия изучены сравнительно слабо. Поэтому возникает интерес к более детальному исследованию поведения взаимодействующего электронного (дырочного) газа в сильно-вытянутой эллипсоидальной КТ. Целью данной работы является теоретическое исследование термодинамических свойств (средняя энергия, свободная энергия, энтропия и теплоемкость), парновзаимодействующего дырочного газа, локализованного в сильно-вытянутой эллипсоидальной КТ Ge/Si.

2. Теория

Рассмотрим несколько частичный газ тяжелых дырок, локализованных в сильно-вытянутой эллипсоидальной КТ Ge/Si, со следующим потенциалом взаимодействия

$$\hat{V}_{\text{conf}}(\mathbf{r}) = \begin{cases} 0, & \frac{x^2 + y^2}{a^2} + \frac{z^2}{c^2} \leq 1 \\ \infty, & \frac{x^2 + y^2}{a^2} + \frac{z^2}{c^2} > 1 \end{cases}, \quad a \ll c, \quad (1)$$

где a и c — малая и большая полуоси сильно-вытянутой эллипсоидальной КТ.

Ясно, что в радиальном направлении размерное квантование существенно сильнее межчастичного взаимодействия, поэтому с большой точностью можно рассматривать межчастичное взаимодействие только в аксиальном направлении

$$V_{\text{int}}(1, \dots, N) = \sum_{i < j}^N V(|z_i - z_j|). \quad (2)$$

В работе [10] на основе адиабатического приближения было показано, что в

аксиальном направлении для N -частичного гамильтониана можно записать

$$\hat{H}(1, \dots, N) = \frac{1}{2m^*} \sum_{j=1}^N \hat{p}_{z_j}^2 + \frac{m^* \Omega^2}{2} \sum_{j=1}^N z_j^2 + \sum_{i < j}^N v |(z_i - z_j)|, \quad (3)$$

где $\Omega = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{\hbar \alpha_{1,0}}{m^* ac}$, $\alpha_{1,0}$ – нули функции Бесселя первого рода, m^* – эффективная масса тяжелых дырок, N – число частиц в КТ.

В общем случае гамильтониан (3) довольно сложно диагонализировать. Но есть довольно удобное приближение для парно-взаимодействующего газа, которое позволяет дать аналитические, точные решения уравнения Шредингера с гамильтонианом (3). Данное приближение было предложено М.Мошинским для описания ядерно-физических задач [26–28], когда потенциал межчастичного взаимодействия задается в следующем виде

$$V_{\text{int}}(1, \dots, N) = \gamma \sum_{i < j}^N (z_i - z_j)^2, \quad (4)$$

где γ – параметр взаимодействия, вычисленный путем сравнения с точным кулоновским потенциалом.

Уравнение Шредингера с гамильтонианом (3), содержащим потенциал взаимодействия (4), обсуждалось в работе [10], и для энергетического спектра было получено:

$$E_{n_{cm}, \{n_{rel_i}\}} = NE_0 + \hbar \Omega \left(n_{cm} \frac{1}{2} \right) + \hbar \Omega \tilde{\Omega} \sum_{i=2}^N \left(n_{rel_i} + \frac{1}{2} \right), \quad (5)$$

где E_0 – энергия основного состояния, $\tilde{\Omega} = \sqrt{1 + \frac{2N\gamma}{m^* \Omega^2}}$, $\{n_{cm}, n_{rel_i}\}$ – квантовые числа для уровней центра масс и относительного движения.

На основе полученных результатов можно провести детальное аналитическое исследование термодинамических характеристик рассматриваемого дырочного газа.

Статистическая сумма имеет вид

$$Z = \sum_v \exp(-\beta E_v), \quad (6)$$

где $\beta = 1/(k_B T)$ – обратная температура, v – набор квантовых чисел, характеризующих спектр газа.

Для N -частичной системы статистическая сумма может быть переписана в следующей форме:

$$Z(N) = Z_0 Z_{CM} Z_{rel}. \quad (7)$$

Принимая во внимание выражение (6) и подставляя значение энергетического спектра (5) получим

$$\begin{aligned} Z_0 &= \exp(-N\beta E_0); \\ Z_{CM} &= \sum_{n_{cm}} \exp\left(-\beta \hbar \Omega \left(n_{cm} + \frac{1}{2} \right)\right); \\ Z_{rel} &= \sum_{n_{rel}} \exp\left(-\beta \hbar \Omega \tilde{\Omega} \sum_{i=2}^N \left(n_{rel_i} + \frac{1}{2} \right)\right) = \left(\sum_{n_{rel}} \exp\left(-\beta \hbar \Omega_{n_z=1} \tilde{\Omega} \left(n_{rel} + \frac{1}{2} \right)\right) \right)^{N-1}. \end{aligned} \quad (8)$$

Чтобы посчитать $Z(N)$, нам необходимо рассчитать следующие суммы

$$Z_{CM} = \sum_{n_{cm}} \exp\left(-M\left(n_{cm} + \frac{1}{2}\right)\right),$$

$$Z_{rel} = \left(\sum_{n_{rel}} \exp\left(-M\tilde{\Omega}\left(n_{rel} + \frac{1}{2}\right)\right) \right)^{N-1}, \quad (9)$$

где $M = \hbar\Omega/(k_B T)$.

Реализуя суммирования для Z_{CM} и Z_{rel} , получим

$$Z_{CM} = \frac{e^{M/2}}{e^M - 1}, \quad Z_{rel} = \left(\frac{e^{M\tilde{\Omega}/2}}{e^{M\tilde{\Omega}} - 1} \right)^{N-1}. \quad (10)$$

Таким образом, для $Z(N)$ можем записать:

$$Z(N) = e^{-\frac{NE_0}{k_B T}} \frac{e^{\frac{\hbar\Omega}{2k_B T}}}{e^{\frac{\hbar\Omega}{k_B T}} - 1} \left(\frac{e^{\frac{\hbar\Omega\tilde{\Omega}}{2k_B T}}}{e^{\frac{\hbar\Omega\tilde{\Omega}}{k_B T}} - 1} \right)^{N-1}. \quad (11)$$

Принимая во внимание выражение для статистической суммы (11), можно вычислить основные термодинамические параметры системы, такие как средняя энергия $\langle E \rangle = -\frac{1}{Z} \frac{\partial Z}{\partial \beta}$, свободная энергия $\langle F \rangle = -\frac{\ln Z}{\beta}$, энтропия $S = -\frac{\partial \langle F \rangle}{\partial T}$ и теплоемкость $C_V = \frac{\partial \langle E \rangle}{\partial T}$.

3. Обсуждение результатов

На рис.1 показаны зависимости средней энергии газа тяжелых дырок от температуры и параметра взаимодействия для трех-, четырех- и пятичастичного газов. Как и ожидалось наблюдается рост средней энергии с ростом температуры. Также наблюдается рост средней энергии и при увеличении числа частиц в КТ. Эффект взаимодействия приводит к росту средней энергии газа, но при этом данный вклад существенное, чем в случае температуры.

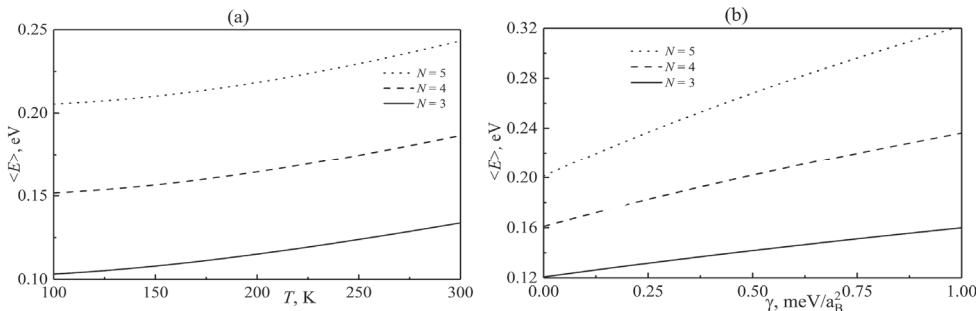


Рис.1. Зависимость средней энергии нескольких частичного парно-взаимодействующего газа тяжелых дырок от (а) абсолютной температуры ($\gamma = 0.3 \text{ meV}/a_B^2$, $a = 1a_B$, $c = 3a_B$) и (б) параметра взаимодействия ($T = 300 \text{ K}$, $a = 1a_B$, $c = 3a_B$) при различных значениях числа частиц.

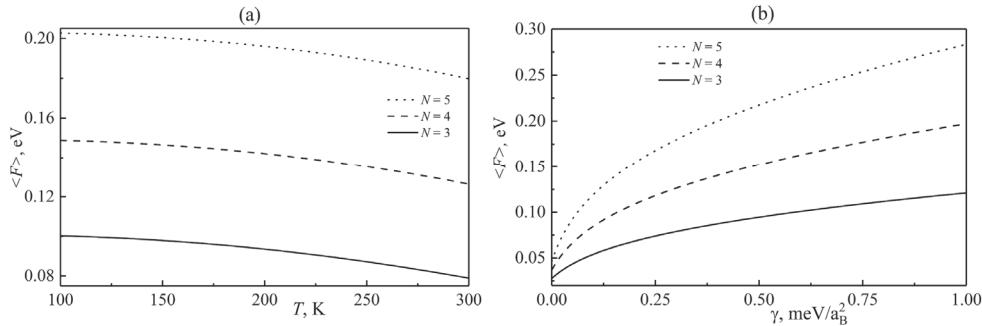


Рис.2. Зависимость свободной энергии несколько частичного парно-взаимодействующего газа тяжелых дырок от (а) абсолютной температуры ($\gamma = 0.3 \text{ meV}/a_B^2$, $a = 1a_B$, $c = 3a_B$) и (б) параметра взаимодействия ($T = 300\text{K}$, $a = 1a_B$, $c = 3a_B$) при различных значениях числа частиц.

На рис.2 показаны зависимости свободной энергии газа тяжелых дырок от температуры и параметра взаимодействия. В данном случае поведение свободной энергии абсолютно аналогично поведению средней энергии, при росте числа частиц и постоянной температуре, но при этом рост температуры приводит к спаду свободной энергии, так как $\langle F \rangle = \langle E \rangle - TS$, а при росте температуры расчет средняя энергия $\langle E \rangle$ и энтропия S (см. табл.1 и рис.3). При этом видно, что при постоянной температуре и росте параметра взаимодействия вклад средней энергии $\langle E \rangle$ больше вклада TS , вследствие чего свободная энергия возрастает.

Табл.1. Изменение $\langle E \rangle$, TS и $\langle F \rangle$ при различных температурах от 100 до 300 К

T , K	$\langle E \rangle$, eV	TS , eV	$\langle F \rangle$, eV
100	0.20547	0.00278	0.20269
150	0.21021	0.0098	0.2004
200	0.2184	0.0229	0.196
250	0.2297	0.4054	0.18915
300	0.24337	0.6358	0.1798

На рис.3 показаны зависимости энтропии газа тяжелых дырок от температуры и параметра взаимодействия при различных значениях числа частиц. При увеличении температуры наблюдается резкий рост энтропии, из-за роста теплового движения частиц. Аналогичный вклад имеет и рост числа частиц. С другой стороны, из рисунка видно, что рост параметра взаимодействия приводит к существенному снижению энтропии в начале и последующему насыщению при относительно больших межчастичных взаимодействиях ($\gamma > 1$), тем самым стабилизируя и упорядочивания систему.

На рис.4 показаны зависимости теплоемкости газа тяжелых дырок от температуры и параметра взаимодействия при различных значениях числа частиц, соответственно. Вклад взаимодействия (при постоянной комнатной температуре) в теплоемкость отрицательный, и теплоемкость падает, этого и следовало ожидать, так как с ростом параметра взаимодействия γ , частицы чувствуют друг друга лучше (вследствие чего мы наблюдаем ослабевание зависимости теплоемкости

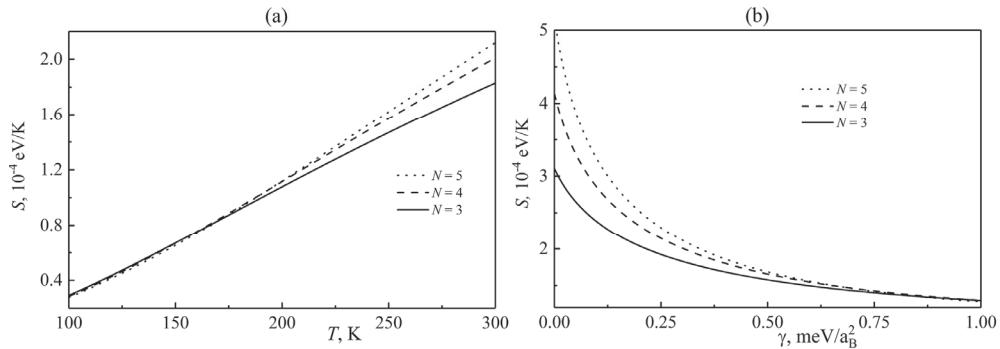


Рис.3. Зависимость энтропии несколько частичного парно-взаимодействующего газа тяжелых дырок от (а) абсолютной температуры ($\gamma = 0.3 \text{ meV}/a_B^2$, $a = 1a_B$, $c = 3a_B$) и (б) параметра взаимодействия ($T = 300\text{K}$, $a = 1a_B$, $c = 3a_B$) при различных значениях числа частиц.

от числа частиц в газе), и теплообмен становится более интенсивным. Эффект же температуры противоположный: с ростом температуры и числа частиц мы наблюдаем рост теплоемкости, так как при температуре 300 К, системе необходимо дать больше тепла, чтобы повысить ее температуру на 1 К, чем при температуре 200 К.

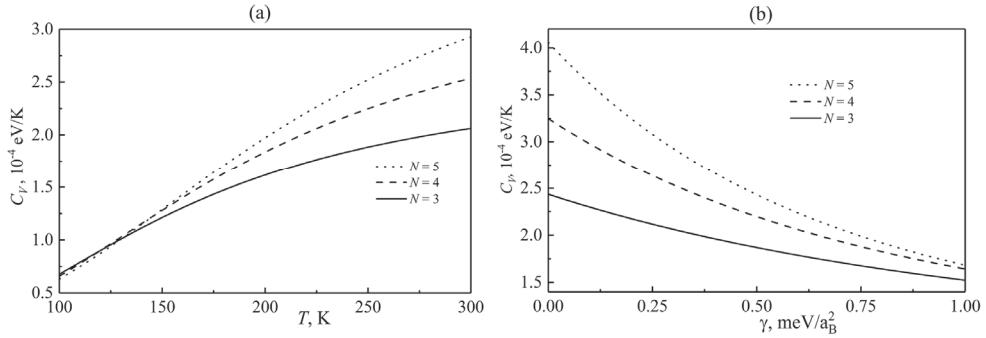


Рис.4. Зависимость теплоемкости несколько частичного парно-взаимодействующего газа тяжелых дырок от (а) абсолютной температуры ($\gamma = 0.3 \text{ meV}/a_B^2$, $a = 1a_B$, $c = 3a_B$) и (б) параметра взаимодействия ($T = 300\text{K}$, $a = 1a_B$, $c = 3a_B$), при различных значениях числа частиц.

4. Заключение

В адиабатическом приближении исследован несколькочастичный парно-взаимодействующий газ тяжелых дырок, локализованный в сильно-вытянутой Ge/Si эллипсоидальной КТ. В рамках Больцмановского приближения аналитически вычислена статистическая сумма для точно решаемой модели несколькочастичного дырочного газа, с учетом межчастичного парного взаимодействия, в рамках одномерной модели Мошинского. На основе этого исследованы основные термодинамические параметры системы. Получено, что с ростом температуры наблюдается рост средней энергии и спад свободной энергии рассматриваемого газа. Рост межчастичного взаимодействия стабилизирует систему, и, после

резкого спада при относительно небольших взаимодействиях, наблюдается насыщение энтропии при последующем увеличении межчастичного взаимодействия ($\gamma > 1$). Аналогичное влияние оказывает межчастичное взаимодействие на теплоемкость системы.

Работа выполнена при поддержке Комитета по науке РА и Российского фонда фундаментальных исследований в рамках совместных научных проектов SCS 20RF-041 и RFBR 20-52-05004, соответственно.

ЛИТЕРАТУРА

1. I. Kulesh, C.T. Ke, C. Thomas, S. Karwal, C.M. Moehle, S. Metti. Phys. Rev. Applied, **13**, 041003 (2020).
2. J.M. Elzerman, R. Hanson, J.S. Greidanus, L.W. Van Beveren, S. De Franceschi, L.M. Vandersypen, K. Vandersypen, S. Tarucha, L.P. Kouwenhoven. Phys. Rev. B, **67**, 161308 (2003).
3. L.J. Klein, K.A. Slinker, J.L. Truitt, S. Goswami, K.L. Lewis, Coppersmith. Appl. Phys. Lett. **84**, 4047 (2004).
4. H. Sakaki, G. Yusa, T. Someya, Y. Ohno, T. Noda, H. Akiyama, Appl. Phys. Lett., **67**, 3444 (1995).
5. M.A. Mkrtchyan, D.B. Hayrapetyan, E.M. Kazaryan, H.A. Sarkisyan, D.A. Firsov, M.Y. Vinnichenko. International Youth Conference on Electronics, Telecommunications and Information Technologies (YETI): Springer Proceedings, St. Petersburg (pp. 169 – 175). Springer International Publishing, 2021.
6. M. Dineykhan, R.G. Nazmitdinov. Phys. Rev. B, **55**, 13707 (1997).
7. D.A. Baghdasaryan, D.B. Hayrapetyan, E.M. Kazaryan, H.A. Sarkisyan. Phys. E, **101**, 1 (2014).
8. F.M. Peeters. Phys. Rev. B, **42**, 1486 (1990).
9. P.A. Maksym, T. Chakraborty. Phys. Rev. Lett, **65**, 108 (1990).
10. D.B. Hayrapetyan, E.M. Kazaryan, M.A. Mkrtchyan, H.A. Sarkisyan. Nanomaterials, **10**, 1896 (2020).
11. S. Gumber, M. Kumar, M. Gambhir, M. Mohan, P.K. Jha. Canadian Jour. Phys., **93**, 1264 (2015).
12. H.T. Ghaltaghchyan, D.B. Hayrapetyan, E.M. Kazaryan, H.A. Sarkisyan. Micro and Nanostr., **174**, 207471 (2023).
13. A.A. Alia, M.K. Elsaid, A. Shaer. Jour. Taibah Univ. Sci., **13**, 687 (2019).
14. S. Gumber, M. Kumar, P.K. Jha, M. Mohan. Chin. Phys. B, **25**, 056502 (2016).
15. B. Boyacioglu, A. Chatterjee. Phys. E, **44**, 1826 (2016).
16. L.M. Taguefouet, M. Silenou, A.J. Fotue. Jour. Low Temp. Phys., **203**, 112 (2021).
17. A.G.J. Vicente, L.B. Castro, A.E. Obispo, L.E.A. Meza. Jour. Low Temp. Phys., **202**, 372 (2021).
18. J.J. Calvin, E.A. O'Brien, A.B. Sedlak, A.D. Balan, A.P. Alivisatos. ACS Nano, **15**, 1407 (2021).
19. R. Khordad, H.R. Sedehi, M. Sharifzadeh. Jour. Comp. Elect., **21**, 422 (2022).
20. R. Khordad, H.R. Sedehi. Jour. Low Temp. Phys., **190**, 200 (2018).
21. Y. Dong, T. Qiao, D. Kim, D. Parobek, D. Rossi, D.H. Son. Nano Lett., **18**, 3716 (2018).

22. L.M. Taguefouet, M.S. Mengoue, A.J. Fotue, M.F.C. Fobasso. Eur. Phys. Jour. Plus, **137**, 1 (2022).
23. L.D. da Silva, N. Studart. Phys. Rev. B, **71**, 113302 (2005).
24. F.S. Nammas. Phys. A, **508**, 187 (2018).
25. A. Ghanbari, R. Khordad, F. Taghizadeh. Chem. Phys. Lett., **801**, 139725 (2022).
26. M.A. Mkrtchyan, D.B. Hayrapetyan, E.M. Kazaryan, H.A. Sarkisyan, S. Baskoutas, D.A. Firsov, M.Y. Vinnichenko. Phys. E, **150**, 115703 (2023).
27. M. Moshinsky. American Jour. Phys., **36**, 52 (1968).
28. N.F. Johnson, M.C. Payne. Phys. Rev. Lett., **67**, 1157 (1991).

ԶՈՒՅՑ ՓՈԽԱԶԴՈՂ ԾԱՆՐ ԽՈՇՈՉԱՅԻՆ ԳԱԶԸ ԽԻՍՏ ԶԳՎԱԾ
ԷԼԻՊՍԱՐԴԱՅԻՆ ՔՎԱՆՏԱՅԻՆ ԿԵՏՈՒՄ.

ԹԵՐՄՈԴԻՆԱՄԻԿԱԿԱՆ ՀԱՏԿՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐ

Մ.Ա. ՄԿՐԴՅԱՆ, Ե.Շ. ՄԱՄԱԿԽԼԻՍՈՎ, Հ.Ա. ՍԱՐԳՍՅԱՆ

Աղյաբատակն մոտ ավորությամբ ուսումնասիրվել է մի քանի մասնիկային զույգ փոխազդող ծանր խոռոչների գագ, որը տեղայնացված է խիստ ձգված Ge/Si էլիպսարդային քվանտային կետում: Միջմասնիկային փոխազդեցությունը դիտարկվում է Մոշինսկու միաշափ մոդելի շրջանակներում, երբ փոխազդեցությունը կախված է մասնիկների միջև հեռավորության քառակուսուց: Բոլցմանի մոտավորությամբ անալիտիկորեն ստացվում է խոռոչային գազի վիճակագրական ֆունկցիան: Ուսումնասիրված են համակարգի հիմնական թերմոդինամիկական պարամետրերը, ինչպիսիք են միջին էներգիան, ազատ էներգիան, էնտրոպիան և շերմոնակություն: Ցույց է տրված, որ միջմասնիկային փոխազդեցությունը հաշվի առնելը հանգեցնում է համակարգի դասավորությանը, ինչը, մասնավորապես, ազդում է գազի էնտրոպիայի վրա:

PAIR-INTERACTING HEAVY HOLES GAS IN A STRONGLY PROLATE ELLIPSOIDAL QUANTUM DOT: THERMODYNAMIC PROPERTIES

M.A. MKRTCHYAN, Y.S. MAMASAKHLISOV, H.A. SARKISYAN

In the frame of adiabatic approximation a few-particle pair-interacting heavy holes gas localized in a strongly oblate Ge/Si ellipsoidal quantum dot has been studied. The interparticle interaction potential is considered within the framework of the one-dimensional Moshinsky atom model when the interaction depends on the square of the distance between particles. Within the framework of the Boltzmann approximation, the partition function of a few-particle hole gas is analytically obtained. The main thermodynamic parameters of the system, such as mean energy, free energy, entropy, and heat capacity, have been investigated. It is shown that taking into account interparticle interaction leads to ordering of the system, which, in particular, affects the entropy of the gas.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.601–611 (2023)

УДК 544.77; 661.151

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-601

МИКРОВОЛНОВЫЙ СИНТЕЗ ФОТОКАТАЛИЗАТОРА SiO_2/ZnO СО СТРУКТУРОЙ ЯДРО-ОБОЛОЧКА

А.А. САРГСЯН^{1*}, Р.А. МНАЦАКАНЯН², Т.В. ГРИГОРЯН¹, А.А. КАЗАРЯН¹,
А.А. ПЕТРОСЯН¹, В.В. АРУТЮНЯН³, А.О. БАДАЛЯН³,
Н.Р. АГАМАЛЯН⁴, В.В. БАГРАМЯН¹

¹Институт общей и неорганической химии НАН Армении, Ереван, Армения

²Институт химической физики НАН Армении, Ереван, Армени

³Национальная научная лаборатория им. А.И. Алиханяна, Ереван, Армения

⁴Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

*e-mail: asargis@mail.ru

(Поступила в редакцию 20 сентября 2023 г.)

Гидротермально-микроволновым методом синтезирован нанокомпозит SiO_2/ZnO со структурой ядро-оболочка для фотокатализа из водорастворимых солей цинка и силиката натрия. Изучены физико-химические свойства синтезированного SiO_2/ZnO и испытана его фотокаталитическая активность. Значения ширины запрещенной зоны термообработанного композита E_g^{dir} и E_g^{indir} составляют 3.35 и 3.32 эВ, соответственно. Определена фотокаталитическая активность полученного SiO_2/ZnO по реакции разложения метиленового синего при УФ-облучении. Конверсия метиленового синего определена оптическим методом. Полученный SiO_2/ZnO обладает высокой фотокаталитической активностью. Проведенные исследования показали эффективность микроволнового синтеза SiO_2/ZnO со структурой ядро-оболочка по сравнению с традиционными методами.

1. Введение

В настоящее время активно развиваются работы по изучению явления фотокатализа и созданию фотокатализаторов (ФК). ФК на практике используют для решения одной из важных проблем экологии – очистки сточных вод от промышленных отходов. В их числе – органические красители метиленовый синий (МС), метиленовый красный и др., которые широко применяются в различных областях. Эта проблема решается в основном путем разложения органических соединений. Для этого используются различные методы, в том числе УФ-озонирование, УФ-окисление перекисью водорода, фотокаталитическое окисление. Фотокаталитическая деконструкция органических соединений – недорогой метод, эффективность которого зависит от типа катализатора, источника излучения, реактора и др. Исследования показали, что активными ФК являются полупроводниковые оксиды (оксиды железа, титана, цинка). В связи с возрастающим спросом на дешевые и эффективные ФК становятся актуальными создание

новых композитов с фотокаталитической активностью и разработка новых методов получения ФК. Суть механизма фотокатализа заключается в генерации электронно-дырочных пар в ФК за счет поглощения кванта света и образовании свободных радикалов, способных вступать в химические реакции [1–3]. Фотокатализ – гетерогенный процесс, протекающий под действием света на поверхности катализатора, поэтому морфология поверхности, размеры и структура частиц также определяют каталитическую активность ФК. Для повышения фотокаталитической активности важен выбор оптимальной морфологии наноструктуры, позволяющей увеличить удельную поверхность и предотвратить рекомбинацию носителей заряда.

Нами разработан новый гидротермально-микроволновый (МВ) метод синтеза композита с фотокаталитической активностью на основе оксида цинка ZnO. Оксид цинка является оптически прозрачным широкозонным полупроводником и благодаря высокой фоточувствительности, низкому значению коэффициента отражения в УФ области спектра, термической стабильности и механической прочности является перспективным материалом для создания ФК [4–6]. ZnO не загрязняет окружающую среду, а низкая стоимость позволяет разрабатывать промышленные технологии. Существуют различные методы получения оксида цинка с развитой удельной поверхностью: твердофазный, гидротермальный, золь-гель синтез, электрохимическое окисление цинковых электродов и др. [7–10]. В работах [11–15] показано, что МВ метод является одним из эффективных способов получения наноматериалов. Преимуществами МВ метода являются высокая скорость и равномерность нагрева всего объема реакционной среды, отсутствие контакта нагреваемого тела с фактором нагрева, высокий коэффициент полезного действия, отсутствие загрязнения окружающей среды, снижение энергозатрат и сокращение времени синтеза.

Мелкие частицы наноматериалов склонны к агломерации, поскольку они наделены избыточной поверхностной энергией. Для предотвращения агломерации, приводящей к уменьшению удельной поверхности и прочности катализатора, применяется способ осаждения катализатора на подложку с развитой поверхностью. Особую категорию материалов с наноструктурами представляют собой наночастицы со структурой типа ядро-оболочка, которые благодаря уникальным свойствам, широко применяются в катализе, фотокатализе, химии материалов и др. [16–19]. Выбором ядра, материала и морфологии оболочек можно создать множество наноструктур ядро-оболочка с настраиваемыми свойствами, которые могут играть важную роль в фотокаталитических процессах. Наночастицы типа ядро-оболочка создаются различными методами, такими как золь-гель, гидротермальный процессы, микроэмulsionная полимеризация, сольватермический синтез, химическое осаждение из паровой фазы и др. Они обычно изготавливаются двух- или многостадийными способами синтеза. Сначала изготавливают сердцевину, а затем формируют оболочку на частице сердцевины. Размер частиц ядра, толщина оболочки и пористость ядра или оболочки регулируются для различных видов применения [16–22].

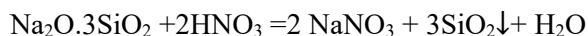
Целью настоящей работы является разработка нового микроволнового (МВ) одностадийного метода синтеза композитов со структурой ядро (SiO_2)-оболочка (ZnO) с фотокаталитической активностью из растворов солей цинка и жидкого стекла, полученного из горных пород [23].

2. Экспериментальная часть

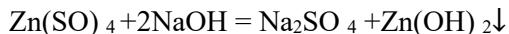
Состав исходных и конечных продуктов определяли физико-химическими методами анализа (весовым, спектроскопическим, фотоколориметрическим, пламенно-фотометрическим). Термообработку образцов проводили в электрической печи марки LHT 08/17 фирмы «Nabertherm» (Германия). Рентгенофазовый анализ (РФА) образцов проводили порошковым методом на дифрактометре URD 63 с излучением $\text{CuK}\alpha$, дифференциально-термический и термогравиметрический анализ – на приборе «Дериватограф» Q 1500 (Венгрия). ИК-спектры образцов в области 400–4000 cm^{-1} получены на ИК Фурье-спектрометре Cary 630 (США). СЭМ- анализ проводили с использованием сканирующего электронного микроскопа Philips XL 40 (США). Диффузное отражение образцов определяли на спектрофотометре Cary 60. Оптическую плотность растворов МС измеряли на ИК Фурье-спектрометре Cary 630. Источником УФ излучения служила лампа Navigator с максимальным излучением $\lambda = 253.7$ нм и мощностью 15 Вт. Реактором служил кварцевый стакан объемом 300 мл и диаметром 80 мм, расстояние УФ лампы от поверхности исследуемого раствора составляло 100 мм. Измерение удельной поверхности и объема пор образцов проводилось адсорбцией азота методом БЕТ (на приборе «AccuSorb 2300E» (фирма Micromeritics, США) и адсорбцией паров бензола весовым методом.

Получение композита SiO_2/ZnO со структурой ядро-оболочка осуществляли методом осаждения из растворов силиката натрия и сульфата цинка. Процесс проводили последовательно – осаждение диоксида кремния азотной кислотой, а затем на нем осаждение гидроксида цинка.

Разработаны условия последовательного осаждения SiO_2 и Zn(OH)_2 из растворов $\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2$ и ZnSO_4 . Композит SiO_2/ZnO с содержанием 15% ZnO получили термообработкой полученного продукта при 350–400°C. Для кристаллизации ZnO проводили термообработку образцов при 600°C 2 часа. Из раствора силиката натрия сначала осаждали SiO_2 азотной кислотой; уравнение реакции следующее.



Реакцию проводили в МВ печи Samsung CE1073AR (частота микроволн 2.45 ГГц и выходная мощность 600 Вт) в открытой колбе из пирексового стекла, снабженной обратным холодильником и мешалкой. Колбу объемом 1 л загружали исходными раствором – 300 мл триксилката натрия (1M) и добавляли азотную кислоту (25%) до $pH = 7$, температура реакции 95–100°C, время реакции 30 минут. Получается гелеобразный осадок SiO_2 . Затем, не прекращая перемешивание, добавляли 100 мл 1M раствора сульфата цинка ($\text{Zn}(\text{SO}_4)$), хорошо перемешивали 5 минут и добавили раствор гидроксида натрия до значения $pH = 8$ и держали в МВ печи 30 минут при температуре кипения. Образованный гидроксид цинка оседал на поверхности частиц полученного SiO_2 .



Гидроксид цинка имеет амфотерное свойство, и pH среды при осаждении $\text{Zn}(\text{OH})_2$ гидроксидом натрия играет определенную роль. Расчет количества NaOH очень важно, поскольку его избыток приведет к образованию растворимого цинката натрия (Na_2ZnO_2), а также растворению свежеосажденного SiO_2 вследствие образования силиката натрия. Расчет с учетом произведения

растворимости $Zn(OH)_2$ показывает, что оптимальное значение $pH = 7\text{--}8$ для осаждения гидроксида цинка. Полученный осадок композита $SiO_2/Zn(OH)_2$ отфильтровали, многократно промывали дистиллированной водой ($70\text{--}80^\circ C$) для удаления ионов Na^+ , SO_4^{2-} и NO_3^- и сушили при $115\text{--}120^\circ C$ (до влажности 10–15 %). Далее для термолиза гидроксида цинка (осажденного на поверхности диоксида кремния) с целью получения ZnO проводили термообработку высушенных образцов при температуре $350\text{--}400^\circ C$ в течение 2 часов. В результате получены образцы SiO_2/ZnO со структурой ядро-оболочка.

Фотокаталитическую активность синтезированных и высушенных, и термообработанных образцов определяли реакцией деградации МС под УФ облучением при различных условиях. Выбор МС обусловлен двумя причинами – он широко применяется в различных областях и, исходя из его структуры, МС может моделировать реакцию разложения органических красителей. Исходная концентрация МС составляла 10 мг/л, количество раствора МС – 100 мл, количество катализатора SiO_2/ZnO – 100 мг, время УФ облучения до 120 мин. Реакцию разложения проводили со свободным доступом воздуха. Для получения гомогенной массы раствор с катализатором перемешивали магнитной мешалкой в течение 30 минут в темноте и полученную суспензию облучали УФ-лампой (Navigator). Каждые 10 мин брали пробы (около 5 мл), центрифугировали и анализировали. Концентрации МС до и после облучения в присутствии катализатора определяли измерением оптической плотности фугатов при 664 нм.

3. Результаты и обсуждение

Результаты анализов показывают, что синтезирован композит диоксид кремния/оксид цинка, который представляет собой белый, тонкодисперсный порошок. Состав синтезированного продукта по химическому анализу – 12.5% ZnO и 87.5% SiO_2 . На основе РФА (рис.1) установлено, что синтезированный продукт аморфный, а термоботработанный при $700^\circ C$ образец содержит кристаллический оксид цинка JCPDS 74 0534. Образование кристаллического ZnO подтверждается также термогравиметрическим анализом (рис.2б); экзотермический эффект при $705^\circ C$.

На термограмме высушенного при $90^\circ C$ образца (рис.2а) эндотермический

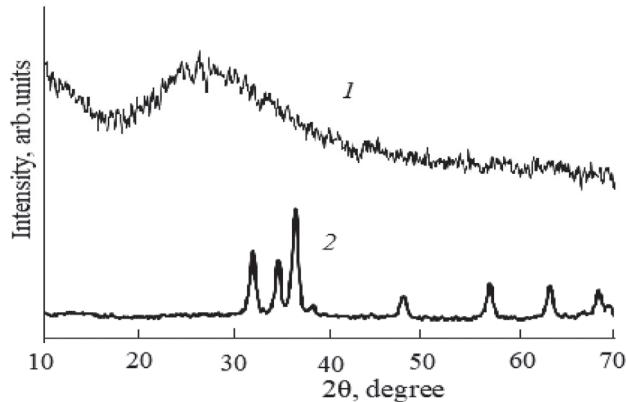


Рис.1. Рентгенограммы синтезированных образцов SiO_2/ZnO : 1 – высушенный при $200^\circ C$, 2 – термообработанный при $700^\circ C$.

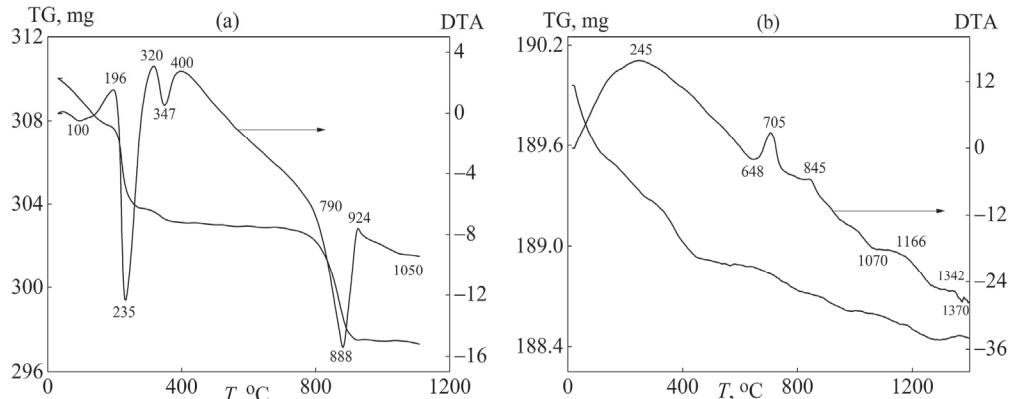


Рис.2. Термограммы синтезированных образцов: (а) $\text{Zn}(\text{OH})_2$, высушенный при 90°C , и (б) композит SiO_2/ZnO , термообработанный при 350°C .

эффект при 235°C обусловлен термолизом гидроксида цинка с образованием ZnO , а при 350°C – разложением ZnCO_3 , незначительное количество которого образуется при сушке свежеосажденного $\text{Zn}(\text{OH})_2$. Изменение массы образца (из-за удаления CO_2) при этом составляет 0.9%. Эндотермический эффект при 888°C можно объяснить удалением кислорода из оксида цинка с образованием дефектной структуры ZnO_{1-x} . При температурах 50 – 250°C происходит практически полное удаление координационной воды. На термограмме термообработанного при 350°C образца композита наблюдается потеря массы: при нагреве до 450°C потеря составляет около 0.5%, а до 1400°C – 0.74%, что обусловлено удалением связанной воды, гидроксильных групп и кислорода.

Об отсутствии OH групп выше 600°C показывает также ИК спектр термообработанного образца (рис.3). Сравнение ДТА и РФА показывает, что экзотермический эффект при 705°C обусловлен образованием кристаллического ZnO , а при 845 и 1166°C – образованием новых фаз [24]. Наличие кристаллических фаз видно на рентгенограммах термообработанного при 700°C образца (рис.1, кри- вая 2). При температурах выше 1350°C происходит сублимация оксида цинка ($2\text{ZnO} = 2\text{Zn} + \text{O}_2$).

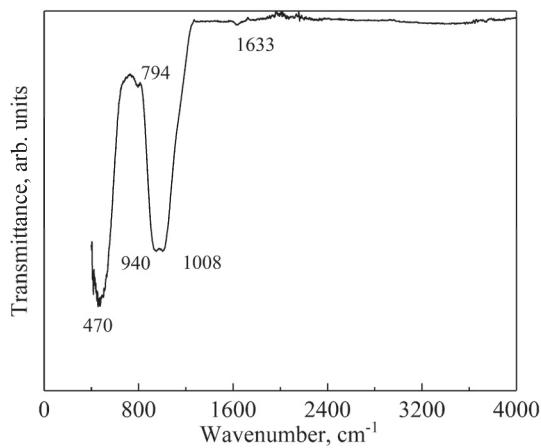


Рис.3. ИК Фурье-спектр композита SiO_2/ZnO . Термообработка при 700°C , 2 час.

ИК спектр поглощения образца, термообработанного при 700°C, показан на рис.3, в котором наблюдаются две полосы поглощения, при этом отсутствуют полосы поглощения валентных колебаний OH-групп ($3000\text{--}3500\text{ cm}^{-1}$). Пики с максимумами при 1040 и 794 cm^{-1} вызваны симметричными и деформационными валентными колебаниями групп Si—O—Si, а максимум при 470 cm^{-1} – валентным колебанием адсорбированной связи Zn—O. Согласно работам [25, 26], такой спектр обнаружен только в спектре порошка ZnO/SiO₂. Полоса поглощения с максимумом при 940 cm^{-1} возможно обусловлена образованием связи Zn—O—Si на границе пленки ZnO—SiO₂ при термообработке образцов. Анализ ИК спектра показывает, что ZnO нанесен на SiO₂. К такому заключению пришли также авторы работ [25, 27].

Электронно-микроскопические (СЭМ) снимки синтезированного композита показывают, что частицы по размерам однородные и имеют сферическую форму

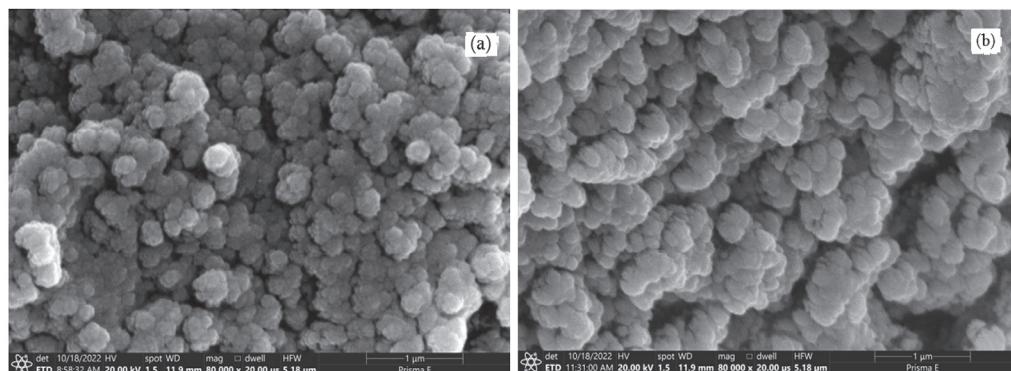


Рис.4. Электронно-микроскопические (СЭМ) снимки синтезированного композита: (а) – исходный и (б) – термообработка при 700°C.

(рис.4). При термообработке образцов частицы растут перпендикулярно к поверхности, приобретая форму удлиненных рисообразных частиц.

Из рентгенограммы по методу Шеррера рассчитаны размеры частиц: при 200°C – 15–20 нм (удельная поверхность $S = 250\text{--}300\text{ m}^2/\text{г}$), при 600°C – 56–60 нм ($S = 60\text{ m}^2/\text{г}$). Эти данные согласуются с результатами СЭМ анализа.

Изучены оптические свойства синтезированного композита. Спектры диффузного отражения и поглощения (функция Кубелки–Мунка $F(R)$) света композитом в области 200–850 нм показаны на рис.5а. Образцы в видимой области спектра обладают высокой отражательной способностью – более 93%. По спектрам поглощения по методу Кубелки–Мунка (рис.5б) в координатах Таука определена ширина запрещенной зоны синтезированного композита. Чтобы рассчитать ширину запрещенной зоны E_g , коэффициент диффузного отражения R преобразуется в эквивалентный коэффициент поглощения с использованием модифицированной функции Кубелки–Мунка $F(R)$, задаваемой уравнением $F(R) = (1-R)^2/2R$, где функция $F(R)$ пропорциональна коэффициенту поглощения. С помощью формулы получен представленный на рис.5б спектр поглощения. На рис.5с,д представлены полученные с помощью спектра диффузного отражения и расчетов кривые зависимости соответственно $(F(R) \times (hv))^2$ и $(F(R) \times (hv))^{1/2}$ для прямого и непрямого перехода от энергии света hv , из которых

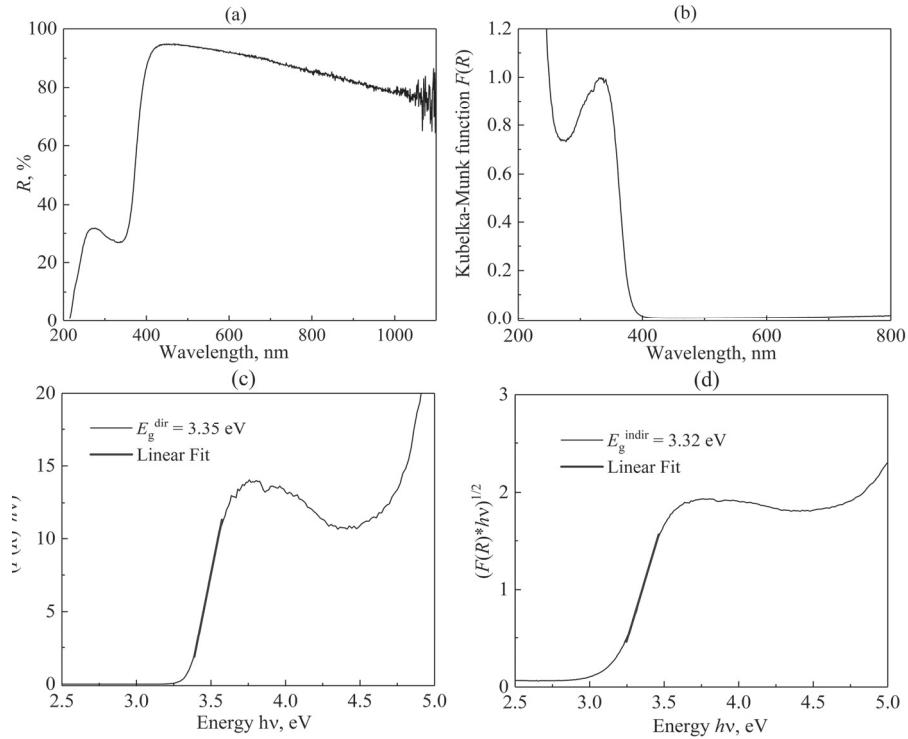


Рис.5. Спектры композита SiO_2/ZnO : (а) диффузного отражения, (б) поглощения (функция Кубелки–Мунка $F(R)$), кривые зависимости (с) $(F(R) \times (hv))^2$ и (д) $(F(R) \times (hv))^{1/2}$ от энергии hv света.

экстраполяцией линейного участка кривой до ее пересечения с осью hv определены значения ширины запрещенной зоны в исследуемом образце. Значения энергий запрещенных зон для прямого E_g^{dir} и непрямого перехода E_g^{indir} составляют 3.35 и 3.32 эВ, соответственно. Таким образом, синтезированный нанокомпозит SiO_2/ZnO со структурой ядро-оболочка является широкозонным полупроводником.

Результаты показывают, что образцы SiO_2/ZnO активно поглощают УФ часть спектра (вплоть до 400 нм). Степень разложения МС определяли измерением оптической плотности фугатов (растворов МС после центрифугирования) до и после УФ-облучения в присутствии синтезированного катализатора (SiO_2/ZnO). Определена зависимость оптической плотности от концентрации МС в растворе. В исследованном диапазоне она линейная. Значения оптической плотности растворов МС для различных длин волн при различных экспозициях УФ-облучения представлены на рис.6.

Кинетические кривые деградации МС без катализатора и в присутствии катализатора представлены на рис.7. Приведены значения оптической плотности в зависимости от времени УФ облучения на длине волны 664 нм, поскольку МС максимально поглощает волны длиной 664 нм (рис.6).

Как видно из рис.7, количество МС резко уменьшается в течение 10 минут в результате адсорбции и фотокатализа. Изучена кинетика адсорбции и десорбции

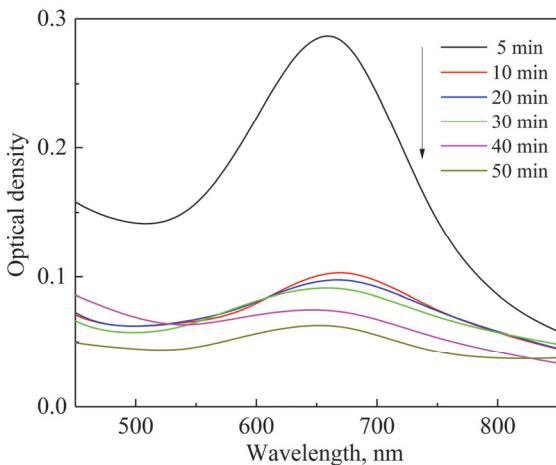


Рис.6. Оптическая плотность раствора МС после фотокаталитической деградации при различных длинах волн. Исходная концентрация МС – 10 мг/л.

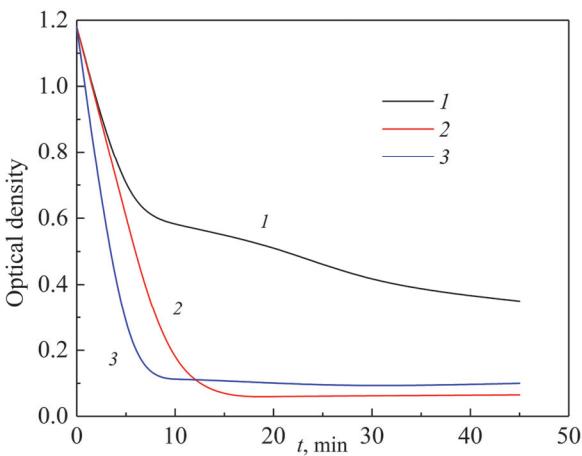


Рис.7. Зависимость оптической плотности раствора МС от времени УФ-облучения: 1 – без катализатора и 2, 3 – с катализатором (2 – исходный, 3 – термообработанный при 700°C, 2 час).

на катализаторе без облучения. При этом равновесное количество адсорбированного МС из раствора составляло 10–15%. При облучении происходит полное разложение адсорбированного МС за 40–50 мин, о чем можно судить по факту исчезновения окраски МС с поверхности катализатора. Полученные результаты показывают, что композит SiO_2/ZnO , синтезированный МВ методом, обладает высокой фотокаталитической активностью. Степень разложения МС составляет 94–96%.

Процесс гетерогенного фотокаталитического разложения вещества в водной среде можно условно разделить на следующие этапы: перенос вещества из водной среды на поверхность фотокатализатора; адсорбция вещества; фотокаталитическое разложение адсорбированного вещества; десорбция и удаление продуктов разложения с поверхности фотокатализатора.

В работе [28] исследованы спектры поглощения МС, адсорбированного на

различных глинах с разной кислотностью в видимой области. МС в водном растворе имеет формы MC^{2+} , $(\text{MC}^+)_2$, $(\text{MC}^+)_3$, MC^+ . Показано, что формой, имеющей максимум поглощения 670 нм, являются формы MC^0 и MC^+ . На основании этого можно предположить, что МС на поверхности катализатора находится либо в форме нейтрального MC^0 , либо в форме MC^+ . Наши измерения точки нулевого заряда поверхности по методу [29, 30] показали, что поверхность синтезированного композита имеет слабую щёлочность: $pH = 7.6$. На такой поверхности возможно взаимодействие МС с щелочными центрами оксида цинка. Таким образом, МС на поверхности находится в форме MC^0 и MC^+ .

Механизм фотокаталитической деградации МС на поверхности оксида цинка можно интерпретировать классической схемой, известной в литературе: поглощение кванта света оксидом цинка приводит к переходу валентных электронов в зону проводимости – образуется пара электрон-дырка внутри фотокатализатора. Диффундирующие к поверхности изнутри катализатора фотоиндуцированные электроны захватываются молекулами кислорода, адсорбированные на поверхности ZnO с последующим образованием радикалов $\cdot\text{O}_2$. Образованные высокоактивные радикалы $\cdot\text{O}_2$ окисляют адсорбированных на поверхности фотокатализатора МС с образованием промежуточных соединений, которые, разлагаясь, образуют неорганические соединения. На процесс фотокаталитического окисления МС влияет образование и рекомбинация электронно-дырочной пары. Ваканции кислорода оксида цинка, с одной стороны, могут препятствовать рекомбинации фотоиндуцированных электронов и дырок, с другой – способствовать адсорбции O_2 на поверхности катализатора. Когда частицы наноразмерные, тогда перемещение носителей заряда изнутри к поверхности становится легче, что способствует окислительно-восстановительной реакции. Структура ядроболочка обеспечивает получение катализатора не только с развитой удельной поверхностью, что снижает вероятность рекомбинации электронно-дырочных пар, но также механически прочной тонкослойной оболочки катализатора. Следовательно, достигается эффективное фотокаталитическое действие: наноразмерные и тонкослойные полупроводники обладают более высокой фотокаталитической способностью. Измерения фотокаталитической активности образцов, синтезированных в условиях МВ нагрева, подтверждают высокую катализическую активность синтезированного композита SiO_2/ZnO со структурой ядроболочки.

4. Заключение

Разработан новый МВ одностадийный метод синтеза композитов со структурой ядро (SiO_2)-оболочка (ZnO) с фотокаталитической активностью. Впервые МВ методом синтезирован фотокатализатор из растворов солей цинка и чистого жидкого стекла, полученного из горных пород. Установлено, что гидротермально-микроволновой метод ускоряет процесс получения композита оксид кремния/оксид цинка в 3–5 раз в сравнении с известными традиционными методами. Высокая скорость МВ процессов способствует тому, что частицы диоксида кремния, полученные из жидкого стекла на первой стадии, не укрупняются, сохраняя относительно большую площадь поверхности, на которой из жидкой

фазы осаждается гидроксид цинка. Оксид цинка получен разложением гидроксида в результате термической обработки. Быстрый микроволновый нагрев по всему объему реакционной среды приводит к образованию однородных нанодисперсных частиц композита со структурой ядро-оболочки.

Исследования фотокаталитической деградации МС показали, что синтезированный композит SiO_2/ZnO обладает высокой фотокаталитической активностью в УФ области спектра.

Исследования проводились при финансовой поддержке Комитета науки Министерства образования, науки, культуры и спорта Республики Армения в рамках научного проекта № 21Т-1Д146 «Микроволновой синтез композитов с фотокаталитическими свойствами».

ЛИТЕРАТУРА

1. Ю.М. Артемьев, В.К. Рябчук. Введение в гетерогенный фотокатализ. Санкт-Петербург, СПбГУ, 303 (1999).
2. И.И. Кулакова, Г.В. Лисичкин. Каталитическая химия. Часть 1. Основы катализа. Москва, МГУ, 112 (2014).
3. M.F.A. Messih, A.E. Shalan, M.F. Sanad, A. Ahmed. J. Materials Science: Materials in Electronics, **30**, 14291 (2019).
4. K.M. Lee, C.W. Lai, K.S. Ngai, J.C. Juan. Water Research., **88**, 428 (2016).
5. A. Di Mauro, M.E. Fragalà, V. Privitera, G. Impellizzeri. Materials Science in Semiconductor Processing, **69**, 44 (2017).
6. R. Shidpour, A. Simchi, F. Ghanbari, M. Vossoughi. Applied Catalysis A: General, **472**, 198 (2014).
7. А.А. Ульянкина, И.Н. Леонтьев, Н.В. Смирнова. Электронный научный журнал «Инженерный вестник Дона», №4 (2017).
8. W. Zhang, K. Yanagisawa. Chemistry of Materials, **19**, 2329 (2007).
9. A.M. Ali, A.A. Ismail, R. Najmye, A. Al-Hajryc. J. Photochemistry and Photobiology A: Chemistry, **275**, 37 (2014).
10. А.С. Божинова, Н.В. Канева, И.Е. Кононова, С.С. Налимова, Ш.А. Сюлейман, К.И. Папазова, Д.Ц. Димитров, В.А. Мошников, Е.И. Теруков. Физика и техника полупроводников, **47**, 1662 (2013).
11. V.V. Baghramyan, A.A. Sargsyan, N.V. Gurgenyan, A.A. Sargsyan, N.B. Knyazyan, V.V. Arutyunyan, E.M. Aleksanyan, N.E. Grigoryan, A.A. Sahaakyan. Theoretic. Found. Chem. Engineering, **49**, 897 (2018).
12. V.V. Baghramyan, A.A. Sargsyan, N.B. Knyazyan, V.V. Harutyunyan, A.H. Badalyan, N.E. Grigoryan, A. Aprahamianc, K.V. Manukyan. Ceramics International., **46**, 4992 (2020).
13. H. Brittany. Microwave Synthesis. CEM publishing, 296 (2002).
14. A.K. Mandal, R. Sen. Materials and Manufacturing Processes, **32**, 1 (2017).
15. A.A. Sargsyan, V.V. Bagramyan, N.B. Knyazyan, R.K. Ovsepyan, N.R. Agamalyan, G.R. Badalyan. J. Contemp. Phys., **55**, 360 (2020).
16. В.В. Баграмян, А.А. Саргсян, Н.Б. Князян, А.А. Казарян, Т.В. Григорян. Химический журнал Армении, **74**, 191(2021).

17. **В.В. Баграмян, А.А. Саргсян, А.А. Казарян.** Химический журнал Армении, **75**, 7 (2022).
18. **N.M. Bahadur, F. Chowdhury, Md. Obaidullah, Md. Sh. Hossain, R. Rashid, Y. Akter, T. Furusawa, M. Sato, N. Suzuki.** J. Nanomaterials, Article ID 6368789, 11 pages (2019).
19. **T. Jiang, X. Wang, J. Zhou, D. Chen, Z. Zhao.** Nanoscale, **8**, 4908 (2016).
20. **F. Weis, M. Seipenbsch, G. Kasper.** Materials, **8**, 966 (2015).
21. **J. Zheng, Z.Q. Liu, X.S. Zhao, M. Liu, X. Liu, W. Chu.** Nanotechnology, **23**, 165601 (2012).
22. **A. Bershtein, V.M. Gun'ko, L.M. Egorova, N.V. Guzenko, E.M. Pakhlov, V.A. Ryzhov, V.I. Zarko.** Langmuir, **26**, 10968 (2010).
23. **В.В. Баграмян, А.А. Саргсян.** Химический журнал Армении, **73**, 176 (2020).
24. **А.С. Бурдина, К.И. Гагарина, А.А. Габов, А.А. Миронова.** Прикладная фотоника, **5**, 22 (2018).
25. **A. Duran, C. Sema, V. Fornes, et al.** J. Non-Crystalline Solids, **82**, 69 (1986).
26. **H.L. Xia, F.Q. Tang.** J. Phys Chem. B, **107**, 9175 (2003).
27. **N.A. Galedari, M. Rahmani, M. Tashihi.** Environ. Sci. Pollution Res., **24**, 12655 (2017).
28. **J. Cenens, R.A. Schoonheydt.** Clays and Clay Minerals, **36**, 214 (1988).
29. **E. Cristiano, Y.-J. Hu, M. Siegfried, D. Kaplan, H. Nitsch.** Clays and Clay Mineral, **5**, 107 (2011).
30. **W.-F. Tan, S.-J. Lu, F. Liu, X.-H. Feng, J.-Z. He, L.K. Koopal.** Soil Science, **173**, 277 (2008).

MICROWAVE-ASSISTED SYNTHESIS OF SiO₂/ZnO PHOTOCATALYST WITH CORE-SHELL STRUCTURE

A.A. SARGSYAN, R.A. MNATSAKANYAN, T.V. GRIGORYAN,
A.A. KAZARYAN, A.A. PETROSYAN, V.V. HARUTYUNYAN,
A.O. BADALYAN, N.R. AGHAMALYAN, V.V. BAGHRAMYAN

SiO₂/ZnO nanocomposite with a core-shell structure for photocatalysis from water-soluble zinc salts and sodium silicate was synthesized using the hydrothermal-microwave method. The physicochemical properties of the synthesized SiO₂/ZnO were studied and its photocatalytic activity was tested. The band gaps of the heat-treated composite E_g^{dir} and E_g^{indir} are 3.35 and 3.32 eV. The photocatalytic activity of the resulting SiO₂/ZnO was determined by the decomposition reaction of methylene blue under UV irradiation. The conversion of methylene blue was determined by optical method. The resulting SiO₂/ZnO has high photocatalytic activity. The conducted studies showed the effectiveness of microwave synthesis of SiO₂/ZnO with a core-shell structure in comparison with traditional methods.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.612–618 (2023)

УДК 548.732

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-612

ВОЗМОЖНОСТИ СОЗДАНИЯ РЕНТГЕНОАКУСТИЧЕСКИХ ЭЛЕМЕНТОВ ИЗ КРИСТАЛЛОВ СЕМЕЙСТВА БИФТАЛАТОВ С ТОЛЩИННЫМИ КОЛЕБАНИЯМИ

Я.А. ЭЛИОВИЧ², В.Р. КОЧАРЯН¹, А.Е. БЛАГОВ^{2,3}, А.В. ТАРГОНСКИЙ^{2,3},
В.А. КОРЖОВ^{2,3}, А.Е. МОССИСЯН¹, А.В. ШАХВЕРДЯН¹, С.Н. НОРЕЯН^{1*},
А.Г. МКРТЧЯН^{1,2}, М.В. КОВАЛЬЧУК^{3,4},

¹Институт прикладных проблем физики НАН Армении, Ереван, Армения

²ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН, Москва, Россия

³Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт», Москва, Россия

⁴Институт кристаллографии им. А.Б. Шубникова РАН, Москва, Россия

*e-mail: norser@yandex.ru

(Поступила в редакцию 12 июля 2023 г.)

Исследованы особенности дифракции рентгеновского пучка от пьезокристаллов бифталатов калия и рубидия при условии возбуждения в них поперечных ультразвуковых колебаний. Ранее при аналогичном воздействии в кристаллах кварца нами наблюдался эффект рентгено-акустического перераспределения, при котором существенно увеличивается интенсивность дифрагированного излучения в точном брэгговском положении при одновременном уменьшении интенсивности прошедшего пучка, вплоть до зануления при определенных параметрах воздействия для отражающих атомных плоскостей ($10\bar{1}1$), получившего название полной переброски. Этот эффект можно использовать для управляемой перестройки интенсивности дифрагированного пучка. С целью поиска новых материалов для изготовления элементов, позволяющих осуществлять такую перестройку, в данной работе изучены зависимости степени усиления дифрагированного излучения от амплитуды управляющего сигнала для кристаллов бифталатов калия и рубидия (БФР). Продемонстрирована фактическая возможность модуляции интенсивности рентгеновского излучения с помощью поперечных колебаний в этих кристаллах.

1. Введение

Экспериментальные методы, основанные на практическом применении рентгеновского излучения, благодаря разнообразию подходов и методик, сегодня являются одним из ключевых инструментов как для проведения фундаментальных исследований в области физики и материаловедения, так и для прикладных исследований в интересах промышленности. Рентгеновское излучение применяется не только для исследований статических объектов и определения их структур, но и для исследования динамических процессов, таких как химические реакции [1], молекуллярная динамика [2], морфология полимеров [3] и многих других [4]. Такое развитие методологии рентгеновских исследований привело к

необходимости разработки соответствующего аппаратно-методического обеспечения, необходимого для реализации временного разрешения при проведении измерений. Существует несколько принципиальных подходов к реализации временного разрешения – использование особенностей самого рентгеновского или синхротронного пучка, быстрая детектирующая аппаратура и, наконец, применение особых элементов рентгеновской оптики, которые получили название адаптивных элементов рентгеновской оптики [5, 6].

Такие адаптивные элементы могут устанавливаться вместо монохроматора/анализатора [7, 8] и выступать в качестве эффективного дополнения к традиционно используемым гониометрическим системам, необходимым для точного позиционирования исследуемого объекта относительно рентгеновского пучка, однако не обладающим должным быстродействием в случае, когда необходимо быстро перестраивать параметры экспериментальной схемы прямо в процессе проведения измерений.

Ряд таких элементов, основанных на продольных и изгибных колебаниях, показал высокую эффективность при проведении исследований методами быстрой и прецизионной двух- и трехкристальной рентгеновской дифрактометрии [9] и спектроскопии поглощения [10].

Существует также класс адаптивных рентгенооптических элементов, позволяющих осуществлять управление интенсивностью исследовательского пучка. Такими элементами являются, например, кристаллы кварца [11], в которых наблюдается значительное увеличение интенсивности дифрагированного пучка при возбуждении колебаний на резонансной частоте, соответствующей поперечной моде колебаний. Такая оптика может использоваться для создания рентгеновских пучков с определённой временной структурой, например, линий задержек.

В работе [12] впервые была показана возможность создания комбинированного адаптивного элемента рентгеновской оптики, основанного на одновременном возбуждении взаимно-перпендикулярных ультразвуковых колебаний в продольной и поперечной модах (направления «по длине» и «по толщине»). Такие элементы потенциально позволят осуществлять быструю и прецизионную перестройку сразу нескольких экспериментальных параметров, что еще сильнее расширит возможности экспериментальных методик на их основе.

Целью настоящей работы было исследование особенностей возбуждения по-перечной моды колебаний в пьезоэлектриках, что способствует разработке новых рентгенооптических элементов, позволяющих управлять интенсивностью дифрагированного излучения, и в перспективе, получить новые комбинированные адаптивные элементы. С этой целью в данной работе изучено изменение интенсивности отражённого и проходящего пучков, а также полуширины кривой качания отражающих атомных плоскостей кристаллов бифталата калия и рубидия в условиях возбуждения поперечных акустических колебаний в зависимости от амплитуды управляющего сигнала.

2. Методика эксперимента и описание образцов

В работе рассмотрено два типа кристаллических образцов из семейства бифталатов – бифталат рубидия (БФР) и калия (БФК). Исследования образцов проводились с помощью комплекса методов для изучения перспективных материалов, пригодных к изготовлению адаптивных элементов рентгеновской

оптики, и включали в себя оценку степени совершенства кристаллической структуры с помощью двухкристальной дифрактометрии, измерения колебательных спектров с помощью автоматического анализатора спектра, а также исследования непосредственно возможностей по управлению параметрами интенсивности рентгеновского пучка.

Рентгенодифракционные исследования проводились по двухкристальной схеме, реализованной на базе лабораторного дифрактометра ТРС. Источник излучения – трубка с Мо- анодом, спектральная линия $K\alpha_1$. Использовался кремниевый монохроматор с поверхностью (111), рефлекс 111, угол Брэгга 6.49° . Все измерения проводились в геометрии Лауэ. Для измерения интенсивности рентгеновского пучка использовался сцинтилляционный точечный детектор. Акустический сигнал создавался с помощью генератора Tektronix AFG3022B и усилителя Tabor 9200, с коэффициентом усиления 15.

Монокристаллы БФК ($C_8H_5KO_4$) и БФР ($C_8H_5RbO_4$) были выращены методом Чохральского в ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН. Образцы вырезаны в виде плоскопараллельных пластин с нанесённым токопроводящим слоем на лицевые стороны. Ориентация поверхности соответствует направлению [001]. Исследовались образцы кристалла БФР с размерами $47.5 \times 14.4 \times 2.2 \text{ mm}^3$ и БФК с размерами $47.4 \times 13.3 \times 2.1 \text{ mm}^3$. Для обоих образцов регистрировался рефлекс 004 и угол Брэгга 5.8° .

Кристаллы бифталатов обладают рядом уникальных особенностей, что делает их перспективными для проведения исследований и изучения возможностей создания адаптивных элементов рентгеновской оптики на их основе. В молекуле БФК можно выделить четыре структурные группы: бензольное кольцо, карбоксильные группы $C-OH$ и $C=O$, а также ионную связь $K-O$. Кристаллическая структура стабильна благодаря Ван-дер-Ваальсовым связям между бензольными кольцами, водородным связям между карбоксильными группами соседних молекул, а также кулоновским взаимодействиям между ионами калия и ионами карбоксильных групп [13]. Параметры решётки для БФК: $a = 6.46 \text{ \AA}$, $b = 9.6 \text{ \AA}$, $c = 13.85 \text{ \AA}$, для БФР $a = 6.541 \text{ \AA}$, $b = 10.064 \text{ \AA}$, $c = 13.068 \text{ \AA}$ [14, 15]. Упругие, пьезоэлектрические и оптические свойства бифталатов характеризуются значительной анизотропией [16] ввиду наличия полярной оси [001] и плоскостей спайности, перпендикулярных направлению [010].

Готовые к работе образцы устанавливались в специальные кристаллодержатели, где с помощью автоматического анализатора спектров Rigol DSA815TG измерялись их амплитудно-частотные характеристики (АЧХ), в которых, согласно расчетам, определялась резонансная частота, отвечающая за колебания по толщине ($f_{rez_BFR} = 737.288 \text{ кГц}$, $f_{rez_BFK} = 794.648 \text{ кГц}$).

3. Результаты и их обсуждение

Для обоих типов образцов был проведен ряд электромеханических и рентгенодифракционных исследований, в том числе зарегистрированы зависимости интенсивности отраженного и проходящего рентгеновских пучков от амплитуды подаваемого сигнала. На рис.1 представлено сравнение кривых дифракционного отражения (КДО), зарегистрированных в одной и той же точке с одинаковыми

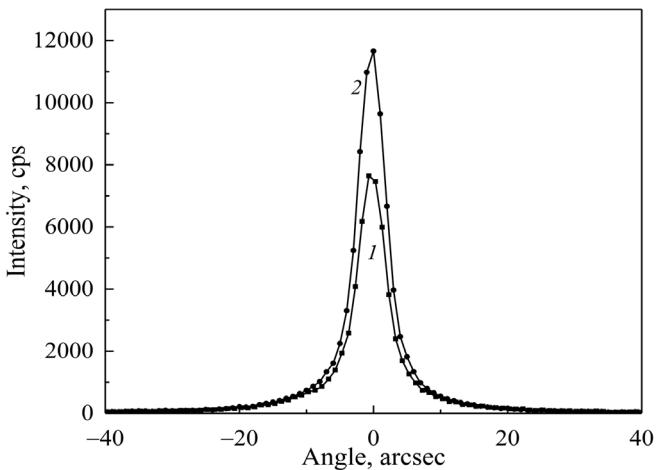


Рис.1. Исходная КДО (1) исследуемого кристалла БФР и ее сравнение с КДО (2) возбужденного кристалла ($U = 70$ В).

экспериментальными параметрами, где кривая (1) – КДО, полученная для кристалла с выключенным сигналом, а кривая (2) – КДО, полученная при включенном внешнем сигнале.

Хорошо видно, что интенсивность в пике увеличивается практически в два раза, при этом уширения или изменения формы пика КДО не происходит. В указанных параметрах экспериментальной схемы было проведено так называемое амплитудное сканирование – регистрировались полуширина КДО и значения интенсивности в пике КДО в зависимости от амплитуды внешнего сигнала, которая увеличивалась на генераторе с шагом 500 мВ. Результаты данного сканирования представлены на рис.2.

Полученные данные показывают, что по мере увеличения амплитуды сигнала происходит сначала увеличение интенсивности пика брэгговского отражения, а затем – уменьшение, что полностью согласуется с результатами, полученными при проведении ранее аналогичных экспериментов для кристаллов

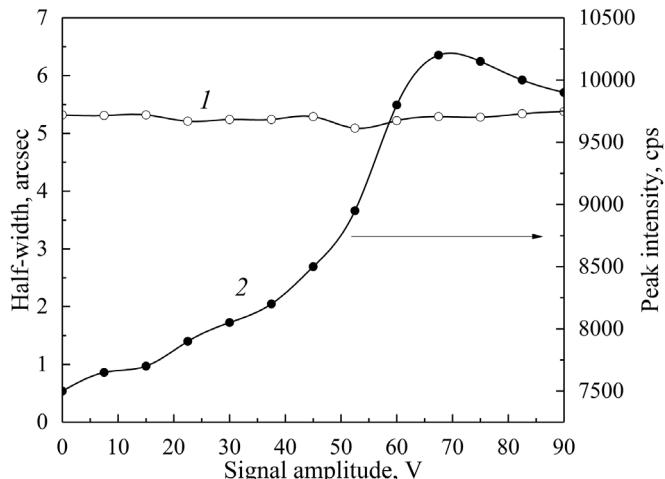


Рис.2. Зависимость полуширины КДО (1) и интенсивности пика КДО (2) для кристалла БФР от амплитуды внешнего сигнала.

кварца [17]. Особенный интерес также представляют измерения с одновременной регистрацией пучка, отраженного от образца, и пучка, проходящего сквозь образец, установленный в точное брэгговское положение на двух разных детекторах. Такие измерения позволяют наглядно наблюдать процесс перекачки интенсивности, как в невозбужденном состоянии образца, так и в условиях возбуждения колебаний. Сравнение полученных результатов представлено на рис.3.

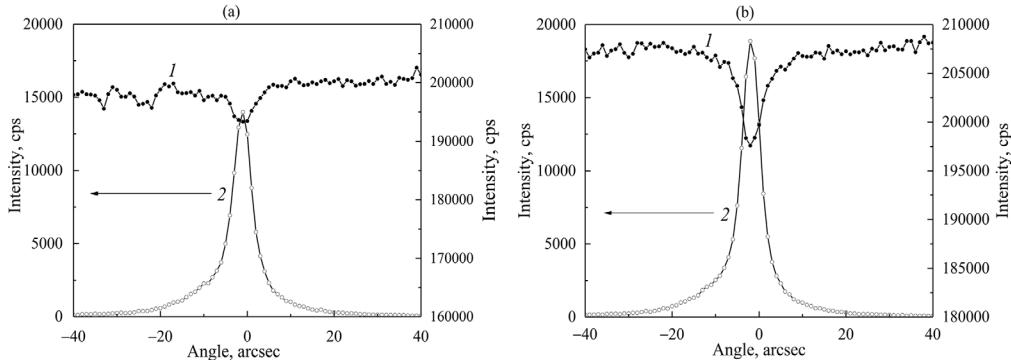


Рис.3. Перераспределение интенсивности проходящих (1) и отраженных (2) пучков для кристалла БФР с одновременной регистрацией: (а) при выключенном сигнале и (б) при включенном сигнале с амплитудой 75 В.

Аналогичные эксперименты были проведены для кристалла БФК. Измерены КДО кристалла в невозбужденном и возбужденном состоянии; пример их сравнения в одной из точек представлен на рис.4.

В данном образце эффект увеличения интенсивности получился значительно более слабым при тех же значениях амплитуды внешнего сигнала. Тем не менее, для него также были проведены эксперименты по регистрации процесса перекачки интенсивности с помощью одновременной регистрации интенсивности на двух детекторах, однако использовалась более высокая амплитуда сигнала. Сравнение полученных результатов представлено на рис.5.

Из полученных данных можно сделать вывод о том, что эффект увеличения интенсивности в кристалле БФК проявляется слабо. Однако большой интерес

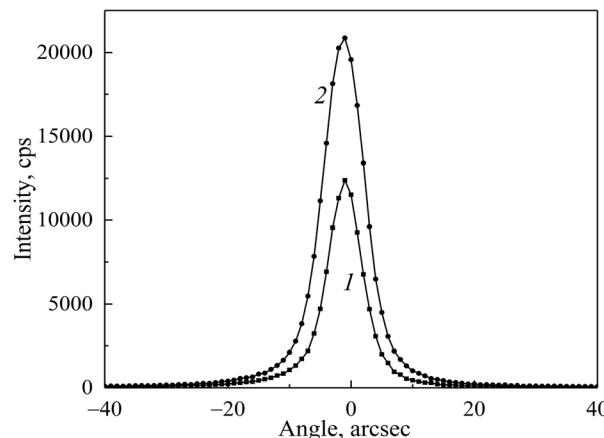


Рис.4. Сравнение КДО (1) исходного и КДО (2) возбужденного ($U = 105$ В) кристалла БФК.

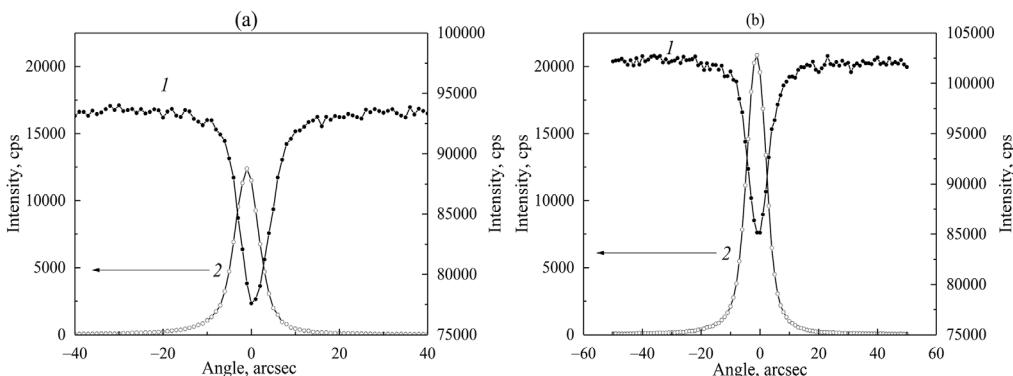


Рис.5. Перераспределение интенсивности в схеме с одновременной регистрацией проходящих (1) и отраженных (2) пучков для кристалла БФК: (а) при выключенном сигнале и (б) при включенном сигнале с амплитудой 105 В.

представляет проведение аналогичных экспериментов с кристаллами со специально подготовленными боковыми гранями, а также с кристаллами меньшей толщины. Такие кристаллы могли бы стать эффективными элементами адаптивной рентгеновской оптики, позволяющими проводить управление интенсивностью рентгеновского пучка, например, в линиях задержки на синхротронных источниках.

4. Заключение

Изучены особенности возбуждения поперечной моды колебаний в кристаллах семейства бифталатов. Последние являются пока еще не широко распространенными, но перспективными кристаллами для создания микроэлектронных компонентов. Вследствие рентгеноакустического перераспределения получено двухкратное увеличение дифрагированного от бифталатов излучения. Показано, что данные кристаллы могут быть использованы для создания адаптивных элементов рентгеновской оптики, основанных на толщинных колебаниях и позволяющих проводить модуляцию интенсивности исследуемого пучка, и, в перспективе, для изготовления комбинированных адаптивных элементов рентгеновской оптики.

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках гранта № 075-15-2021-1362 в части разработки методик проведения экспериментов и в рамках госзадания ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН в части синтеза, подготовки и изучения особенностей исследуемых кристаллов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Zh. Huang, H. Suzuki, M. Ito, Sh. Noguchi. Int. J. Pharm., **625**, 122057 (2022).
2. O. Karnbach, P.G. Heighway, D. McGonegle, R.E. Rudd, G. Gregori, J.S. Wark. J. Appl. Phys., **130**, 125901 (2021).
3. Z.-F. Yao, J.-Y. Wang, J. Pei. Progress in Polymer Science, **136**, 101626 (2023).
4. A. Schropp, R. Hoppe, V. Meier, J. Patommel, F. Seiboth, Y. Ping, D.G. Hicks, M.A. Beckwith, G.W. Collins, A. Higginbotham, J.S. Wark, H. J. Lee, B. Nagler, E.C.

- Galtier, B. Arnold, U. Zastrau, J.B. Hastings, Ch.G. Schroer.** Sci Rep, **5**, 11089 (2015).
5. А.Е. Благов, А.Н. Даринский, М.В. Ковальчук, Ю.В. Писаревский, П.А. Просеков, А.В. Таргонский. Акустический журнал, **59**, 561 (2013).
 6. А.Р. Мкртчян, М.А. Навасардян, Л.А. Kocharyan, М.А. Навасардян, О. А. Унанян, Р. Г. Габриелян, Р.П. Варданетян, В.К. Мирзоян. Известия АН Арм. ССР (серия физическая), **21**, 326 (1986).
 7. Ya. Eliovich, V. Akkuratev, A. Targonskii, A. Blagov, Yu. Pisarevsky, I. Petrov, M. Kovalchuk. Sensors and Actuators A: Physical, **343**, 113674 (2022).
 8. A.R. Mkrtchyan, A.H. Mkrtchyan, V.R. Kocharyan, A.E. Movsisyan, S.B. Dabagov, A.P. Potylicyn. J. Contemp. Physics, **48**, 141 (2013).
 9. А.Е. Благов, М.В. Ковальчук, Ю.В. Писаревский, П.А. Просеков. Кристаллография, **53**, 411 (2008).
 10. А.И. Проценко, А.Е. Благов, Ю.В. Писаревский, А.В. Рогачев, А.В. Таргонский, А.Л. Тригуб, Я.А. Элиович, С.Н. Якунин, М.В. Ковальчук. УФН, **191**, 88 (2021).
 11. А.Р. Мкртчян, М.А. Навасардян, Р. Г. Габриелян, Л. А. Kocharyan, К. Г. Галоян, А.А. Асланян. Письма в ЖТФ, **9**, 1181 (1983).
 12. Я.А. Элиович, А.Е. Благов, В.Р. Kocharyan, А.С. Гоголев, А.В. Таргонский, А.Е. Movsisyan, В.А. Коржов, А.Г.Мкртчян, М.В.Ковальчук. Письма в ЖЭТФ, **115**, 170 (2022).
 13. Y.-X. Kong, Y.-Y. Di, Y. Xu, W.-W. Yang, Zh.-Ch. Tan. J. Chem. Eng. Data, **55**, 2185 (2010).
 14. Y. Okaya. Acta Cryst., **19**, 879 (1965).
 15. R.A. Smith. Acta Cryst., B **31**, 2347 (1975).
 16. A.V. Alex, J. Philip. J. Appl. Phys., **88**, 2349 (2000).
 17. В.К. Мирзоян, А.А. Егиазарян, Э.Г. Багдасарян, П.В. Мирзоян. Известия НАН Армении. Физика, **42**, 355 (2007).

POSSIBILITIES OF CREATING X-RAY ACOUSTIC ELEMENTS FROM BIPHTHALATE FAMILY CRYSTALS WITH THICKNESS VIBRATIONS

YA.A. ELIOVICH, V.R. KOCHARYAN, A.E. BLAGOV, A.V. TARGONSKY,
V.A. KORZHOV, A.E. MOVSISYAN, A.V. SHAHVERDYAN, A.G. MKRTCHYAN,
M.V. KOVALCHUK, S.N. NOREYAN

Peculiarities of X-ray beam diffraction from potassium and rubidium biphtalate piezocrystals under the condition of excitation of transverse ultrasonic vibrations are investigated. Previously, under a similar influence in quartz crystals, the effect of X-ray acoustic redistribution was observed, in which the intensity of diffracted radiation in the exact Bragg position increases significantly with a simultaneous decrease in the intensity of the transmitted beam, down to zero for certain parameters for reflecting atomic planes ($101\bar{1}$), called the full pumping effect. This effect can be used for controlled tuning of the diffracted beam intensity. In this work, in order to search for new materials for the creation of elements that allow such a rearrangement, we studied the dependences of the degree of amplification of diffracted radiation on the amplitude of the control signal for potassium and rubidium biphtalates crystals. The actual possibility of X-ray intensity modulation using transverse vibrations in these crystals is demonstrated

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.619–625 (2023)

УДК 535.015

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-619

ИЕРАРХИЧЕСКАЯ АНТИОТРАЖАЮЩАЯ ПОВЕРХНОСТЬ КРЕМНИЕВЫХ ПОДЛОЖЕК ДЛЯ ТАНДЕМНЫХ СОЛНЕЧНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

Г.Е. АЙВАЗЯН

Национальный политехнический университет Армении, Ереван, Армения

e-mail: agagarm@gmail.com

(Поступила в редакцию 27 октября 2023 г.)

Исследованы структурные и оптические свойства tandemных структур кремний/перовскит с иерархической антиотражающей поверхностью на границе раздела. Поверхность состояла из микроразмерных пирамид и наноразмерных коротких игл, образованных соответственно методами химического и реактивного ионного травления кремниевых подложек. Показано, что пленка перовскита без пор и пустот с высокой степенью конформности покрывает иерархическую поверхность. Изготовленные образцы характеризуются низким коэффициентом отражения в широком диапазоне длин волн излучения.

1. Введение

Черный кремний (*b*-Si) представляет собой поверхностную разновидность кристаллического кремния и состоит из массива плотноупакованных наноразмерных иглок. Этот материал обладает многими привлекательными свойствами, включая низкую отражательную способность, высокое поглощение, значительную реакционную способность и гидрофобность [1–3]. Уникальными свойствами обусловлено широкое применение *b*-Si в различных областях, включая КМОП интегральные схемы, фотодетекторы и газовые сенсоры [4–7]. В последнее время *b*-Si активно исследуется в качестве антиотражающих слоев для однопереходных [8, 9] и межслоев для tandemных [10–12] солнечных элементов.

По антиотражающим свойствам *b*-Si значительно превосходит стандартную поверхностную текстуру в виде микроразмерных пирамид, образованных анизотропным химическим травлением [13, 14]. В частности, в широкополосном диапазоне длин волн (300–1000 нм) наноразмерные иглы с большим аспектным отношением (> 8) обеспечивают коэффициент отражения менее 2%, а микроразмерные пирамиды более 7%. Такое антиотражающее поведение связано с различными механизмами взаимодействия света с микро- и наноразмерными поверхностями [15–17]. В случае микроразмерных пирамид, когда их высота (5–10 мкм) превышает длину волны падающих световых лучей, происходят многократные отражения от соседних пирамид, приводящие к захвату световых лучей. В случае наноразмерных игл взаимодействие происходит в субволновом диапазоне и основным механизмом становится градиентное изменение

показателя преломления по толщине слоя b-Si от оптически менее плотной среды к среде с большей плотностью. Гораздо более эффективный второй механизм приводит к значительному снижению отражательной способности подобно многослойным тонким пленкам с меняющейся эффективной диэлектрической проницаемостью [18, 19].

С другой стороны, требованию большого аспектного отношения игл слоев b-Si сопутствуют определенные недостатки, такие как плохая механическая прочность (длинные иглы, как минимум, часто ломаются), сложность конформного осаждения пленок и высокая концентрация поверхностного легирования, которые препятствуют практическому применению b-Si в солнечных элементах. Иерархические антиотражающие поверхности кремниевых подложек, состоящие из микроразмерных пирамид и наноразмерных коротких игл, сочетают в себе преимущества обеих технологий. Подход «текстура на текстуре» успешно опробован для однопереходных солнечных элементов [20–23], но еще не использовался в tandemных элементах.

В настоящей работе представлены экспериментальные результаты исследования структурных и оптических свойств tandemных структур кремний/перовскит с иерархической антиотражающей поверхностью на границе раздела.

2. Экспериментальная часть

На рис.1 схематически представлен процесс изготовления иерархической антиотражающей поверхности кремниевых подложек для tandemных солнечных элементов.

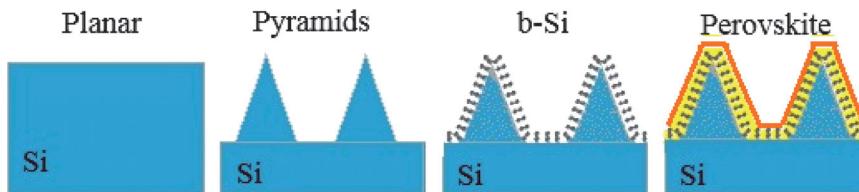


Рис.1. Схема процесса изготовления иерархической поверхности.

Использовались подложки монокристаллического кремния с ориентацией (100) и толщиной 400 мкм. Для создания пирамидальной текстуры подложки обрабатывались в растворе гидроксида калия KOH (2%) при температуре 50°C в течение 8 мин. Слой b-Si формировался на поверхности пирамидальной текстуры методом реактивного ионного травления в газовой смеси SF₆/O₂ со скоростью потока 75/40 см³/мин. Для возбуждения высокочастотной плазмы использовался генератор с частотой 13.56 МГц. Продолжительность травления составляла 10 мин. Нанесение перовскитных пленок со смешанными галогенами (CH₃NH₃PbI_{3-x}Cl_x) на иерархическую поверхность осуществлялось методом совместного вакуумного напыления. В качестве прекурсоров использовали неорганический йодид свинца (PbI₂) и органический хлорид метиламмония (CH₃NH₃Cl). Температуры испарителя для указанных прекурсоров составляли 180 и 340°C, соответственно. Отметим, что оценочное значение ширины запрещенной зоны перовскитных пленок составляло ~1.6 эВ [11].

Структурные свойства полученных образцов были исследованы с помощью сканирующего электронного микроскопа (SEM) JEOL JSM-6700F при напряжении 5 кВ. Измерение полной (одновременно диффузного и зеркального) отражательной способности поверхностей образцов проводилось на спектрофотометре UV-3101PC с интегрирующей сферой в диапазоне длин волн $\lambda = 300\text{--}1200$ нм. Структурно-фазовая диагностика перовскитных пленок проводилась на рентгеновском дифрактометре Empyrean фирмы Panalytical с возбуждающим $\text{Co}K_{\alpha}$ -излучением (1.54178 Å).

3. Результаты и их обсуждение

На рис.2 представлены типичные SEM микрофотографии (поперечное сечение и вид сверху) пирамидальной текстуры, слоя b-Si и иерархической поверхности кремниевых подложек.

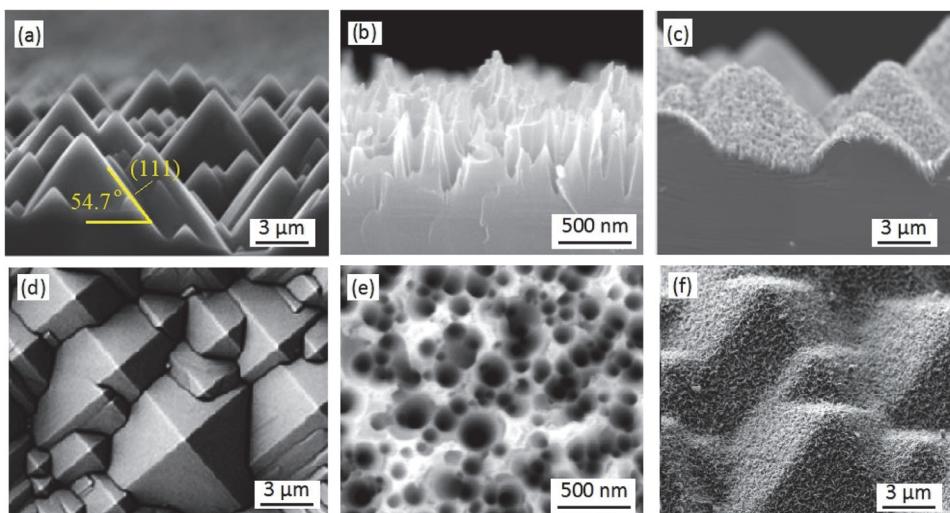


Рис.2. SEM микрофотографии (верхний ряд – поперечное сечение, нижний ряд – вид сверху) пирамидальной текстуры (a, d), слоя b-Si (b, e) и иерархической поверхности (c, f) кремниевых подложек.

Видно, что микротекстурированная поверхность кремниевых подложек представляет собой множество хаотично расположенных пирамид с шириной основания от 1 до 6 мкм и высотой до 10 мкм (рис.2a, d). Боковые грани пирамид параллельны кристаллографическим плоскостям (111) под углом к основанию 54.7° . Формирование такого микрорельефа объясняется сильной зависимостью скорости травления Si от ориентации кристаллографических плоскостей. Самая низкая скорость травления наблюдается на плоскости (111), так как плотность упаковки атомов здесь самая высокая. Слой b-Si состоит из четко выраженных тонких иголок, имеющих достаточно четкую границу раздела с кремниевой подложкой (рис.2b, e). Иглы расположены неупорядоченно с небольшими зазорами между ними (менее 100 нм). Их средняя высота составляет 550 нм, диаметр основания находится в диапазоне от 70 до 120 нм. Следует отметить, что аспектное отношение ~ 5 является наиболее оптимальным для однопереходных солнечных элементов [8, 9]. Визуально на SEM микрофотографиях

иерархической поверхности слой b-Si проявляется в виде тонкой светлой полоски на микропирамидах (рис.2c, f). Заметно, что слой b-Si сформирован равномерно с резкой границей раздела с микротекстурой.

На рис.3 представлены типичные SEM микрофотографии tandemных структур кремний/перовскит с иерархической поверхностью кремниевой подложки. Видно, что пленка перовскита без видимых пор и пустот с высокой степенью конформности заполняет межигольное пространство слоя b-Si. Отметим, что конформность и однородность перовскита имеют особое значение для обеспечения эффективности tandemных солнечных элементов. В противном случае между электронным и дырочным транспортными слоями в дефектных участках пленки будут образовываться короткие замыкания, что, в свою очередь, приведет к появлению токов утечки. Кроме того, однородная морфология пленки перовскита способствует увеличению количества поглощаемых фотонов и, следовательно, более эффективной генерации заряда.

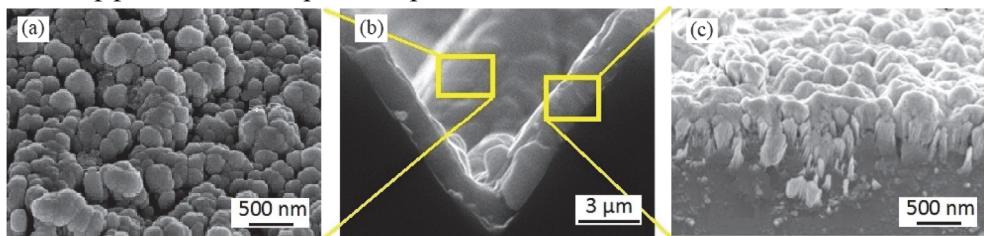


Рис.3. SEM микрофотографии tandemных структур кремний/перовскит с иерархической поверхностью кремниевой подложки: (a) – вид сверху пленки перовскита; (b) – поперечное сечение структуры; (c) – поперечное сечение пленки перовскита.

Рентгеновские дифрактограммы пленок перовскита на плоской и иерархической поверхностях кремниевых подложек показаны на рис.4. Пленка перовскита на обеих поверхностях дает схожие рентгенограммы. Это означает, что антиотражающая поверхность не влияет на структурно-фазовое качество перовскита. Наблюдаемые сильные дифракционные пики при 14.12° , 28.50° и 31.94° отвечают плоскостям кристалла перовскита (110) , (220) и (310) , соответственно, и указывают на тетрагональную кристаллическую структуру синтезированных пленок. Также отсутствуют дополнительные пики, принадлежащие прекурсорам перовскита, что свидетельствует о высоком уровне фазовой чистоты.

На рис.5 представлены спектры полного оптического отражения tandemных

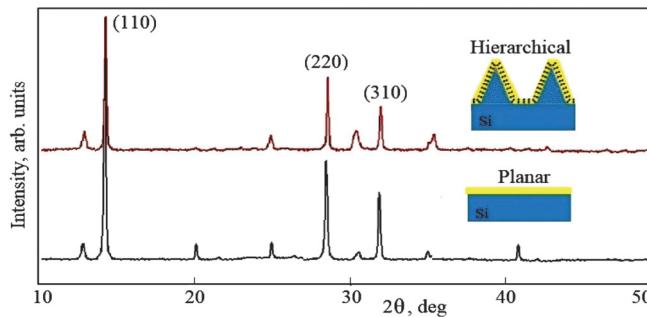


Рис.4. Рентгеновская дифрактограмма перовскита на плоской и иерархической поверхностях кремниевых подложек.

структур с пирамидальной текстурой, межслоем b-Si и иерархической поверхностью кремниевых подложек.

Как видно из рис.5, для исследованных образцов со слоем b-Si и иерархической поверхностью спектры отражения количественно и качественно отличаются от спектра отражения образцов с пирамидальной текстурой. Для первых образцов коэффициент отражения значительно уменьшается во всем рассматриваемом диапазоне длин волн, причем в ближней УФ области уменьшение полного отражения намного больше. Последнее связано с эффективным поглощением света в перовските за счет относительно широкой запрещенной зоны этого материала. При увеличении длины волны в видимой области спектра наблюдается более ранний подъем коэффициента отражения.

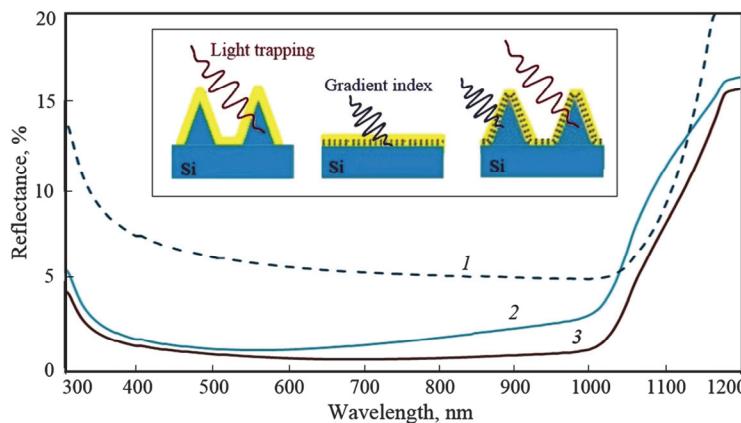


Рис.5. Спектры отражения тандемных структур с пирамидальной текстурой (1), межслоем b-Si (2) и иерархической поверхностью (3) кремниевых подложек. На вставке схематически показаны механизмы взаимодействия света с антиотражающими поверхностями.

Важен тот факт, что иерархическая поверхность кремниевых подложек способствует существенному снижению отражения тандемных структур. В этом случае крайне низкое отражение связано с совместным действием двух механизмов взаимодействия света с поверхностью, а именно, захватом световых лучей от микроразмерных пирамид и градиентное увеличение показателя преломления по толщине слоя b-Si. Механизмы взаимодействия света (“Light trapping” и “Gradient index”) с различными антиотражающими поверхностями схематически проиллюстрированы на вставке к рис. 5. Отметим также, что если в случае однопереходных солнечных элементов показатель преломления изменяется от воздуха ($n_{\text{air}} = 1$) к кремниевой подложке ($n_{\text{Si}} = 3.8$), то для тандемных структур увеличение показателя преломления начинается от сравнительно плотной оптически среды, а именно перовскита ($n_{\text{pvk}} = 2.3$) [11, 17]. Именно поэтому вклад слоя b-Si на общее антиотражающее поведение иерархической поверхности на границе раздела тандемных структур заметно ниже, чем в случае однопереходных структур [20–22].

Таким образом, полученные результаты свидетельствуют, что иерархическая поверхность кремниевых подложек в тандемных структурах не влияет на структурно-фазовое качество пленки перовскита и снижает оптические потери, обусловленные отражением на границе раздела кремний/перовскит. Однако

следует отметить, что двухэтапное формирование антиотражающей поверхности (химическое и реактивное ионное травления) усложняет технологический процесс. Следовательно, существует компромисс в отношении антиотражающих свойств и эффективности технологии изготовления tandemных солнечных элементов.

4. Заключение

Изготовлены tandemные кремний/перовскит структуры с иерархической антиотражающей поверхностью на границе раздела, состоящей из микроразмерных пирамид и наноразмерных коротких игл слоя b-Si. Изучены их структурные и оптические свойства. Показано, что иерархическая поверхность на кремниевых подложках не препятствует формированию качественного по структуре и фазовому составу слоя перовскита и способствует значительному снижению оптических потерь на отражение. Полученные результаты свидетельствуют о технологической возможности и перспективности применения иерархических антиотражающих поверхностей в tandemных солнечных элементах.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке РА в рамках научного проекта № 21AG-2B011.

ЛИТЕРАТУРА

1. M. Otto, M. Algasinger, H. Branz, B. Gesemann, T. Gimpel, K. Füchsel, T. Käsebier, S. Kontermann, S. Koynov, X. Li, V. Naumann, J. Oh, A. Sprafke, J. Ziegler, M. Zilk, R. Wehrspoh. *Adv. Opt. Mater.*, **3**, 147 (2015).
2. S. Jurečka, M. Králik, E. Pinčík, K. Imamuram, T. Matsumoto, H. Kobayashi. *Proc. SPIE*, **10976**, 1097601 (2018).
3. Y.A. Peschenyuk, A.A. Semenov, E.Y. Gatapova. *Exp. Fluids*, **64**, 1 (2023).
4. J. Soueiti, R. Sarieddine, H. Kadiri, A. Alhussein, G. Lerondel, R. Habchi. *Nanoscale*, **15**, 4738 (2023).
5. X. Liu, B. Radfar, K. Chen, O.E. Setälä, T.P. Pasanen, M. Yli-Koski, H. Savin, V. Vähänissi. *IEEE Trans. Semicond. Manuf.*, **35**, 504 (2022).
6. G. Ayvazyan, L. Hakhyan, K. Ayvazyan, A. Semchenko. *Phys. Status Solidi RRL*, **17**, 2300058 (2023).
7. G. Ayvazyan, L. Hakhyan, K. Ayvazyan, A. Aghabekyan. *Phys. Status Solidi A.*, **220**, 2200793 (2023).
8. R.S. Davidsen, H. Li, A. To, X. Wang, A. Han, J. An, J. Colwell, C. Chan, A. Wenham, M.S. Schmidt, A. Boisen, O. Hansen, S. Wenham, A. Barnett. *Sol. Energy Mat. Sol. Cells*, **144**, 740 (2016).
9. J.Y.-H. Chai, B.T. Wong, S. Juodkazis. *Mater. Today Energy*, **18**, 100539 (2020).
10. G.Y. Ayvazyan, D.L. Kovalenko, M.S. Lebedev, L.A. Matevosyan, A.V. Semchenko. *J. Contemp. Phys. (Armenian Acad. Sci.)*, **57**, 274 (2022).
11. G. Ayvazyan, L. Hakhyan, H. Dashtoyan, L. Matevosyan. *J. Contemp. Phys. (Armenian Acad. Sci.)*, **58**, 85 (2023).
12. Z. Ying, Z. Yang, J. Zheng, H. Wei, L. Chen, C. Xiao, J. Sun, C. Shou, G. Qin, J. Sheng, Y. Zeng, B. Yan, X. Yang, J. Ye. *Joule*, **6**, 2644 (2022).
13. J. Chen, X. Li, R. Jia, Y. Tang, D. Zhang, C. Guo, H. Zhu, Z. Gao. *Sol. Energy Mat. Sol. Cells*, **254**, 112250 (2023).

14. P. Papet, O. Nichiporuk, A. Kaminski, Y. Rozier, J. Kraiem, J.-F. Lelievre, A. Chaumartin, A. Fave, M. Lemit. Sol. Energy Mater. Sol. Cells, **90**, 2319 (2006).
15. A. Deinega, I. Valuev, B. Potapkin, Y. Lozovik. JOSA A, **28**, 770 (2011).
16. S. Saive. Prog. Photovolt., **29**, 1125 (2021).
17. G. Ayvazyan, F. Gasparyan, V. Gasparian. Optical Mater., **140**, 113879 (2023).
18. H. Sayed, Z.S. Matar, M. Al-Dossari, A.F. Amin, A.H. Aly. Crystals, **12**, 57 (2022).
19. A.A. Elsayed, Y.M. Sabry, F. Marty, T. Bourouina, D. Khalil. Optics Express, **26**, 13443 (2018).
20. J. Xu, C. Chen, C. Liu, J. Chen, Z. Liu, X. Yuan, H. Li. Sol. Energy Mater. Sol. Cells, **233**, 111409 (2021).
21. R. Putraa, J-Y. Lia, C-Y. Chena. Appl. Surf. Sci., **478**, 725 (2019).
22. J. Wang, C. Gao, X. Wang, Y. Wang, Z. Cheng, H. Liu, W. Shen. Energy Techn., **9**, 2000778 (2021).
23. R. Khandelwa, U. Plachetka, B. Min, C. Moormann, H. Kurz. Microel. Eng., **111**, 220 (2013).

ՍԻԼԻՑԻՈՆՍԱՅԻՆ ՀԱՐԹԱԿՆԵՐԻ ՀԻԵՐԱՐԻՆԻԱԿԱՆ ՀԱԿԱՍՄՈՒՄԱՌԱՋՆՈՂ
ՄԱԿԵՐԵՎՈՒՅԹ ՏԱՆԴԵՄՍԱՅԻՆ ԱՐԵՎԱՅԻՆ ԷԼԵՄԵՆՏՆԵՐԻ ՀԱՍԱՐ

Գ.Ե. ԱՅՎԱԶՅԱՆ

Հետազոտվել են սահմանագծում հիերարխիական հակասմումայացման մակերևույթով սիլիցիում/պերովսկիտ տանդեմային կառուցվածքների կառուցվածքային և օպտիկական հասկությունները։ Մակերևույթը կազմված էր սիլիցիումային հարթակների համապատասխանաբար քիմիական և ռեակտիվ իոնային խածատման մեթոդներով ձևավորված միկրոչափային բուրգերից և նանոչափային կարճ ասեղիկներից։ Ցույց է տրվել, որ պերովսկիտէ թարանքը առանց ծակուտիների և դատարկությունների, բարձր աստիճանի համաձայնաբար ծածկում է հիերարխիական մակերևույթը։ Պատրաստված նմուշները բնութագրվում են ճառագայթման ալիքի երկարությունների լայն տիրույթում անդադարձման ցածր գործակցով։

HIERARCHICAL ANTIREFLECTIVE SURFACE OF SILICON SUBSTRATES FOR TANDEM SOLAR CELLS

G.Y. AYVAZYAN

The structural and optical properties of tandem silicon/perovskite structures with a hierarchical antireflective surface at the interface have been studied. The surface consisted of micro-sized pyramids and nano-sized short needles, formed respectively by chemical and reactive ion etching of silicon substrates. It is shown that a perovskite film without pores and voids covers a hierarchical surface with high conformity. The manufactured samples are characterized by low reflectance over a wide range of radiation wavelengths.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.626–634 (2023)

УДК 536.2

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-626

ПЛАТИНОСОДЕРЖАЩИЙ ДЕТЕКТИРУЮЩИЙ ЭЛЕМЕНТ ТЕРМОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ОДНОФОТОННОГО ДЕТЕКТОРА

А.А. КУЗАНЯН, В.Р. НИКОГОСЯН, А.С. КУЗАНЯН*

Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

*e-mail: akuzanyan@yahoo.com

(Поступила в редакцию 8 декабря 2023 г.)

Методом компьютерного моделирования изучены процессы распространения тепла и определены шумы в трехслойном детектирующем элементе термоэлектрического однофотонного детектора, состоящем из поглотителя (Pt), термоэлектрического сенсора ($\text{La}_{0.99}\text{Ce}_{0.01}\text{B}_6$) и теплоотвода (Pt, Mo). Исследовано поглощение фотонов с энергией 0.8–7.1 эВ (1550–175 нм) в поглотителях различной толщины, обеспечивающей высокую эффективность поглощения. Моделирование проводилось на основе уравнений распространения тепла из ограниченного объема. Изучены временные зависимости возникающего на сенсоре сигнала. Определены мощность сигнала, эквивалентная мощность шума и отношение сигнал/шум. Показано, что детектирующий элемент с платиновым поглотителем может уверенно регистрировать одиночные фотонны с энергией 3.1–7.1 эВ.

1. Введение

Однофотонные детекторы востребованы в различных областях науки и техники [1, 2]. С развитием современных технологий, использованием детекторов для решения все более сложных задач, возрастают и предъявляемые к их характеристикам требования [3, 4]. Высокими характеристиками, открывающими широкую возможность их использования в различных квантовых технологиях, обладают сверхпроводящие нанопроволочные однофотонные детекторы (SNSPD) [5–9]. Наряду с этим, SNSPD применяются и в других областях [10–14]. SNSPD могут также служить компонентом оптических микрочипов [15–17] и применяться в многопиксельных матрицах, в том числе в SNSPD камере с разрешением 400 000 пикселей [18–21].

Со сверхпроводящими детекторами могут конкурировать термоэлектрические однофотонные детекторы (TSPD) [22]. Они не требуют строгих ограничений рабочей температуре и дополнительного тока смещения [23, 24]. Детектирующий элемент TSPD имеет очень простую конструкцию в которой поглотитель и теплоотвод служат одновременно электродами для регистрации возникающего на термоэлектрическом сенсоре напряжения. Путем компьютерного моделирования мы исследовали процессы распространения тепла в термоэлектрическом детектирующем элементе различной конструкции [25–27]. Показано, что TSPDs могут обладать высокой эффективностью и скоростью счета в широкой области электромагнитного спектра. В данной работе изучаются процессы распространения

тепла в трехслойных детектирующих элементах. На диэлектрической подложке последовательно расположены друг на друге теплоотвод, термоэлектрический сенсор и поглотитель. Исследована зависимость мощности сигнала и эквивалентной мощности шума детектирующих элементов от энергии поглощенного фотона.

2. Параметры моделирования

Одним из основных характеристик однофотонных детекторов является их системная эффективность, определяемая как отношение числа зарегистрированных фотонов к числу достигших детектор фотонов. Системная эффективность зависит от эффективности оптической связи фотона и детектирующего элемента, эффективности поглощения фотона и эффективности регистрации уже поглощенного фотона. Эффективность оптической связи может быть достигнута использованием антиотражающего покрытия. Эффективность поглощения фотона определяется коэффициентом поглощения излучения в материале и его толщиной. Эффективность регистрации уже поглощенного фотона определяется отношением сигнал/шум (SNR) детектирующего элемента. Последние два фактора мы будем учитывать для определения оптимальной конструкции детектирующего элемента TSPD.

Рассматриваем поглощение одиночных фотонов с энергией 0.8, 1.65, 3.1 и 7.1 эВ. В табл.1 приведены значения коэффициента поглощения излучения в различных металлах [28]. Видно, что ультрафиолет лучше поглощают вольфрам и молибден, а для ближнего инфракрасного диапазона, особенно для длины волны 1550 нм, перспективными являются поглотители из платины. Детекторы ультрафиолетового диапазона применяются преимущественно в астрофизике. Более широкое применение имеют детекторы ближней инфракрасной области. Это и телекоммуникация, и квантовые технологии, и многое другое. Не трудно посчитать, что вероятность поглощения фотонов с длиной волны 1550 нм в платиновом поглотителе толщиной 30, 25, 20 и 15 нм будет равна 98.1, 96.2, 92.8 и 86%, соответственно, что обеспечивает высокую эффективность поглощения. Для достижения высокой эффективности регистрации уже поглощенного фотона необходимо добиться высокой мощности сигнала при малой мощности шума детектирующего элемента. Для решения этой задачи останавливаем выбор на термоэлектрическом сенсоре из гексаборида лантана–церия ($\text{La}_{0.99}\text{Ce}_{0.01}\text{B}_6$) с высоким коэффициентом Зеебека при 1К. В качестве материала теплоотвода используем платину и молибден. Расположим трехслойный детектирующий элемент на диэлектрической подложке из сапфира. Итак, мы будем исследовать характеристики детектирующих элементов двух типов, отличающихся по

Табл.1. Коэффициент поглощения излучения для различных металлов

E , эВ	λ , нм	$\alpha, 10^{+6} \text{ см}^{-1}$			
		W	Pb	Mo	Pt
7.1	175	1.6024	0.7769	1.5190	1.1283
3.1	400	1.526	1.2263	1.6095	0.9694
1.65	750	1.4143	1.2055	1.7894	1.2573
0.8	1550	1.1667	1.1857	1.1453	1.3128

материалу теплоотвода: Pt (поглотитель) / La_{0.99}Ce_{0.01}B₆ (сенсор) / Pt или Mo (теплоотвод) / Al₂O₃ (подложка), которым для краткости присвоим обозначения PLP и PLM. Физические параметры материалов конструкции детектирующих элементов, которые используются как при моделировании тепловых процессов, так и при определении мощности шума, приведены в табл.2 [29–37].

Табл.2. Физические параметры материалов при 1К

Параметры	Материал			
	Al ₂ O ₃	(La, Ce)B ₆	Mo	Pt
Плотность, кг/м ³	4000	4720	10280	
Удельная теплоемкость, Дж/(кг К)	0.002	0.13	0.02	0.035
Теплопроводность, Вт/(м К)	20	1.1	60	231
Коэффициент Зеебека, мкВ/К		105		
Удельное сопротивление, Ом м		2 × 10 ⁻⁸	7 × 10 ⁻¹²	2 × 10 ⁻¹²

Компьютерное моделирование процессов распространения тепла в детектирующих элементах после поглощения фотона в центре поверхности поглотителя проводилось на основе уравнения теплопередачи из ограниченного объема с использованием трехмерного матричного метода. Использованная методика позволяет определить температуру в любой области детектирующего элемента в любой момент времени после термализации фотона. Методика расчетов, принятые ограничения и приближения подробно описаны в работе [25].

В фотонных тепловых сенсорах превалируют тепловой и Джонсоновский шум. Эквивалентная мощность шума описывается уравнениями, приведенными в работе [38]. Мощность суммарного шума (P_N) и возникающего на сенсоре сигнала (P_S), а также отношение сигнала к шуму (SNR) определялись используя уравнения Джонсовского и теплового шума трехслойного детектирующего элемента TSPD [39]. Эквивалентная мощность теплового шума определялась по уравнению

$$\text{NEP}_T^2 = 4k_B T^2 (4A\epsilon\sigma_{SB}T^3 + k_3 d_3),$$

где k_B – постоянная Больцмана, T – рабочая температура, A – площадь поверхности детектирующего элемента, σ_{SB} – постоянная Стефана-Больцмана, k_3 и d_3 – теплопроводность и толщина теплоотвода. Для эквивалентной мощности Джонсоновского шума нами получено уравнение

$$\text{NEP}_J^2 = 4k_B T (\rho_1 d_1/A + \rho_2 d_2/A) (4A\epsilon\sigma_{SB}T^3 + k_1 d_1 + k_2 d_2)^2 / |S|^2,$$

где S – коэффициент Зеебека материала сенсора, ρ_1 , d_1 , k_1 и ρ_2 , d_2 , k_2 – удельное сопротивление, толщина и теплопроводность поглотителя и сенсора, соответственно. Суммарная эквивалентная мощность шума в единицах (ВтГц^{-1/2}) рассчитывается по уравнению $\text{NEP} = (\text{NEP}_T^2 + \text{NEP}_J^2)^{1/2}$. Мощность суммарного шума P_N в единицах (Вт) для полосы частот измерения Δf определяется по уравнению $P_N = \text{NEP} \times \Delta f^{1/2}$.

Мгновенная мощность электрического сигнала устройства с сопротивлением R , на котором возникает напряжение V , равна $P(t) = V^2(t)/R$. Для термоэлектрического детектирующего элемента $V(t) = S \times \Delta T_{\text{avs}}$, где S – коэффициент Зеебека материала сенсора, а ΔT_{avs} – градиент усредненной температуры на границах сенсора. Усредненная за период τ мощность сигнала равна

$P = \frac{1}{\tau} \int_0^{\tau} P(t)dt$. Мы можем рассчитать мощность сигнала, возникающего на дат-

чике, так как из данных моделирования мы можем узнать возникающий на сенсоре градиент температуры и время затухания сигнала. При определении SNR нужно учитывать, что мощность и сигнала, и шума должны быть определены для одной и той же полосы частот измерения, т.е. должно выполняться условие $\Delta f = 1/\tau$.

3. Результаты и обсуждение

Как отмечено выше, мы рассматриваем поглощение фотонов с энергией 0.8, 1.65, 3.1 и 7.1 эВ в детектирующих элементах PLP и PLM с площадью поверхности $1 \text{ мкм} \times 1 \text{ мкм}$ и толщиной платинового поглотителя $d_1 = 30, 25, 20$ и 15 нм. Толщина сенсора и теплоотвода во всех расчетах составляла 10 нм, подложки – 100 нм. Изучены временные зависимости температуры в зоне термализации, в центре границ всех слоев, в 10 точках на каждой границе с шагом 50 нм от центра и усредненной температуры поверхности слоев.

После того как мы определились с конструкцией детектирующих элементов, можем посчитать значения их эквивалентной мощности шума. Значения теплового, Джонсоновского и общего шума для каждой рассмотренной толщины d_1 и материала теплоотвода приведены в табл.3. Так как величина теплового шума не зависит от толщины поглотителя, то для всех значений d_1 имеем одно и тоже значение NEP^2_T , которое почти в 4 раза меньше у детектирующего элемента PLM. Величина Джонсоновского шума уменьшается с уменьшением d_1 и одинакова для PLM и PLP. Соответственно, суммарный шум также уменьшается с уменьшением d_1 и при каждом значении толщины поглотителя, NEP меньше для PLM детектирующего элемента.

Табл.3. Эквивалентная мощность шума PLM и PLP детектирующих элементов

d_1 , нм	PLP			PLM		
	NEP^2_T , $E-29 \text{ Вт}^2 \text{ Гц}^{-1}$	NEP^2_J , $E-29 \text{ Вт}^2 \text{ Гц}^{-1}$	NEP, $\text{фВтГц}^{-1/2}$	NEP^2_T , $E-29 \text{ Вт}^2 \text{ Гц}^{-1}$	NEP^2_J , $E-29 \text{ Вт}^2 \text{ Гц}^{-1}$	NEP, $\text{фВтГц}^{-1/2}$
30	12.8	4.83	13.26	3.31	4.83	9.022
25		3.35	12.69		3.35	8.164
20		2.15	12.21		2.15	7.389
15		1.21	11.82		1.21	6.725

3.1. Детектирование фотонов с энергией 0.8 эВ

Закономерности распространения тепла из зоны термализации фотона практически одинаковы для обоих типов детектирующих элементов и различных толщин поглотителя. Отличаются только численные значения параметров, характеризующих временную зависимость изменения температуры. Мы рассмотрим следующие параметры: значение максимума (T_m), время достижения максимума (t_m), время спада температуры до фонового значения (t_b), которое отличается от рабочей температуры на 0.1 мК. На рис.1 представлена временная

зависимость изменения температуры на различных участках поверхности сенсора. Мы можем констатировать, что с удалением от центра поверхности параметр T_m убывает, параметр t_b возрастает. Эта закономерность выполняется для всех слоев, для всех рассмотренных конструкций детектирующего элемента.

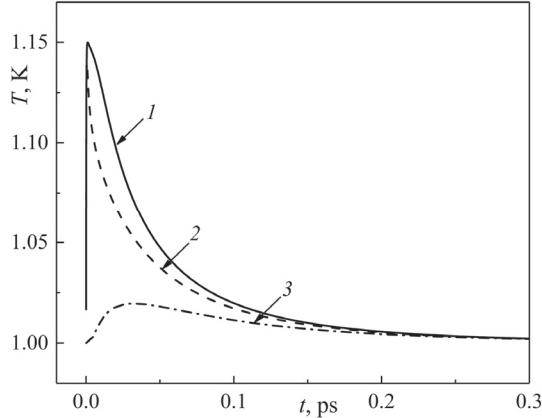


Рис.1. Временная зависимость температуры на поверхности сенсора детектирующего элемента PLM с толщиной поглотителя 20 нм, расстояние от центра: 1 – 0 мкм, 2 – 0.25 мкм, 3 – 0.5 мкм.

На рис.2 приведены значения параметров T_m и t_b временной зависимости температуры участков на удалении l от центра поверхности сенсора (1, 3) и теплоотвода (2, 4) детектирующего элемента PLM. С удалением от центра параметр T_m уменьшается, и он значительно меньше на поверхности теплоотвода. Параметр t_b также значительно меньше для поверхности теплоотвода. Можем сформулировать вторую закономерность распространения тепла в трехслойном детектирующем элементе. Чем дальше от зоны термализации находится слой, тем меньшие температуры достигаются на его поверхности. В результате, на термоэлектрическом сенсоре образуется градиент температуры, возникает электрическое напряжение, позволяющее зафиксировать факт поглощения фотона.

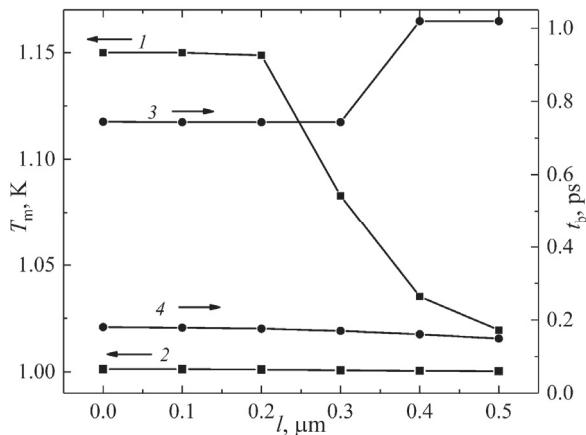


Рис.2. Значения параметров T_m и t_b функции $T(t)$ на расстоянии l от центра по данным с поверхности сенсора (1, 3) и теплоотвода (2, 4) детектирующего элемента PLM с толщиной поглотителя 20 нм.

На рис.3 приведены значения максимума градиента усредненной температуры на границах сенсора (ΔT_{am}) и ширины на полувысоте (FWHM) зависимости $\Delta T_a(t)$ от толщины поглотителя. Эти параметры имеют одинаковые значения для PLM и PLP детектирующих элементов. Можно видеть, что с уменьшением толщины поглотителя значения параметра ΔT_{am} возрастают, а параметра FWHM – убывают. Это третья закономерность распространения тепла поглощенного фотона. Более высокие значения параметра ΔT_{am} обеспечивают более высокую мощность сигнала. Чем меньше параметр FWHM тем меньше временное разрешение детектора, т.е. большая скорость счета. Однако не следует забывать, что меньшим толщинам поглотителя соответствует меньшая эффективность поглощения фотонов.

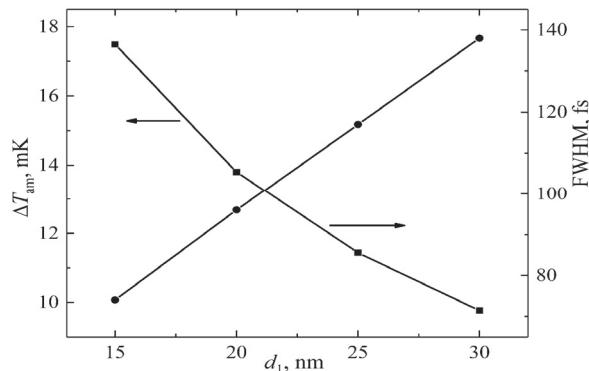


Рис.3. Зависимость максимума градиента усредненной температуры на границах сенсора (ΔT_{am}) и полной ширины на полувысоте (FWHM) функции $\Delta T_a(t)$ от толщины поглотителя.

В табл.4 приведены значения полосы частот измерения сигнала, мощности шума, мощности сигнала и SNR для обоих типов детектирующего элемента. Можно видеть, что с уменьшением толщины поглотителя все эти параметры возрастают. Параметры Δf и P_s имеют одинаковые значения для обоих типов детектирующего элемента. Детектирующий элемент PLM, при каждом значении d_1 , имеет меньшую мощность шума, чем PLP, что и определяет большие значения SNR детектирующего элемента с Mo теплоотводом. Однако и для PLM значения SNR меньше единицы. Следует вывод, что детектирующие элементы PLM и PLP рассмотренной геометрии не могут эффективно регистрировать фотоны с энергией 0.8 эВ.

Табл.4. Значения параметров Δf , P_N , P_S и SNR детектирующих элементов PLP и PLM при разных толщинах поглотителя

$d_1, \text{нм}$	PLP				PLM			
	$\Delta f, \text{ГГц}$	P_N, nBt	P_S, nBt	SNR	$\Delta f, \text{ГГц}$	P_N, nBt	P_S, nBt	SNR
30	1.05	13.61	0.55	0.04	1.05	9.26	0.55	0.06
25	1.19	13.82	0.72	0.05	1.19	8.89	0.72	0.08
20	1.36	14.25	0.99	0.07	1.36	8.62	0.99	0.12
15	1.61	15.01	1.45	0.1	1.61	8.54	1.45	0.17

3.2. Детектирование фотонов с различной энергией

В предыдущем параграфе мы установили, что при прочих равных условиях детектирующий элемент с молибденовым теплоотводом и толщиной поглотителя 15 нм обеспечивает наиболее высокое значение SNR при поглощении фотонов ближнего ИК диапазона с энергией 0.8 эВ. В данном параграфе рассмотрим характеристики детектирующего элемента PLM с толщинами слоев $d_1 = 15$ нм, $d_2 = d_3 = 10$ нм при поглощении фотонов с более высокой энергией: 1.65 эВ – граница видимой и ИК области, 3.1 эВ – ближняя ультрафиолетовая область и 7.1 эВ – далекий ультрафиолет. Характеристики детектирующего элемента PLM с такой геометрией представлены в табл. 5.

Можно видеть, что с увеличением энергии фотона параметры Δf и P_N уменьшаются, а P_S – увеличивается. В результате, с увеличением энергии увеличивается отношение мощности сигнала к мощности шума также, и для УФ фотонов мы имеем $SNR > 1$.

Табл.5. Значения параметров Δf , P_N , P_S и SNR детектирующего элемента PLM при разных энергиях поглощенного фотона

E , эВ	Δf , ГГц	P_N , нВт	P_S , нВт	SNR
0.8	1.61	8.54	1.45	0.17
1.65	1.41	7.99	5.38	0.67
3.1	1.27	7.59	17.2	2.26
7.1	1.13	7.14	79.8	11.2

4. Заключение

Исследована зависимость параметров трехслойных детектирующих элементов TSPD, состоящих из расположенных на сапфировой подложке платинового или молибденового теплоотвода, термоэлектрического сенсора из гексаборида лантана-церия и платинового поглотителя. Методом компьютерного моделирования изучены процессы распространения тепла в этих детектирующих элементах после поглощения фотонов с энергией 0.8–7.1 эВ. Изучены временные зависимости изменения температуры в различных участках детектирующего элемента и усредненной температуры поверхности слоев. Установлены закономерности распространения тепла, определена мощность шума и сигнала, а также отношение сигнала к шуму детектирующих элементов с различной толщиной поглотителя. Установлено, что SNR больше у детектирующих элементов с молибденовым теплоотводом. Полученные значения SNR позволяют заключить, что чувствительный элемент TSPD с платиновым поглотителем рассмотренной конструкции не может эффективно регистрировать фотоны ИК области, но может уверенно регистрировать фотоны УФ диапазона.

Авторы благодарны А.М. Гуляну за интерес к работе и полезные дискуссии.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по науке РА в рамках научного проекта №21Т-1С088 «Разработка сенсора термоэлектрического детектора ультрафиолетового излучения с учетом тепловых шумов».

ЛИТЕРАТУРА

1. F. Ceccarelli, G. Acconcia, A. Gulinatti, M. Ghioni, I. Rech, R. Osellame. Adv. Quantum Technol., **4**, 2000102 (2021).
2. H. Yokota, A. Fukasawa, M. Hirano, T. Ide. Appl. Sci., **11**, 2773 (2021).
3. K.D. Irwin. Scientific American, **295**, 86 (2006).
4. T. Yamashita, S. Miki, H. Terai, Z. Wang. Optics Express, **21**, 27177 (2013).
5. I.E. Zadeh, J. Chang, J.W.N. Los, S. Gyger, A.W. Elshaari, S. Steinhauer, S.N. Dorenbos, V. Zwiller, Appl. Phys. Lett., **118**, 190502 (2021).
6. C.H. Bennett, D. P. DiVincenzo. Nature, **404**, 247 (2000).
7. R.H. Hadfield. Nature Photonics, **3**, 696 (2009).
8. T. Yamashita, S. Miki, H. Terai. IEICE Transactions on Electronics, E100-C, 274 (2017).
9. D. Zhu, M. Colangelo, B.A. Korzh, Q-Y. Zhao, S. Frasca, A.E. Dane, A.E. Velasco, A.D. Beyer, J.P. Allmaras, E. Ramirez, W.J. Strickland, D.F. Santavicca, M.D. Shaw, K.K. Berggren. Appl. Phys. Lett., **114**, 042601 (2019).
10. N. Zen, A. Casaburi, S. Shiki, K. Suzuki, M. Ejrnaes, R. Cristiano, M. Ohkubo. Appl. Phys. Lett., **95**, 172508 (2009).
11. R. Sobolewski, A. Verevkin, G. Gol'Tsman, A. Lipatov, K. Wilsher. IEEE Trans. Appl. Supercond., **13**, 1151 (2003).
12. W. Guerin, A. Dussaux, M. Fouch, G. Labeyrie, J.-P. Rivet, D. Vernet, F. Vakili, R. Kaiser. Mon. Not. R. Astron. Soc., **472**, 4126 (2017).
13. G.G. Taylor, D. Morozov, N.R. Gemmell, K. Erotokritou, S. Miki, H. Terai, R.H. Hadfield. Opt. Express, **27**, 38147 (2019).
14. C. Schuck, W.H.P. Pernice, X. Ma, H. X. Tang. Appl. Phys. Lett., **102**, 191104 (2013).
15. S. Gyger, J. Zichi, L. Schweickert, A.W. Elshaari, S. Steinhauer, S.F.C. da Silva, A. Rastelli, V. Zwiller, K.D. Jöns, C. Errando-Herranz. Nat Commun, **12**, 1408 (2021).
16. E. Lomonte, M.A. Wolff, F. Beutel, S. Ferrari, C. Schuck, W.H.P. Pernice, F. Lenzini. Nat Commun, **12**, 6847 (2021).
17. Y. Dai, K. Jia, G. Zhu, H. Li, Y. Fei, Y. Gu, H. Yuan, H. Wang, X. Jia, Q. Zha, L. Kang, J. Chen, S-n. Zhu, P. Wu, Z. Xie, L. Zhang. PhotoniX, **4**, 7 (2023).
18. E.E. Wollman, V.B. Verma, A.E. Lita, W.H. Farr, M.D. Shaw, R.P. Mirin, S.W. Nam. Opt. Express, **27**, 35279 (2019).
19. A.N. Mc Caughan, Y. Zhai, B. Korzh, J.P. Allmaras, B.G. Oripov, M.D. Shaw, S.W. Nam. Appl. Phys. Lett., **121**, 102602 (2022).
20. Y. Dai, K. Jia, G. Zhu, H. Li, Y. Fei, Y. Gu, H. Yuan, H. Wang, X. Jia, Q. Zha, L. Kang, J. Chen, S-n. Zhu, P. Wu, Z. Xie, L. Zhang. PhotoniX , **4**, 7 (2023).
21. B.G. Oripov, D.S. Rampini, J. Allmaras, M.D. Shaw, S.W. Nam, B. Korzh, A.N. McCaughan. Nature, **622**, 730 (2023).
22. A. Gulian, K. Wood, D. Van Vechten, G. Fritz. J. Mod. Opt., **51**, 1467 (2004).
23. A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, A.S. Kuzanyan. J. Contemp. Phys., **53**, 73 (2018).
24. A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, A.S. Kuzanyan. IEEE Sens. J., **20**, 3040 (2020).
25. A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, A.S. Kuzanyan. IEEE Sens. J., **20**, 12776 (2020).
26. A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, N.G. Margiani, G.A. Mumladze, S.R. Harutyunyan, A.S. Kuzanyan. J. Contemp. Phys., **57**, 174 (2022).
27. A.A. Kuzanyan, A.S. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, V.T. Tatoyan, V.S. Kuzanyan, S.R. Harutyunyan, G.Ts. Kharatyan, G.R. Badalyan. J. Contemp. Phys., **58**, 155 (2023).
28. W.S.M. Werner, K. Glantschnig, C. Ambrosch-Draxl. J. Phys Chem Ref. Data, **38**, 1013 (2009).

29. **G.T. Furukawa, T.B. Douglas, R.E. McCoskey, D.C. Ginnings.** J. Research National Bureau Stand., **57**, 67 (1956).
30. **R. Berman, E. L. Foster and J. M. Ziman.** Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences, **231**, 130 (1955).
31. **P.D. Desai, T.K. Chu, H.M. James, C.Y. Ho.** J Phys.Chem.Ref. Data, **13**, 1069 (1984).
32. **A. Gulian, A.M. Gulian.** Mod. Phys. Lett. B, **34**, 2050403 (2020).
33. **K. Samwer, K. Winzer.** Z Physik B, **25**, 269 (1976).
34. **W. Duffy, S. Dalal, M. Quiazone.** J Appl. Phys., **81**, 6675 (1997).
35. **R.J. Corruccini, J.J. Gniewek.** National Bureau of Standards, **21**, 12 (1960).
36. https://www.efunda.com/materials/elements/TC_Table.cfm?Element_ID=Pt
37. **J.W. Arblaster.** Johnson Matthey Technology Review, **59**, 174 (2015).
38. **U. Dillner, E. Kessler, H.-G. Meyer.** J. Sens. Sens. Syst., **2**, 85 (2013).
39. **A.A. Kuzanyan, V.R. Nikoghosyan, A.S. Kuzanyan, S.R. Harutyunyan.** J Contemp. Phys., **58**, 305 (2023).

**ԶԵՐՄԱԼԵԿՏՐԻԿ ՍԻԱՖՈՏՈՆ ԴԵՏԵԿՏՈՐԻ
ՊԼԱՏԻՆ ՊԱՐՈՒԱԿՈՂ ԴԵՏԵԿՏՈՐ ՏԱՐՐ**

Ա.Ա. Կուզանյան, Վ.Ռ. Նիկոգհոսյան, Ա.Ս. Կուզանյան

Համակարգչային մոդելավորման միջոցով ուսումնասիրվել են ջերմության տարածման պրոցեսները միաֆուռոն ջերմաէլեկտրական դետեկտորի եռաշերտ դետեկտող տարրում, որը բաղկացած է կանիչից (Pt), ջերմաէլեկտրական տվյալից ($\text{La}_{0.99}\text{Ce}_{0.01}\text{B}_6$) և ջերմատարից (Pt, Mo): Ուսումնասիրվել է 0.8–7.1 էՎ (1550–175 նմ) էներգիայով ֆոտոնների կլանումը տարրեր հաստության կլանիչներում՝ ապահովելով կլանման բարձր արդյունավետություն: Մոդելավորումն իրականացվել է սահմանափակ ծավալից ջերմության տարածման հավասարումների հիման վրա: Ուսումնասիրվել են տվյալի վրա առաջացող ազդանշանի ժամանակային կախվածությունները: Որոշվել են ազդանշանի հզորությունը, աղմուկի համարժեք հզորությունը և ազդանշան-աղմուկ հարաբերակցությունը: Ցույց է տրվել, որ պլատինե կլանիչով դետեկտող տարրը կարող է հուսալիորեն գրանցել 3.1 էՎ-ից բարձր էներգիա ունեցող միակի ֆոտոններ:

PLATINUM-CONTAINING DETECTION PIXEL OF A THERMOELECTRIC SINGLE-PHOTON DETECTOR

A.A. KUZANYAN, V.R. NIKOGHOSYAN, A.S. KUZANYAN

Using computer simulation, the processes of heat propagation were studied and noise was determined in a three-layer detection pixel of a thermoelectric single-photon detector, consisting of an absorber (Pt), a thermoelectric sensor ($\text{La}_{0.99}\text{Ce}_{0.01}\text{B}_6$) and a heat sink (Pt, Mo). The absorption of photons with energies of 0.8–7.1 eV (1550–175 nm) in absorbers of various thicknesses, providing high absorption efficiency, was studied. The simulation was based on the heat propagation equations from a limited volume. The temporal dependencies of the signal appearing on the sensor were studied. Signal power, noise equivalent power, and signal-to-noise ratio were determined. It was shown that a detection pixel with a platinum absorber can reliably detect single photons with the energy higher than 3.1 eV.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.635–642 (2023)

УДК 621.396

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-635

ПРИМЕНЕНИЕ ДРОНА В ОБЛЕТНОМ МЕТОДЕ АНТЕННЫХ ИЗМЕРЕНИЙ РАДАРОВ УЛЬТРАКОРотКИХ ВОЛН МЕТРОВОГО ДИАПАЗОНА

М.В. МАРКОСЯН¹, В.Г. АВЕТИСЯН^{1,2}, А.К. АГАРОНЯН^{1,2},
А.Г. МАРТИРОСЯН¹, Э.А. АРУТЮНЯН¹, Г.З. СУГЯН^{1,2}, Р.А. ДАВТЯН¹

¹Ереванский НИИ средств связи, Ереван, Армения

²Российско–Армянский университет, Ереван, Армения

*e-mail: aharon.aharonyan@rau.am

(Поступила в редакцию 8 сентября 2023 г.)

Рассмотрено применение дрона в качестве летательного аппарата для реализации метода антенных измерений. Управление дрона осуществляется программно, посредством унифицированного радиоэлектронного оборудования, содержащего передатчик, полуволновой вибратор и GPS навигатор. Параметры направленных свойств антенной системы являются результатом программной обработки выходных сигналов приемника радара, синхронизированных с координатами точек траекторий полетов дрона.

1. Введение

В состав современных комплексов радиолокационных станций входят радары различных диапазонов волн, начиная метровыми и заканчивая диапазоном СВЧ. Столь широкий охват частотных диапазонов обусловлен стремительным развитием конструкторских и технологических разработок летающих объектов, направленных на минимизацию отражений от них. С этой точки зрения радары разных диапазонов дополняют друг друга и повышают надежность обнаружения и сопровождения летающих объектов. Радары ультракоротких волн (УКВ) метрового диапазона могут конкурировать с радарами диапазона СВЧ. Это обеспечение обнаружения летающих объектов на больших расстояниях и практическое отсутствие влияния атмосферных осадков на распространение метровых волн [1–3]. Радары УКВ уникальны по своим возможностям, так как представляют собой эффективное средство обнаружения и распознавания «самолетов-невидимок», разработанных с использованием технологии «Стелс». Однако такие радары имеют крупномасштабные антенные системы, размер D которых в горизонтальном направлении может составлять 20 м и более. Минимальное расстояние R_{\min}^{FZ} дальней зоны такой большой антенной системы, таких антенн равно [4]

$$R_{\min}^{FZ} = 2D^2/\lambda, \quad (1)$$

где $\lambda = (1–3)$ м — рабочая длина волны, а R_{\min}^{FZ} может составлять несколько сотен метров. При определении направленных свойств таких громоздких антенных

систем облетный метод антенных измерений становится чуть ли не единственным [5, 6]. Однако следует отметить, что облетный метод технически достаточно сложный и дорогостоящий процесс. Это связано, во-первых, с измерением положения измерительного летающего аппарата (ЛА) в пространстве, а во-вторых, с большой работой в направлении обработки результатов. Этот метод требует максимального уровня автоматизации всех этапов, от измерений до управления. С другой стороны, высокая стоимость оперативных измерений требует сокращения времени процесса измерения и использования в эксплуатации сравнительно более дешевых ЛА. С целью сокращения времени полета и, следовательно, стоимости измерений в работе [7] был предложен способ измерения направленных свойств антенн радаров УКВ с применением дрона вместо вертолета.

Целью настоящей работы является сравнительный анализ применения вертолета и дрона в облетном методе антенных измерений для определения направленных свойств антенных систем радаров УКВ, а также выявление преимуществ применения дрона и обоснование его применения в таких измерениях.

2. Применение дрона в облетном методе антенных измерений

При реализации облетного метода измерений вертолетом вместо самолета, хотя стоимость измерений и снижается, всегда возникают осложнения следующего характера. 1). Измерения следует проводить в месте расположения радара, поскольку характер профиля местности (неровности и угол наклона относительно горизонта) оказывают существенное влияние на формирование диаграммы направленности (ДН) антенной системы. 2). При проведении измерений, которые в зависимости от погодных условий могут занимать более суток, желательно исключить перелеты вертолета на место его основного базирования. 3). Наличие вертолета для измерений иногда осложняется административными проблемами. 4). Воздействие фюзеляжа и винта вертолета на ДН установленной на нем вспомогательной измерительной антенны. Это, в свою очередь, приводит к погрешностям определения направленных свойств испытуемой антенной системы радара. 5). При вертикальном медленном взлете и спуске вертолета, особенно при его зависании, режим работы вертолета является режимом перегруженного состояния его двигателя.

Альтернативой для устранения вышеизложенных осложнений является использование дрона в качестве ЛА [10]. Автоматически исключаются проблемы, связанные с пунктами 1–3. Относительно пункта 4 отметим следующее. Отсутствие в дроне значительных проводящих конструкций, приводящих к ощутимым изменениям характеристик направленности вспомогательной измерительной антенны, исключает необходимость в изготовлении и использовании контейнера, применяемого в случае использования вертолета. Далее, определение направленных свойств уже простой излучающей системы конфигурации «дрон–передатчик–вспомогательная измерительная антенна» предложенным в [11] методом на Земле может быть осуществлено значительно проще, дешевле и с более высокой точностью. По пункту 5 отметим, что режим двигателя вертолета все более затрудняется с увеличением высоты и вертикальный медленный взлет до высоты около 1000 м и такое же снижение – это тяжелая задача для вертолета, а тем более, его зависание на больших высотах. С этой точки зрения, дрон не имеет таких

проблем и он легко совершает вертикальный подъем на заданную в таких пределах высоту и даже легко зависает на такой высоте. Упомянутые возможности дрона создают положительный эффект сокращения времени антенных измерений, смысл которого прояснится в изложенных ниже программах полетов и измерений с помощью дрона.

Способ измерений дроном осуществляется в два этапа. Первый этап, на котором определяется ДН антенной решетки радара по углу места, состоит из трех подэтапов.

Первый подэтап заключается в том, что в передней вертикальной главной (перпендикулярной полотну антенной системы) четвертьплоскости в ее дальней зоне, на расстоянии $R \geq R_{\min}^{FR}$ от нее, дрон совершает вертикальный подъем на относительно большую высоту

$$H_{\max} \approx (1 \rightarrow 2)R_{\min}^{FR} \quad (2)$$

и затем снижается, что изображено на рис.1а.

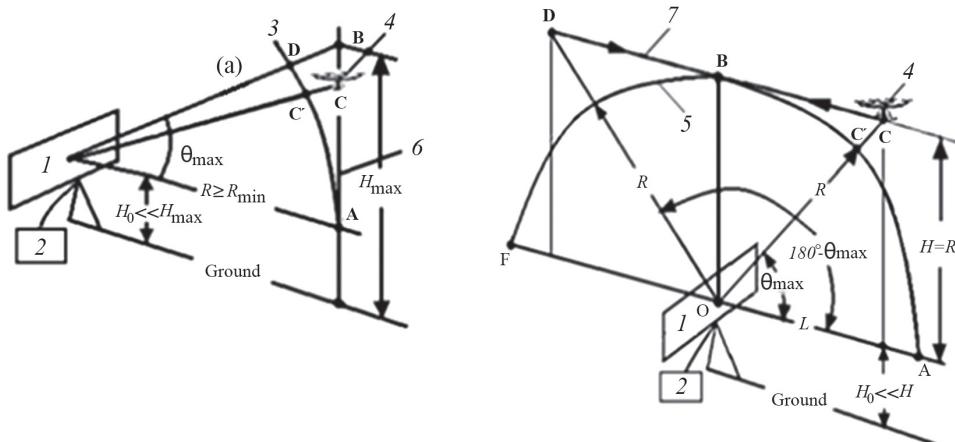


Рис.1. (а) Вертикальный и (б) горизонтальный полет дрона: 1 – полотно антенной системы радара, 2 – приемник радара, 3 – дуга окружности радиуса, 4 – дрон, 5 – полуокружность радиуса R , 6 – траектория вертикального полета дрона, 7 – траектория горизонтального полета дрона.

Во время полета производится регистрация измеренных выходных данных приемника радара для определения ДН по углу места. Максимальный угол θ_{\max} этого сектора определяется выражением

$$\theta_{\max} = \arctan \frac{H_{\max} - H_0}{R} \approx \arctan \frac{H_{\max}}{R} \quad (3)$$

с учетом того, что высота H_0 центра полотна антенны радара не превышает 10 м от поверхности Земли и $H_0 \ll H_{\max}$. На такой высоте $H_{\max} \approx (1 \rightarrow 2)R_{\min}^{FR}$ обеспечивается определение ДН антенной системы радара по углу места в достаточно большом угловом секторе от 0° до 40° – 60° . Это первое упомянутое выше положительное следствие.

Определение ДН по углу места на этом этапе осуществляется путем пересчета массива данных уровней мощности, поступивших на выход приемника радара. Полученный массив данных программно пересчитывается в массив

данных, соответствующий движению по воображаемой дуге АС'D радиального полета дрона. Для этого уровень мощности сигнала приемника, полученного с точки С дрона, умножается на обратную величину коэффициента ослабления сигнала на расстоянии СС' в свободном пространстве. Пересчитанный массив полученных данных в зависимости от угла места θ определяет ДН по углу места радара в угловом секторе от 0° до θ_{\max} . Момент регистрации уровня мощности выходного сигнала приемника радара привязывается к координатам точки нахождения дрона в полете. Привязка осуществляется синхронизацией времен начала работы компьютера, регистрирующего сигнал приемника радара, и GPS-навигатора на дроне. Далее выполняется та же программа полета дрона и та же программа пересчета массива данных сигнала, но с полетом дрона в задней вертикальной четверти плоскости антенной системы радара.

На третьем подэтапе определяется ДН по углу места в секторе $\theta_{\max} \dots (180^\circ - \theta_{\max})$ оставшихся углов места. Здесь еще раз отметим преимущество использования дрона. Поскольку дрон может спокойно совершать вертикальный большой набор высоты, а значит и большие значения θ_{\max} , то определяемый сектор $\theta_{\max} \dots (180^\circ - \theta_{\max})$ углов ДН сужается. Это позволяет производить измерения для этого сектора не путем многоэтажных горизонтальных полетов, как это делается при использовании вертолета, а в случае с дроном совершать полет только по одному горизонтальному этажу на высоте $R \geq R_{\min}^{FR}$. Следствием этого является сокращение времени измерений. Траектория горизонтального полета дрона для определения ДН по углу места в секторе углов $\theta_{\max} \dots (180^\circ - \theta_{\max})$ показана на рис.1б.

Координаты исходной точки С полета дрона определяются из следующих соображений. Высота Н точки С дрона равна

$$H = R, \quad (4)$$

где R больше минимального расстояния дальней зоны антенны, определяемого выражением (1). Горизонтальная координата L исходной точки С полета дрона равна

$$L = \frac{H}{\tan \theta_{\max}}. \quad (5)$$

Дрон летит из точки С к точке В и в течение этого полета регистрируются данные выходной мощности приемника радара. И снова сигнал, полученный из любой точки расположения дрона на горизонтальном участке, в частности, из точки С, программно пересчитывается, как это описано в предыдущих подэтапах. Аналогичным образом, с помощью GPS-навигатора на дроне, выходной сигнал приемника радара привязывается к координатам точки нахождения дрона во время полета. Таким образом определяется ДН антенной системы радара по углу места в угловом секторе $\theta_{\max} - 90^\circ$. Затем дрон достигнув точки D, разворачивается на 180° и совершает горизонтальный обратный полет до точки В, в ходе которого вышеописанным способом образом определяется ДН антенной системы радара по углу места в угловом секторе $(180^\circ - \theta_{\max}) - 90^\circ$. На этом завершается первый этап измерений, определяющий ДН антенной системы радара по углу места во всей верхней полуплоскости.

Второй этап процедуры измерений проводится с целью определения азимутальной ДН антенной системы радара. Для этого, после определения направлений $\beta^{(1)}, \beta^{(2)}, \dots, \beta^{(n)}$ максимумов лепестков угломестной ДН, измеряется горизонтальная (азимутальная) ДН в направлении этих максимумов, когда дрон зависает на соответствующих высотах $H^{(1)}, H^{(2)}, H^{(n)}; H^{(i)} = H_0 + R \tan \beta(i)$. При этом дрон остается подвешенным на выбранной высоте $H(i)$, а антенная система радара вращается на своем опорно-поворотном устройстве вокруг его вертикальной оси, как показано на рис.2.

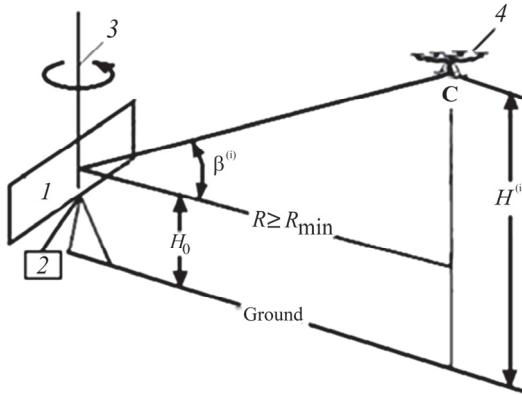


Рис.2. Измерение азимутальной ДН антенной системы радара: 1 – полотно антенной системы радара, 2 – приемник радара, 3 – ось вращения, 4 – дрон в зависшем состоянии.

3. Апробация оснащенного радиоэлектронным оборудованием дрона при облетном методе измерений

Для проверки действенности предложенной методики антенных измерений облетным методом и эффективности применения дрона в качестве ЛА, проводились измерения по определению ДН антенной решетки радара УКВ «Наири». Размеры полотна антенной решетки радара составляют $L_1 \times L_2 \approx (14 \times 4.5) \text{ м}^2$, а минимальное расстояние дальней зоны, согласно (1), равно $R_{\min} \approx 2L_1^2/\lambda \approx 2 \times 14^2/1.5 \approx 260 \text{ м}$ при условии, что рабочая длина волны равна $\lambda \approx 1.5 \text{ м}$. Для измерения ДН антенной решетки РЛС «Наири» был разработан комплекс радиотехнического оборудования, размещенный на дроне марки «TAROT» с 6-ю моторами. Дрон имеет следующие характеристики: дальность полета около 2 км, грузоподъемность около 3 кг, время полета около 30 мин, средняя скорость около 40 км/час. Размещенный на дроне комплекс радиотехнического оборудования состоял из малогабаритного передатчика размерами $90 \times 65 \times 40 \text{ мм}^3$, весом около 0.5 кг вместе с двумя плечами полуволнового вспомогательного измерительного вибратора и GPS навигатора. Передатчик на основе перстраиваемого синтезатора обеспечивает выходную мощность около 1 Вт в полосе частот $\Delta f = (35-200) \text{ МГц}$.

С помощью методики измерения слабонаправленных антенн [11] на соответ-

ствующем измерительном стенде были измерены ДН собранной воедино излучающей системы «дрон+передатчик+вспомогательный полуволновой вибратор+навигатор». Были выполнены измерения ДН в двух плоскостях излучающего полуволнового вибратора такой системы. Результаты подтвердили предположение о несущественных отличиях ДН этой воедино излучающей системы от ДН полуволнового вибратора в свободном пространстве в пределах углов нижней передней Н-четвертьплоскости и для углов в передней Е-полуплоскости.

На рис.3 пунктиром линией показаны *результаты измерений* азимутальных ДН антенной решетки при зависшем состоянии дрона на разных высотах и частотах при следующих параметрах (см. рис.1, 2) облетных измерений. Удаление R дрона от антенной решетки было выбрано $R \approx 400$ м согласно (1), $R = H$ согласно (4), $H_{\max} \approx 700$ м согласно (2), $\theta_{\max} \approx 60^\circ$ согласно (3), $L \approx 230$ м согласно (5).

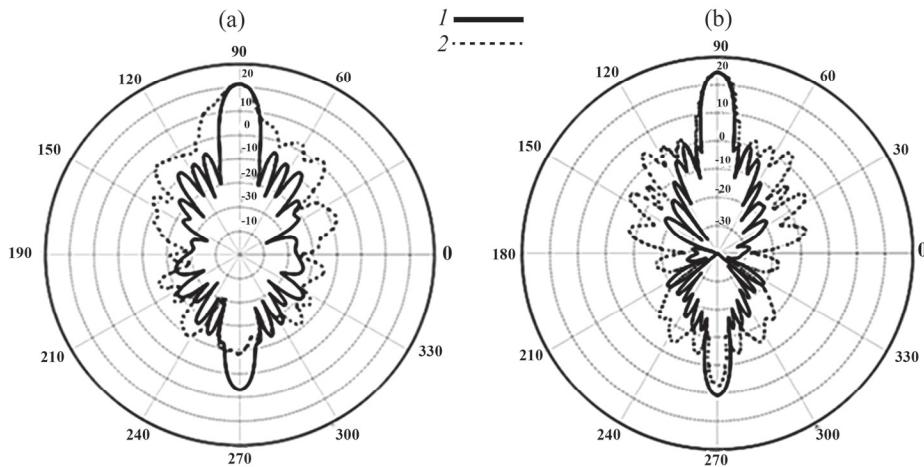


Рис.3. Измеренная азимутальная ДН антенной решетки при (а) зависшем состоянии дрона на высоте $H = 70$ м и на частоте 151 МГц и (б) на высоте $H = 50$ м и на частоте 176 МГц: 1 — результат моделирования, 2 — результат измерения.

На рис.4 пунктирной линией показаны результаты суммарных (по трем подэтапам) измерений ДН антенной решетки по углу места на разных частотах.

Сравнивались результаты измерений и моделирования антенной решетки в условиях отражения волн от поверхности Земли. Моделирование выполнено в программе Altair FEKO ®, а его результаты представлены на рис.3 и 4 сплошными линиями. Очевидно, что между этими результатами должна быть небольшая, но ощутимая разница из-за влияния корпуса несущей радар машины и опорно-поворотного устройства антенной решетки. Например, измеренная угловая ширина на уровне половинной мощности основного лепестка, изображенного на рис.3а, составляла 9° , тогда как результат моделирования был равен 8.3° . На рис.3б, соответствующие значения равны 7.5° и 6.8° . Эти сравнения подтверждают достоверность результатов измерений.

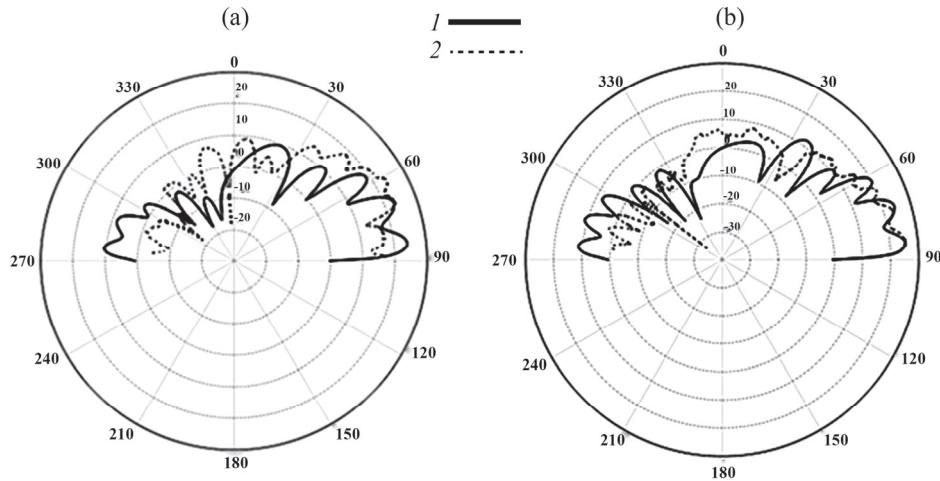


Рис.4. ДН антенной решетки по углу места на частоте (а) 151 МГц и (б) 176 МГц: 1 – результат моделирования, 2 – результат измерения.

4. Заключение

Проведен сравнительный анализ применения дрона в облетном методе антенных измерений для определения направленных свойств антенных систем радаров УКВ. Апробация применения оснащенного радиоэлектронным оборудованием дрона показывают и обосновывают преимущества применения дрона в таких измерениях. Они заключаются в следующем: повышается точность измерений; сокращается время измерений; исключаются всяского рода административные препоны; исключаются строительные подготовительные работы; повышается безопасность измерений из-за исключения в них участия летного персонала; исключаются расходы на оплату летного персонала и на топливный ресурс.

Итогом работы является решение вопросов технического, экономического и социального характеров.

Работа поддержана Госкомитетом по науке Республики Армения в рамках исследовательского проекта № 21DP-2B011.

ЛИТЕРАТУРА

1. М.П. Долуханов. Радиопропаганда радиоволн. Москва, Связь, 1972.
2. О.И. Яковлев, В.П. Якубов, В.П. Урядов, А.Г. Павельев. Распространение радиоволн. Москва, 2017.
3. A.S. Saakian. Radio Wave Propagation Fundamentals. Artech House, 2020.
4. А.М. Сомов, В.В. Старостин, Р.В. Кабетов. Антенно-фидерные устройства. Москва, Горячая линия, 2017.
5. IEEE Standard Test Procedures for Antennas. IEEE Std. 149, Published by IEEE Inc., 1979.
6. Д.И. Воскресенский, В.Л. Гостиухин, В.М. Максимов, Л.И. Пономарев. Устройства СВЧ и антенны. Москва, Радиотехника, 2006.
7. V.H. Avetisyan, M.V. Markosyan, A.A. Nikoghosyan, A.A. Sargsyan. Patent №2814A,

Armenia, G01R 29/00, 2014.

8. **H. Brueckman.** Electronics, **11**, 134 (1955).
9. **G.E. Barker.** IEEE Transaction on Antennas and Propagation, **AP-21**, 538 (1973).
10. **В.Г. Аветисян, М.В. Маркосян, А.Г. Мартиросян, А.К. Агаронян.** Бюллетень Высоких Технологий, №3, 30 (2020).
11. **В.Г. Аветисян, А.К. Агаронян, А.А. Саргсян.** Вестник ГИУА, №1, 78 (2014).

ԴՐՈՒՅԻ ԿԻՐԱՌՈՒՄԸ ՈՒԼՏՐԱԿԱՐՃ ՄԵՏՐԱՅԻՆ ԱԼԻՔՆԵՐԻ ՏԻՐՈՒՅԹԻ
ՈԱԴԱՐՆԵՐԻ ՇՐՋԱԴԻՐ ԵՂԱՆԱԿՈՎ ԱՏՏԵՆԱՅԻՆ ՉԱՓՈՒՄՆԵՐՈՒՄ

Մ.Վ. ՄԱՐԿՈՍՅԱՆ, Վ.Հ. ԱՎԵՏԻՍՅԱՆ, Ա.Կ. ԱՀԱՐՈՆՅԱՆ, Հ.Գ. ՄԱՐՏԻՐՈՍՅԱՆ,
Է.Ա. ՀԱՐՈՒՆՅԱՆ, Գ.Զ. ՍՈՒԳԻՅԱՆ, Ռ.Ա. ԴԱՎՏՅԱՆ

Անտենային չափումների այս եղանակի իրականացման համար առաջարկվում է օգտագործել դրոնը որպես թռչող սարք: Դրոնի թռիչքները ծրագրային կառավարվում են և այն համալրված է միասնականացված ռադիոէլեկտրոնային սարքավորմամբ, որը պարունակում է հաղորդիչ, կեսապահքային տատանակ և GPS նավագատոր: Անտենային համակարգի ուղղողվածության հատկությունների պարամետրերը ռադարային ընդունիչի ելքային ազդանշանների ծրագրային մշակման արդյունք են՝ որոնք համաժամանակացված են դրոնի թռիչքների հետագծերի կոորդինատների հետ:

APPLICATION OF A DRONE IN THE ON-SITE ANTENNA MEASUREMENTS OF THE RADAR OF AN ULTRASHORT METER WAVEBAND

M.V. MARKOSYAN, A.H. AVETISYAN, A.K. AHARONYAN, H.G. MARTIROSYAN,
E.A. HARUTYUNYAN, G.Z. SUGHYAN, R.A. DAVTYAN

The implementation of a drone as an aerial vehicle to realise the antenna measurement method is considered. The flights of the drone are programmatically controlled and it is equipped with a unified radio-electronic equipment containing a transmitter, a half-wave vibrator and a GPS navigator. The parameters of the directional properties of the antenna system are the result of software processing of the radar receiver output signals, which are synchronized with the coordinates of the points of the drone flight trajectories.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.643–651 (2023)

УДК 541.64

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-643

ВЗАЙМОДЕЙСТВИЕ СЫВОРОТОЧНОГО АЛЬБУМИНА С ЭРИТРОЗИНОМ В ПОД ВОЗДЕЙСТВИЕМ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ ВОЛН МИЛЛИМЕТРОВОГО ДИАПАЗОНА

М.А. ПАРСАДАНЯН*, М.А. ШАГИНЯН, С.В. ГРИГОРЯН, М.С. МИКАЕЛЯН
Г.А. ПОГОСЯН, В.П. КАЛАНТАРЯН, П.О. ВАРДЕВАНЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: marine.parsadanyan@ysu.am

(Поступила в редакцию 17 июля 2023 г.)

Исследовано взаимодействие пищевого консерванта и красителя эритроцина В с бычьим сывороточным альбумином (БСА) под воздействием электромагнитных волн миллиметрового диапазона (ММ ЭМВ) с частотами 41.8 и 51.8 ГГц методом УФ-денатурации, а также спектроскопическими (поглощение, флуоресценция, круговой дихроизм (КД)) методами. Показано, что облучение ММ ЭМВ частотой 51.8 ГГц приводит к стабилизации комплекса БСА-эритроцин В. В то же время, параметры денатурации комплекса при облучении раствора БСА с частотой 41.8 ГГц, в пределах ошибки, не отличаются от таковых, полученных для необлученных образцов. Показано также, что под влиянием облучения частотой 51.8 ГГц, изменения конформации БСА не обнаруживаются, в то время как в случае комплекса БСА-эритроцин В имеет место изменение конформации. При этом процесс комплексообразования является термодинамически выгодным и под влиянием ММ ЭМВ реализуется за счет дополнительных водородных связей и ван-дер-ваальсовых взаимодействий между БСА и эритроцином В.

1. Введение

Белки являются важной составляющей в процессе жизнедеятельности клетки, при этом, в большинстве случаев они становятся мишениями для разнообразных лекарственных препаратов и различных химических веществ, поступающих в организм тем или иным способом. Среди многочисленных белков особое место занимают сывороточные альбумины, которые являются основными растворимыми белками в плазме крови. Альбумины также вызывают большой интерес, благодаря их способности обратимо связываться с различными высоко- и низкомолекулярными веществами, которые они переносят по циркуляторной системе. Среди таких веществ могут быть и лекарственные препараты, и пищевые добавки, такие, как красители, консерванты и т.д. [1–4].

Одним из известных пищевых красителей и биодобавок является эритроцин В, который имеет красный цвет и широко используется в промышленности. Эритроцин (тетра-индо-флуоресцеин, динатриевая соль 3,6-дигидрокси-2,4,5,7-тетраиод-9-(2-карбоксифенил) ксантина) является органическим веществом с химической формулой $C_{20}H_6I_4Na_2O_5$ (структура приводится на рис. 1) и производной

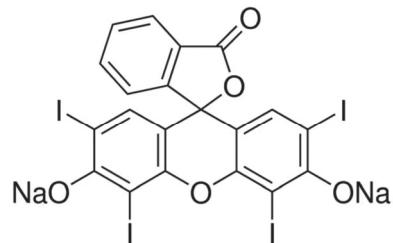


Рис.1. Химическая структура эритрозина В.

флуоресцина. Использование этого вещества в пище в США не запрещено, в то время как в РФ не разрешено [5–7]. Эритрозин В растворяется в воде и имеет высокую фосфоресценцию [7]. Это вещество влияет на выделение и поглощение нейротрансмиттеров и приводит к хромосомным аберрациям при наличии экзогенной метаболической активации [8, 9]. При попадании в организм эритрозин прежде всего взаимодействует с альбумином как транспортный белок, поэтому интересно изучить, будет ли подвергаться конформационным изменениям альбумин при взаимодействии с эритрозином [5–9].

Электромагнитные волны миллиметрового диапазона (ММ ЭМВ) (30–300 ГГц или 1–10 мм) на сегодняшний день являются важным физическим фактором антропогенного происхождения, поскольку их естественный фон на Земле невелик. По этой причине живые системы не обладают серьезными адаптационными средствами к этому фактору, который, в свою очередь, действует на живые объекты, находящиеся на любом уровне организации [10–12]. По сей день существует небольшое количество работ, посвященных влиянию ММ ЭМВ на биологические системы, находившиеся на различном уровне организации. Целью настоящей работы является выявление конформационных изменений комплексов вышеотмеченного лиганда с альбумином под влиянием электромагнитных волн миллиметрового диапазона. В работе проводится модельное исследование особенностей взаимодействия эритрозина В с БСА под воздействием ММ ЭМВ с частотами 41.8 и 51.8 ГГц.

2. Материалы и методы исследований

В экспериментах использованы 1% раствор БСА, эритрозин В («Sigma», США), физиологический раствор. Все препараты использованы без дополнительной очистки. Концентрацию эритрозина В определяли спектрофотометрически, с использованием коэффициента экстинкции $\varepsilon_{535} = 107000 \text{ M}^{-1}\text{cm}^{-1}$. Измерения проводились в терmostатируемых ячейках, с использованием кварцевых кювет с длиной оптического пути 1 см, объемом 3 мл и герметически закрывающимися крышками. Статистическая обработка данных произведена с помощью t-критерия Стьюдента.

Облучение растворов БСА проведено генератором Г4-141 («Исток», Фрязино, РФ) с рабочим интервалом частот 37.5–53.5 ГГц и плотностью потока мощности $\approx 5 \text{ мкВт}/\text{см}^2$ при мощности на выходе 8 мВт. Данное значение плотности потока мощности регистрировали на месте расположения образца. Мощность генератора на выходе измеряли термисторной головкой М5-49 и ваттметром М3-

10А («Исток», Фрязино, РФ). Частоту выходного сигнала контролировали волномером СН2-25 («Исток», Фрязино, РФ). Частота стабильности генератора в постоянном волновом режиме была равна ± 15 МГц. Облучение растворов образцов проводилось в дальней зоне пирамидальной антенны с апертурой 32×32 мм на расстоянии 250 мм от излучающей плоскости антенны. Электромагнитное поле было гомогенным. Образец облучали со стороны верхней части стеклянного контейнера с диаметром 6 см, где толщина раствора составляла 1 мм, что позволяло лучам полностью проникать в объем раствора. Облучение образца проводилось в чашках Петри, покрытых тонкой проницаемой оболочкой, что препятствует испарению воды в процессе облучения. Удельная скорость поглощения (SAR), рассчитанная по методу, описанному в работе [13], равняется 20 мкВт/кг, что делает невозможным любой термический эффект. С другой стороны, ложно-облучались контрольные растворы, с которыми сравнивали облученные образцы. С целью получения ложно-облученных контрольных образцов готовились растворы, которые находились в зоне облучения в течение 1-ого часа, при этом, генератор был включен, но выходная мощность приравнивалась нулю. Облучения проводились частотами 41.8 и 51.8 ГГц. Данный выбор обусловлен тем, что частоты 41.8–42.2 ГГц значительно воздействуют на биологические системы [14], а частота 51.8 ГГц является резонансной частотой для молекулярной структуры воды [15].

Исследования проводились методами УФ-денатурации, флуоресцентной и КД спектроскопии. Облученные и ложно-облученные (необлученные) комплексы БСА с эритрозином В помещались в ячейки UV–VIS спектрофотометра Perkin Elmer Lambda 365 (США) и температуру растворов повышали в кюветах с помощью устройства, контролирующего температуру до 90°C со скоростью повышения 0.5°C/мин. Комплексы приготовляли, добавляя к раствору эритрозина В облученные и необлученные растворы БСА. Концентрационное соотношение эритрозин/БСА комплексов равно 1/10. Термическая денатурация начиналась от 50°C и продолжалась до 90°C. При каждом шаге (через каждую минуту) значения температуры и соответствующей абсорбции фиксировались на ПК. Значения поглощений фиксировали при длине волны $\lambda = 280$ нм. После получения всех данных, были построены кривые денатурации – зависимости степени денатурации ($1 - \theta$) от температуры T . Методология построения кривых денатурации описана в работе [16]. Из кривых денатурации определены параметры денатурации – температура денатурации T_m и ширина интервала денатурации ΔT . По изменениям этих значений можно судить о вариациях термостабильности комплексов.

Из кривых поглощения рассчитаны параметры связывания – константа связывания (K) и число мест связывания с лигандом (n). Параметры связывания рассчитаны согласно уравнению Скетчарда:

$$\frac{1}{C_{\text{free}}} \times \frac{C_{\text{bound}}}{C_{\text{BSA}}} = nK - K \frac{C_{\text{bound}}}{C_{\text{BSA}}}, \quad (1)$$

где C_{bound} и C_{free} являются концентрациями связанного и свободного красителя соответственно, C_{BSA} – полная концентрация белка, K – константа связывания и n число мест связывания. Концентрации свободного и связанного красителя рассчитаны с помощью максимального поглощения при фиксированной длине волны.

Флуоресцентные измерения были проведены на спектрофлуориметре Cary

Eclipse (Австралия). Возбуждение образца проведено при длине волны 535 нм. Спектры флуоресценции регистрировались в интервале $520 \leq \lambda \leq 700$ нм. После регистрации спектра флуоресценции чистого лиганда его раствор титровали необлученным и облученным растворами БСА, при концентрационных соотношениях лиганд/БСА = 1/2–1/10. Термодинамические параметры рассчитаны по следующим уравнениям:

$$\ln K_{SV} = -\frac{\Delta H^0}{RT} + \frac{\Delta S^0}{R}. \quad (2)$$

Из уравнения (2) получены значения ΔH^0 и ΔS^0 , а значение ΔG^0 рассчитано из следующих уравнений:

$$\Delta G^0 = \Delta H^0 - T\Delta S^0, \quad (3)$$

$$\Delta G^0 = -RT \ln K_{SV}. \quad (4)$$

Измерения кругового диахроизма (КД) проведены на спектрофотометре OlisTM DSM20 КД (США). Спектры КД растворов БСА регистрировали в интервале $200 \leq \lambda \leq 350$ нм. После регистрации спектров раствора, облученного и необлученного БСА раствор белка титровали раствором эритрозина В. Концентрационное соотношение лиганд/БСА варьировало от 1/10 до 1/2.

3. Результаты и их обсуждение

На рис.2 приведены кривые денатурации комплексов БСА с эритрозином В, и как видно, по сравнению с необлученным комплексом, облучение раствора БСА приводит к стабилизации всего комплекса, что отражается сдвигом кривой денатурации к более высоким температурам. При этом следует отметить, что при облучении белка частотой 41.8 ГГц сдвиг температуры денатурации (T_m) небольшой и составляет около 1°C, в то время как при облучении частотой 51.8 ГГц (резонансной для воды частотой) разница температур денатурации составляет около 3°C. В табл.1 приведены значения параметров денатурации – температуры денатурации и ширины интервала денатурации (ΔT). Из данных, приведенных в табл.1, выявляется, что значение ширины интервала денатурации при облучении комплекса частотой 41.8 ГГц практически не меняется, по сравнению с таковой без облучения. При облучении же комплекса БСА-эритрозин В частотой 51.8

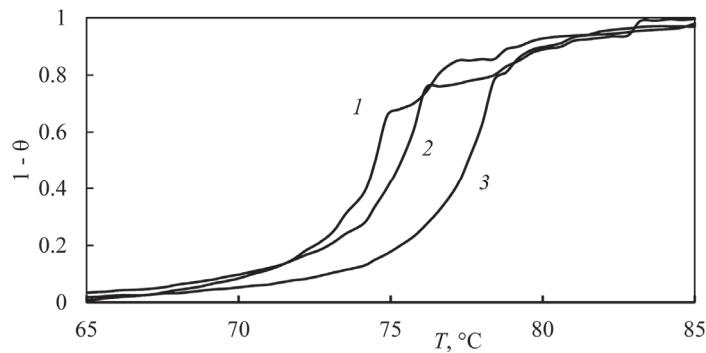


Рис.2. Кривые денатурации комплексов БСА-эритрозин В без облучения ММ ЭМВ (1), при облучении ММ ЭМВ частотой 41.8 ГГц (2) и при облучении ММ ЭМВ частотой 51.8 ГГц (3).

Табл.1. Значения параметров денатурации комплексов БСА-эритрозин В при облучении ММ ЭМВ и без облучения

	БСА-эритрозин В	БСА-эритрозин В, частота 41.8 ГГц	БСА-эритрозин В, частота 51.8 ГГц
T_m (°C)	74.5 ± 0.5	75.3 ± 0.5	77.5 ± 0.4
ΔT (°C)	6.6 ± 0.1	6.5 ± 0.2	7.1 ± 0.1

ГГц, значение ΔT увеличивается почти на 4°C градуса. Это свидетельствует о том, что облучение частотой 51.8 ГГц приводит к большей стабилизации комплекса БСА-эритрозин В и соответственно обе параметры денатурации повышаются.

Проведены также исследования поглощения методом абсорбционной спектроскопии. Поскольку из кривых денатурации выявлено, что облучение ММ ЭМВ частотой 41.8 ГГц не приводит ко значительным изменениям, то далее частота 41.8 ГГц не рассматривается (при всех методах исследования). Получены спектры поглощения при титровании раствора эритрозина В раствором облученного (рис.3а) и необлученного БСА (рис.3б).

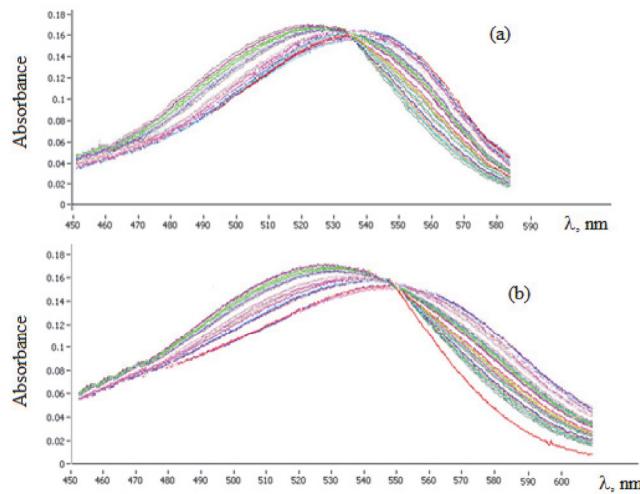


Рис.3. Спектры поглощения эритрозина В при добавлении раствора (а) облученного БСА и (б) необлученного БСА.

Как видно из приведенного рисунка, при взаимодействии эритрозина В с БСА на спектрах поглощения появляется изобестическая точка, что свидетельствует о том, что эритрозин В находится в двух состояниях – свободном и связанным [6]. При титровании раствора эритрозина В раствором необлученного БСА, спектры поглощения сдвигаются в длинноволновую область, при этом, максимум поглощения чистого эритрозина В регистрируется при длине волны 527 нм, а связанного – при 538 нм. При этом, максимумы поглощения в ходе титрирования уменьшаются. При облучении же раствора БСА ММ ЭМВ частотой 51.8 ГГц наблюдается сдвиг максимума спектров поглощения в длинноволновую область до 549 нм. В данном случае максимумы спектров поглощения понижаются больше, по сравнению с необлученным образцом.

Табл.2. Значения параметров связывания эритрозина В с БСА без облучения и под воздействием облучения ММ ЭМВ частотой 51.8 ГГц

	$K, M^{-1}, \times 10^5$	n
БСА-эритрозин В	3.2 ± 0.1	5
БСА-эритрозин В с облучением	4.2 ± 0.2	6

В табл.2 приведены значения константы связывания и мест связывания без облучения и под влиянием облучения ММ ЭМВ. Из данных, представленных в табл.2 видно, что сродство эритрозина В с БСА достаточно велико, при этом, облучение ММ ЭМВ частотой 51.8 ГГц приводит к увеличению значения данного параметра. Однако следует отметить, что в работах [5, 6] рассчитаны значения этого параметра и имеет место некоторый диссонанс. В работе [17] выявлены два способа связывания эритрозина В с БСА. Спектры поглощения эритрозина В при добавлении раствора (а) облученного БСА и (б) необлученного БСА.

Для подтверждения высказанного, проведены также исследования по методу флуоресцентной спектроскопии. Получены спектры флуоресценции (спектры флуоресценции не приводятся), на основании которых построены кривые Штерна–Вольмера (рис.4) и определено значение K_{SV} (табл.3). Из значений K_{SV}

Табл.3. Значения коэффициента Штерна–Вольмера

	БСА-эритрозин В, л/моль, $\times 10^3$	БСА-эритрозин В при облучении частотой 51.8 ГГц, л/моль, $\times 10^3$
25°C	8.7	9.0
35°C	4.9	5.1
45°C	2.7	3.2

становится очевидным, что облучение ММ ЭМВ частотой 51.8 ГГц приводит к возрастанию этого параметра, что свидетельствует о том, что интенсивность флуоресценции эритрозина В уменьшается при взаимодействии с БСА. При облучении раствора БСА уменьшение интенсивности флуоресценции больше, как это

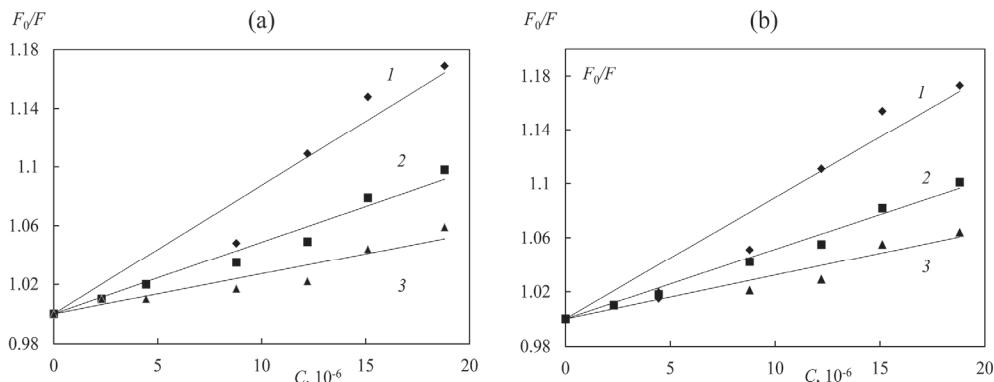


Рис.4. Кривые Штерна–Вольмера при температурах 1 – 25°C, 2 – 35°C и кривая 3 – 45°C. Кривые соответствуют (а) образцу без облучения ММ ЭМВ и (б) – влиянию облучения ММ ЭМВ частотой 51.8 ГГц.

видно из значения K_{SV} . Кривые Штерна–Вольмера построены при трех температурах, чтобы, во-первых, определить термодинамические параметры и, во-вторых, убедиться, что образуется комплекс, т.е. тушение статическое. Термодинамические параметры рассчитаны как в [2]. На основании полученных данных, приведенных в табл.3, построены кривые зависимости $\ln K_{SV}$ от $1/T$ (рис.5, кривые 1 и 2).

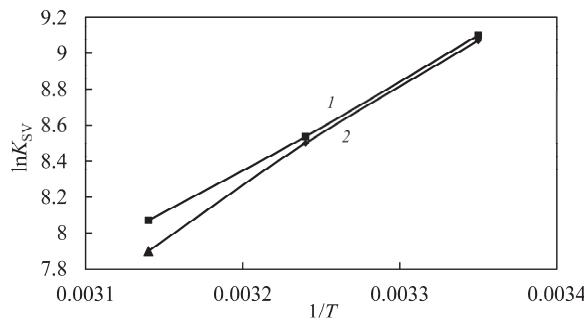


Рис.5. Зависимости $\ln K_{SV}$ от $1/T$: кривая 1 соответствует образцу без облучения, а кривая 2 – влиянию облучения ММ ЭМВ частотой 51.8 ГГц.

Значения термодинамических параметров обобщены в табл.4, которые свидетельствуют о том, что изменение энталпии – ΔH^0 отрицательное при облучении ММ ЭМВ частотой 51.8 ГГц, что означает, что возможно образуются и возникают дополнительные водородные связи и ван-дер-ваальсовые взаимодействия между БСА и эритрозином В, вследствие облучения ММ ЭМВ. С другой стороны, значения изменений ΔS^0 почти не меняются. Изменение свободной энергии Гиббса – ΔG^0 отрицательное и в отсутствие и в присутствии ММ ЭМВ. Последний факт свидетельствует о том, что комплексообразование термодинамически выгодный процесс.

Табл.4. Значения термодинамических параметров комплексов БСА-эритрозин В без облучения и под влиянием облучения ММ ЭМВ, частотой 51.8 ГГц

	БСА-эритрозин В	БСА-эритрозин В с облучением
ΔH^0 , кДж/моль	-46.3	-40.75
ΔG^0 , кДж/моль	-21.7	-21.92
ΔS^0 , Дж/(мольК)	-79.8	-79.9

Для того, чтобы выявить, происходят ли конформационные изменения молекулы БСА при облучении ММ ЭМВ частотой 51.8 ГГц, проведены исследования методом КД спектроскопии (рис.6). Как видно из приведенного рисунка в случае отсутствия облучения спектры КД совпадают, что свидетельствует о том, что эритрозин В взаимодействует с БСА практически без конформационных изменений БСА, в то время как под влиянием облучения ММ ЭМВ частотой 51.8 ГГц спектр КД комплекса БСА-эритрозин В изменяется. Мы полагаем, что если само облучение не меняет конформацию БСА (рис.6а, кривая 1), то связывание эритрозина В с облученным БСА ММ ЭМВ приводит к конформационному изменению белка.

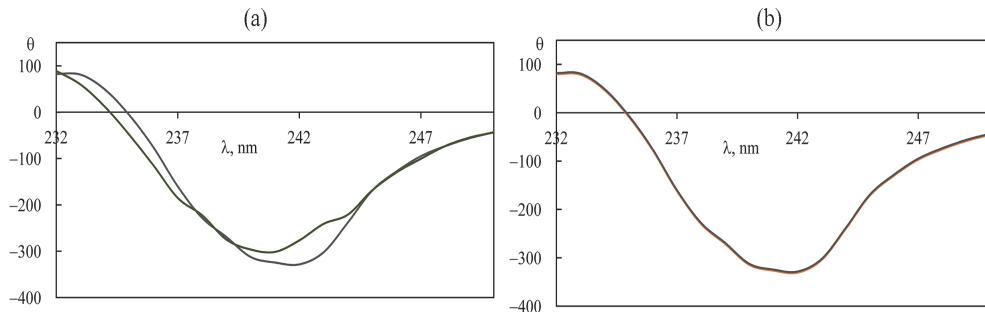


Рис.6. Спектры КД БСА (кривая 1) и комплекса БСА-эритрозин В (кривая 2) при концентрационном соотношении лиганд/БСА – 1/2: (а) облученный БСА с эритрозином В с частотой 51.8 ГГц и (б) спектры КД необлученного БСА и его комплекса с эритрозином В.

4. Заключение

Таким образом, на основании полученных данных можно заключить, что облучение ММ ЭМВ резонансной для молекулярной структуры воды частотой 51.8 ГГц приводит к тому, что комплекс БСА-эритрозин В стабилизируется, что сопровождается конформационными изменениями комплекса. Исследования методом УФ-денатурации показывают, что облучение ММ ЭМВ приводит к стабилизации комплекса БСА-эритрозин В, однако, параметры денатурации при облучении раствора БСА частотой 41.8 ГГц в пределах ошибки не отличаются от таковых без облучения. Это дает основание полагать, что значительному изменению подвергаются параметры денатурации комплекса при облучении раствора БСА частотой 51.8 ГГц. Из значений констант связывания также выявляется, что БСА связывается с эритрозином В с большим сродством, поскольку значение константы связывания возрастает в результате облучения частотой 51.8 ГГц. Флуоресцентные исследования показывают, что процесс связывания БСА с эритрозином В является термодинамически выгодным, при этом, облучение ММ ЭМВ с частотой 51.8 ГГц приводит к образованию и возникновению дополнительных водородных и ван-дер-ваальсовых взаимодействий. Спектры КД свидетельствуют о том, что облучение БСА частотой 51.8 ГГц не влияет на конформацию белка. Этот результат находится в соответствии с нашими предыдущими данными, поскольку резонансная для воды частота влияет на структуру белка опосредовано, через воду [10]. При этом, облучение приводит к конформационным изменениям белка только в комплексе с эритрозином В.

ЛИТЕРАТУРА

1. Z.-Y. Tian, L.-N. Song, Y. Zhao, F.-L. Zang, Z.-H. Zhao, N.-H. Chen, X.-J. Xu, C.-J. Wang. *Molecules*, **20**, 16491 (2015).
2. P.O. Vardevanyan, M.A. Shahinyan, N.H. Petrosyan, Y.S. Mamasakhlisov. *J. Cont. Physics (Arm Acad Sci)*, **56**, 60 (2021).
3. S. Roy. *J Pharmacology Toxicological Studies*, **4**, 7 (2016).
4. G. Zhang, L. Wang, J. Pan. *Agric Food Chem.*, **60**, 2721 (2012).

5. L. Ganesan, P. Buchwald. J. Mol. Recognit., **26**, 181 (2013).
6. N.V. Sablin, M.A. Gerasimova, E.V. Nemtseva. Russ. Phys. J., **58**, 1797 (2016).
7. L.C. Pravinata, Y. You, R.D. Ludescher. Biophysical J., **88**, 3551 (2005).
8. V.M.K. Mathavan, B.K. Boh, S. Tayyab. Ind. J. Biochem. Biophys., **46**, 325 (2009).
9. M. Hagivara, E. Watanabe, J.C. Barrett, T. Tsutsui. Mut Res, **603**, 111 (2006).
10. M.A. Shahinyan, A.P. Antonyan, V.P. Kalantaryan, M.S. Mikaelyan, P.O. Vardevanyan. J. Electromagnetic Waves Applications, **33**, 2317 (2019).
11. P.O. Vardevanyan, M.A. Shahinyan, M.A. Parsadanyan, S.V. Grigoryan, V.P. Kalantaryan. J. Cont. Physics (Arm Acad Sci), **58**, 198 (2023).
12. V. Kalantaryan, R. Martirosyan, Y. Babayan, V. Petrosyan. Comp. Struct. Biotech. J., **21**, 3437 (2023).
13. A.B. Gapeyev, E.N. Mikhalik, N.K. Chemeris. Bioelectromagnetics, **29**, 197 (2008).
14. Y.G. Shchekorbatov, N.N. Grigoryeva, V.G. Shakhbazov, V.A. Grabina, A.M. Bogoslavsky. Bioelectromagnetics, **19**, 414 (1998).
15. P.O. Vardevanyan, M.A. Shahinyan, A.V. Vardanyan, S.V. Grigoryan. Proc The YSU: Chem Biol Sci., **55**, 136 (2021).
16. M.A. Shahinyan, A.P. Antonyan, M.S. Mikaelyan, P.O. Vardevanyan. Biophys. Rev. Lett., **10**, 201 (2015).
17. Y. Zhang, H. Gerner. J. Photochem. Photobiol., **85**, 677 (2009).

INTERACTION OF SERUM ALBUMIN WITH ERYTHROSCINE B UNDER THE EFFECT OF MILLIMETER RANGE ELECTROMAGNETIC WAVES

M.A. PARSAKANYAN, M.A. SHAHINYAN, S.V. GRIGORYAN, M.S. MIKAELYAN,
G.H. POGHOSYAN, V.P. KALANTARYAN, P.O. VAREDEVANYAN

The interaction of food conservator and dye erythrosine B with bovine serum albumin (BSA) under the effect of millimeter range electromagnetic waves (MM EMW) with frequencies 41.8 and 51.8 GHz has been studied by the UV-denaturation and spectroscopic (absorption, fluorescence, CD) methods. It was shown that the irradiation by MM EMW with the frequency 51.8 GHz results in stabilization of the complex BSA-erythrosine B. At the same time, denaturation parameters of the complex at the irradiation of BSA solution with the frequency 41.8 GHz, in error framework, do not differ from those, obtained for non-irradiated samples. It was also revealed that under the effect of the irradiation by 51.8 GHz frequency there is no conformational change of BSA, while in the case of the complex BSA-erythrosine B a change of the protein conformation takes place. Though, the complex-formation process is thermodynamically beneficial and implemented due to the additional hydrogen bonds and van-der-Waals interaction between BSA and erythrosine B under the effect of MM EMW.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.652–659 (2023)

УДК 535.44

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-652

ПОВЫШЕНИЕ КАЧЕСТВА РЕНТГЕНОВСКИХ ИЗОБРАЖЕНИЙ, ФОРМИРУЕМЫХ ДИФРАКЦИОННОЙ ЛИНЗОЙ ИЗ ДВУХБЛОЧНОЙ КРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ СИСТЕМЫ

Л.А. АРУТЮНЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

e-mail: levhar@ysu.am

(Поступила в редакцию 4 декабря 2023 г.)

Рассмотрена возможность улучшения качества рентгеновских изображений, сформированных с помощью дифракции на двухблочной кристаллической системе. Показано, что низкая пространственная когерентность исходного излучения повышает качество изображения. В качестве источников подобного излучения можно использовать стандартные широкофокусные рентгеновские трубы. Методом численного моделирования рассмотрена целесообразность применения сканирующей схемы для уменьшения уровня фона в сформированном изображении.

1. Введение

Еще в 70-х годах прошлого столетия был предложен способ дифракционной фокусировки жесткого рентгеновского излучения [1], основанный на последовательной брэгговской дифракции рентгеновских лучей на блоках двухблочной кристаллической системы. Узкий рентгеновский пучок под брэгговским направлением падает на первый блок двухблочной кристаллической системы с параллельными и равнотолщинными блоками, вырезанными согласно симметричному отражению Лауэ. Дифрагированные лучи в первом блоке распространяются веером с угловой расходимостью $2\theta_B$ (θ_B – угол Брэгга), заполняя треугольник Бормана [2]. Отраженный от первого блока широкий рентгеновский пучок падает на второй. Часть лучей продолжает расходится и во втором блоке, образуя фон, а другая часть – сходится, фокусируясь на выходной поверхности второго блока. При характеристическом излучении MoK α полуширина фокуса составляет 1.5 мкм для отражения Si(220) и 1.1 мкм – для Si(111). В работе [3] представлено экспериментальное подтверждение предсказанной дифракционной фокусировки, а в [4] – экспериментально реализовано формирование изображения с использованием излучения от широкофокусной рентгеновской трубы. В работе [5] предложен и экспериментально реализован компактный спектрометр на основе указанной фокусировки. Работа [6] посвящена более детальному исследованию дифракционной фокусировки. В частности, исследована зависимость характеристик фокусировки от различных отклонений реальной экспериментальной установки от идеальной (разность толщин кристаллических блоков, смещение падаю-

щего пучка от точного брэгговского направления, конечная ширина падающего пучка и так далее). В работе [7] рассмотрены особенности указанной фокусировки с учетом дифракционных явлений в вакууме как до, так и после двухблочной кристаллической системы, а также в межблочной щели. В работе [8] предлагается использовать указанную дифракционную фокусировку в рентгеновской голографии для «снятия» дифракционного расширения в предметной волне при дифракции на анализаторе трехблочного лаузевского интерферометра [9].

Настоящая работа посвящена задаче передачи рентгеновского изображения от входной поверхности первой кристаллической пластины к выходной поверхности второй с использованием представленной выше дифракционной фокусировки узкого пучка. Целью настоящей работы является исследование возможностей повышения качества передачи изображения. Методом численного моделирования оценено влияние когерентности исходного излучения на качество сформированного изображения, а также целесообразность применения схемы со сканированием.

2. Формирование изображения на основе дифракции на двухблочной кристаллической системе

Упомянутый выше способ дифракционной фокусировки существенно отличается от общепринятых способов фокусировки (фокусировки с помощью рефракционных линз, сферических зеркал и т. д.) наличием мощного фона. Хотя при падающем узком пучке отношение интенсивностей сигнал–фон порядка 10^2 [1], потоки энергий сигнала и фона одного порядка. Это объяснимо соображениями геометрической оптики дифракции рентгеновских лучей в кристаллах [2]. Дважды отраженное рентгеновское поле во втором кристаллическом блоке можно представить суммой четырех волновых пакетов – $E_{i,j}$, ($i=1,2; j=1,2$), где через i и j обозначены номера ветвей дисперсионных поверхностей, соответствующих распространению волновых пакетов в первом и втором кристаллическом блоке, соответственно. Волновые пакеты $E_{1,2}$ и $E_{2,1}$ (пакеты – претерпевшие межветвевое рассеяние) после расхождения в первом блоке расходятся во втором, образуя фокусное пятно на выходной поверхности с полушириной $\Delta \ln 2$ [6]. Здесь $\Delta = (\Lambda/\pi) \tan \theta_B$, $\Lambda = \lambda \cos \theta_B / \chi$ – экстинкционная длина, λ – длина волны рентгеновского излучения, $\chi = \sqrt{\chi_h \chi_{\bar{h}}} C$, χ_h и $\chi_{\bar{h}}$ – Фурье-компоненты поляризуемости кристалла по вектору брэгговской дифракции (\mathbf{h}) и противоположному вектору ($-\mathbf{h}$), соответственно (рассматривается центросимметричный кристалл с пренебрегаемым поглощением, так что χ – реальная величина). Пакеты $E_{1,1}$ и $E_{2,2}$ (пакеты – не претерпевшие межветвевое рассеяние) продолжают расходиться и во втором блоке, образуя фон шириной $4t \tan \theta_B$, где t – толщина одной кристаллической пластины. В приложении 1 проведена оценка отношения энергетических потоков фокусирующихся ($E_{1,2} + E_{2,1}$) и расходящихся ($E_{1,1} + E_{2,2}$) полей для непоглощающего кристалла при падающей δ -волне и условии $4\pi t / \Lambda \gg 1$. Согласно проведенным расчетам, это отношение близко к двум, в отличие от случая обычных преломляющих линз, где оно намного превышает единицу.

Отметим, что аналогичная ситуация наблюдается и при дифракционной фокусировке с помощью френелевских линз, когда из существующих разных порядков дифракции только один соответствует фокусировке. Тем не менее, в случае френелевских линз, исходя из особенностей геометрии распространения лучей с различными порядками дифракции, удается блокировать нежелательные порядки дифракции применением системы из экранов, называемой “order sorter”.

Вышеотмеченное большое значение отношения интенсивностей сигнал–фон при дифракционной фокусировке узкого рентгеновского пучка на двухблочной кристаллической системе обусловлено лишь большой областью распространения фонового излучения на сформированном изображении. Однако при широком исходном пучке, когда рассматривается передача изображения от входной поверхности кристаллической системы к выходной, по мере увеличения светлых областей исходного изображения уровень фона в сформированном изображении возрастает, доходя до значений порядка уровня сигнала. В связи с этим искажения, вызванные интерференционными явлениями между волнами сигнал–фон и между волнами фон–фон, становятся значительными на сформированном изображении.

3. Влияние когерентности исходного излучения на качество сформированного изображения

С целью исследования влияния когерентности исходного излучения на качество сформированного изображения методом численного моделирования рассмотрена экспериментальная схема, аналогичная схеме, использованной в работе [4] (см. рис.1).

Непосредственно над входной поверхностью двухблочной кристаллической системы расположена маска (M) с неоднородным распределением коэффициента пропускания. В качестве такой маски можно использовать просто щель с шириной от нескольких мкм до нескольких десятков мкм, различные виды амплитудных дифракционных решеток, сетки и так далее. Исходная рентгеновская волна,

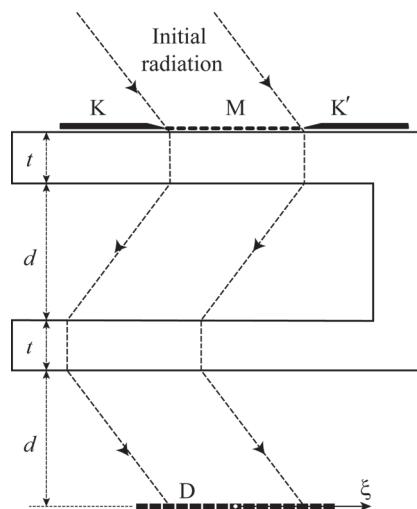


Рис.1. Схема устройства передачи изображения на основе двухблочной кристаллической системы: М – маска, генерирующая исходное изображение, D – детектор, К и К' – ножки, ξ – координатная ось на детекторе.

проходя сквозь маску падает на кристаллическую систему под углом Брэгга. Используется симметричное лауэвское отражение Si(220), толщина кристаллических блоков $t = 450$ мкм. Изображение маски (амплитудный контраст) регистрируется на детекторе (D). Для подавления хроматических aberrаций детектор удален от выходной поверхности второго кристаллического блока на расстояние, равное ширине межблочной щели.

Моделирование формирования изображения проведено как для некогерентного, так и когерентного исходных излучений. В первом случае используется плоская монохроматическая волна с длиной волны равной длине волны характеристического излучения $\text{MoK}\alpha_1$ и падающая под точным углом Брэгга. Во втором случае – характеристическое излучение $\text{MoK}\alpha_1$ от широкофокусной рентгеновской трубки. При этом, размер источника в плоскости рассеяния $a = 400$ мкм, а расстояние от источника до кристаллической системы $L = 0.3$ м. Радиус пространственной когерентности исходного излучения вдоль входной поверхности кристаллической системы составляет $r_c = \lambda L / (a \cos \theta_B) = 0.05$ мкм, что намного меньше полуширины фокусного пика образованного на выходе от кристаллической системы, при исходной δ -образной волне ($\Delta \ln 2$), то есть теоретического предела разрешающей способности устройства. Ширина спектральной линии характеристического излучения описана смещением источника рентгеновских лучей вдоль нормали к направлению распространения излучения на расстояние $L\Delta\theta_B = (\Delta\lambda/\lambda)L \tan\theta_B$ для монохроматической компоненты с длиной волны $\lambda + \Delta\lambda$, где λ – средняя длина волны спектральной линии, а $\Delta\theta_B$ – изменение брэгговского угла при переходе длины волны излучения от λ к $\lambda + \Delta\lambda$. Такой упрощенный подход учета полихроматичности оправдан малой шириной спектральной линии характеристического излучения ($\Delta\lambda/\lambda \ll 1$).

На графиках рис.2 совмещены пространственное распределение коэффициентов пропускания маски (тонкая сплошная линия) с его моделеванным изображением для когерентного (пунктирная линия) и некогерентного (жирная сплошная линия) излучений. Расчеты представлены для различных масок. В случае маски в виде единичной узкой щели (рис.2a) изображения для обоих источников почти совпадают. Наблюдается резкий пик со слабыми фоновыми осцилляциями. В случае масок с большей долей прозрачных областей (рис.2b–d) резко увеличивается относительная интенсивность фона. При когерентном источнике рентгеновского излучения наличие сильного фона приводит к интерференционным искажениям, иногда даже в виде артефактов. В частности, на рис.2b и 2c светлые полосы маски удваиваются, а на рис.2d в непрозрачных частях маски появляются частично прозрачные полосы. При некогерентном источнике фон хотя по-прежнему сильный, но сравнительно гладкий и меньше искажает изображение.

Таким образом, в задаче передачи изображения использование некогерентных источников (в нашем случае широкофокусной рентгеновской трубки) предпочтительно с точки зрения подавления так называемых интерференционных искажений, приводящих к неоднозначностям отображения.

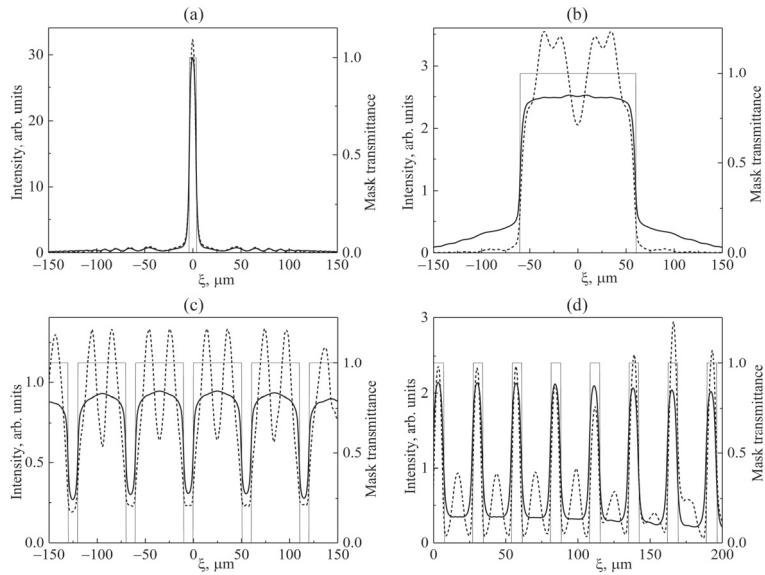


Рис.2. Фрагменты пространственного распределения коэффициентов пропускания разных масок (тонкие сплошные линии, правая ось значений) и их отображения (левая ось значений), при когерентном (пунктирные линии) и некогерентном (жирные сплошные линии) исходном излучении.

4. Схема со сканированием

В качестве более радикального метода борьбы с фоном предлагается схема со сканированием (рис.3). Экран в виде узкой щели, состоящий из двух расположенных друг против друга ножей, размещается перед маской. Щель направлена перпендикулярно плоскости рассеяния. Другая такая же щель располагается перед детектором параллельно первому таким образом, чтобы он пропускал изображение первой щели и блокировал большую часть фона. Изображение маски регистрируется синхронным сканированием обеих щелей. С одной стороны, чем меньше ширина щелей, тем большая часть фона блокируется и тем выше качество

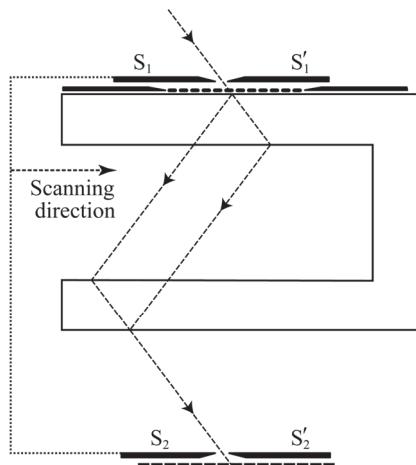


Рис.3. Схема устройства передачи изображения со сканированием: $S_1S'_1$ и $S_2S'_2$ – синхронно перемещающиеся щели перед маской и детектором, соответственно.

изображения. С другой стороны, сужение щелей увеличивает время экспозиции.

На рис.4 представлены результаты численного моделирования изображений, получаемых такой схемой. Ширина щелей выбрана 50 мкм. Остальные параметры эксперимента те же, что и в случае рис.2. Для рис.4а использована маска от рис.2с, а для 4б – от рис.2д. Моделированные изображения масок при схеме со сканированием представлены жирными сплошными линиями. Для сравнения пунктиром представлены аналогичные кривые при схеме без сканирования (жирные кривые на рис.2с и 2д). Как видно из рисунков, применение сканирования даже со щелями шириной 50 мкм резко снижает фон и предметы отображаются точнее. Аналогичные расчеты для более узких щелей приводят к еще лучшим результатам.

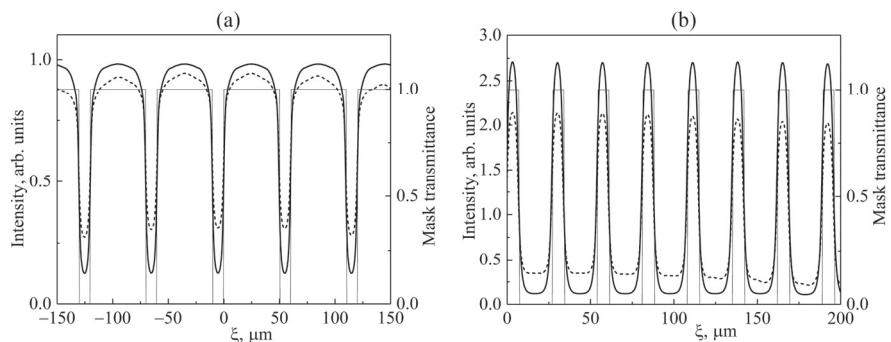


Рис.4. Фрагменты изображений (левая ось значений), полученных с помощью устройств со сканированием (жирные сплошные линии) и без сканирования (пунктирные линии) для различных масок (тонкие сплошные линии, правая ось значений). Использован некогерентный источник рентгеновских лучей.

5. Заключение

Рассмотрена задача передачи рентгеновского изображения с помощью дифракционной линзы на основе двухблочной кристаллической системы. Важным недостатком такой схемы является слишком высокий фон. Показана, что отношение потоков энергий сигнал–фон ~ 2 . Методом численного моделирования показано, что использование некогерентного источника позволяет смягчить этот недостаток, подавляя так называемые интерференционные шумы и неоднозначности отображения.

В качестве более радикального метода борьбы с фоном рассмотрена схема со сканированием. Резкое подавление фона в этой схеме достигается за счет увеличения экспозиции.

Работа выполнена при финансовой поддержке комитета по высшему образованию и науке МОНКС РА и гранта ANSEF 23AN:PS-opt-2992.

Приложение 1.

Целью данного приложения является оценка отношения энергетических потоков сигнал–фон изображения при исходной δ -образной волне. Согласно [1], при падающем узком пучке под точным брэгговским направлением напряженность дважды отраженного поля во втором кристаллическом блоке представляется выражением

$$E(x, z_1, z_2) \sim \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\sin \Omega z_1 \sin \Omega z_2}{\Omega^2} \exp(i \omega x) d\omega, \quad (1)$$

где $\Omega = \sqrt{\omega^2 + \chi^2/4}$. Здесь использована определенная в работе [10] безразмерная координатная система (x, z) в плоскости рассеяния с осями x – параллельной и z – перпендикулярной входным и выходным поверхностям кристаллических блоков. При этом z_1 – толщина первого кристаллического блока, а z_2 – глубина рассматриваемой точки во втором кристаллическом блоке.

Переходя в (1) от синусов к экспонентам, с точностью до несущественного постоянного множителя получаем

$$E(x, z_1, z_2) = E_1(x, z_1, z_2) + E_2(x, z_1, z_2), \quad (2)$$

где

$$\begin{aligned} E_1(x, z_1, z_2) &= \frac{1}{2} \sum_{v=\pm 1} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\{i(v\Omega\delta + \omega x)\} \frac{d\omega}{\Omega^2} = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\cos(\Omega\delta)}{\Omega^2} e^{iv\omega x} d\omega, \\ E_2(x, z_1, z_2) &= -\frac{1}{2} \sum_{v=\pm 1} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\{i(v\Omega Z + \omega x)\} \frac{d\omega}{\Omega^2} = -\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\cos(\Omega Z)}{\Omega^2} e^{iv\omega x} d\omega, \end{aligned} \quad (3)$$

$Z = z_2 + z_1$, $\delta = z_2 - z_1$. Поле $E_1(x, z_1, z_2)$ соответствует вышеупомянутым лучам, претерпевающим межвзвесьевое рассеяние при переходе от первого кристаллического блока к второму и фокусирующихся при $z_2 = z_1$, а $E_2(x, z_1, z_2)$ – лучам, не претерпевающим межвзвесьевое рассеяние, расходящихся и образующих фон. В этом можно убедиться применением метода стационарной фазы к интегралам под знаками сумм в (3), что при $\delta\chi \gg 1$ для траекторий лучей во втором блоке приведет к

$$x = \mp \frac{\omega}{\sqrt{\omega^2 + \chi^2/4}} \delta, \quad (-\infty < \omega < +\infty)$$

для слагаемых поля E_1 и

$$x = \mp \frac{\omega}{\sqrt{\omega^2 + \chi^2/4}} Z, \quad (-\infty < \omega < +\infty)$$

для слагаемых поля E_2 .

Из (3) с применением теоремы Парсеваля для энергетических потоков полей E_1 и E_2 , при $z_2 = z_1$ получим соответственно

$$\begin{aligned} \Phi_1 &\equiv \int_{-\infty}^{+\infty} |E_1(x)|^2 dx = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{\Omega^4} = \frac{8}{\chi^3} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dp}{(p^2 + 1)^2}, \\ \Phi_2 &\equiv \int_{-\infty}^{+\infty} |E_2(x)|^2 dx = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\cos^2(\Omega Z)}{\Omega^4} d\omega = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1 + \cos(2\Omega Z)}{\Omega^4} d\omega \\ &= \frac{4}{\chi^3} \left[\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dp}{(p^2 + 1)^2} + \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\cos(\sqrt{p^2 + 1} Z\chi)}{(p^2 + 1)^2} dp \right]. \end{aligned}$$

Используя табличный интеграл $\int_{-\infty}^{+\infty} (p^2 + 1)^{-2} dp = \pi/2$ и вычисляя последний интеграл третьей строки по методу стационарной фазы, при $Z\chi \gg 1$ получаем

$$\Phi_1 = \frac{4\pi}{\chi^3}, \quad \Phi_2 \approx \Phi_1 \left[\frac{1}{2} + \sqrt{\frac{2}{\pi Z\chi}} \cos\left(\frac{\pi}{4} + Z\chi\right) \right] \approx \frac{\Phi_1}{2}.$$

Таким образом, при $\delta = 0$ и $Z\chi \gg 1$ отношение энергетических потоков сигнал–фон близко к 2.

Отметим, что при переходе от безразмерных координат к нормальным, условие $Z\chi \gg 1$ приводится к виду $2\pi(t_1 + t_2)/\Lambda \gg 1$, где t_1 и t_2 – соответственно толщины первого и второго кристаллических блока в нормальный размерности.

ЛИТЕРАТУРА

1. V.I. Indenbom, I.S. Slobodetskii, K.G. Truni, Sov. Phys. JETP, **39**(3), 542 (1974).
2. A. Authier, Dynamical Theory of X-Ray Diffraction, Oxford, Oxford University Press, 2001.
3. E.V. Suvorov, V.I. Polovinkina, JETP Lett., **20**(5), 145 (1974).
4. V.L. Indenbom, G.M. Aladzhadzhyan, Dokl. Akad. Nauk SSSR [in Russian], **227**(4), 827 (1976).
5. V.L. Indenbom, E.V. Suvorov, JETP Lett., **23**(9), 441 (1976).
6. V.L. Indenbom, E.V. Suvorov, I.S. Slobodetskii, Sov. Phys. JETP, **44**(1), 187 (1976).
7. V. Levonian, Mezhvuzovskiy sbornik nauchnykh trudov (Interuniversity collection of scientific papers) [in Russian], Yerevan, Yerevan State University Publishing House, 42 (1984).
8. A.M. Egiazaryan, K.G. Truni, A.R. Mkrtchyan, JETP Letters, **68**(9), 711 (1998).
9. U. Bonse, M. Hart, Applied Physics Letters, **6**(8), 155 (1965).
10. V.L. Indenbom, F.N. Chukhovskii, Sov. Phys. Usp., **15**, 298 (1972)

IMPROVING THE QUALITY OF X-RAY IMAGES FORMED BY A DIFFRACTION LENS FROM A TWO-BLOCK CRYSTALLINE SYSTEM

L.A. HAROUTUNIAN

The possibility of improving the quality of X-ray images formed using diffraction on a two-block crystalline system is considered. It is shown that low spatial coherence of the initial radiation improves image quality. Conventional wide-focus X-ray tubes can be used as a source for such radiation. The feasibility of using a scanning scheme to reduce the background level in the formed image was also considered by numerical simulation.

Известия НАН Армении, Физика, т.58, №4, с.660–664 (2023)

УДК 539.1.07; 539.16.07

DOI:10.54503/0002-3035-2023-58.4-660

ВАКУУМНОЕ ОКНО ДЛЯ ПУЧКОПРОВОДА ЦИКЛОТРОНА IVA C18 TWIN

А.А. МАНУКЯН

Национальная Научная Лаборатория им. А. Алиханяна, Ереван, Армения

*e-mail: a.manukyan@aanl.am

(Поступила в редакцию 27 ноября 2023 г.)

Приведены данные по разработке и созданию вакуумного окна, которое позволит вывести протонный пучок циклотрона C18 (IVA, Бельгия) с энергией 18 МэВ из вакуумной среды в атмосферу. Модуль вакуумного окна сделан из алюминия и состоит из фланца с коллиматором и камеры гелиевого (Не) охлаждения листов фольги. Модуль установлен на конце пучкопровода циклотрона. Произведены измерения профилей для различных значений тока протонного пучка от 1 до 30 мкА. Вакуумное окно показало свою работоспособность.

1. Введение

Циклотрон C18 (IVA, Бельгия) [1] предназначен для изготовления медицинских изотопов. Циклотрон установлен в ЗАО «Центр по Производству Изотопов» [2]. Для нужд экспериментаторов Национальной Научной Лаборатории им. А. Алиханяна НИЛА (Ереванский физический институт) организован вывод пучка в экспериментальный зал. С этой целью был оборудован пучкопровод, оканчивающийся модулем твердотельной мишени. Многие отделы и лаборатории НИЛА проводят на нем свои исследовательские проекты, от производства изотопов и ядерной физики до материаловедения [3–6].

Но также есть эксперименты, при которых нужен «открытый» пучок (в атмосфере), в том числе и эксперименты, связанные с исследованиями по получению радиоизотопов. Подобные эксперименты для получения медицинских радиоизотопов с выведенным пучком на самодельном мишленном модуле ставились и на линейном электронном ускорителе LUE-50/75 НИЛА [7–17]. Данная техника используется в мире уже давно. Приняв во внимание все эти аспекты, в «Отделе исследования и производства изотопов» НИЛА был разработан и создан модуль вакуумного окна, который позволяет вывести протонный пучок в атмосферу.

2. Вакуумное окно

Вся система циклотрона и пучкопровода находится под вакуумом; это сделано для того, чтобы протонный пучок во время ускорения и облучения мишеней на своем пути встречал по возможности мало частиц. Вакуумное окно, которое позволяет вывести пучок из вакуумной среды в атмосферу, должно соответствовать некоторым условиям: фольга окна должна быть максимально тонкой, для

того чтобы протонный пучок терял в ней минимальное количество энергии; материал всего модуля должен, по возможности, мало активироваться во время облучения для удобства последующего обслуживания; модуль должен быть оснащен коллиматором для формирования пучка; окно и коллиматор должны охлаждаться, поскольку пучок, падая на них, выделяет тепло, которое должно отводиться.

Взяв за основу вышеперечисленные критерии и опыт по работе и обслуживанию модуля твердотельных мишеней Nirta Solid Compact Model TS06 компании ELEX Comerce [18], было разработано вакуумное окно (оконный модуль). Модуль состоит из следующих частей (рис.1): Фланец с коллиматором, который позволяет подсоединить его к выходу пучкопровода, охлаждается с помощью воды и герметично закрыт крышкой. Фланец с коллиматором и вакуумное окно разделены тefлоновым изолятором, что позволяет считывать значения тока с коллиматора. Это нужно для регулирования пучка, для получения наилучшего выхода. Само окно состоит из двух листов фольги нержавеющей стали толщиной в 50 мкм каждая, а между ними находится камера гелиевого охлаждения. В качестве охладителя был выбран чистый гелий учитывая его теплообменную характеристику. Отверстие коллиматора, которое проходит через все вакуумное окно имеет диаметр в 12 мм.

Вакуумное окно разработано и произведено в НИЛА, и было установлено на пучкопровод для дальнейших испытаний.

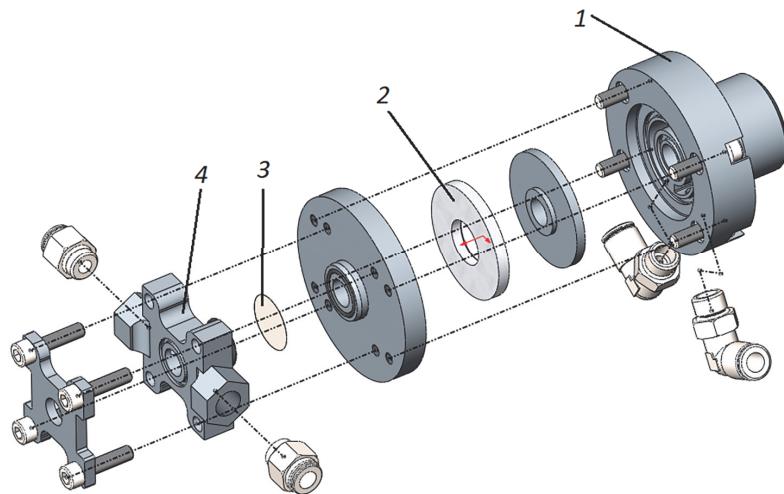


Рис.1. Конструкция вакуумного окна: 1 – коллиматор-фланец, 2 – изолятор, 3 – окно (фольга) из нержавеющей стали, 4 – камера гелиевого охлаждения.

3. Выбор материалов и испытания

Корпус модуля сделан из алюминия, поскольку алюминий очень мало активируется под протонным пучком данной энергии. В нем производится только два радиоактивных изотопа: ^{26}Al с периодом полураспада в 7.17×10^5 года и ^{27}Si периодом полураспада в 4.15 сек (рис.2). Для расчетов были взяты за основу данные веб ресурса «TALYS-based evaluated nuclear data library TENDL-2019» [19].

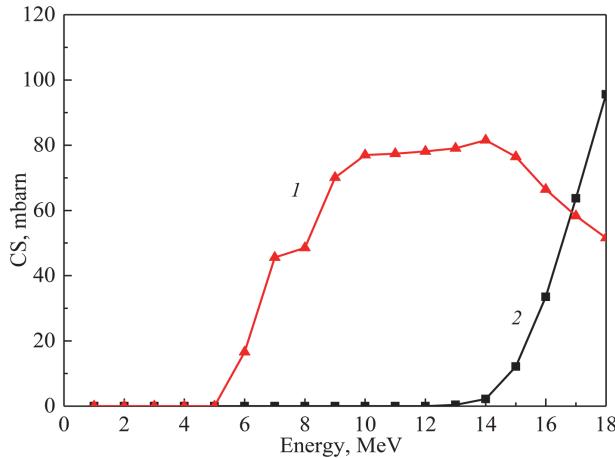


Рис.2. Сечения всех возможных радиоизотопов, которые производятся в алюминии с помощью реакции $^{27}\text{Al}(\text{p},\text{x})$ при энергии до 18 МэВ: 1 – ^{27}Si ($T_{1/2} = 4.7$ сек), 2 – ^{26}Al ($T_{1/2} = 7 \times 10^5$ года).

Все соединения и фитинги выполнены из нержавеющей стали, а прокладки из материала NBR (nitrile butadiene rubber), который не производит газов под вакуумом. Выбор фольги пал на имеющуюся в наличии нержавеющую сталь толщиной в 50 мкм. Согласно расчетам и симуляции программой TRIM/SRIM [20], протонный пучок, проходя через два листа фольги и гелиевый слой, теряет около 1.5 МэВ энергии.

После инсталляции, модуль был протестирован под пучком 1 мкА и выдержал нагрузки. Не было замечено деформаций или повреждений фольги, теплообмен прошел нормально, не было утечки воды из коллиматора, была замечена только маленькая утечка гелия, которая впоследствии была устранена. После всех тестов был измерен профиль пучка, с помощью станции вибрирующих струн [21]. Измерения были проведены на расстоянии в 62 мм от конца модуля, результаты приведены на рис.3.

После того как модуль доказал свою работоспособность было решено модернизировать его, что позволит также измерять интенсивность пучка, который будет проходить через него. Модуль был оснащен вторым токосъемником,

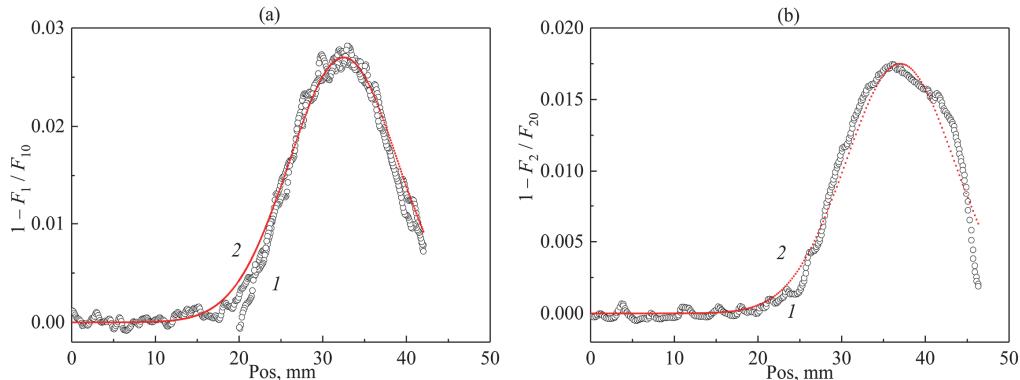


Рис.3. Профиль пучка (а) в горизонтальной и (б) в вертикальной плоскостях:
1 – экспериментальные данные, 2 – фитирование по Гауссу.

который считывает ток с выходного окна для того, чтобы экспериментаторы имели всю информацию о пучке. С такой конфигурацией было произведено тестовое облучение длительностью три часа, ток пучка менялся от 1 до 30 мА шагом 1 мА каждые 5–6 минут. Модуль выдержал все нагрузки, листы фольги не были повреждены. В течение облучения также был измерен профиль пучка с различными интенсивностями. Было замечено, что без каких-либо вмешательств оператора в коррекцию положения пучка, его центр, при включении циклотрона, смещен влево и вверх, если смотреть на пучок (рис.4).

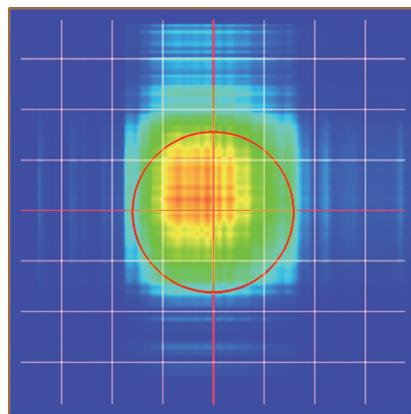


Рис.4. Реконструкция профиля пучка при токе $I_p = 5$ мА.

4. Заключение

Разработан и испытан модуль вакуумного окна для вывода протонного пучка из пучкопровода циклотрона С18 (IBA, Belgium) в атмосферу с энергией 18 МэВ. Материалы, такие как алюминий, для корпуса модуля, все прокладки и фитинги были выбраны правильно, но в будущем планируется испытать другие материалы вместо нержавеющей стали для фольги. Произведенные облучения показали, что модуль выдерживает пучок интенсивностью до 30 мА. Данный модуль — это первый шаг в разработке специального оборудования для циклотрона и пучкопровода отделом по Исследованию и производству изотопов. Опыт, полученный во время работы над этим устройством, помог нам понять возможные проблемы, которые могут появиться во время проектирования следующих устройств, таких как модули с автозагрузкой мишенных материалов и других специальных мишенных модулей.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Комитета по высшему образованию и науке МОНКС РА в рамках научного проекта № 21Т-2G279.

ЛИТЕРАТУРА

1. <https://www.iba-radiopharmasolutions.com/cyclotrons>.
2. <https://www.petct-armenia.am/en/>.
3. G.H. Hovhannisyan, T.M. Bakhshyan, G.V. Martirosyan, R.K. Dallakyan, A.R. Balabekyan. The European Physical Journal A, **59**, 161 (2023).
4. R.V. Avetisyan, A.G. Barseghyan, Yu.A. Garibyan, A.V. Gyurdjinyan, I.A. Kerobyan, H.A. Mkrtchyan. J. Contemp. Physics, **56**, 1 (2021).
5. C.R. Ader, M.L. Alvarez, J.S. Batko, R. Campos, M.W. McGee, A.C. Watts.

- Accelerator Vacuum Windows. Int. Particle Accelerator Conf. (10th), 2237–2239 (2019).
6. **V.V. Arzumanyan.** Armenian Journal of Phys., **15**, 7 (2022).
 7. **R.H. Avagyan, A.E. Avetisyan, I.A. Kerobyan, S.P. Taroyan, A.S. Danagulyan, R.M. Mirzoyan, K.S. Bunyatov, R.Ts. Sargsyan, S.A. Galumyan, V.S. Yeganov, A.A. Ogan- esyan, H.S. Vartanyan, V.B. Gavalyan, V.Ts. Nikogosyan, V.S. Ayrapetyan, A.Z. Ba- bayan, A.A. Matosyan, S.V. Jamkochyan, R.K. Dallakyan.** J. Contemp. Phys., **47**, 5 (2012).
 8. **R.K. Dallakyan.** Armenian Journal of Physics, **6**, 45 (2013).
 9. **R.H. Avakian, A.E. Avetisyan, R.K. Dallakyan, I.A. Kerobyan.** Armenian Journal of Physics, **6**, 35 (2013).
 10. **R.H. Avagyan, A.E. Avetisyan, R.K. Dallakyan, I. A. Kerobyan.** Nuclear Medicine and Biology, **41**, 705 (2014).
 11. **A.S. Danagulyan, G.H. Hovhannisyan, T.M. Bakhshyan, R.H. Avagyan, A.E. Avetisyan, I.A. Kerobyan, R.K. Dallakyan.** Physics of Atomic Nuclei, **77**, 1313 (2014).
 12. **R.H. Avagyan, A.E. Avetisyan, I.A. Kerobyan, R.K. Dallakyan, G.H. Hovhannisyan, A. Melkonyan.** EPJ Web of Conferences, **93**, 08001 (2015).
 13. **A.S. Danagulyan, G.H. Hovhannisyan, T.M. Bakhshyan, R.H. Avagyan, A.E. Avetisyan, I.A. Kerobyan, R.K. Dallakyan.** Physics of Atomic Nuclei, **78**, 447 (2015).
 14. **R.H. Avagyan, A.E. Avetisyan, R.K. Dallakyan, I. A. Kerobyan, G.S. Harutyunyan, G. Avdalyan, N. Dobrovolsky. V. Gavalyan.** Nuclear Medicine and Biology, **47**, 44 (2017).
 15. **G.H. Hovhannisyan, T.M. Bakhshyan, R.K. Dallakyan.** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms., **498**, 48 (2021).
 16. **R.V. Avetisyan, A.E. Avetisyan, A.G. Barseghyan, R.K. Dallakyan, Yu.A. Gharibyan, A.V. Gyurjinyan, I.A. Kerobyan, H.A. Mkrtchyan.** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms., **507**, 7 (2021).
 17. **M. Krmar, N. Jovančević, D. Maletić, Ž. Medić, D. Knežević, M. Savić, Yu. Teterev, S. Mitrofanov, K. D. Timoshenko, S. I. Alexeev, H. Marukyan, I. Kerobyan, R. Avetisyan, L. Poghosyan, R. Dallakyan, A. Hakobyan, L. Vahradyan, H. Mkrtchyan, A. Petrosyan.** The European Physical Journal A, **59**, 170 (2023).
 18. <https://www.elexcomm.com/product/539d84643beb6ec14b00000d>.
 19. https://tendl.web.psi.ch/tendl_2019/tendl2019.html.
 20. <http://www.srim.org>.
 21. **M.A. Aginian, A.P. Aprahamian, S.G. Arutunian, G.S. Harutyunyan, E.G. Lazareva, L.M. Lazarev, A.V. Margaryan, L.A. Shahinyan, R.K. Dallakyan, A.A. Manukyan, V.K. Elbakyan, G.A. Hovhannisyan, G.E. Elbakyan, M. Chung, D. Kwak.** J. Contemp. Physics, **56**, 297 (2021).

VACUUM WINDOW FOR IBA C18 TWIN CYCLOTRON'S BEAMLINE

A.A. MANUKYAN

This article provides data on the development and creation of a vacuum window module, which will bring out the proton beam of the C18 cyclotron (IBA, Belgium) with energy of 18 MeV from a vacuum environment into the atmosphere. The module is made of aluminum and consists of a flange with collimator and a helium (He) cooling chamber for foil. It was installed at the end of the cyclotron's beam line. Profile measurements were made for proton beam various current values from 1 to 30 μ A. The window module showed its functionality.